

〈論 文〉

장섬유강화 고분자복합판의 압축성형에 있어서 섬유의 분리와 배향의 상관관계에 관한 연구

이동기* · 유정훈** · 김이곤***

(1992년 5월 28일 접수)

A Study on Correlation between Separation and Orientation of Fibres during Compression Molding of Long Fibre-Reinforced Polymeric Composites

Dong Gi Lee, Joung Hoon Yoo and E Gon Kim

Key Words : Long Fibre-Reinforced Polymeric Composites(장섬유강화 고분자복합재료), Compression Molding(압축성형), Degree of Nonhomogeneity(불균질도), Orientation Function(배향함수), Correlation between Separation and Orientation(분리와 배향의 상관관계)

Abstract

During compression molding of fibre-reinforced thermoplastics, the two main problems such as the fibre-matrix separation and the fibre orientation are produced by the flow state. As the molded product tends to be nonhomogeneous and anisotropic due to the separation and the orientation, it is necessary to clarify these in relation to the molding process variables and the fibre structure (fibre entanglement). If the entanglement of fibre structure is strong, the separation increases and the orientation is not easily aligned. Namely, these are inseparably related to each other. The correlation between the separation and the orientation have to be clarified for designing the fibre structure. In this paper, the degree of nonhomogeneity which is a measure of the separation is obtained using one-dimensional rectangular shaped part compression molding. And the orientation function is defined and measured by the image processing using soft X-rayed photograph and image scanner. Correlation between the degree of nonhomogeneity and the orientation function is discussed.

기 호 설 명

\dot{h} : 압축속도

h : 성형후의 두께

h_0 : 성형전의 두께

$H_D(K)$: 농도정보에 의한纖維配向角分布

J : 配向函數

q_f : 形成後의 重量纖維含有率

q_{f0} : 形成前의 重量纖維含有率

Q_{fr} : 形成前後의 纖維含有率比(= q_f/q_{f0})

$q(\theta)$: 纖維配向角分布

R_{cr} : 壓縮比(= $1-h/h_0$)

W : 金型의 幅

ΔG : 隣接畫素와의 濃度差

ΔH : 水平方向의 濃度差

ΔV : 垂直方向의 濃度差

*정회원, 조선대학교 정밀기계공학과

**정회원, 공군사관학교 기계공학과

***정회원, 국민대학교 기계설계학과

Γ : 平均質度
 θ : 物體의 輪廓線方向

1. 서 론

복합재료란 형태와 화학조성이 다르고 서로 용해되지 않는 2개 이상의 서로 다른 이질·이형의 재료를 조합시켜서, 원래의 소재보다 뛰어난 특성을 얻어 요구에 적합한 우수한 성질을 얻은 재료를 일컬으며, 고강도 및 내식성이 뛰어나 항공기, 자동차 및 각종 산업분야에서 부품을 경량화시킬 수 있어 연구의 대상이 되고 있다. 복합재료의 성질은 모재의 성질에 의존하는 것은 당연하지만 섬유의 형태, 매트 구조 등에 의해서 복합재료의 물성이 변화한다. 따라서 복합재료 성형품의 성형에 있어서는 섬유의 형태를 제어하는 것이 중요하다.

근래, 장섬유매트를 강화재로 하고 고분자를 모재로 한 장섬유강화 고분자복합판(stampable sheet)은 성형의 자유도가 크고 복잡한 형상의 부품성형이 가능하여 생산성도 높고, 또한 생산비도 낮은 특징이 있어 각종 부품소재로서 각광을 받고 있다. 이 장섬유강화 고분자복합판을 고온압축성형하는 경우, 가장 큰 문제점은 성형시 재료의 유동속도차에 의한 섬유와 모재의 분리 및 변위에 의한 섬유의 배향이 발생하여 성형품이 불균질하게 되고 이방성이 되어, 성형품의 강도나 특성에 변화가 생긴다. 따라서 복합재료를 이용한 부품의 유동성형에 있어서는 분리·배향을 성형조건이나 재료와 관련시켜서 명확히 하고, 또 분리·배향을 제어하면 최적 성형조건을 결정할 수 있어 뛰어난 성형품을 얻을 수 있다.

지금까지 모재와 섬유의 분리 및 섬유의 배향에 관한 연구를 보면, Hojo 등은 섬유의 분리를 표현할 수 있는 분리방정식을 유도하고 그때 분리계수를 제안 및 측정하였으며, 측정된 분리계수를 가지고 2차원 평판압축의 경우 섬유함유율 분포를 예측하였다.^(1~4) 矢口 등은 섬유의 배향을 화상처리를 이용하여 측정하였다.^(5,6) 한편, 필자들은 장섬유 배향의 경우는 유동속도에 의존하는 것이 아니라 성형품의 변위에 의존함을 밝혔다.⁽⁷⁾ 이때 분리의 척도는 불균질도, 배향은 배향함수를 사용하였고, 배향함수는 화상처리에 의해서 구하였다.

