

先进复合材料构件热压罐成型工艺研究进展

李树健¹, 湛利华¹, 彭文飞^{1,2}, 周源琦¹

(1. 中南大学, 湖南 长沙 410083)

(2. 宁波大学, 浙江 宁波 315211)

摘要: 先进树脂基复合材料在航空航天领域的应用日趋广泛, 热压罐成型工艺已成为航空航天领域复合材料主承力和次承力结构件成型的首选工艺之一。影响复合材料构件热压罐固化成型质量的主要因素有: 由热压罐和工装系统构成的成型制造外部温度场、压力场及其作用时间, 由构件复杂结构及材料相变特性构成的内部热力场等。综述了近年先进树脂基复合材料热压罐固化成型工艺的主要研究进展, 并结合国内外研究现状, 对热压罐成型工艺的发展趋势及亟需解决的问题提出了几点思考。

关键词: 热压罐成型; 温度场; 压力场; 发展趋势

中图分类号: TB33

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2015)11-2927-05

先进树脂基复合材料 (Advanced Polymer Matrix Composites), 主要是指以树脂作为承力载体, 用碳纤维等高性能增强相增强的复合材料^[1]。自 20 世纪 60 年代中期间世以来, 由于其可设计性、材料与结构的同一性、密度小、比强度高、耐腐蚀、独特的电热性能, 以及便于大面积整体成型等显著优点, 与传统钢、铝合金结构材料相比, 综合性能更优越, 使其在航空航天等高科技领域得到了广泛应用^[2,3]。图 1 为 A380 飞机使用的复合材料分布情况^[4]。

热压罐成型工艺是聚合物基复合材料构件成型的主要方法之一, 由于其广泛应用于先进复合材料结构、蜂窝夹芯结构及复合材料胶接结构的成型, 已成为航空航天领域的主承力和次承力结构件成型的首选工艺。本研究主要基于热压罐固化成型工艺特点、加热方式以及构件成型质量的主要影响因素等方面,

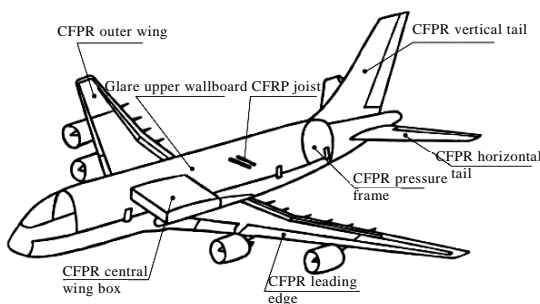


图 1 A380 飞机上复合材料的应用分布图

Fig.1 Application of composite material on A380^[4]

对当前国内外热压罐固化成型工艺研究现状进行了综述。同时, 对热压罐成型工艺过程亟需解决的问题提出了思考。

1 热压罐成型工艺特点

热压罐成型工艺是将复合材料毛坯、蜂窝夹芯结构或胶接结构用真空袋密封在模具上, 置于热压罐中, 在真空 (或非真空) 状态下, 经过升温→加压→保温 (中温或高温)→降温 and 卸压等过程, 使其成为所需要的形状和质量的成型工艺方法^[5]。图 2 为典型热压罐工艺示意图。其主要特点如下: (1) 罐内压力均匀; (2) 罐内空气温度均匀; (3) 适用范围较广, 模具相对简单, 效率高, 适合大面积复杂型面的蒙皮、

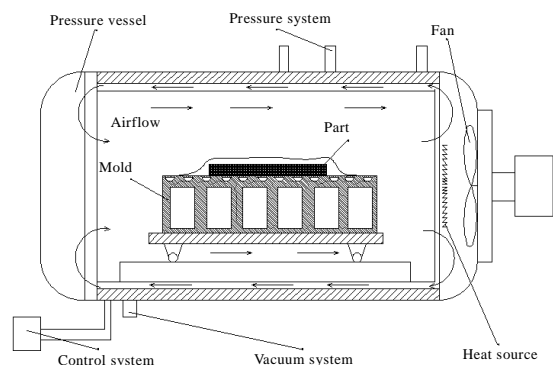


图 2 典型热压罐工艺示意图

Fig.2 Typical diagram of autoclave process

收稿日期: 2014-11-24

基金项目: 国家重点基础研究发展计划 (“973” 计划) (2014CB046502)

