复合材料学报
Acta Materiae Compositae Sinica
第30卷 第2期 4月 2013年
Vol. 30 No. 2 April 2013

文章编号：1000-3851(2013)02-0024-07

纤维层内树脂流动的空气耦合超声无损检测

王占吉[1]，刘 玲*[1]，晏冬秀[2]，何少刚[1,2]
（1. 同济大学 航空航天与力学学院，上海 200092；
2. 中国商用飞机有限责任公司 国家商用飞机制造工程技术研究中心，上海 200436）

摘 要： 采用空气耦合超声无损检测仪，对部分浸润预浸料中树脂沿纤维层厚度方向的浸渍流动进行了实时检测研究。首先将部分浸润预浸料放置在真空袋中，然后固定在扫描机构上，抽真空，考察在一个大气压作用下不同时刻树脂的浸润流动情况，通过C扫描图片实时、快速检测出树脂的浸润流动变化，并应用达西定律计算了碳纤维网架的渗透率。同时，将观察区域截取试样制备成金相分析试样，通过显微分析验证了C扫描图像分析的准确性。结果表明，空气耦合超声C扫描方法是检测预浸料中树脂沿纤维层厚度方向流动的一种快速和有效的方法。

关键词： 空气耦合超声检测；部分浸润预浸料；非热压罐；浸渍；C扫描
中图分类号： TB332 **文献标志码：** A

Measurement of resin flow into the fibers layer by air-coupled ultrasound inspection

WANG Zhanji[1], LIU Ling*[1], YAN Dongxiu[2], HE Shaogang[1,2]
(1. School of Aerospace Engineering and Applied Mechanics, Tongji University, Shanghai 200092, China;
2. National Engineering and Research Center for Commercial Aircraft Manufacturing,
Commercial Aircraft Corporation of China, Ltd., Shanghai 200436, China)

Abstract: In this study, an air-coupled ultrasonic nondestructive evaluation (NDE) method was used to measure the resin flow of a partially impregnated prepreg through thickness of fibers layer. The partially impregnated prepregs were put into a vacuum bag, and then assembled on the C-scan sweep mechanism. Vacuum was applied to the specimens and ultrasonic images at various times were obtained by using the air-coupled ultrsound evaluation instrument. Therefore, flow variation of resin penetrating into fibrous webs was monitored in situ by the ultrasonic images. As well, the permeability of the carbon fiber webs was calculated from Darcy's law. To evaluate the validity of the used NDE method, metallographic specimens corresponding to each C-scan sample were prepared and observed, and the yielded microphotographs demonstrated the rationality of the NDE method. Results show that the proposed air-coupled ultrasonic evaluation method is an effective way for in situ monitoring resin flow through thickness of fibers layers.

Keywords: air-coupled ultrasonic detection; partially impregnated prepreg; out-of-autoclave; impregnation; C-scan

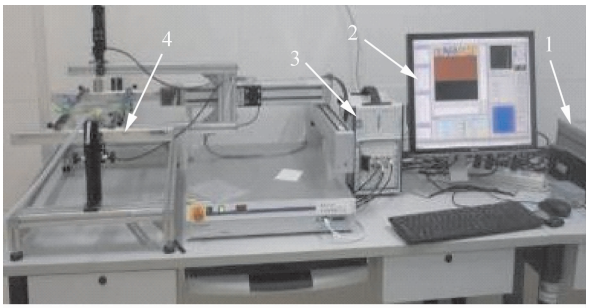
由于具有可设计性和性能稳定等特点，预浸料广泛应用于航空、宇航、一般工业、运动、休闲用品等产品。在预浸料受热固化过程中，一般会产生挥发组分，这些挥发组分在材料内部产生的压力往往大于大气压力，为了使挥发组分能够从复合材料内部顺利逸出，往往施加较大的外部压力，从而得到低孔隙高质量的终产品。而航空结构用高性能复合材料大量采用预浸料中间体，并采用热压罐固化成型[1]。然而，热压罐工艺对设备性能要求较高，成本高，生产周期长[2]。因此，近年出现了部分浸润的预浸料(也称非热压罐预浸料)。在部分浸润预浸料中，树脂膜浸润纤维层的部分，预留出一些干纤维，在抽真空或加压固化过程中，这些干纤维形成了真空通道，有利于气体的逸出，最后树脂浸润

收到初稿日期： 2012-07-24；**收到修改稿日期：** 2012-11-07；**网络出版时间：** 2012-12-19 08:55:34
网络出版地址： www.cnki.net/kcms/detail/11.1801.TB.20121219.0855.007.html
基金项目： 国家商用飞机制造工程技术研究中心创新基金(SAMC11-JS-07-218)
通讯作者： 刘 玲，博士，副教授，主要从事复合材料、纳米复合材料研究 E-mail：lingliu@tongji.edu.cn

