

Lukasz Matysiak

Experimental Analysis and Inverse Approach in Numerical Modelling of Curing Process of Composite Materials

Ph.D. Thesis

Institute of Thermal Technology
Faculty of Energy and Environmental Engineering
Silesian University of Technology
Gliwice, Poland, 2014



Badania Eksperymentalne oraz Numeryczna Analiza Odwrotna Procesu Utwardzania Materiałów Kompozytowych

Streszczenie

Reakcja utwardzania jest nieodłącznym zjawiskiem towarzyszącym procesom wytwarzania z wykorzystaniem materiałów termoutwardzalnych, do których zalicza się między innymi żywice epoksydowe. Stanowią one doskonałą barierę elektryczną, przy okazji reprezentując bardzo dobre własności mechaniczne i termiczne. Jest to jedna z głównych przyczyn powszechnego stosowania żywic epoksydowych w branży energetycznej. Ma to związek z wysokimi wymaganiami stawianymi produktom energetyki w kwestii ich bezawaryjności i jakości, których spełnienie jest krytyczne z punktu widzenia niezawodności całego systemu energetycznego. Do takich produktów zalicza się między innymi przepusty elektryczne, przekładniki prądowe i napięciowe, sensory, złącza kablowe, itd.

Szerokie zastosowanie żywic epoksydowych wiąże się z koniecznością dostosowania jej własności do konkretnej aplikacji. W tym celu wykorzystuje się różnego rodzaju wypełniacze nieorganiczne, na przykład krzemionkę, których dodatek może skutkować wzrostem twardości mieszanki, zmniejszeniem skurczu mieszanki podczas utwardzania, mniejszą generacją ciepła w egzotermicznej reakcji utwardzania, uzyskaniem przezroczystości lub konkretnego koloru mieszanki, czy wreszcie poprawą innych parametrów wpływających na przetwórstwo materiału i jego późniejszą eksploatację oraz obniżenie kosztu samego materiału. Niestety stosowanie wypełniaczy wiąże się także z ryzykiem wystąpienia zjawiska sedymentacji, w wyniku którego uzyskuje się anizotropowe własności izolacji elektrycznej, co jest wysoce niepożądane.

Problem ten dotyczy w głównej mierze produktów energetycznych o dużych gabarytach, jak wysokonapięciowe przepusty elektryczne osiągające w niektórych przypadkach kilkanaście metrów wysokości. Między innymi w celu przeciwdziałania zjawisku sedymentacji, standardową izolację żywiczną we wspomnianych przepustach wysokonapięciowych zastąpiono materiałem kompozytowym w postaci papieru marszczonego impregnowanego żywicą epoksydową. Pociągnęło to za sobą również zmiany w procesie wytwarzania izolacji elektrycznej, w tym w przebiegu samej reakcji utwardzania ze względu na różne własności materiałowe standardowej mieszanki żywicznej i żywiczno-papierowego kompozytu. Tymczasem, właściwy przebieg procesu sieciowania

jest jednym z najbardziej istotnych aspektów wpływających na końcowe własności izolacji elektrycznej, głównie ze względu na silnie egzotermiczny charakter reakcji sieciowania. Przykładowo, zbyt wysoka generacja ciepła w czasie wytwarzania izolacji żywicznej może prowadzić do przegrzania układu i tym samym do degradacji własności izolacyjnych materiału.

Złożoność reakcji utwardzania powoduje jednak, że analiza eksperymentalna tego zjawiska jest niezwykle trudna, nawet w przypadku mieszanin żywicznych o stosunkowo prostej strukturze. Zazwyczaj, w celu określenia kinetyki reakcji sieciowania, wykorzystuje się skaningową kalorymetrię różnicową (ang. Differential Scanning Calorimetry – DSC), która ograniczona jest jednak niewielkim rozmiarem badanej próbki (kilka miligramów). Wątpliwe jest, czy tak niewielkich rozmiarów próbka jest reprezentatywna dla większych układów o strukturze kompozytowej, jak w przypadku wspomnianego papieru impregnowanego żywicą epoksydową.

W związku z powyższym postanowiono w ramach niniejszej pracy podjąć próbę opracowania alternatywnej metody wyznaczania kinetyki reakcji utwardzania złożonych struktur kompozytowych o większych gabarytach, z wykorzystaniem modelowania numerycznego oraz metodyki odwrotnej wspieranej pomiarami eksperymentalnymi. Stało się to możliwe, ponieważ czas obliczeń nie stanowi obecnie przeszkody ze względu na, obserwowany już w latach 80-tych, dynamiczny rozwój wspomnianych metod odwrotnych, komercyjnych narzędzi do symulacji numerycznych oraz mocy obliczeniowych współczesnych komputerów.