作者简介: 李树健, 男, 1982 年生, 博士, 中南大学轻合金研究院, 湖南 长沙 410083, E-mail: smart0110@126.com

壁板和壳体的成型；(4) 成型工艺稳定可靠。

但是，热压罐成型工艺也存在诸如生产效率低、成本较大、环境污染等缺点。因此，对热压罐成型工艺的研究，应着重放在优化固化工艺路线，使其向着能源节约型、环境友好型、效率最大化方向发展。

2 热压罐加热方式及控温精度

图 3 为典型热压罐设备示意图。目前，国内热压罐普遍采用电热丝与电热管远红外线 2 种加热方式进行升温。航空材料研究院研制的有效尺寸 $\Phi 4400$ mm \times 12500 mm 热压罐成为目前国内最大的热压罐，其采用电热丝加热得到的控温精度为：(1) 室温 \sim 120 $^{\circ}\text{C}$ 时 $\leq\pm 1$ $^{\circ}\text{C}$ ；(2) 120 \sim 250 $^{\circ}\text{C}$ 时 $\leq\pm 2$ $^{\circ}\text{C}$ ，有效空间温度场空载温度均匀性偏差为 ± 4 $^{\circ}\text{C}$ 。西安龙德热压罐设备有限公司针对有效尺寸 $\Phi 1000$ mm \times 1500 mm 的热压罐同样利用电热丝加热方式升温，通过 8 个 K 型热电偶均匀分布，测得恒温空载温度均匀性偏差达到 ± 2 $^{\circ}\text{C}$ 。山东众泰达热压罐设备有限公司对 $\Phi 800$ mm \times 1000 mm 有效尺寸热压罐，采用远红外线直接加热，同时配备热风循环组合装置，使罐内温度偏差保持在 ± 1 $^{\circ}\text{C}$ 。

高玉峰^[6]等借助于 ANSYS 软件，采用数值计算方法模拟热压罐内部升温过程，并通过物理实验数据进行测量得出，实测值与仿真计算值的温度误差为 $-4.5\sim+2$ $^{\circ}\text{C}$ 。美国 Boeing 标准^[7]关于热压罐内气氛温度场均匀性规定：对于每约 10000 立方英尺的热压罐内区域，热压罐进入保温状态后，其热电偶检测值误差不超过 ± 5.5 $^{\circ}\text{C}$ 。因此，王永贵^[8]认为热压罐空载温度场均匀度较好，研究较为成熟，已经形成工程验收化标准。

然而，对于热压罐加热方式及内部温度场，目前基本局限在采用单一加热方式并利用罐内热机鼓风加热的研究上。对于小型热压罐，这样的加热方式尚且能保证罐内温度达到预定值，但对于大型热压罐，



图 3 典型热压罐设备

Fig.3 Typical autoclave equipment

尤其是生产变厚、内部结构复杂的构件，在升温较短时间内很难使罐内温度达到均匀，极易使构件内部薄弱处首先引起固化放热反应，而厚壁部位延迟，造成非均匀性固化的缺陷。作者认为，今后热压罐设计应从加热方式上进行一系列研究，采用多方位、多层次、多种类热场耦合加热方式，保证固化热场环境呈现多维均匀固化。

3 构件固化变形及内部缺陷的影响因素

在热压罐复合材料构件制造工艺中，构件质量缺陷主要表现在外部成形尺寸与内部成性两大方面，外部成形尺寸缺陷主要指构件固化变形导致的成形精度误差等方面，而内部成性性能缺陷主要包括由构件内部分层、孔隙、气孔、富脂等引起的构件各种强度、模量、抗疲劳性能及高温性能严重下降等缺陷。热固性复合材料构件固化需要加热与加压，加热用于控制树脂基体内化学反应，加压则用于挤出预浸料中过量的树脂，使构件固化压实并减小孔隙率。可见，优化固化工艺路线中温度、压力与时间的对应关系是保证构件固化质量的重要前提。

