

单向 C/SiC 复合材料热残余应力数值模拟研究

曹德胜 任成祖 张立峰 李远辰 李巾锭

(天津大学机构理论与装备设计教育部重点实验室,天津 300350)

文 摘 连续纤维增韧陶瓷基复合材料制备过程中因纤维与基体线胀系数失配会产生热残余应力,从而导致纤维脱粘、基体开裂等现象,严重影响复合材料力学性能。本文针对 CVI 工艺制备的单向 C/SiC 复合材料,建立“纤维-界面-基体”单胞物理模型,基于细观力学分析方法对热残余应力分布规律进行预测,采用 ABAQUS 对材料制备过程进行数值模拟,揭示了界面厚度、纤维体积分数、制备温度等参数对纤维、基体热残余应力分布的影响规律,分析了热残余应力对复合材料力学性能的影响。研究结果能够为 C/SiC 复合材料的设计、分析及微纳力学性能试验提供理论支持。

关键词 C/SiC 复合材料,单胞模型,热残余应力,数值模拟,内聚力模型

中图分类号:TB332

DOI:10.12044/j.issn.1007-2330.2017.02.005

Numerical Simulation of Thermal Residual Stresses For Unidirectional C/SiC Composites

CAO Desheng REN Chengzu ZHANG Lifeng LI Yuanchen LI Jinding

(Key Laboratory of Mechanism Theory and Equipment Design of Ministry of Education, Tianjin University, Tianjin 300350)

Abstract During the preparation of continuous fiber-reinforced ceramic materials, the mismatch of linear expansion coefficient between the fiber and matrix may induce thermal residual stresses, which will result in fiber debonding and matrix cracking ultimately. And furthermore, it will have a significant influence on macro-mechanical properties. Based on the unidirectional C/SiC composites, this paper set a unit cell model of “fiber-interface-matrix” to predict the distribution rules of thermal residual stresses by micromechanics method. With ABAQUS software, the numerical simulation research on the preparation of C/SiC composites was developed, which revealed the influence rules of the interface thickness, fiber volume fraction and preparation temperature to the thermal residual stresses of the composites. And the effects of thermal residual stresses on mechanical properties of composites were also analyzed. The result is expected to provide a useful guideline for the design, evaluation and optimal application of C/SiC.

Key words C/SiC composites, Unit cell model, Thermal residual stresses, Numerical simulation, Cohesive zone model

0 引言

连续纤维增韧陶瓷基复合材料能从根本上克服传统结构陶瓷的脆性缺陷。C/SiC 复合材料以其比强度高、比模量高,耐高温等优良的性能广泛应用于航空发动机热端部件及高超声速飞行器热防护系统等方面,是重要的国防装备材料^[1-2]。

CFCC-SiC 本征结构异常复杂,制备工艺特点和

基体与纤维线胀系数失配产生的热残余应力造成数量众多、尺度不一的细观裂纹和孔隙,这些原始缺陷在较低应力时就导致基体开裂、纤维脱粘等现象,细观损伤的不断积累导致材料失效。通过建立单胞物理模型将复杂的细观结构解耦,能有效分析复合材料的损伤、断裂、强度问题及各相间的应力传递机制、破坏机制。

收稿日期:2016-08-26

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51275346),教育部博士点基金资助项目(20110032110007)

第一作者简介:曹德胜,1990 年出生,硕士。主要从事复合材料加工机理研究。E-mail:succds@163.com

通信作者:任成祖,1962 年出生,博士,教授。E-mail:renchz@tju.edu.cn

目前,复合材料热残余应力的研究主要集中在粗纤维、金属基和树脂基复合材料,对 C/SiC 复合材料研究报道甚少,缺乏系统深入的研究。刘徽等^[3]利用直径 30 μm 的微小 X 射线束衍射法研究了 SiC/Al 模型复合材料 Al 基体残余应力分布情况;谢薇等^[4]研究了处理工艺对 C/Mg 复合材料热残余应力的影响;Ward 等^[5]用拉曼光谱法测量了两种 SiC 纤维的轴向热残余应力。C/SiC 复合材料中 T300 直径微小, SiC 基体耐腐蚀及脆硬性等因素对实验研究带来很大困难,同时难以测得具体应力分布且实验结果具有离散性,数值模拟方法为 C/SiC 复合材料热残余应力研究提供了有力的工具。

本文通过 CVI 工艺^[6-7]制备单向 C/SiC 复合材料,采用细观力学分析方法对纤维、基体中热残余应力分布规律进行预测,使用 ABAQUS6.11 有限元软件建立“纤维-界面-基体”单胞物理分析模型,对制备过程进行仿真,研究界面厚度、纤维体积分数、制备温度等因素对复合材料横截面内热残余应力分布的影响规律。研究所揭示规律有助于指导材料的设计、制备及微纳力学性能试验,为探明 CFCC 加工的材料去除机理奠定理论基础。

