

완전 함침된 프리프레그 테이프의 성형방법 및 응용분야

이건웅*, 박민*, 김준경*, 최철림*, 이재식**, 정호갑**

Manufacturing of fully impregnated prepreg tape and its applications

Geon Woong Lee*, Min Park*, Junkyung Kim*, Chul Rim Choe*, Jae Shik Lee** and Ho Gap Jeong**

Key Words: prepreg tape, degree of impregnation, spreading, die design

Abstract

Research on the high performance and strength thermoplastic/continuous fiber composites was performed. New concept of impregnating die for developing continuous strand and prepreg tape of engineering plastic/glass fiber was introduced and estimated. Fully impregnated prepreg strand and tape was successfully manufactured through the new pin structure of impregnating die and control of spreading variable. Also design variables for stability of increasing processing speed were shown. And tensile strength of prepreg tape manufactured in this study was much higher than composites made by other competition company.

1. 서 론

열가소성 복합재에 대한 최근 국내 개발 동향은 범용 열가소성 수지 복합재료, 특히 사출성형용 단섬유 몰딩컴파운드에 국한되어 있다. 사출용 단섬유 컴파운드는 국내의 경우 많은 기업에서 생산되고 있으나, 이보다 물성이 우수한 사출용 장섬유 복합재료는 90년대 중반부터 일부 기업에서 연구를 시작하였으나 IMF를 겪으면서 대부분 연구 및 생산을 중단한 상태이며 현재 한 업체에서 독자적으로 생산하고 있는 실정이다. 특히 프리프레그 형태의 열가소성 중간재 개발은 많은 회사들이 관심을 갖고 연구를 하였으나 그 당시에는 기술력이 낮고 시장성이 불투명해 연구를 중단하였었다. 최근에 전 세계적으로 범용 열가소성수지 복합재료가 저가의 장점 때문에 그

수요가 크게 증가하고 있으며, 점차적으로 고성능 EP 기지 복합재료로 그 수요가 이동할 것으로 보인다. 그러나 그 수요가 크게 증가하리라고 예측되는 연속섬유를 이용한 열가소성수지 프리프레그 제조에 관한 연구는 국내에서는 물론 국제적으로도 거의 이루어지고 있지 않고 있으므로 앞으로 크게 형성될 국제시장에 대한 대비가 절실하다.

열가소성 복합재 고속 성형 기술 개발은 건축, 토목 등의 보수/보강에 연관된 산업적 방면의 신분야를 창출할 수 있으리라 예상된다. 기존의 보수/보강은 체계화되지 못한 채 선진기술이 접목되지 못하였으나 이 기술의 개발로 인해 시공시간을 대폭 단축시킬 뿐 아니라 기계적물성도 뛰어난 제품을 선보임으로써 기간산업의 발전에 큰 도움이 되리라 판단된다. 이에 따라, 자동차 및 선박용 연료전지관련 동력시스템, 개질기, 압축기 부품, 도시형 연료전지 발전소 부품, 가정용 연료전지 자가 발전소 시스템 및 운수공급 키트 등이 경제성 향상의 측면에서 복합재료로 만들어질 것이라 예측된다. 본 연구에서는 기술적 측면

* KIST 고분자하이브리드연구센터

** (주) 삼박

뿐만 아니라 경제/산업적 측면에서 절실한 요소 기술인 열가소성 수지로 완전 함침된 프리프레그 테이프의 성형기술을 개발하고 새로운 고강도 소재의 응용 가능성에 대해 고찰하고자 한다.

2. 실험

2.1 실험 재료

실험에 사용된 재료는 EP 수지로서 나일론(PA6)을 사용하였으며 함침도 향상을 위해 저점도의 제품을 사용하였다. 유리섬유는 한국 오웬스 코닝의 PA6용 로빙을 사용하였으며 2200TEX의 제품을 사용하였다. 유리섬유 로빙은 약 2000개의 필라멘트로 구성되어 있다.