干纤维，形成低孔隙高质量的结构[3-5]。因此，通过合理设计，甚至可以采用真空袋法成型预浸料得到与热压罐成型质量相近的复合材料结构[6]。部分浸润预浸料首先出现于采用真空袋法固化的预浸料中，而早期的真空袋法固化预浸料用于制造复合材料模具，直到最近十余年，真空袋法固化预浸料才达到制造复合材料零件的程度。该技术不仅用于真空袋法固化预浸料，Cytec、Hexcel 等公司生产的热压罐工艺固化预浸料部分产品也为部分浸润[7]。

对于部分浸润预浸料，工艺过程中主要的微观变化是树脂在干纤维区域的浸润流动，因此研究树脂在纤维介质中的浸润流动对于制造低孔隙复合材料层合板尤为重要。树脂流动的评估通常采用超声无损检测方法或者埋入光纤传感器进行在线监测，该方法常应用于树脂传递模塑(RTM)工艺或者液体成型工艺(LMP)中树脂流动的监测[8-10]。对于预浸料，由于树脂没有固化，按照传统的水浸超声无损检测方法，不能实现在线检测，通常将不同浸润程度的试样固化，然后通过超声检测树脂的流动状态或浸润程度。Thomas 等应用超声 C 扫描技术，将预浸料进行真空袋法密封，然后将装置浸入水槽，通过对水加热，然后在选定时间点将试样取出放入超声扫描水槽中，对树脂的浸润流动进行了研究[11]。该方法的缺点是由于温度对水浸探头的信号影响较大，所以不能实现在线实时检测[11]。Stoven 等较早地采用空气耦合超声检测方法对 RTM 工艺中树脂在纤维网架中的浸润和填充率进行了研究，结果发现由超声检测得出的填充率和目视观察得到的填充率相同[12]。近年来，空气耦合超声检测技术不断成熟并走向应用，对于不能水浸检测的试样，空气耦合超声无损检测技术较好地弥补了该方面的不足，其非接触、空气耦合等特点，能够实现在线快速检测，具有良好的应用前景[13-14]。目前为止，较少有文献报道应用空气耦合超声无损检测方法来评估复合材料的研究报道[15]。

本文中采用非接触式空气耦合超声无损检测仪(如图 1 所示)，对部分浸润预浸料在一个大气压作用下不同时刻的树脂浸润流动情况进行了实时检测，通过超声 C 扫描图像的变化来研究树脂的浸润流动变化，并将试样制备成金相试样，通过微观表征，辅助研究了树脂的浸润流动状态，并与 C 扫描结果进行对比分析，以验证该空气耦合超声检测的准确性。



1 – Transmitting-receiveing device; 2 – Control program;
3 – Preamplifier; 4 – Sweep mechanism

图 1 非接触式空气耦合超声无损检测装置

Fig. 1 Setup of non-contacted air-coupled ultrasonic non-destructive evaluation

1 实验方法

1.1 实验材料

实验所用材料为中模高强单向碳纤维层，面密度为 190 g/m^2，预浸料中环氧树脂的质量分数为 35%。将树脂膜粘贴在纤维层两侧，放置在真空热压机内(临安丰源电子有限公司，MD400 – 100T. H)，在 2000 Pa 和 50 ℃条件下作用 2～3 s 左右，树脂部分浸入纤维层，形成纤维层中间为干纤维的部分浸润预浸料。该预浸料的厚度约 0.186 mm。同时，将同样的树脂膜和纤维层在相同温度和压力条件下作用较长时间，使得树脂完全浸润纤维层，作为超声 C 扫描调节测试参数的标准试样。

1.2 超声 C 扫描

将上述制备得到的部分浸润预浸料，采用图 1 所示的空气耦合超声检测装置(日本探头株式会社，NAUN21)，应用 C 扫描模式扫描一个比较大的面积区域，根据 1∶1 的 C 扫描图像，选择图像均匀一致的区域，裁剪 5 个 100 mm×100 mm 的试样。把试样放置在图 2 所示的真空袋中并密封。在室温 23 ℃状态下，将真空袋装置固定在空气耦合超声扫描仪的工作台面上。