1 单向 C/SiC 复合材料

1.1 材料制备

CVI 具体制备过程如下:根据体积分数进行质量换算称重所需 T300 碳纤维并编织单向纤维预制体,采用带气孔的专用石墨夹具固定预制体(图 1)。以丙烯为反应气体经数小时在纤维表面沉积 PyC 涂层,再以过量 H₂ 为载气通过鼓泡方式将 CH₃SiCl₃ 引入反应室(摩尔比 10:1), 1 000℃ 条件下经 30 h CVI 致密化后获得成型材料。

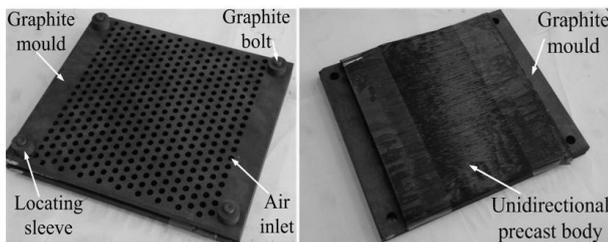


图 1 材料制备专用夹具及预制体

Fig. 1 Special fixture for preparation and precast body

1.2 材料表征

采用美国 Quanta-FEG-250 扫描电子显微镜和日本 VHX-1000 光学显微镜观察材料显微形貌,成型材料密度 2.1 g/cm³、孔隙率 10%,体积分数 40%、界面层厚度 100~200 nm。图 2 为材料样品及显微形貌,纤维、界面、基体、孔隙等结构单元使得复合材料呈尺度跨度的多层次性、细观结构的非连续性、空

间分布的非均匀性特征,如原始孔隙的存在及基体分布不均匀,这是导致材料热残余应力复杂分布的重要原因。

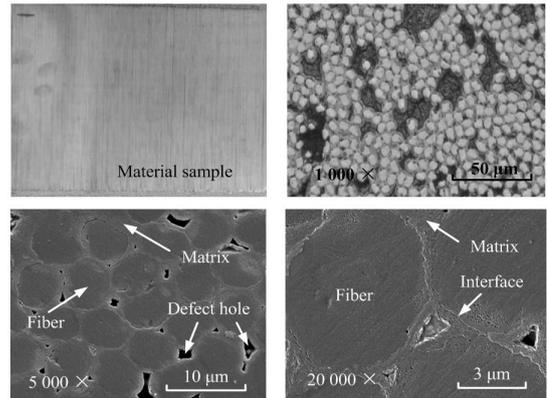


图 2 材料样品及显微形貌特征

Fig. 2 Material sample and micrographs of C/SiC composites

2 细观力学建模及分析

考虑三相同心圆模型如图 3 所示。

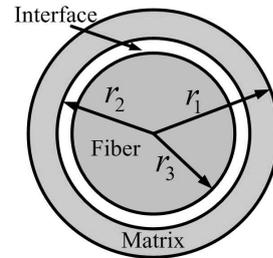


图 3 复合材料三相同心圆模型

Fig. 3 Three-phase concentric circles model of composites

极坐标下由弹性力学理论并考虑对称性有:

$$\text{平衡方程} \quad \frac{d\sigma_r}{dr} + \frac{\sigma_r - \sigma_\theta}{r} = 0 \quad (1)$$

$$\text{几何方程} \quad \varepsilon_r = \frac{du}{dr}, \varepsilon_\theta = \frac{u}{r} \quad (2)$$

$$\text{物理方程} \quad \begin{cases} \varepsilon_r = \frac{1}{E}(\sigma_r - \nu\sigma_\theta) \\ \varepsilon_\theta = \frac{1}{E}(\sigma_\theta - \nu\sigma_r) \end{cases} \quad (3)$$

式中, ν 、 E 为材料泊松比、弹性模量,联立各式并考虑对称性得通解表达式:

$$\begin{cases} \sigma_{ri} = \frac{A_i}{r^2} + 2C_i \\ \sigma_{\theta i} = -\frac{A_i}{r^2} + 2C_i \end{cases} \quad (4)$$

$$u_i = \frac{1}{E_i} \left[-(1+\nu_i) \frac{A_i}{r} + 2(1-\nu_i) C_i r \right] \quad (5)$$

