

# Consolidation 방법에 의해 제작된 유리섬유강화 복합재료의 결정성과 기계적성질에 관한 연구

신 익 재\* · 김 동 영\*\* · 이 동 주\*\*\*

## Crystallinity and Mechanical Properties of Glass Fiber Reinforced Thermoplastic Composites by Rapid Press Consolidation Technique

Ick-Jae Shin, Dong-Young Kim and Dong-Joo Lee

**Key Words:** Rapid Press Consolidation Technique(RPCT), PET matrix composites(PET 기지 복합 재료), Crystallinity(결정화도), Differential Scanning Calorimetry(시차 주사 열량 분석법)

### Abstract

Glass fiber reinforced thermoplastic composites were manufactured by Rapid Press Consolidation Technique(RPCT) as functions of temperature, pressure and time in pre-heating, consolidation and solidification sections during the manufacturing processing. It was found that the material property is greatly affected by pre-heating temperature under vacuum, mold temperature and molding pressure. Among them, the temperature in the mold was the most critical factor in determining the mechanical properties and the molded conditions of specimen. The crystallinity of PET matrix was also investigated by differential scanning calorimetry(DSC) measurements for various processing conditions. The level of crystallinity( $X_c$ ) depended strongly on the mold temperature, cooling rate and the type of composite. The difference in  $X_c$  is believed to be one of important factors in characterizing the mechanical properties.

### 1. 서 론

섬유강화 복합재료는 여러 산업분야에 사용되어지고 있으며 그 제작과정 또한 끊임없이 발전하고 있다. 최근 환경에 대한 관심이 점점 높아

져 감에 따라 열경화성수지 보다는 재활용이 가능한 열가소성수지를 기지재료로 사용하는 것에 관심이 높아지고 있다. 열가소성수지는 여러 가지 면에서 열경화성수지 보다 우수한 점이 많다. 예를 들어, 충격저항이 높고 재활용이 가능하며 재료의 저장에 용이하다. 또한 작업환경의 개선될 수 있다. 그렇지만 이 두 가지 수지의 가장 큰 차이점은 빠르면서도 비용을 절감할 수 있는 제작과정에 있다. 본 논문에서는 열가소성수지를 기지재료로 하는 유리섬유강화 복합재료를 제작

\* 정회원, 영남대 기계공학과 대학원  
\*\* 비회원, 영남대 기계공학과 대학원  
\*\*\* 정회원, 영남대 기계공학부

할 수 있는 방법인 Rapid Press Consolidation Technique(RPCT)를 제시하였다. 열가소성수지를 기지재료로 하는 복합재료의 성질에 영향을 미치는 요소로는 기지재료와 보강재료간의 결합력, 보강섬유의 변형, 기공의 형성, 분자의 배열등 여러 가지가 있다. 이중 분자의 배열정도는 결정화도와 깊은 관련이 있다. 본 논문에서는 복합재료 제작시 예열장치와 프레스에서의 온도, 압력, 시간 등을 변화시켜 제작함으로써 최적의 조건을 찾고, 이러한 변수들이 결정화도( $X_c$ )에 미치는 영향과 기계적인 성질과의 관계를 평가해 본다. 그리고 제품 제작시 조건들의 변화뿐만 아니라 제작에 사용되는 기지재료와 보강재료의 형태에 대해서도 연구하였다.

## 2. Rapid Press consolidation Technique

### 2.1 RPCT 장비

RPCT를 위한 장비는 Fig. 1과 같이 크게 예열장치, 이송장치, 프레스로 이루어져있다.

예열장치 : 이 장치는 자동화된 예열장치로서 프레스는 최대 7kN의 가압력을 나타내는데, 이는 성형을 위한 압력으로는 부족한 압력이다. 온도는 350℃까지 올라가며 예열시 기공이 형성되는 것을 방지하기 위해 진공펌프가 작동된다.

이송장치 : 예열후 제품의 성형을 위해 프레스로 이송시키는 장치이며, 이동속도 및 이송대기 시간을 조절할 수 있다.

프레스 : 가압을 위한 유압 프레스로 최대 300kN의 가압력을 가지며 최대 가압거리는 100mm이다. 최대 온도는 500℃까지 이며 2D-plate 형태의 금형이 설치되어 있다.



Fig. 1 Equipments for Rapid Press Consolidation Technique.

### 2.2 RPCT공정

RPCT의 공정은 크게 Pre-heating, Consolidation 과 Solidification의 3단계로 나눈다. 이러한 3가지의 공정동안 온도, 압력과 시간 등을 변화시키면서 제품이 우수한 기계적성질을 갖게 공정을 최적화시키는 것이 중요하다.