본 연구에서는 장섬유강화 고분자복합판을 고온 압축성형할 때 섬유의 분리 및 배향은 서로 불가분

의 관계가 있으므로, 모재와 섬유의 분리에 의해서 야기되는 성형품의 불균질성을 나타내는 균질도와 섬유의 배향을 표시하는 배향함수와와의 상관관계에 대한 실험결과를 보고한다.

2. 이 론

2.1 배향함수

섬유의 배향은 성형품의 두께가 폭과 길이에 비하여 매우 얇기 때문에 섬유를 2차원 집합체로서 취급하여 검토한다. Fig. 1은 섬유배향각분포 $q(\theta)$ 식 유도에 사용하는 좌표계이다. 집합체가 X축 방향에 α 배, Y축 방향에 β 배 신장되었을 때 집합체의 변형과정에 대해서 다음의 가정을 세운다.

- (1) 집합체의 변형에 의해서 섬유길이는 변화하지 않는다.
- (2) 초기상태에 있어 임의의 한개의 섬유가 접해 있는 사각형면적 $a_0 \times b_0$ 는 집합체 변형후 $\alpha a_0 \times \beta b_0$ 의 직사각형이 되어 섬유는 이 변형한 직사각형의 대각선상에 온다.
- (3) 초기상태 임의의 한개의 섬유중심점 좌표 x_0, y_0 는 집합체 변형후 $\alpha x_0, \beta y_0$ 로 된다.

섬유집합체의 변형전후 배향각⁽⁸⁾은

$$\theta_0 = \tan^{-1} \left[\frac{\alpha \tan \theta}{\beta} \right] \tag{1}$$

식(1)을 미분하면

$$\frac{d\theta_0}{d\theta} = \frac{\alpha\beta}{\alpha^2 \sin^2 \theta + \beta^2 \cos^2 \theta} \tag{2}$$

초기상태에 있어서 배향각분포 $q(\theta_0)$ 는 $-\pi/2 \leq \theta \leq \pi/2$ 의 일정한 분포이므로

$$q(\theta_0) = \frac{1}{\pi} \tag{3}$$

변형후의 배향각분포 $q(\theta)$ 는 식(2), (3)으로부터

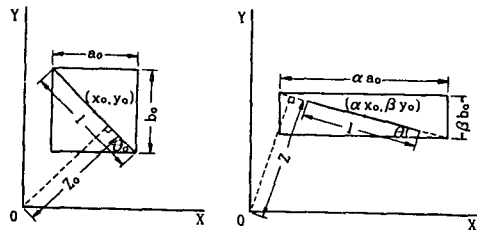


Fig. 1 Two dimensional fibre orientation model

$$q(\theta) = \frac{1}{\pi} \frac{\alpha\beta}{\alpha^2 \sin^2\theta + \beta^2 \cos^2\theta} \quad (4)$$

배향각분포 식(4)를 Stein 등이 제안한 배향함수 J 로 나타내면 다음과 같다.

$$\begin{aligned} J &= 2 \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \cos^2\theta q(\theta) d\theta - 1 \\ &= \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \cos 2\theta q(\theta) d\theta \end{aligned} \quad (5)$$

식(5)를 우함수로 표시하고, 식(4)를 대입하여 정리하면

$$\begin{aligned} A(2k) &= 2 \int_0^{\pi/2} \cos 2k\theta q(\theta) d\theta \\ &= \frac{2}{\pi} \int_0^{\pi/2} \frac{\cos 2k\theta d\theta}{(\beta/\alpha - \alpha/\beta) \cos^2\theta + \alpha/\beta} \end{aligned} \quad (6)$$

가 된다.

여기서 $\theta = x/2$, $d\theta = dx/2$ 이므로

$$\begin{aligned} A(2k) &= \frac{2}{\pi} \int_0^\pi \frac{\cos kx dx}{\beta/\alpha - \alpha/\beta \cos x + (\beta/\alpha + \alpha/\beta)} \\ &= \left[\frac{\alpha - \beta}{\alpha + \beta} \right]^k \end{aligned} \quad (7)$$

여기서 k 의 급수는 $0 \leq A(2k) \leq 1$ 로서, k 값이 1인 경우가 배향함수에 영향을 가장 크게 미치므로 $k=1$ 로 한다.