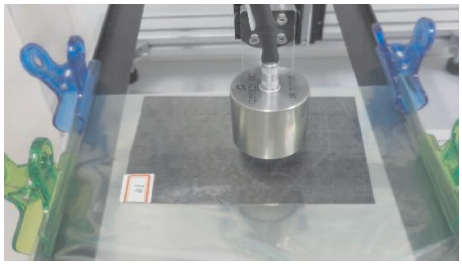


图 2 超声 C 扫描试样装置

Fig. 2 Sample system of ultrasonic C-scan

在进行C扫描前，将标准试样放置在探头之间，调节扫描参数，使接收信号强度达到80%以上，并保存参数。所采用的扫描方式为透射法，如图3(a)所示，聚焦探头频率为400 kHz，晶片尺寸为25 mm，扫描区域为试样中间部分，约50～70 mm的方形区域。在扫描程序中，设置三种颜色表示接收信号强度，其中超声波透过率为0.8～1.0以红色表示，透过率为0.0～0.2以蓝色表示，透过率为0.4设置为黄色，0.4～0.8为黄色渐变到红色，0.4～0.2为黄色渐变到蓝色，如图3(b)表示。

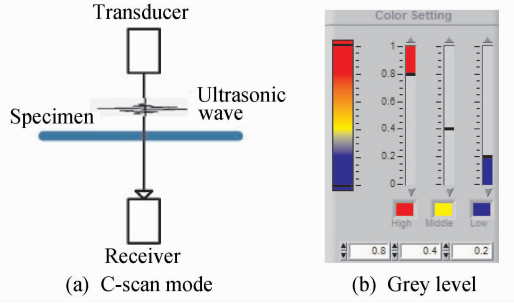


图3　超声C扫描模式和灰度设置

Fig. 3　C-scan mode and grey level

移去标准试样，将平台上的装有单层预浸料(1#)的真空袋装置移至发射探头下方，选择并固定扫描区域，进行抽真空施加1个大气压，采用上述的扫描参数在不同时间进行扫描。扫描时间设置为5 min、12 min、19 min、26 min和33 min。其中，扫描一次所需时间约5 min，保存参数和图片2 min，每次扫描保存完成后就开始下一循环的扫描。在扫描过程中，一直保持试样为真空状态，确定扫描图像不再随时间发生变化时才停止扫描。同时对两层(2#)和四层(3#)预浸料铺贴试样(厚度分别约为0.372 mm和0.744 mm)进行相同的超声C扫描以检测树脂的浸润流动情况。所有试样在0 min时的扫描图像均为抽真空前进行扫描的图像，平行试样为5个。

1.3　金相分析

将前述超声C扫描试样的典型试样，包括单层(1#)、双层(2#)和四层(3#)预浸料铺层试样，根据C扫描图片的均匀区域，切取20 mm×30 mm试样用于金相制样。经过镶嵌、打磨、抛光得到图4所示的金相分析试样。在MM-7光学显微镜上(上海万衡精密仪器有限公司)，观察不同时刻树脂的浸润流动状态。由于考察的是在1个大气压作用下、不同时刻的树脂浸润流动，大气压的实现是通过抽真空实现的，因此，每个试样的金相分析试样只有初始和结束抽真空时两个试样，如图4所示。

图4　金相分析试样

Fig. 4　Specimens for the metallographic analysis

2　结果与讨论

2.1　超声C扫描结果

图5为1#预浸料试样在1个大气压作用下不同时刻的C扫描图片(最接近平均值试样的图片)。可以看出，预浸料中树脂分布不大均匀，显示红或黄色区域树脂沿厚度方向浸润程度大，而蓝色区域表示干纤维或孔隙区域较大。孔隙和干纤维区域对超声波具有折射和散射作用，因而超声波透过率低，探头接收到的信号较弱，所以在图片中表现为蓝色区域。初始条件下试样中的干纤维和孔隙多，表现为蓝色区域多，随着树脂在压力作用下沿厚度方向浸润流动，干纤维和孔隙减少，因而C扫描图片中红色和黄色区域增大，如图5(b)所示。可以看出，在前5～10 min内，树脂的浸润流动最快，当超过15～20 min后，树脂的流动已经很迟缓，C扫描图片变化越来越不明显，如图5(c)所示，而图5(d)、5(e)和5(f)与图5(c)相比变化很小。可看出，本文研究的预浸料在真空压力作用下，约15～20 min后基本不再发生浸润流动，同时也可得出，该空气耦合超声C扫描设备可以实时检测出树脂在纤维网架中浸润流动的微观变化。

对于2#和3#预浸料试样，得到了与图5相似的规律。图6和图7分别为双层和四层预浸料试样在0 min和33～38 min时的C扫描图片，可以看出，抽真空前和抽真空后试样的灰度图变化较大，这是因为树脂浸润流动渗透进纤维网架，试样中密实区域增多，超声波透过率增大，因此导致如图所示的变化。