Pre-heating 단계 : 녹는점 이상의 온도까지 높여서 기지재료를 충분히 녹인 다음 저압을 가해서 기지재료가 섬유사이로 잘 스며들게 하는 과정이다. 또한 기지재료가 녹는 동안 기포가 형성되는 것을 막기 위해서 진공을 시킨다.

Consolidation 단계 : 온도가 녹는점 이상인 상태의 제품에 고압이 가해짐으로써 프레스에 설치된 몰드의 형상에 따라 성형된다. 이러한 공정으로 인해 기지재료와 보강재료 사이에는 강한 결합력이 생긴다. 또한 각 층 사이가 완전히 결합되고 밀착되면 두 재료사이의 기공이 거의 2%정도 이하로 줄어든다<sup>(1)</sup>.

Solidification 단계 : 이 과정은 Consolidation이 끝난 후 제품을 냉각시키는 과정이고, 제품이 뒤 틀림이나 변형이 생기는 것을 막기 위해 적당한 잔류압력이 유지되어야 하는 단계이다.

## 3. 실험

기지재료는 polyethyleneterephthalate(PET)인 열가소성수지이고 보강재료는 한국화이버(주)의 E-glass 618 CR이다. 그리고 이들은 각각 두 가지 형태로 복합재료화 되었는데, 첫번째 경우는 PET 필름과 Glass Woven Fabric을 사용하여 적층시켰고, 두번째는 연속섬유형태의 PET Fiber와 Glass Fiber를 혼합하였다.

유리섬유의 체적 함유량은 40%이고 시편의 두께는 1.7mm이다. 몰드와 시편사이가 눌러 붙는 것을 방지하기 위하여 Teflon 필름을 사용하였다.

Table 1에서와 같이 예열장치와 프레스의 온도, 압력, 시간등을 변화시켜 가면서 시편을 제작하였고 냉각조건도 다양하게 변화시켰다. 단, 예열장치에서의 가압력은 3kN으로 일정하고 진공은 약 1기압이다. 인장실험용 시편은 ASTM D 3037-76에 따라 제작하였다. 또한 Differential Scanning Calorimetry(DSC)실험을 통하여 각 시편의 결정화도를 알아보았다.

Table 1 The processing parameters of RPCT. Specimen No. 1 is the basic parameters.

Unit No.	Pre-heat Unit			Press		
	Pre-heating Temperature (°C)	Pre-heating Time (min)	Pressing Time (sec)	Mould Temperature (°C)	Pressing Time (sec)	Pressing Force (kN)
1	290	12	10	140	15	125
2	280	12	10	140	15	125
3	300	12	10	140	15	125
4	290	9	10	140	15	125
5	290	15	10	140	15	125
6	290	12	5	140	15	125
7	290	12	15	140	15	125
8	290	12	10	80	15	125
9	290	12	10	200	15	125
10	290	12	10	140	10	125
11	290	12	10	140	20	125
12	290	12	10	140	15	75
13	290	12	10	140	15	175

#### 4. 결과

##### 4.1 최적의 제작조건

인장실험결과로 각각의 제작 조건 변화에 따른 최적조건을 조사해 보았다. 각 시편은 Table 1에 따라 만들어 졌으며 모든 시편은 프레스에서 제거한 후 실온에서 냉각되었다.

먼저 예열장치에서 온도, 압력과 시간을 변화시켜 가면서 인장강도를 평가해 보았다. Fig. 2는 예열 온도와 인장강도와의 관계를 보여주는데, 최적의 예열온도는 290°C이고 다음이 300°C였다. 그러나 두 시편의 인장강도가 비슷하므로 두 경우 모두 예열온도로서 적절하다고 볼 수 있다. Fig. 3에서는 예열시간에 따른 인장강도를 나타냈었는데 예열시간이 12분인 경우 최고의 인장강도를 나타내었다. 이는 기지재료가 녹는점이상에서 충분히 보강재료사이로 함침되면서 재료에 손상이 가지 않는 조건이다. Fig. 4는 예열장치에서의 가압시간의 효과를 나타낸 것이다. 가압시간이 10초일 경우 최고의 인장강도를 보였으며 이러한 가압단계에서는 유리섬유사이로 PET가 잘 스며 들게는 하지만 시간이 길면 보강섬유의 Waviness가 심해져 기계적성질을 저하시키는 원인이 될 수 있다.