式中,下标 $i=1, 2, 3$ 与基体、界面、纤维对应, A_i 、 C_i 作为待定系数由如下边界条件确定:

$$A_3 = 0 \quad (r \rightarrow 0) \quad (6)$$

$$\sigma_{r1} = 0 \quad (r = r_1) \quad (7)$$

$$\sigma_{r1} = \sigma_{r2} \quad u_1 + \alpha_1 \Delta Tr = u_2 + \alpha_2 \Delta Tr \quad (r = r_2) \quad (8)$$

$$\sigma_{r2} = \sigma_{r3} \quad u_2 + \alpha_2 \Delta T r = u_3 + \alpha_3 \Delta T r \quad (r = r_3) \quad (9)$$

$$\begin{bmatrix} 1/r_1^2 & 0 & 2 & 0 \\ 1/r_2^2 & -1/r_2^2 & 2 & -2 \\ 0 & 1/r_3^2 & 0 & 2 \\ K_{41} & K_{42} & K_{43} & K_{44} \\ 0 & K_{52} & 0 & K_{54} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \\ C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ (\alpha_2 - \alpha_1) \Delta T r_2 \\ (\alpha_3 - \alpha_2) \Delta T r_3 \end{bmatrix} \quad (10)$$

式中, ΔT 为制备温差, α 为线胀系数, K 为与 ν 、 E 有关系数。修改边界条件, 在两相同心圆模型中 $i=1, 2$ 代表基体、纤维, 则有:

$$\begin{cases} \sigma_{r2} = \sigma_{\theta 2} = \frac{(1-m)(\alpha_2 - \alpha_1) \Delta T E_1 E_2}{E_2(1+m+m\nu_1 - \nu_1) - E_1(1-m - \nu_2 - m\nu_2)} \\ \sigma_{r1} = \frac{(\alpha_2 - \alpha_1) \Delta T E_1 E_2}{E_2(1+m+m\nu_1 - \nu_1) - E_1(1-m - \nu_2 - m\nu_2)} \cdot \left(1 - \frac{r_1^2}{r^2}\right) \\ \sigma_{\theta 1} = \frac{(\alpha_2 - \alpha_1) \Delta T E_1 E_2}{E_2(1+m+m\nu_1 - \nu_1) - E_1(1-m - \nu_2 - m\nu_2)} \cdot \left(1 + \frac{r_1^2}{r^2}\right) \end{cases} \quad (11)$$

该式表明纤维径向和周向残余应力等值同号且为定常应力场, 而基体内径向和周向残余应力随与界面距离增加而快速减小。平面应变问题只需将式中 ν 、 E 、 α 替换为 $\frac{\nu}{1-\nu}$ 、 $\frac{E}{1-\nu^2}$ 、 $(1+\nu)\alpha$ 即可, 式中 $m = \frac{r_1^2}{r_2^2}$ 。

3 有限元模型建立

3.1 界面内聚力模型数值模拟方法

内聚力模型 (Cohesive Zone Model) 较传统建模方法能更好的反映界面热残余应力传递规律。如图 4 所示, 本构模型采用 Mi 等^[8] 提出的双线性内聚力模型, 材料的强度、裂纹的形成和扩展都由本构关系决定。 δ_{init} 、 δ_{fail} 分别为材料初始损伤及完全失效等效位移, 本构关系见式 (12)。

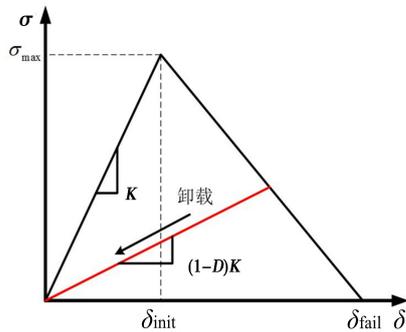


图 4 界面内聚力模型

Fig. 4 Schematic diagram of interface cohesive zone model

$$\sigma = \begin{Bmatrix} \sigma_n \\ \sigma_s \\ \sigma_t \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} (1-D)K_{nn} & 0 & 0 \\ 0 & (1-D)K_{ss} & 0 \\ 0 & 0 & (1-D)K_{tt} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \varepsilon_n \\ \varepsilon_s \\ \varepsilon_t \end{Bmatrix} \quad (12)$$

联立各式得:

$$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ -2 \\ 0 \\ K_{55} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \\ C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ (\alpha_2 - \alpha_1) \Delta T r_2 \\ (\alpha_3 - \alpha_2) \Delta T r_3 \end{bmatrix} \quad (10)$$

选取基于能量、线性软化、独立模式的损伤演化规律。课题组已有实验^[9]和数值模拟结果对比修正得纯 I 型、纯 II 型及纯 III 型破坏的最大名义应力分别为 10、30、30 MPa, 断裂能取 6 N/m。