复合材料构件内部温度分布主要与树脂固化反应的放热有关，热压罐成型工艺固化过程的温度分布本质上是一个具有非线性热源的热传导问题，热源来自树脂放热化学反应。构件结构的复杂多变，使放热反应导致构件局部温度较高，形成复杂的温度梯度分布，结果将导致非均匀固化，产生固化变形等内部缺陷。另外，在成型过程中，由于复合材料构件的一端与模具的型面直接接触，材料间的热膨胀系数差异以及树脂的固化反应收缩，均会在构件内部产生残余应力，进而间接引起构件的固化变形。同时，复合材料构件中纤维的浸润、纤维的压实及树脂基体中孔隙的形成又与压力密切相关。因此，由热压罐和工装系统构成的外部环境温度场、环境压力场及其作用时间，由构件复杂结构及材料相变特性构成的内部热力场，成为热压罐复合材料构件成形成性质量控制的 3 个主要因素。

3.1 环境温度场对构件成型质量的影响

3.1.1 从理论方面研究环境温度场对成型质量影响

国内何颖^[9]等指出模具应具有良好的热传导性和热稳定性，防止加热固化变形，影响产品质量。赵渠森^[10]等认为，在热压罐成型过程中选用薄壁框架式模具结构，可减少模具在升(降)温过程中因各部位温度不均匀引起的模具变形。Li Jun、Yao Xuefeng^[11]等人通过对 T 型整体化结构建立固化变形理论分析模型，得

出模具与复合材料构件间热不匹配是导致构件固化变形的又一主要因素。齐乐华^[12]等基于辐射传热原理，建立了液固挤压复合材料过程模具传热的非稳态有限元模型，得到模具温度场对成型过程的影响规律。

3.1.2 从试验方面研究环境温度场对成型质量的影响

国内侯进森^[13]等分别对热压罐成型工艺过程中试验环境温度的升温速率、固化温度、保温时间等 3 个工艺参数进行系统的实验研究发现，较高环境温度会使层合板的孔隙率有一定程度增加，而较低环境温度会导致各项同性压缩性能降低，在凝胶点和玻璃化转变温度之前，采用较低升温速率会导致压缩性能下降和孔隙率增加。梁宪珠^[14]等研究了一种框架式模具结构，并指出该结构有利于模具各点温度均匀，成型精度高。岳广全^[15]等采用光纤光栅监测方法，对热压罐成型复合材料构件由沿厚度方向和面内的固化残余应力发展进行了试验研究，得出：复合材料与模具之间的热不匹配会导致的固化残余应变，该应变会引起构件固化后的翘曲变形，变形以沿纤维方向为主。

国外 Fernlund^[16,17]等人研究了 C 型和 L 型构件的固化变形，指出构件变形与固化制度、固化模具有着密切的关系。Magali Duval^[18]研究了碳纤维环氧树脂复合材料模具的传热机制，并对模具三维瞬态温度场进行了试验对比。

3.2 内部热力场对构件成型质量的影响

Gillham^[19]使用固化相图（又称 TTT 图）对树脂内放热反应过程的物态转变进行了形象描述（见图 4）。在固化放热阶段，基体内存在物态变化和体积收缩的现象，而固化交联反应完成的程度又会直接影响复合材料构件自身的最终力学性能，从而使构件产生固化变形和内部缺陷。尤其对于厚度较大且厚度梯度较为明显的复杂构件，极易由于反应放热不同造成构件温度分布不均匀而形成温度梯度，导致固化度离散分布，致使复合材料构件质量受到影响。因此，在复合材料构件固化过程中，应避免构件各处固化度出现较大波动。

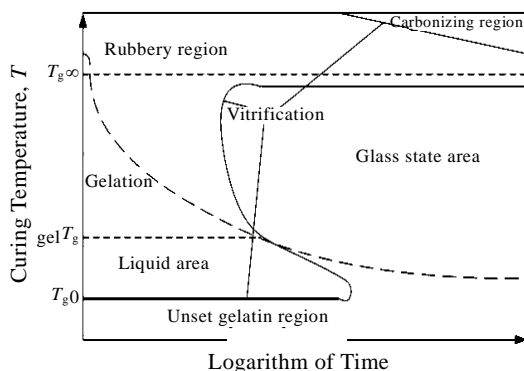


图 4 固化相图

Fig.4 Curing phase diagram^[19]