比较图5(a)、6(a)和7(a)，以及5(f)、6(b)和7(b)，可以看出，随着预浸料层数增加，图像中蓝色区域越来越多，这是因为，在进行铺层操作时，

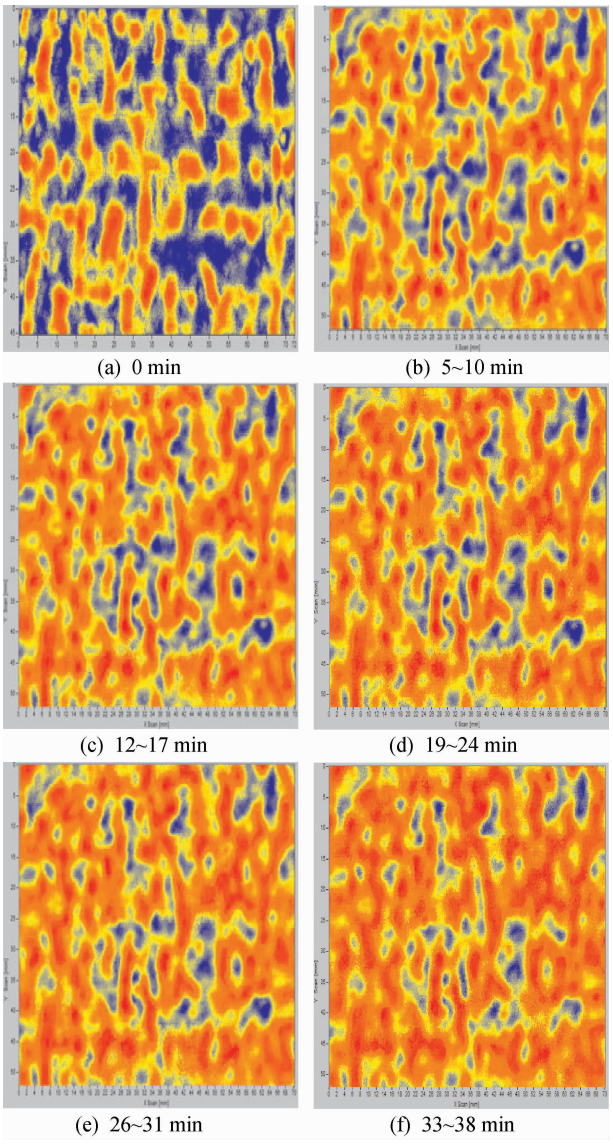


图 5 单层预浸料(1#)试样的 C 扫描图像

Fig. 5 C-scan images of single-layer prepreg (1#) sample

预浸料层与层之间不可避免地存在一些夹杂气泡，在抽真空时一些夹杂气泡缩小甚至被抽出真空袋，但有的气泡缩小后，其内压可能大于 1 个大气压，因此滞留在试样内部，成为内部缺陷，因而在 C 扫描图片中表现为蓝色区域增多。因此，当预浸料层数增加时，超声 C 扫描图片的变化来自于两个方面，一是树脂的浸润流动引起的，另外一方面是层间夹杂气泡的演变或缩小引起的。这两种发生在材料内部的微观变化，通过本文中采用的空气耦合超声 C 扫描仪可以实时快速的检测出来。