3.2 数值模拟建模及实验验证

图 5 为 C/SiC 复合材料抛光横截面显微形貌图。依此建立图 6 所示二维六方单胞物理模型。模型包括 T300、PyC 界面、SiC 基体, T300 直径 7 μm , 基体尺寸由体积分算出。根据对称性取 1/4 模型, 界面附近纤维和基体网格加密以提高计算精度, 远离界面区域为不均匀稀疏网格以降低计算成本。纤维和基体单元类型为四节点平面应变单元 (CPE4R), 界面为内聚力单元 (COH2D4), 通过“tie”约束保证接触的位移、应力协调。

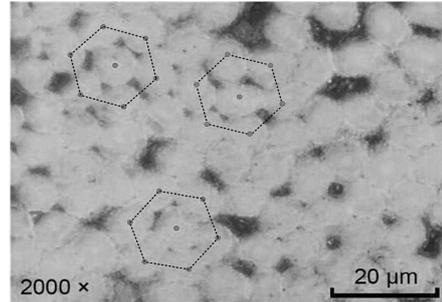
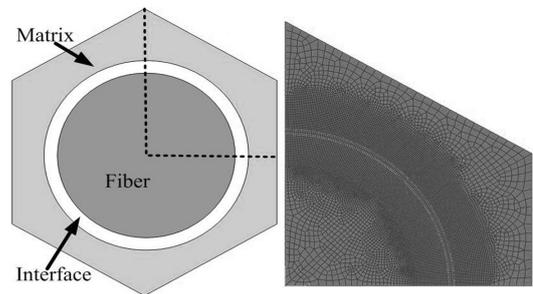


图 5 复合材料抛光后显微形貌

Fig. 5 Micrograph of the composite after polishing



(a) 二维几何模型 (b) 有限元建模网格划分

图 6 有限元单胞物理模型

Fig. 6 Unit cell model of finite element

数值模拟制备过程中界面粘结完好, 没有材料缺陷, 且最高温度时无热应力, 不考虑纤维与纤维之间应力场的相互影响, 对分析模型左边及底边施加对称约束边界条件。定义各相材料性能见表 1。

鉴于与刘微等^[3]研究对象结构相似且残余应力产生原因相同,将此建模方法用于 SiC/Al 复合材料热残余应力数值模拟,图 7 所示基体径向应力场理论计算、数值模拟、试验结果吻合良好,表明此数值建模方法合理可行。

表 1 材料性能参数^[6,10-11]

Tab. 1 Properties of materials

材料	模量/GPa	泊松比	线胀系数/ $10^{-6}K^{-1}$	密度/ $g \cdot cm^{-3}$
T300	15.00	0.20	8.85	1.74
SiC	454.54	0.17	2.5(20℃) 4.4(600℃) 5.5(1000℃)	3.17
PyC	50.00	0.20	3.0	2.26

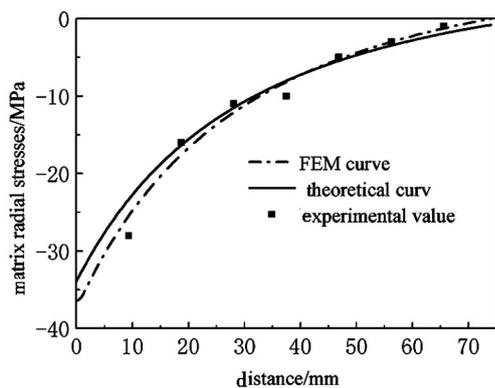


图 7 不同方法得到的基体径向残余应力

Fig. 7 Matrix radial residual stresses by different methods

4 数值模拟结果与讨论

4.1 复合材料热残余应力数值模拟研究方法

研究主要考察 C/SiC 复合材料纤维和基体中径向、周向热残余应力的分布规律。结合 CVI 工艺及工程应用实际情况,采用控制单因素变量的方法研究

界面厚度、纤维体积分数、制备温度对热残余应力分布的影响规律,方案见表 2。规定模型中纤维水平径向为 0° 方向,逆时针角度为正。

表 2 热残余应力研究参数

Tab. 2 Parameters of the thermal residual stresses

序号	界面厚度/mm	纤维体积分数/%	制备温度/℃
1	100	40	1000
2	200	40	1000
3	300	40	1000
4	100	30	1000
5	100	40	1000
6	100	50	1000
7	100	60	1000
8	100	40	900
9	100	40	1000
10	100	40	1100