2.2 함침다이 설계

고점도의 엔지니어링 플라스틱 수지를 수천가닥이 집속된 연속섬유 내부로 함침시키기 위해 본 연구에서는 독자적인 섬유펼침 기구를 사용하였다. 즉 함침시간과 효율을 높이기 위해 수천가닥으로 되어있는 섬유 로빙을 최대한 펼쳐 전단 응력(shear stress)과 squeezing 유동을 이용해 함침시키는 방식이다. Fig. 1에서 보는바와 같이 다양한 편 조합에 의해 섬유는 펼쳐지고 다시 모이는 과정을 반복하고 편을 통과할 때의 전단 응력에 의해 원활한 함침이 이루어질 수 있다. 여기서 함침다이의 설계변수는 편 사이의 수평거리(L), 편 직경(D), 편 상하거리(H), 섬유와 편의 접촉각(θ), 편 개수 등을 들 수 있다. 본 연구에서는 사전 실험 결과를 바탕으로 편 직경을 10mm로 고정하였으며, 수평거리, 접촉각 및 편 개수를 조절하는 방법으로 함침도를 평가하였다.

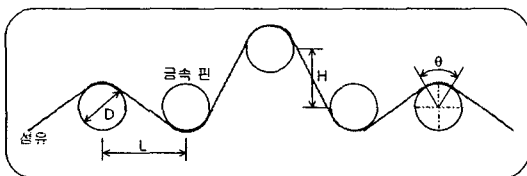


Fig. 1 Design factors of impregnation die.

2.3 함침도 평가 방법

함침도의 직접적인 평가를 위해서는 함침 다이를 통과한 연속 strand를 위치별로 절단하여 단면을 관찰하여야 한다. Fig. 2는 함침된 연속섬

유 strand의 단면과 함침도 평가를 위한 영역구분을 보여주고 있다.

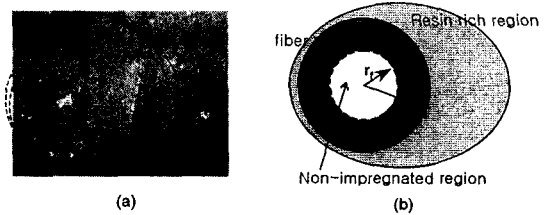


Fig. 2 Evaluation outline of degree of impregnation.

Fig. 2에서 수지가 많은 부분(resin rich region)과 섬유가 모여 있는 부분(fiber rich region)이 구분되며 함침도 평가의 기준은 fiber rich region으로 하였다. 여기서 함침도(D_{imp})의 정의는 다음과 같다.

$$D_{imp} = \frac{\pi r_o^2 - \pi r_f^2}{\pi r_o^2}$$

2.4 Continuous prepreg tape의 기계적 물성 측정

함침다이 내부 편에서 spreading에 의해 성형된 프리프레그 테이프의 기계적 물성을 ASTM D3039에 의해 측정하였다. 시험편의 표준규격과 시험규격은 다음 Table 1에 정리하였다.

Table 1. Specification of test specimens.

	width (mm)	overall length	thickness	tab length	tab thickness
spec.	15	250	1.0	56	1.5
sample	7.5	250	0.54	50	0.54

시험방법은 다음과 같다. cross-head speed는 2mm/min으로 하였으며 gauge length는 150mm로 하였다. 시험편은 다음 그림과 같이 준비하였다.

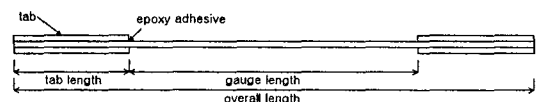


Fig. 3 Preparation of test specimens.