在图 5～图 7 的超声彩色灰度图中，根据扫描控制程序设定了不同灰度所占面积的统计，定义透过率较差的蓝色区域为不合格区域，本文中指干纤

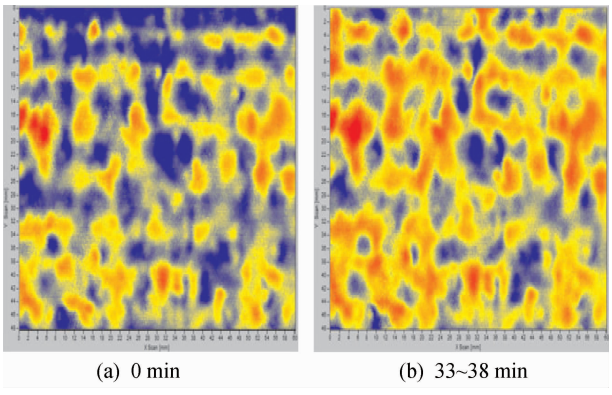


图 6 双层预浸料(2#)试样的 C 扫描图像

Fig. 6 C-scan images of double-layer prepregs (2#) sample

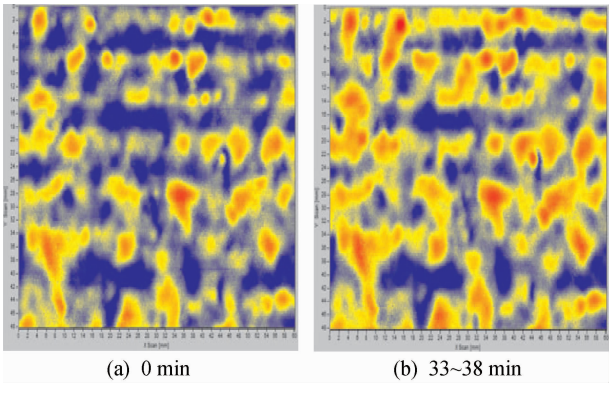


图 7 四层预浸料(3#)试样的 C 扫描图像

Fig. 7 C-scan images of four-layer prepregs (3#) sample

维和孔隙区域(即未浸润率)。图 8 给出了不同试样的未浸润率(超声波透过率不合格区域占总扫描区域的比例)随时间的变化关系。图 8(a)为单层预浸料试样(初始未浸润率平均约为 75%)，当抽真空作用 1 个大气压时未浸润率随时间的变化。可以看到，随着时间的增加未浸润率降低，在前 10 min 内降低最快，之后随着时间的进一步增加，未浸润率下降缓慢，当 20 min 以后，未浸润率约为 40%，之后基本不发生变化，说明预浸料中的树脂基本停止流动。可以得出，通过抽真空 20 min，树脂的浸润率可提高约 35%，浸润流动的变化通过空气耦合超声检测实现了在线快速检测。

对于双层预浸料、四层预浸料试样得到了和单层预浸料试样相似的规律。根据图像统计，初始的未浸润率分别约为 81%和 85%，当抽真空 30 min 后，未浸润率随时间变化平缓，发生的变化较小(小于 1%)，认为树脂已经停止流动，其未浸润率分别降低到 49%和 64%，即对纤维的浸润率提高

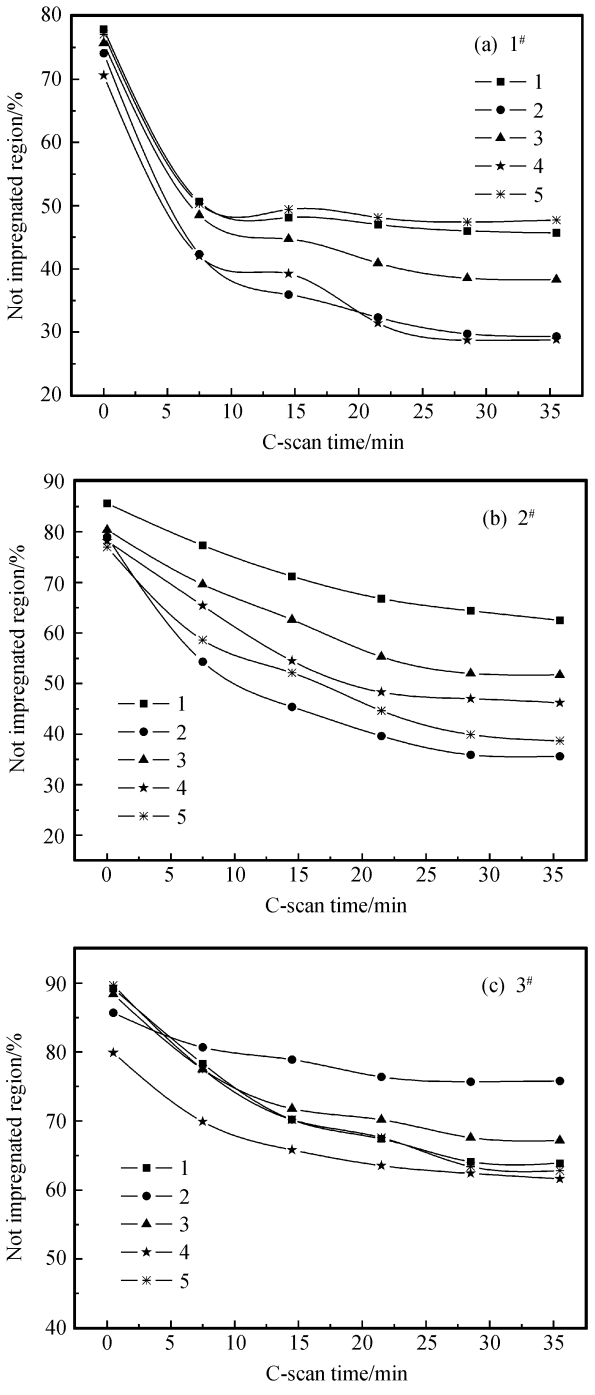


图 8　单层(1#)、双层(2#)和四层(3#)预浸料试样在抽真空压力作用下不同时间的未浸润率变化

Fig. 8　Variation of not impregnated region for single-layer prepreg(1#), double-layer prepregs (2#) and four-layer prepregs (3#) at various time under vacuum pressure