3.2.1 从理论方面研究复杂结构及内部热力场对成型

质量影响

李艳霞^[34]模拟了固化后 L 型构件的密实和变形情况，指出拐角区纤维层的剪切模量不可忽略。张纪奎^[20,21]等采用三维有限元方法，对正交各向异性复合材料层合板固化过程进行数值模拟，其研究方法可直接应用于大型复杂复合材料结构固化过程模拟和变形计算，同时还指出，固化收缩对层合板变形曲率影响很小。Li Jun^[22]等利用模型研究了结构件内部温度、固化度、翘曲变形以及由化学反应对构件固化变形的影响。

Costa 等^[23]考虑树脂内部热-化学反应场对成型质量的影响，用有限元法研究了热压罐法制造复合材料的三维工艺模型。Loos, Springer^[24]通过综合热-化学模型、空隙模型以及残余应力模型，推导出了单向 AS4/3501-6 石墨/环氧复合材料平直板制造工艺的一维模型，并以此预测了温度、固化度、空隙尺寸与温度历程的关系。

3.2.2 从试验方面研究复杂结构及内部热力场对成型

质量影响

国内王雪明^[25,26]等指出复合材料构件中的温度分布不均匀及降温过程中构件内部产生的较大内应力，会导致分层，同时还指出共固化成型工艺中，相对于已固化的蒙皮，L 型筋条的密实质量直接影响着 T 型加筋板的成型质量。李辰砂^[27]等发现构件厚截面温度梯度随厚度的增加，温度梯度增加，易产生固化变形。汪赫男^[28]等指出层合板内温度和铺层方式对成型质量的影响程度很大。

国外 Malak^[29,30]就 L 型层板的结构因素（曲率半径、铺层方式、平板长度等）和工艺制度对 L 型层板纤维密实的影响进行了实验研究。Y. AbouMsalleem、V. Antonucci、W. I. Lee^[31-33]等通过 DSC 方法对环氧树脂基体在固化过程中的力学性能进行了测定，指出比热、玻璃态转化温度、热膨胀系数、化学收缩系数以及热力学系数都与温度和时间有关，建立了热化学弹性有限元模型来预测固化变形。

综上，不论国内还是国外，科研工作者对复合材料构件基体树脂反应热场对成型构件的质量影响研究，已经取得了骄人的成绩，但对具体复杂几何形状

的复合材料构件内反应热场对成型质量的研究较少, 系统性不够。大部分研究者是对影响复合材料构件成型的若干因素场进行单独设计实验, 建立预测模型对复合材料构件内部反应热场进行研究, 或者仅仅对某种复合材料构件成型质量的影响因素大小做了试验研究, 不具备普适性。而且, 没有将多个因素场(如内反应热场、外部温度场、及固化压力场)耦合起来, 建立统一的多场耦合模型来预测实际热压罐固化过程。因此, 今后对热压罐固化工艺的研究应从多场、多尺度耦合, 建立综合考虑温度和压力共同作用下的固化动力学模型等方面入手, 实现对实际固化过程的预测。

3.3 环境压力场及其作用时间对构件成型质量的影响

当前, 国外在压力场对热压罐成型工艺的影响研究上较少。国内李艳霞^[34]等基于 Biot 固结原理和达西定律, 建立了二维树脂流动与纤维密实模型, 采用有限元方法实现了 L 型层板热压成型过程树脂压力分布、层板变形的预测。朱洪艳^[35]等采用不同热压罐固化压力制备了不同孔隙率的试样, 通过对孔隙率和孔隙的微观结构特征分析得出: 孔隙主要分布于层间, 且随着孔隙率的增大, 孔隙的尺寸增大。谢富原^[36]等针对飞行器复合材料常用加筋板结构, 测试了 T 型加强筋板在热压罐成型过程的压力分布。结果显示: 筋条不同部位明显存在压力分布不均, 在压力差作用下树脂发生明显的面内流动, 筋条拐角易产生富脂、厚度不均等缺陷。张宝艳^[37]等对 5428VB/T700 预浸料采用热压罐成型工艺, 研究了加压时机、施加压力大小等对复合材料基本力学性能的影响, 并与相应的真空成型 5428VB/T700 复合材料进行了比较。结果表明, 在 130 °C/1 h 前施加 0.3~0.6 MPa 的压力, 其短梁剪切强度相对于真空压力成型体系有较明显降低, 但随压力的增大有增大趋势; 在 130 °C/1.5~2.0 h 施加 0.3~0.6 MPa 压力时, 其基本力学性能相对于 130 °C/1 h 前施加压力的体系有明显提高, 并随压力的增大有增加趋势, 当施加的压力达到 0.6 MPa 以上时, 复合材料的基本力学性能和质量优于相应的真空压力成型复合材料体系。