4.2 复合材料横截面内热残余应力分布规律

纤维、基体中残余应力分布规律与公式(11)基本一致,但数值模拟能获得应力场具体分布规律。

图 8 为径向热残余应力分布图,图 9 为基体残余

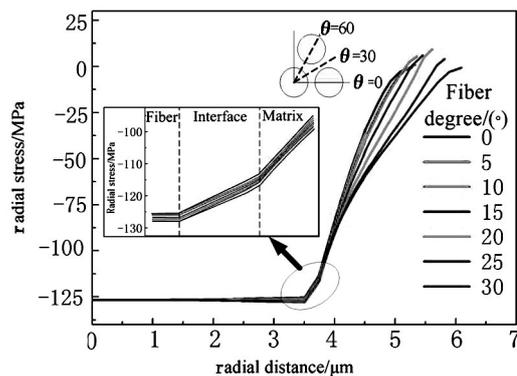


图 8 各角度径向热残余应力分布

Fig. 8 Radial thermal residual stresses for varying degree

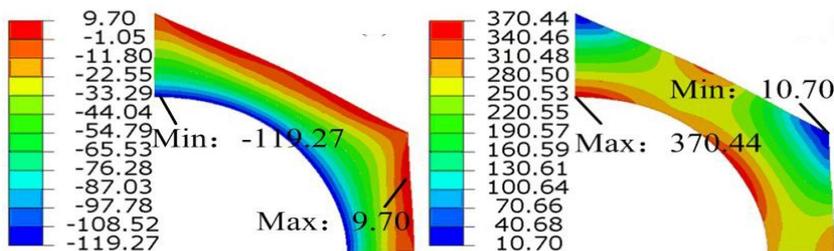


图 9 $H=200nm, V_f=40\%, T=1000^\circ C$ 基体残余应力分布

Fig. 9 Distribution of matrix thermal residual stresses

数值模拟结果表明,纤维内近似定常力场,但表面应力有微小差别,基体中 σ_r 变化梯度与角度有关,且 σ_θ 出现应力集中,最大拉应力位置及数值见图 9。

基体中径向压应力对纤维形成箍筋作用,有利于延迟界面横向脱粘;过大周向拉应力使制备工艺形成的原始孔隙成为裂纹源,未达到基体断裂强度时就出现开裂。同时,细观结构中脆性陶瓷基体的应力集中

现象将一直保持在复合材料整个承载过程中直至达到强度极限^[12],这是导致复合材料横向强度低于基体强度的重要原因。

图 10 为纤维表面径向、周向热残余应力分布($H=200nm, V_f=40\%, T=1000^\circ C$)。可知,纤维表面 σ_r, σ_θ 是周期为 $\pi/3$ 的压应力函数,纤维表面最大 σ_r 位于 $\theta=30^\circ+n \cdot 60^\circ$ 方向,最小 σ_r 位于 $\theta=n \cdot 60^\circ$ 方

向;而 σ_θ 的分布规律与 σ_r 相反,最大 σ_θ 位于 $\theta=n \cdot 60^\circ$ 方向,最小 σ_θ 位于 $\theta=30^\circ+n \cdot 60^\circ$ 方向。

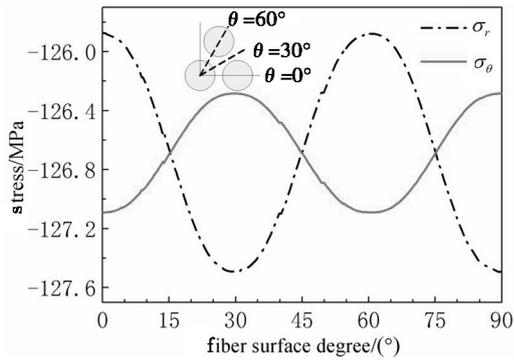


图 10 纤维表面径向、周向热残余应力分布

Fig. 10 Distribution of residual stresses on fiber surface

制备降温过程中多基体区收缩程度大于少基体区,对周围区域形成牵拉作用,导致基体收缩方向由少基体区指向多基体区,如图 11 箭头所示。这是导致图 8 ~ 图 10 中纤维、基体热应力场复杂分布规律的主要原因。