了 31%和 21%。

根据图 8 可以得出结论，对于单层预浸料试样，在抽真空 10 min 内，树脂的浸润流动变化比较明显，但 10 min 后，流动变缓慢，在 20 min 后，基本停止流动。而对于双层或四层预浸料试样，在抽真空 30 min 内，材料内部都在发生着微观变化，即树脂的流动、气泡的演变或缩小、以及从材料内部被抽除。当超过 30 min 后，基本不再发生微观变化。因此，若多层预浸料通过抽真空提高树脂的浸润度，需要比单层预浸料试样增加约一倍的时间。同时可以看出，当预浸料层数不同时，初始未浸润率及树脂停止流动时的未浸润率也不相同，这是因为，多层预浸料铺层时，层间夹杂着气泡，降低了对超声波的透过率，因此，初始的未浸润率增加；当抽真空结束时，气泡没有完全从材料内部去除，因此，此时刻的未浸润率也相对增加。

根据以上所得的超声 C 扫描测试数据，可以计算出树脂的流动速率，从而应用达西定律来计算纤维网架的渗透率。达西定律描述为

$$K = \frac{\mu V}{\nabla P} \tag{1}$$

其中：V 为流动速率(m/s)；K 为渗透率(m^2)；∇P 为压力梯度(Pa/m)；μ 为树脂黏度(Pa·s)。根据图 8 的数据计算得到各试样中树脂沿厚度方向的流动速率(如表 1 所示)，并将室温 25 ℃时树脂的黏度 1050 Pa·s 和压力 10^5 Pa 代入公式(1)，得到树脂沿纤维网架厚度方向的渗透率，如表 1 所示。可以看出，树脂沿着纤维层厚度方向的流速和对纤维网架的渗透率随着层数的增加而降低，这是因为层间可能夹杂的气泡阻碍了树脂的流动。对于单层预浸料(1#)，所得渗透率为树脂在纤维束中的渗透率，该值不一定与体渗透率相等，因为体渗透率需要多层预浸料层合试样来决定，如表 1 中 2# 和 3# 所示。通常，由多层预浸料层合试样确定的体渗透率小于纤维束的渗透率，这主要是因为预浸料层周围浸渍着树脂，纤维的嵌套式分布降低了邻接层孔隙的相似性。但体渗透率对于揭示由于树脂的浸润流动引起气泡的消除或演变过程是非常重要的。从表 1 可以看出，由超声确定的体渗透率(2# 和 3#)小于纤维束的渗透率(1#)。

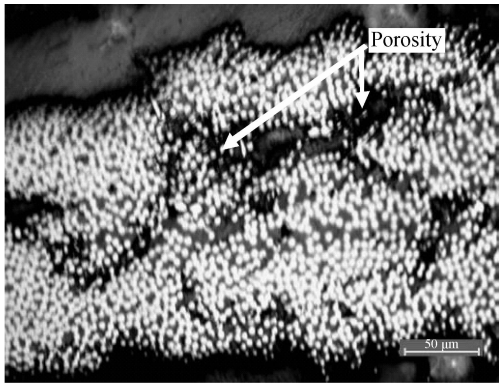
表 1　预浸料材料在一个大气压下的流动性能

Table 1　Flow properties of the prepreg materials under 1 atm

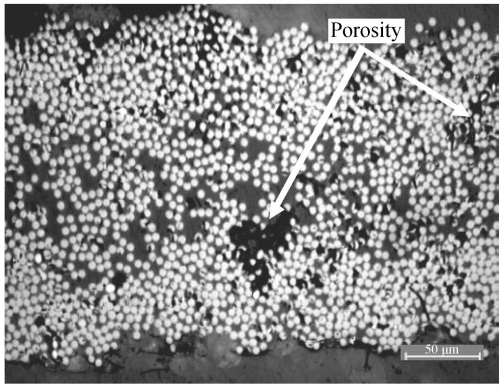
Property	1#	2#	3#
Flow time/min	20	30	30
Flow rate V_z/ (10^{-8} m·s^{-1})	5.41	3.51	2.17
Impregnation rate K_z/ (10^{-13} m^2)	1.01	0.69	0.42