从国内的研究现状来看, 对固化成型过程压力场的研究基本停留在关于加压时机和压力能否提高传热效果及对构件孔隙率影响的讨论上, 而加压压力对构件、模具、辅助材料的温度场影响规律以及传递机理、压力对预浸料固化行为影响等却鲜有报道。

4 结 语

在热压罐复合材料制造工艺中, 构件固化工艺质

量取决于由热压罐和工装系统组成的成型制造环境所提供的外部温度场、压力场, 以及其自身复杂的材料特性及结构特征间的关联耦合作用。已有的研究工作往往针对其中的单一因素开展, 无法对构件真实的固化形成过程进行准确的分析和预测。因此, 建立多场、多尺度耦合的热压罐固化成型工艺数学仿真模型, 实现形成性形协同制造, 已成为热压罐成型工艺研究的趋势。通过更贴近实际的模拟选定合适的固化工艺路线, 不但能提高构件性能和质量, 同时可以减少生产周期, 降低生产成本。目前, 利用更为先进的多场耦合分析软件, 如 Comsol Multiphysics 软件等使多场、多尺度耦合成为现实, 吸引众多科研工作者朝此方向进行更深入研究。

参考文献 References

- [1] Robert Im. *Advanced Composite Structure Research in Australia* [J], 2002, 57: 3
- [2] Chen Shaojie(陈绍杰). *Hi-Tech Fiber & Application*(高科技纤维与应用)[J], 2005, 30(1): 6
- [3] Andrew Johnston A. *Thesis for Doctorate*[D]. Canada: The University of British Columbia, 1997
- [4] Chen Shaojie(陈绍杰). *Hi-Tech Fiber & Application*(高科技纤维与应用)[J], 2001(26): 1
- [5] Li Hongyun(李宏运). *Advanced Manufacturing Technology*(先进复合材料制造技术)[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2004: 69
- [6] Gao Yunfeng(高玉峰), Qu Chunhua(屈春花). *Industrial Furnace* (工业炉)[J], 2012, 34(4): 37
- [7] *Boeing Standard*. D6-49327[S]. 2007
- [8] Wang Yonggui(王永贵), Liang Xianzhu(梁宪珠), Cao Zhenghua(曹正华). *Fiber Reinforced Plastics/Composites*(玻璃钢/复合材料)[J], 2009, 3: 82
- [9] He Ying(何颖), Cai Wenfeng(蔡闻峰), Zhao Pengfei(赵鹏飞). *Fiber Composites*(纤维复合材料)[J], 2006, 23(1): 58
- [10] Zhao Qusen(赵渠森). *Advanced Composite Material Manual* (先进复合材料手册)[M]. Beijing: China Machine Press, 2003: 5
- [11] Li Jun, Yao Xuefeng, Liu Yinghua et al. *Appl Compos Mater* [J], 2008, 15: 207
- [12] Qi Yuehua(齐乐华), Zhou Jiming(周计明), Wang Yushan(王玉山) et al. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2008, 18(8): 1466
- [13] Hou Jinsen(侯进森), Zuo Yang(左扬), Li Yuqin(黎玉钦). *Energy Saving and Emission Reducing of Composites*(复合材料与节能减排研讨会论文集)[C]. Guiyang: China Association