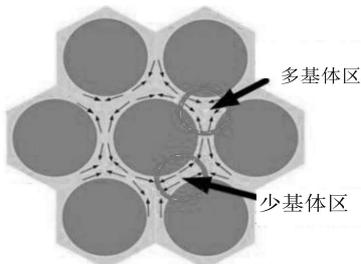


图 11 复合材料内基体收缩趋势示意图

Fig. 11 Schematic diagram for the tendency of matrix shrink

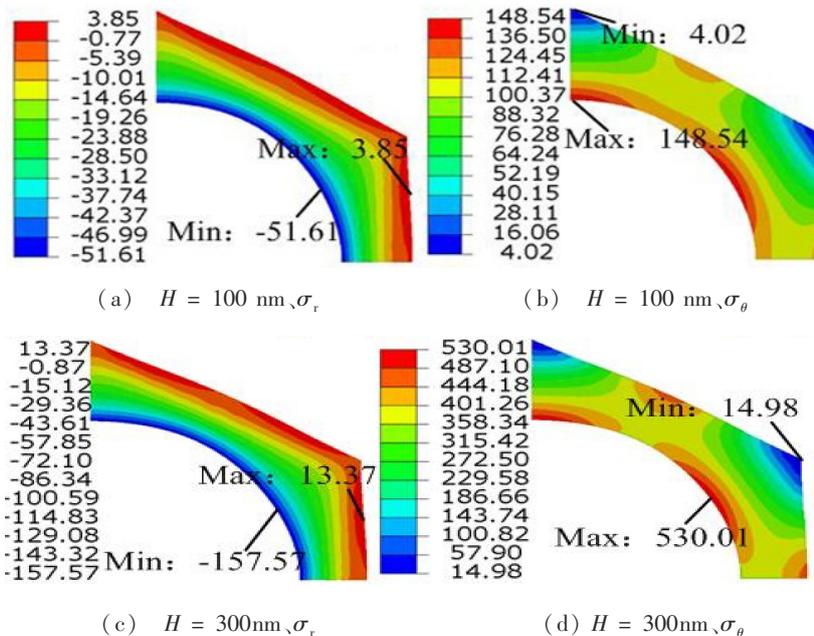


图 13 界面层厚度对基体热残余应力分布的影响规律

Fig. 13 Distribution of matrix thermal residual stresses for various the interfacial thickness

4.4 纤维体积分数对热残余应力分布规律影响

4.3 界面层厚度对热残余应力分布规律影响

图 12 为界面厚度对纤维轴心热残余应力值影响趋势($V_f = 40\%$, $T = 1000^\circ\text{C}$)。

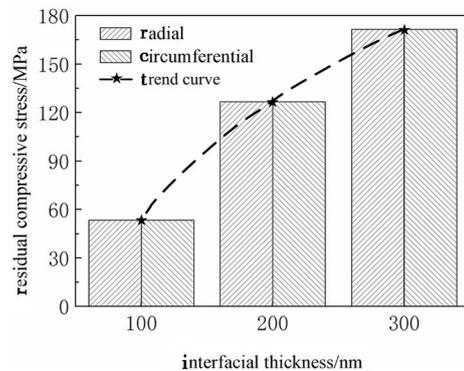


图 12 界面层厚度对纤维热残余应力值影响

Fig. 12 Effects of interfacial thickness on fiber residual stresses

纤维中 σ_r 、 σ_θ 等值同号,界面越厚压应力值越大。由图 13 及图 9 可知随界面厚度增加基体中 σ_r 分布状态变化不大,靠近界面基体 σ_r 压应力显著增大导致基体中应力梯度增大;基体中 σ_θ 为拉应力,应力集中区域相同,随 H 增加应力集中现象更严重,最大值由 148.54 MPa 升至 530.01 MPa,这是因为较厚的界面层不易变形,热应力的释放更加困难。因此制备过程中应控制沉积时间使界面层厚度适当。

图 14 为体积分数对纤维轴心热残余应力值影响

趋势($H = 100 \text{ nm}, T = 1\,000^\circ\text{C}$)。可知, V_f 与残余压应力值成负相关。

由图 15 及图 13(a)(b)可知, V_f 对基体 σ_r 影响较小,但对 σ_θ 分布规律影响明显。基体中拉应力梯度增大,应力集中现象严重,最大 σ_θ 由 111.49 MPa 增加至 315.05 MPa,且位置转移导致基体承载危险点变化。 $V_f = 30\%$ 时少基体区没有应力集中,多基体区及与界面粘结处已出现应力集中, $V_f > 40\%$ 后,应力集中现象更加严重,使役过程中应力集中区成为细观结构危险区。故复合材料 V_f 不宜过高,但过低又难以实现增韧和补强作用,工程实际常用的体积分数为 35% ~ 45%。