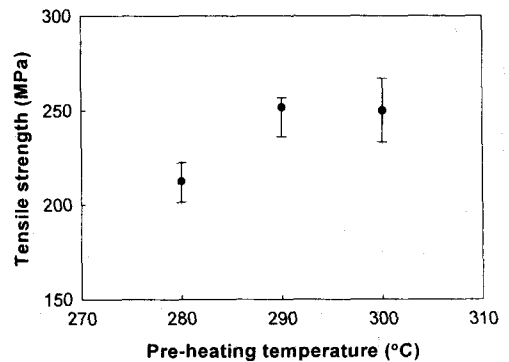


Fig. 2 Tensile strength vs. pre-heating temp.

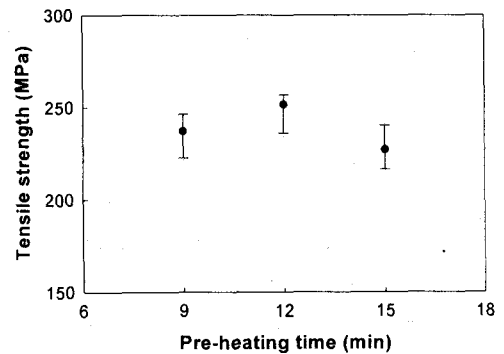


Fig. 3 Tensile strength vs. pre-heating time.

다음은 프레스에서의 온도, 압력과 시간에 따른 인장강도를 나타낸 것으로, Fig. 5는 프레스의 온도와 인장강도의 관계를 나타낸 그림이다. 프레스의 온도가 140℃인 경우 최적의 조건을 보였으며 또한, 이 온도가 재료의 결정화를 촉진시키는 적절한 온도이다. 그리고 Fig. 6는 프레스의 가압시간의 효과를 보여주는데 15초동안 가압할 경우 최적의 상태가 되었고 그 다음이 20초였다. Fig. 7에서는 가압력과 인장강도와의 관계를 보여주는데, 가압력이 125 kN인 경우 최고의 인장강도를 나타내었다. 본 실험에서는 시편이 단순한 평판모양으로 제작되었는데 곡면 또는 3차원의 시편인 경우, 그리고 시편의 체적 함유량이 큰 경우 더 큰 가압력이 필요할 것이다. 인장실험결과 최적의 조건은 Table 1에서 No.1의 경우였고 인장강도는 약 252 MPa이었다.

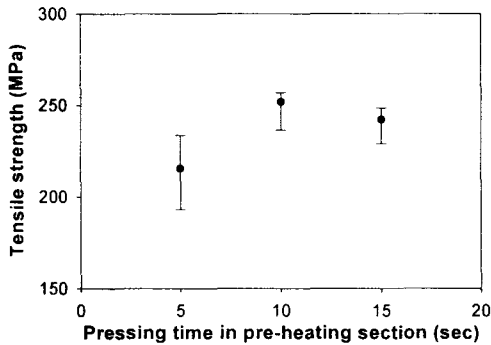


Fig. 4. Tensile strength vs. pressing time in pre-heating section.

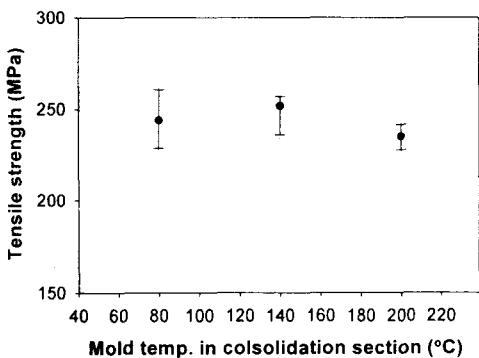


Fig. 5. Tensile strength vs. mold temperature in consolidation section.

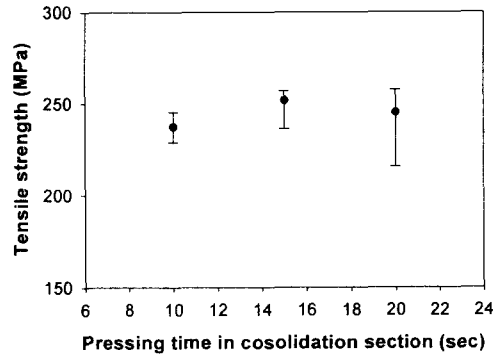


Fig. 6. Tensile strength vs. pressing time in consolidation section.