만능시험기 시험 후 ultimate tensile strength는 다음 식으로 계산하였다.

$$F_{ul} = P_{max} / A$$

P_{max} : maximum load before break [N]

A : cross-sectional area [mm²]

3. 결과 및 분석

3.1 함침다이 설계기술

함침다이 내부의 핀 조합과 여러 가지 선속도에서 각각의 핀 요소에 따른 함침도를 평가하는 방법으로 최적의 함침다이를 구성하였다. 핀 개수를 5개로 고정하였을 때 수평거리를 작게 함으로써 선속도 2m/min까지 100% 함침을 얻었으며 핀 개수를 8개로 증가시키면 선속도 5m/min까지 100% 함침을 얻을 수 있다. 그러나 엔지니어링 플라스틱 수지의 높은 점도특성 때문에 pulling tension이 과도하게 증가하여 성형 속도 및 연속성형성에 문제가 발생하였다. 이를 해결하기 위해 함침다이 설계변수 중 핀 사이의 수평거리(L), 핀 상하거리(H), 핀 개수, 섬유 유로(path) 변경 등을 통하여 정상속도에서 안정적으로 장시간 성형이 가능한 핀 디자인에 관해 연구하였다. 함침다이 설계변수는 함침도와 pulling tension, 연속성형성 등을 복합적으로 고려하여야 하며 핀 배치 및 섬유 유로 설계의 체계적인 접근으로부터 성형속도를 8m/min까지, pulling tension을 30% 감소시키는 결과를 얻었다. 이로써 함침다이 설계에 있어 함침도와 pulling tension을 동시에 제어하는 기술을 확립하였다.

3.2 연속섬유 스트랜드의 함침도

시험설비에서 성형된 연속섬유 strand를 10mm 간격으로 절단하여 에폭시수지에 embedding 하고 표면을 연마하여 광학현미경으로 관찰하였다. 연속섬유 pulling 단계에서 장력(tension)에 의해 외관의 형상이 일정하게 유지되지 않으며 섬유들이 한쪽에 집중되는 현상이 나타났다. Fig. 4는 본 연구에서 성형된 연속섬유 strand의 단면 관찰 결과를 보여주고 있다. 각각의 단면은 섬유가 많은 부분을 기준으로 위의 식을 이용하여 함침도를 계산하며 이상의 결과를 함침다이 설계에 반영하였다. 그림에서 보는바와 같이 우수한 함침도를 보여주는 strand는 수천개의 섬유 필라멘트 내부에 PA6 수지로 모두 채워져 있음을 알 수 있다. 반면 부족한 함침 strand는 섬유 부분 내

부에 미함침으로 인한 공소(void)가 존재하며 함침도 향상을 위해 핀 요소들의 배치를 변경해야 함을 알 수 있다.

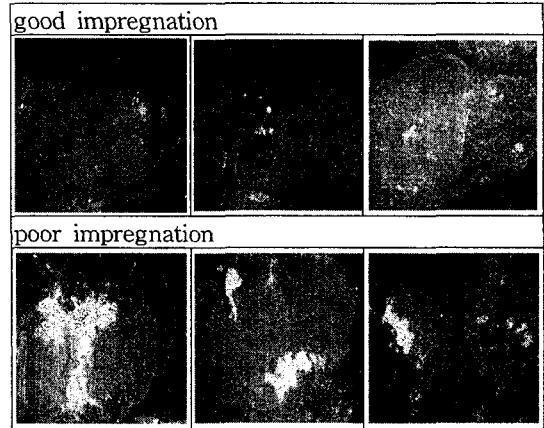


Fig. 4 Photographs of cross-sectional area of impregnated strands.

3.3 두께 및 spreading 제어기술

함침다이 내부의 핀 요소 배열에 의해 각각의 핀을 통과하는 섬유 필라멘트의 두께와 spreading를 제어할 수 있으며 pulling speed에 따라서 값이 변화함을 확인하였다. 또한 핀의 직경, 핀 간 수평거리에 따라 spreading 제어가 가능함을 확인하였다. 이와 같이 핀을 통과하는 섬유 로빙의 spreading은 본 연구목표인 연속섬유 프리프레그형 tape 성형에 직접 적용할 수 있으며 함침 시간의 단축 및 각 섬유 필라멘트의 함침제어, 최종 성형품의 형상 제어에 활용할 수 있다.