Zakres pracy doktorskiej obejmuje między innymi przegląd literaturowy ukierunkowany na zastosowanie metod odwrotnych, wykorzystujących modelowanie numeryczne i eksperymenty, do wyznaczania kinetyki procesu przemiany fazowej, podobnego do reakcji utwardzania. Znaczną część wstępu teoretycznego stanowi wprowadzenie do zagadnień dotyczących przepustów elektrycznych oraz izolacji elektrycznej stosowanej w tych urządzeniach. Ponadto, w pracy zawarto podstawy teoretyczne analizy odwrotnej, a także przedstawiono opis matematyczny kinetyki reakcji utwardzania i wspomnianą skaningową kalorymetrię różnicową, jako jedną z najpopularniejszych metod pomiarowych służących do wyznaczania kinetyki reakcji sieciowania.

Istotnym elementem pracy doktorskiej było przygotowanie stanowiska pomiarowego oraz wykonanie eksperymentów utwardzania z wykorzystaniem próbek badawczych o stosunkowo prostej, jednorodnej strukturze jak w przypadku standardowych układów żywicznych, jak również skomplikowanych struktur kompozytowych w postaci wspomnianego papieru krepowanego, impregnowanego żywicą epoksydową. Miało to na celu określenie wpływu

budowy badanych próbek na przebieg reakcji sieciowania oraz zebranie danych potrzebnych w kolejnych etapach pracy.

Opracowanie modelu matematycznego i numerycznego opisującego przeprowadzone eksperymenty utwardzania było jednym z nich. Etap ten wymagał w szczególności przygotowania modelu kinetyki reakcji utwardzania. W tym celu zaproponowane zostało podejście odwrotne, w którym parametry wspomnianego modelu matematycznego zostały wyznaczone na podstawie informacji o temperaturach zarejestrowanych w układzie podczas przebiegu procesu utwardzania. Istotny był tutaj wpływ wspomnianej egzotermicznej reakcji, z którą wiąże się generacja dużych ilości ciepła, na mierzone temperatury. Dodatkowo, w ramach opracowanego podejścia odwrotnego przygotowano aplikację w celu pełnego zautomatyzowania procedury optymalizacyjnej (w tym symulacji komputerowych) przeprowadzanej w ramach każdej analizy odwrotnej. Aplikacja ta została oparta na dwóch algorytmach optymalizacyjnych, mianowicie na metodzie Levenberga-Marquardta oraz metodzie roju cząstek.

Rozwinięte podejście odwrotne zostało poddane analizie wiarygodności. W pierwszym kroku przeprowadzono wstępne testy, które posłużyły do opracowania optymalnej konfiguracji algorytmów optymalizacyjnych. Polegały one na wyznaczeniu współczynników dwóch funkcji benchmarkowych. Celem kolejnego studium, nazwanego wirtualnym eksperymentem utwardzania, było opracowanie modelu kinetyki reakcji sieciowania dla przykładowego systemu żywicznego przy wykorzystaniu analizy odwrotnej. Na tym etapie wymagane dane pomiarowe zostały wygenerowane w ramach tzw. symulowanego pomiaru, tj. bazując na modelu numerycznym procesu utwardzania i na informacji o kinetyce utwardzania pochodzącej z pomiaru DSC. W wyniku przeprowadzonej analizy odwrotnej otrzymano parametry modelu kinetyki reakcji utwardzania, które użyte w symulacji komputerowej procesu utwardzania badanego materiału, pozwoliły poprawić korelację temperatur uzyskanych w tych obliczeniach ze sztucznie spreparowanymi danymi pomiarowymi, potwierdzając poprawność działania zaproponowanej metodologii odwrotnej.

Kolejny etap stanowiła właściwa walidacja eksperymentalna, w której temperatury zmierzone podczas eksperymentu utwardzania posłużyły za dodatkową informację niezbędną do przeprowadzenia analizy odwrotnej i do wyznaczenia w ten sposób parametrów modelu kinetyki reakcji sieciowania. Należy zauważyć, że na tym etapie wyznaczono dwa osobne modele kinetyki sieciowania, z których jeden opisywał przebieg reakcji utwardzania badanej żywicy epoksydowej, a drugi był dedykowany strukturom kompozytowym złożonym z papieru krepowanego, impregnowanego wspomnianą żywicą epoksydową. W obydwu przypadkach zastosowanie zaproponowanej

metodologii odwrotnej pozwoliło opracować modele kinetyki utwardzania dające lepszą zgodność pomiędzy wynikami symulacyjnymi i eksperymentalnymi. Dodatkowo stwierdzono, że model opisujący przebieg reakcji utwardzania żywicy epoksydowej nie może zostać bezpośrednio użyty do modelowania procesu sieciowania struktur żywiczno-papierowych.