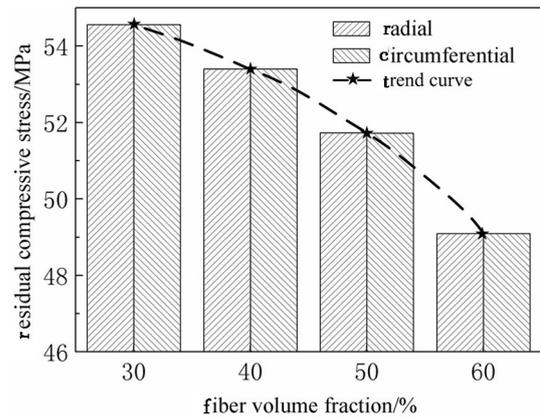


图 14 体积分数对纤维热残余应力值影响

Fig. 14 Effects of volume fraction on fiber residual stresses

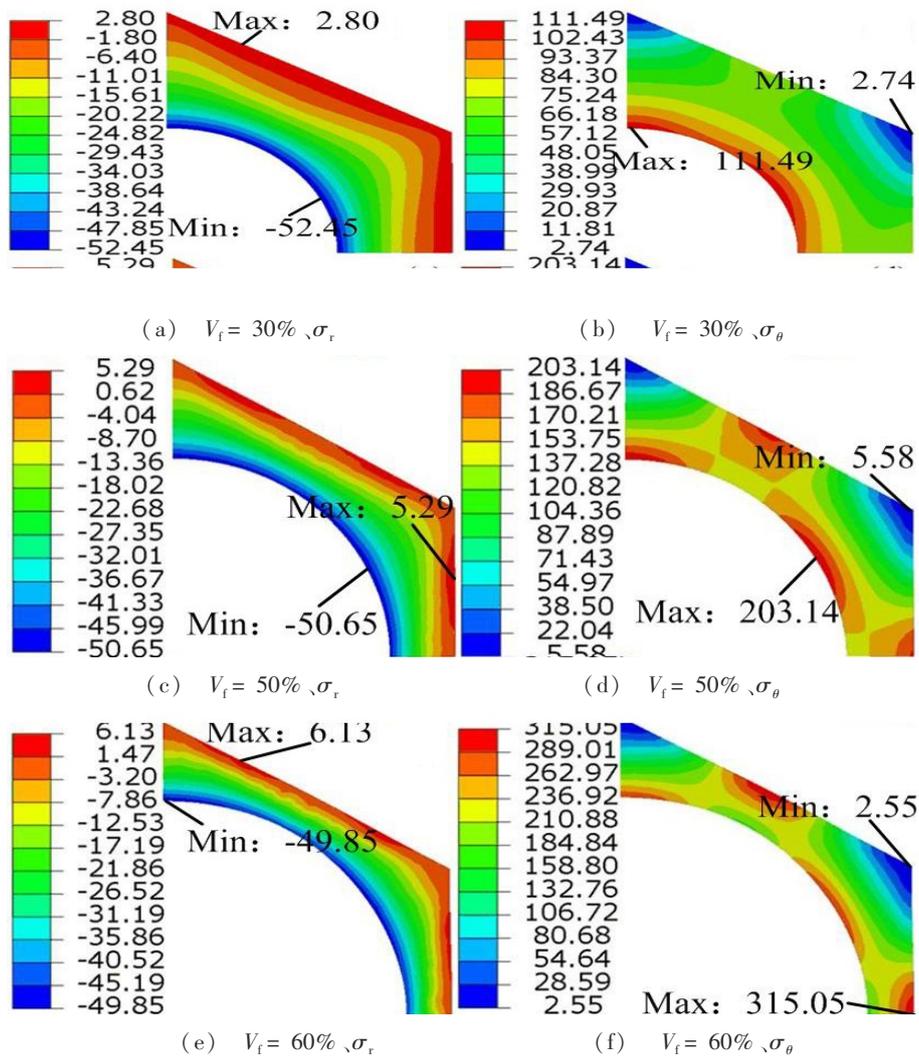


图 15 纤维体积分数对基体热残余应力分布的影响规律

Fig. 15 Distribution of matrix thermal residual stresses for varying the fiber volume fraction

4.5 制备温度对热残余应力分布规律影响

图 16 为制备温度对纤维轴心热残余应力值影响趋势($H = 100 \text{ nm}, V_f = 40\%$)。可知,纤维 σ_r, σ_θ 与

制备温度成线性关系,与公式(7)理论计算一致。由图 17 及图 11(a)(b)可知,不同制备温度条件下基体中 σ_r, σ_θ 分布规律基本相同,随制备温度的升高各相

残余应力都有增大,但 σ_{θ} 变化幅度较大。

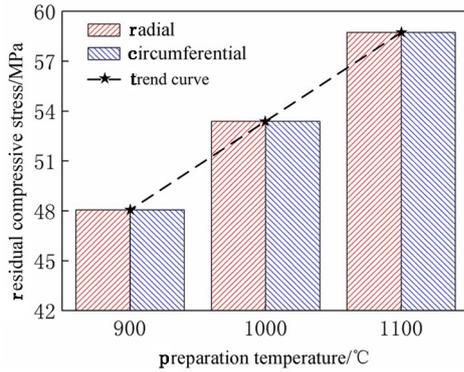
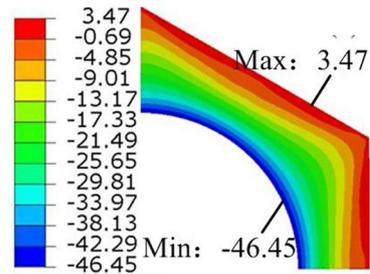
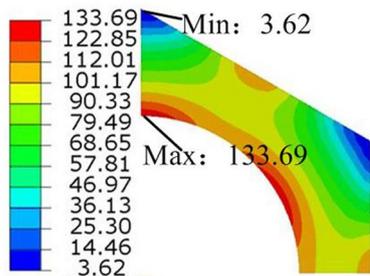