- for Science and Technology, 2013
- [14] Liang Xianzhu(梁宪珠),Xue Xiangchen(薛向晨). *Chinese Patent*, ZL200820132313.2(中国专利)[P]. 2009
- [15] Yue Guangquan(岳广全),Zhang Jiazhen(张嘉振), Zhang Boming(张博明). *Acta Materiae Compositae Sinica*(航空材料学报)[J], 2013, 30(4): 206
- [16] Fernlund G, Rahman N, Courdji R *et al. Composites Part A* [J], 2002, 33: 341
- [17] Johnston A, Hubert P, Fernlund G *et al. J Sci Eng Compos Mater*[J], 1996, 5(3-4): 235
- [18] Magali Duval. *Thesis for Doctorate*[D]. Canada: Carleton University, 2005
- [19] Gillham J K. *Polym Eng Sci*[J], 1979, 19(10): 676
- [20] Zhang Jikui(张纪奎), Li Zhengneng(酆正能), Guanzhidong(关志东) *et al. Acta Materiae Compositae Sinica* (复合材料学报)[J], 2009, 26(1): 174
- [21] Zhang Jikui(张纪奎), Li Zhengneng(酆正能), Guanzhidong(关志东) *et al. Acta Materiae Compositae Sinica*(复合材料学报)[J], 2007, 24(2): 120
- [22] Li Jun, Yao Xuefeng, Liu Yinghua *et al. Composites: Part A*[J], 2009, 40(4): 455
- [23] Costa V A F, Sousa A C M. *International Journal of Thermal Sciences*[J], 2003,42: 15
- [24] Loos A C, Springer G S. *J Compos Mater*[J], 1983, 17: 135
- [25] Wang Xueming(王雪明), Xie Fuyuan(谢富原), Li Min(李敏) *et al. Acta Materiae Compositae Sinica*(复合材料学报)[J], 2009, 30(4): 757
- [26] Wang Xueming, Xie Fuyuan, Li Min *et al. Acta Aeronautica et Astronautica*[J], 2011, 31(2): 64
- [27] Li Chensha(李辰砂). *Thesis for Doctorate*(博士论文)[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 1999
- [28] Wang Henan(汪赫男) *et al. Acta Materiae Compositae Sinica* (复合材料学报)[J], 2007, 24(5): 55
- [29] Malak Naji I, SuongHoa V. *Journal of Reinforced Plastic and Composites*[J], 1999, 18(8): 702
- [30] Malak Naji I, Suong Hoa V. *Journal of Composites Materials* [J], 2000, 34(20): 1710
- [31] AbouMsalleem Y, Jacquemin F, Boyard N *et al. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*[J], 2010, 41(1): 108
- [32] Antonucci V, Giordano M, Nicolais L. *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry*[J], 2002, 40(21): 3757
- [33] Lee W I, Loos A C, Springer G S. *Journal of Composite Materials*[J], 1982, 16(6): 510
- [34] Li Yanxia(李艳霞), Li Min(李敏), Zhang Zuoguang(张佐光) *et al. Acta Materiae Compositae Sinica*(复合材料学报)[J], 2008, 25(3): 79
- [35] Zhu Hongyan(朱洪艳), Li Dihong(李地红), Zhang Dongxing(张东兴) *et al. Acta Materiae Compositae Sinica*(复合材料学报)[J], 2010, 27(2): 24
- [36] Xie Fuyuan(谢富原), Wang Xueming(王雪明), Li Min(李敏) *et al. Acta Materiae Compositae Sinica*(复合材料学报)[J], 2009, 26(4): 66
- [37] Zhang Baoyan(张宝艳), Zhou Zhenggang(周正刚), Zhuang Wenbo(庄文波). *Journal of Materials Engineering*(材料工程)[J], 2009, 10: 67

Research Progress of Autoclave Molding for Advanced Composite Components

Li Shujian¹, Zhan Lihua¹, Peng Wenfei^{1,2}, Zhou Yuanqi¹

(1. Central South University, Changsha 410083, China)

(2. Ningbo University, Ningbo 315211, China)

Abstract: The application of advanced polymer matrix composites is becoming wider and wider in the field of aerospace, and the autoclave molding process has become one of the preferred processes for forming the main bearing and bearing of composite structure in the field of aerospace. External temperature field, pressure field and internal thermal and mechanical fields are the main factors to influence the forming quality. In this paper, the main research progress of autoclave for forming advanced polymer matrix composites were reviewed during the past years. Combined with the research status at home and abroad, some considerations for the development trends of the autoclave processing and urgent problems have been put forward.

Key words: autoclave molding; temperature field; pressure field; development trend

E-mail: yjs_cast@csu.edu.cn