2.2 金相分析结果

图 9 为 1# 预浸料试样在抽真空前和抽真空 38 min时试样沿厚度方向的显微图片(与图 8(a)中 3 对应，即平均值试样)。可以看出，初始时，纤维层中存在较多孔隙，孔隙周围是松散的未浸润树脂的干纤维，纤维层两侧的树脂并非均匀地向中间浸润流动，因为从图中没有观察到由均匀流动产生的明显的流动前沿。从图 9(b)可以看出，经过抽真空 38 min后，树脂流动浸润了大部分的纤维，纤维层中间只存在少数孔隙。图 10 为 2# 预浸料试样在抽真空前和抽真空 38 min 时沿厚度方向的显微图片(与图 8(b)中平均值试样 4 对应)。从图 10(a)可以看出，在抽真空前，纤维层内的孔隙分布和含量基本与图 9(a)相似，但层间孔隙增加，而层间孔隙比层内孔隙相比要少很多。但抽真空 38 min 后，层间和层内孔隙都减少。图 11 为 3# 预浸料试样在抽真空前和抽真空 38 min 时沿厚度方向的显微图片(与图 8(c)中平均值试样 1 对应)。可以看出，初始时层间和层内孔隙与 2# 试样基本相似，抽真空38 min后，层间孔隙和层内孔隙均减少，并且与 2# 也基本相似。而 2# 和 3# 试样的层内孔隙在初始和抽真空结束时，沿厚度方向的分布和含量与 1# 试样基本相似。从图 9、图 10 和图 11 可以看出，树脂从纤维层上、下和侧面等方向浸润渗透纤维束。



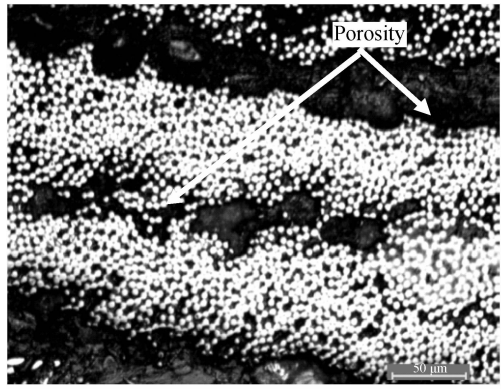
(a) 0 min



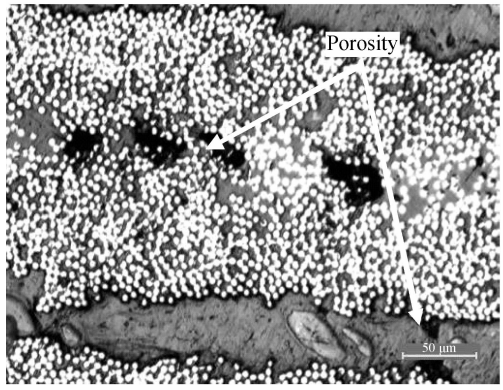
(b) 33~38 min

图 9 单层预浸料试样在抽真空不同时间的显微图片

Fig. 9 Microphotograph of single-layer prepreg sample under vacuum pressure at different time



(a) 0 min

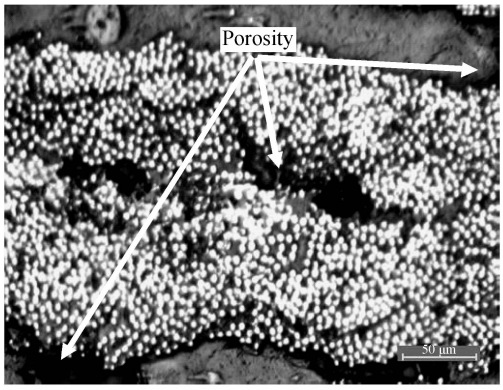


(b) 33~38 min

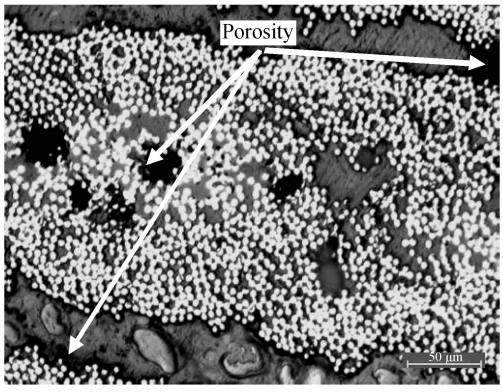
图 10 双层预浸料铺层试样在抽真空不同时刻的显微图片

Fig. 10 Microphotograph of double-layer prepregs sample under vacuum pressure at different time