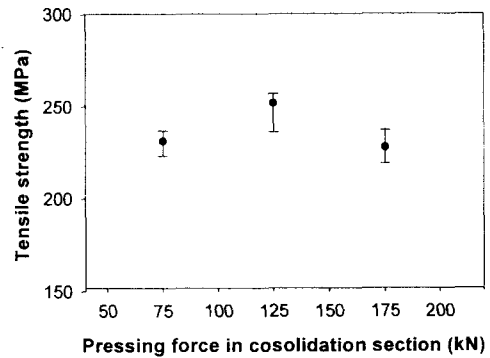


Fig. 7. Tensile strength vs. pressing force in consolidation section

냉각속도의 영향을 알아보기 위해 Slow, Normal A, Normal B, Fast Cooling의 네 가지 서로 다른 냉각속도를 적용하여 보았다. 각 시편은 4가지 냉각조건에 따라 제작되었으며, Pre-heating과 Consolidation의 조건들은 Table 1의 No. 1을 따랐다.

Slow Cooling : 최종가압을 한 후 압력을 제거하고 몰드에 시편을 그대로 유지하여서 1℃/min의 냉각속도를 가지게 하였다.

Normal A Cooling : 최종가압을 한 후 시편을 몰드에서 꺼내어 공기중에 냉각시켰다. 냉각속도는 약 8℃/min이다.

Normal B Cooling : 최종가압을 한 후 압력만 제거하고 몰드에 시편을 그대로 유지한 채로 냉각수를 이용하여 냉각속도를 조절하였다. 냉각속

Table 2. The optimum conditions for the case of PET film and glass woven fabric.

Section	Pre-heating			Consolidation			Solidification
	Pre-heating temperature (°C)	Pre-heating time (min)	Pressing time (sec)	Mould temperature (°C)	Pressing time (sec)	Pressing force (kN)	
Optimum conditions	290	12	10	140	15	125	Slow cooling

도는 약 15°C/min이다.

Fast Cooling : 최종가압을 한 후 시편을 몰드에서 꺼내어 찬물에 담구어 급냉을 시켰다. 냉각 속도는 약 70°C/min이다.

Fig. 8은 각각의 냉각조건과 인장강도와와의 관계를 나타내었다. 그래프에서 알 수 있듯이 서냉의 경우 인장강도가 가장 높게 나타났는데 이는 제품이 결정화할 시간이 가장 길었고 그 결과 결정화도가 높아짐으로 해서 인장강도가 높아진 것이다.

RPCT의 모든 공정에서 제작변수의 변화결과 Table 1의 No. 1인 경우가 최적이었으며 냉각조건인 경우 서냉인 경우가 최적조건이었다. 따라서 PET 필름과 Glass Fabric을 사용한 복합재료의 최적 조건을 Table 2에 나타내었다.

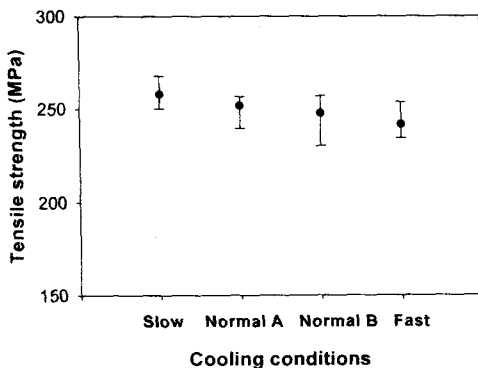


Fig. 8. Tensile strength with different cooling conditions.

#### 4.2 결정화도( $X_c$ )

결정화도는 다른 제작변수들 뿐만 아니라 제작시 시편의 열적 변화에 크게 의존한다. DSC실험을 통해 Consolidation 공정에서 프레스의 온도와 Solidification 공정에서의 냉각속도등의 영향을 알아보았다. 먼저, 가압시 프레스의 온도에 따른

결정화도를 알아보기 위하여 두 가지 종류의 복합재료가 사용되어졌다. Fig. 9에서 보듯이 결정화도는 프레스의 온도에 영향을 받는다. 140°C의 가압온도에서 결정화도는 제일 높았는데 일반적으로 PET는 190°C부근에서 결정화하기 때문에 시편이 290°C의 예열장치에서 빠져나와 140°C의 프레스에서 가압될 경우 80°C나 200°C보다 상대적으로 결정화가 잘 이루어지는 190°C부근에서 더 오래 유지되기 때문에 결정화가 잘되는 것으로 보인다.

프레스의 온도뿐만 아니라 사용되어진 기지재료와 보강재료의 형태에 따라서도 다른 결정화도를 보였는데, PET Yarn과 Glass Yarn을 복합재료화 할 경우 PET 필름과 Glass Fabric의 경우보다 더 높은 결정화도를 보였다.

Fig. 10은 냉각속도와 결정화도와와의 관계를 보여준다. 냉각속도가 느릴수록 결정화할 시간이 충분하므로 높은 결정화도를 보이는데, 냉각속도가 1°C/min인 Slow Cooling에서는  $X_c$ 가 26%로 PET의 최고 결정화도인 30%에 가깝다.