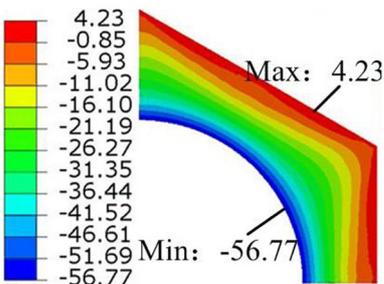
图 16 制备温度对纤维热残余应力值影响



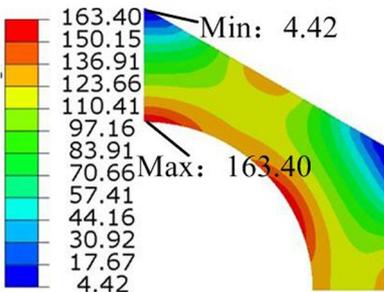
(a) $T = 900^{\circ}\text{C}$ 、 σ_r



(b) $T = 900^{\circ}\text{C}$ 、 σ_{θ}



(c) $T = 1100^{\circ}\text{C}$ 、 σ_r



(d) $T = 1100^{\circ}\text{C}$ 、 σ_{θ}

图 17 制备温度对基体热残余应力分布的影响规律

Fig. 17 Distribution of matrix thermal residual stresses for varying the preparation temperature

5 结论

(1) 细观力学模型计算表明纤维内径向和环向残余应力等值同号且为定常应力场,基体内径向和环向残余应力随与界面距离增加而快速减小。

(2) 成型材料具有多层次、非连续、非均匀的结构特征,数值模拟六方模型中纤维表面应力是周期为 $\pi/3$ 的周期性函数,多基体区界面附近和少基体区会出现应力集中。

(3) 界面厚度、纤维体积分、制备温度对复合材料热残余应力分布规律有影响。实际制备工艺中界面厚度 100 nm 左右为宜,体积分数在 35% ~ 45% 为宜,制备温度 1 000°C 为宜。

(4) 细观力学模型分析、数值模拟分析与试验结果吻合较好。基于数值模拟的方法研究复合材料热残余应力是可行的,通过对制备过程的仿真能够弥补力学分析和实验手段的不足,有效揭示复合材料热残余应力的分布规律。

参考文献

- [1] FEHLMANN K R, et al. Effects of material removal process on the high-temperature performance of an oxide-matrix CFCC [J]. Engineering and Science Proceedings, 1997, 18 (3A) :661-669.
- [2] MÜHLRATZER A. Properties and applications of ceramic matrix composites[J]. Ceramic Forum International, 1999, 76 (4) : 30-35.
- [3] 刘微,等. SiC/Al 模型复合材料界面微区残余应力[J]. 上海交通大学学报, 2001, 35(3) : 368-370.
- [4] 谢薇,等. 3D-C/Mg 复合材料的热残余应力研究[J]. 宇航材料工艺, 2012, 42(3) : 75-77.
- [5] WARD Y, et al. Determination of residual stresses in SiC monofilament reinforced metal-matrix composites using Raman spectroscopy[J]. Composites, 2002, 33(10) :1409-1416.
- [6] 张立同. 纤维增韧碳化硅陶瓷复合材料—模拟、表征与设计[M]. 北京: 化学工业出版社, 2009:70.
- [7] 张立峰. 陶瓷基复合材料界面强度与磨削过程材料去除机理研究[D]. 天津: 天津大学, 2015.
- [8] MI Y, et al. Progressive delamination using interface elements [J]. Journal of Composite Materials, 1998, 32(14) : 1246-1272.
- [9] ZHANG L F, et al. Single fiber push-out characterization of interfacial mechanical properties in unidirectional CVI-C/SiC composites by the nano-indentation technique [J]. Applied Surface Science, 2015, 357(3) : 1427-1433.
- [10] JIA Y Y, et al. Carbon fiber pullout under the influence of residual thermal stresses in polymer matrix composites [J]. Computational Materials Science, 2012, 62: 79-86.
- [11] 樊建平,等. 树脂基纤维复合材料的热残余应力数值分析[J]. 材料导报, 2011, 25(4) : 115-117.
- [12] 刘鸿文. 材料力学 I[M]. 北京: 高等教育出版社, 2011: 47.