与前文的 C 扫描结果相比，金相分析和超声 C 扫描两种图像分析结果基本吻合，两种图像技术揭示了本文中所研究的预浸料中的树脂在真空作用下 38 min 内停止了浸润流动。超声 C 扫描是无损的在线检测方法，可以确定树脂的流速、纤维网架的渗透率等浸润流动行为，甚至可以确定停止浸润流动的时间，而金相分析是破坏性的检测方法，但该方法可以揭示树脂在纤维束内和纤维束间流动的模式。而两种方法结合，可以快速、可靠地对树脂的流动行为进行分析。



(a) 0 min



(b) 33~38 min

图 11　四层预浸料铺层试样在抽真空不同时刻的显微图片

Fig. 11　Microphotograph of four-layer prepregs sample under vacuum pressure at different time

3　结　论

(1) 应用新型的空气耦合超声 C 扫描图像技术并结合金相图像分析技术，对单层或多层部分浸润预浸料中树脂在压力作用下的浸润流动行为进行了在线研究，结果表明，两种图像分析技术结果吻合，可以对预浸料树脂的流动状态和流动模式提供可靠信息。

(2) 空气耦合超声 C 扫描技术可以提供树脂浸润流动的直观信息，可以确定树脂流速，定性得到孔隙含量，最终应用达西定律可预测树脂的流动行为。该技术是监测树脂浸润渗透和流速的快速在线方法。

(3) 金相图像分析技术可帮助理解和确定树脂在纤维层内的流动模式，并可证明超声 C 扫描在线技术的准确性。

参考文献：

[1] Thorfinnson B, Biermann T F. Degree of impregnation of prepregs effect on porosity [C]// Ralph C. 32nd International SAMPE Symposium and Exhibition. Anaheim Convention Center: SAMPE International Business Office, 1987: 1500-1509.

[2] 廉　伟. 非热压罐工艺在飞机复合材料低成本制造中前景广阔[J]. 国际航空, 2011, 23(10): 64-66.
Lian Wei. Broad prospects of the out-of-autoclave process in the low-cost manufacturing of composite aircraft [J]. International Aviation, 2011, 23(10): 64-66.

[3] Breitigam W V, Bauer R S, May C. Novel processing and cure of epoxy resin systems [J]. Polymer, 1993, 34(4): 767-771.

[4] Hartness J T, Xu G F. Resin composition, a fiber reinforced material having a partially impregnated resin and composites made therefrom: US Patent, 6139942 [P]. 2000-10-30.

[5] Xu G F, Repecka L, Mortimer S, Peake S, Boyd J. Manufacture of void-free laminates and use thereof: US Patent, 6391436 [P]. 2002-05-20.

[6] Steele M, Corden T. New prepregs for cost effective out-of-autoclave tool and component manufacture [J]. SAMPE Journal, 2004, 40 (2): 30-34.

[7] Hirschbuehler K R. An advanced composite resin offering flexibility in processing conditions [C]// Glenn C G. 37th International SAMPE Symposium and Exhibition. California: The Society for the Advancement of Material and Process Engineering, 1992: 452-461.

[8] Schmachtenberg E, Schulte Z J, Töpker H J. Application of ultrasonics for the processcontrol of resin transfer moulding (RTM) [J]. Polymer Testing, 2005, 24(3): 330-338.

[9] Klosterman D A, Saliba T E. Development of an on-line, in-situ fiber-optic void sensor [J]. Journal of Thermoplastic Composite Materials, 1994, 7(3): 219-229.

[10] Drapier S, Monatte J, Elbouazzaoui O, Henrat P. Characterization of transient through-thickness permeabilities of non crimp new concept (NC2) multiaxial fabrics [J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2005, 36 (7): 877-892.

[11] Thomas S, Nutt S R, Bongiovanni C. In situ estimation of through-thickness resin flow using ultrasound [J]. Composites Science and Technology, 2008, 68(15/16): 3093-3098.

[12] Stöven T, Weyrauch F, Mitschang P, Neitzel M. Continuous monitoring of three-dimensional resin flow through a fiber perform [J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2003, 34(6): 475-480.

[13] Rao M V, Samuel R, Ananthan A, Dasgupta S, Nair P S. NDE studies on spacecraft structural components using air coupled ultrasonic and thermography techniques[C]//Indian Society for Non-Destructive Testing. Proc National Seminar on Non-Destructive Evaluation. Indian: Spyware & Trojans, 2006, TP-86: 1-6.

[14] Renaldas R S, Rymantas K, Egidijus Z, Liudas M. Ultrasonic air-coupled testing of square-shape CFRP composite rods by means of guided waves [J]. NDT & E International, 2011, 44 (7): 645-654.

[15] Kažys R, Demenko A, Mažeika L, Šliteris R, Žukauskas E. Air-coupled ultrasonic non-destructive testing of aerospace components [J]. Insight, 2007, 49 (4): 195-199.