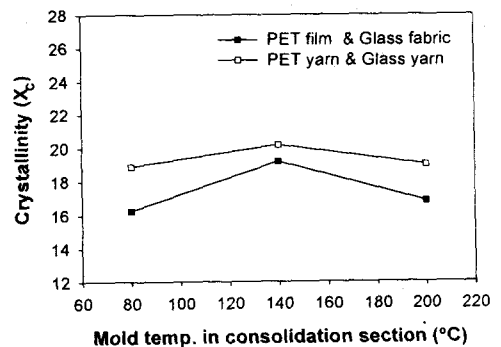


Fig. 9 Crystallinity vs. mold temperature of two different composites.

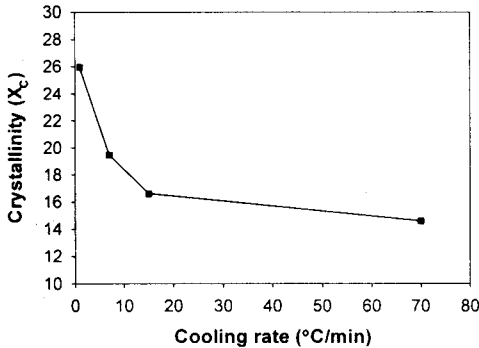


Fig. 10 Crystallinity as a function of cooling rate.

## 5. 결론

여러 가지 제작 조건의 변화에 따른 인장실험을 실시한 결과 예열장치와 프레스로 구성된 RPCT 장비의 온도, 압력과 시간에 대한 최적조건을 알아내었으며, 최고의 인장강도는 258 MPa 이었다.

결정화도와 인장강도와의 관계를 알아보기 위해서 Consolidation 공정에서의 가압시 프레스 온도와 Solidification 공정에서의 냉각속도를 변화시켜 보았다. DSC 실험을 통하여 이들 각 경우의 결정화도를 알아보았는데 그 결과, 인장강도 뿐만 아니라 결정화도( $X_c$ )도 역시 프레스의 온도가 140°C 일 때 가장 우수하게 나타났다. 그리고 냉각효과에 대해서는 냉각속도가 1°C/min 인 Slow Cooling에서 결정화도가 26%로 가장 크게 나타났으며 인장강도도 가장 우수했다. 그러므로 결정화도에 있어서의 차이는 기계적 강도에 영향을 미치는 중요한 요소중에 하나인 것 같다.

기지재료와 보강재료를 각각 두 가지 다른 형태의 재료를 사용하여 그들이 결정화도에 미치는 영향을 알아보았다. 그 결과, PET Yarn과 Glass Yarn을 사용할 경우 PET 필름과 Glass Fabric의 경우보다 높은 결정화도를 나타내었는데 PET 필름과 Glass Fabric의 경우보다 Yarn 형태를 사용하는 경우가 함침이 더 잘 되어 분자배열에도 영향을 미치는 것으로 보인다.

## 참고문헌

1. T.Løgstrup Andersen, 1997, "Development of a Rapid Press Consolidation Technique for Continuous Fibre Reinforced Thermoplastic Composites," Proceeding of 18th Risø International Symposium on Materials Science, p. 237
2. Christoph M. Pistor and Selcuk I. Güçeri, 1999, "Crystallinity of On-Line Consolidated Thermoplastic Composites," J. of Composite Materials, Vol. 33, No. 4, pp306~324
3. Gong X.Lu, Cherouat A., Gong X. Jing and LU Jian, 1999 "Residual Stress Distribution and Its Influence on the Mechanical Behavior of Composite Laminates," 12th International Conference on Composite Materials Materials.
4. Moshe M. Domb and Jorn S. Hansen, 1998, "The Effect of Cooling Rate on Free-Edge Stress Development in Semi-Crystalline Thermoplastic Laminates" J. of Composite Materials, Vol. 32, No. 4, pp361~386
5. T.Vestergaard, 1997, "Industrial Process for Pressing Hybrid Fabric," Proceeding of 18th Risø International Symposium on Materials Science, p. 509~514
6. H. Knudsen, B. Lichscheidt and H. Bak, 1997, "Hybrid Yarn and Textile for Fibre Composites," Proceeding of 18th Risø International Symposium on Materials Science, p. 393~396
7. L. Ye and K. Friedrich, 1993, "Consolidation Behavior of Powder Impregnated Fiber Bundles in Manufacturing of Thermoplastic Composites" 93 Int. Conference of Advanced Composite Materials, pp891~896.