두께 및 spreading 제어의 주요 변수는 함침다이 내부의 핀의 직경, 핀 간 수평거리, 성형 속도, 즉 pulling speed 등임을 실험적으로 확인하였다. 핀 수평거리가 증가하면 spreading은 감소하며 pulling speed가 증가하면 spreading도 증가한다. 그러나 함침도에도 영향을 미치게 되므로 서로 상반되는 변수들의 제어에 있어 최적화가 필요함을 알 수 있다.

함침다이 내부에서 설계변수들에 따른 섬유의 spreading을 측정하였으며 설계변수인 핀 배열에 따른 정량적인 실험을 수행하였다. 또한 pulling speed에 따른 spreading을 측정하여 일정한 폭과 두께를 갖는 테이프 형상의 성형이 가능함을 확

인하였다. 편 배열을 변경시키면 함침도 및 pulling tension이 동시에 변화하며 원하는 수준의 섬유 펼침을 얻기 위한 기초자료를 획득하였다.

3.4 Continuous prepreg tape 성형

함침다이 내부 편 배열을 통과한 섬유 로빙을 펼쳐진 상태로 출구 노즐을 통해 배출하면 일정한 형상의 tape이 얻어진다. 본 연구에서는 함침다이 내부 편에서 섬유 spreading을 이용한 tape을 성형하였으며 Fig. 5에서 단면을 보여주고 있다. 그러나 편을 통과하는 면은 깨끗한 반면 노출된 면, 즉 반대면은 형상이 불규칙하여 별도의 형상 롤(shaping roll)이 필요함을 알 수 있다.



Fig. 5 Photographs of cross-sectional area of prepreg tape.

3.5 Continuous prepreg tape의 기계적 물성

본 연구에서 성형한 프리프레그 테이프의 인장 물성을 측정하였다. Table 2는 각 시험편의 치수와 측정결과를 보여주고 있다.

Table 2. Tensile properties of prepreg tapes

No.	width (mm)	thickness (mm)	ultimate tensile strength(MPa)	tensile modulus(GPa)
1	7.3	0.55	411	15.0
2	7.25	0.54	441	15.8
3	7.4	0.55	413	15.3

상기 표에서 보는바와 같이 유리섬유 강화 복합재료계에서 최고치의 물성을 구형하고 있으며 tape를 활용한 2차성형방법의 개발을 통해 고강도 부품 소재로서의 응용분야가 많을 것으로 기대된다.

4. 결론

엔지니어링 플라스틱과 유리섬유계의 연속 스트랜드 및 prepreg tape 성형기술 개발을 위해 새로운 개념의 함침다이를 설계하고 그 성능을

평가하였다. 함침다이 내부의 편 구조 및 배치에 따른 함침도 평가, spreading 변수 제어를 통하여 완전 함침된 스트랜드 및 테이프의 성형이 가능하였으며 성형속도를 안정적으로 증가시킬 수 있는 디자인 변수를 제시하였다. 또한 본 연구에서 성형된 프리프레그 테이프의 인장물성은 타 경쟁소재 대비 매우 우수함을 보여주었으며 2차성형방법의 보완을 통하여 고강도 구조재료로 활용할 수 있음을 보였다.

후 기

본 연구는 21세기 프론티어 연구개발사업인 차세대소재성형기술개발사업의 연구비를 지원받아 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) J. B. Cattanch, G. Guff and F. N. Cogswell, *J. Polym. Eng.*, 6, 1 (1986).
- (2) C. S. Temple and J. R. Matthews, US Patent 4481075, 1969.
- (3) E. M. Silverman, *Polym. Compos.*, 8, 8 (1987).
- (4) K. P. McAlea and G. Besio, *J. Mater. Sci., Lett.* 7, 141 (1988).
- (5) G. W. Lee, J. S. Lee, H. G. Jeong, KOR Patent 300184, 2001.
- (6) J. S. Lee, H. G. Jeong, J. W. Lee, J. R. Lee, G. W. Lee, KOR Patent 343518, 2002.