식(5), (7)로부터 $J=A(2)$ 가 되어서, 식(7)을 변형하면

$$\beta/\alpha = (1-J)/(1+J) \quad (8)$$

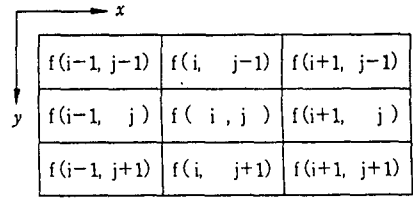
식(8)을 식(4)에 대입하여 섬유배향각분포 $q(\theta)$ 식을 구하면 다음과 같다.

$$q(\theta) = \frac{1}{\pi} \left[\left(\frac{1-J}{1+J} \right) \cos^2\theta + \left(\frac{1+J}{1-J} \right) \sin^2\theta \right]^{-1} \quad (9)$$

여기서 J 는 2차원 배향각분포에 대한 배향함수이며, 배향이 등방성인 경우 $J=0$, X 축 방향으로 평행하게 배열되어 있는 경우는 $J=1$, Y 축 방향으로 평행하게 배열되어 있는 경우는 $J=-1$ 이다.

2.2 농도법

사진의 농도차로 화상처리를 함으로써 물체 윤곽선(edge)의 검출은 Fig. 2에 나타낸 바와 같이 Sobel 오퍼레이터를 이용하여 중심화상요소(이하 화소라고 함)의 수평, 수직 양방향으로 ΔH , ΔV 를 계산한다. 인접화소와의 농도차 ΔG 로 윤곽선을 검출하며, ΔG 값이 Threshold값 보다 큰 경우를



Observation pixel(i, j)

-1	0	1
-2	0	2
-1	0	1

ΔH

1	2	1
0	0	0
-1	-2	-1

ΔV

$$\begin{aligned} \Delta H &= \{ f(i+1, j-1) + 2f(i+1, j) + f(i+1, j+1) \} \\ &\quad - \{ f(i-1, j-1) + 2f(i-1, j) + f(i-1, j+1) \} \\ \Delta V &= \{ f(i-1, j+1) + 2f(i, j+1) + f(i+1, j+1) \} \\ &\quad - \{ f(i-1, j-1) + 2f(i, j-1) + f(i+1, j-1) \} \end{aligned}$$

Fig. 2 Sobel operator of 3x3 pixel

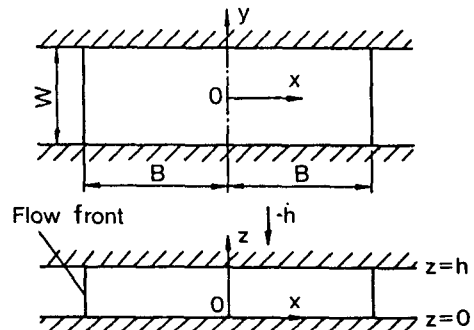


Fig. 3 Nomenclature for slab-shaped part compression molding

윤곽선으로 한다.⁽⁷⁾

$$\Delta G = (|\Delta H| + |\Delta V|) / 2 \quad (10)$$

또, 물체의 윤곽선방향 θ 는 다음식과 같다.

$$\theta = \tan^{-1}(\Delta V \times \Delta H^{-1}) + \pi/2 \quad (11)$$

연X-선 사진으로부터 얻어진 농도정보에서, 모든 화소에 대하여 배향각 θ 와 ΔG 를 구하였을 때 섬유배향각분포는 다음식과 같다.

$$\begin{aligned} H_D(K) &= N_\theta(k) / \sum_{i=0}^{n-1} N_\theta(i) \\ k &= 0, 1, 2, 3, \dots, n-1 \end{aligned} \quad (12)$$

여기서 n 은 $0 \leq \theta < \pi$ 의 분할수이고, $N_\theta(k)$ 는 $(2k$

-1) $\pi/2n \leq \theta \leq (2k+1)\pi/2n$ 의 범위에 있는 물체의 윤곽선방향 화소수이다. 이와 같이 식(12)로 측정된 $H_D(K)$ 로부터 최소자승법에 의하여 섬유유 배향함수 J 를 구한다. 장섬유강화 고분자복합판의 고온유동성형에 있어서 섬유유가 서로 강하게 엉켜져 있는 상태, 즉 섬유 하나하나를 식별할 수 없는 경우의 섬유배향각분포를 구할 수 있다. 본 실험의 계측에서 θ 의 범위는 10° 이고, 연X-선 사진농도정보를 이용하여 측정된 $H_D(k)$ 로부터 배향함수 J 를 구하면 성형품의 섬유유 배향정도를 알 수 있다.

2.3 압축비(R_{cr}), 섬유함유율비(Q_{fr}) 및 불균질도(Γ)의 정의

재료를 Fig. 3과 같이 평행판 사이에 끼우고 y방향의 흐름을 구속하여 하중을 가해 초기두께 h_0 를 h 까지 압축한 경우의 압축비 R_{cr} 을 다음식(13)과 같이 정의한다.⁽²⁾

$$R_{cr} = 1 - h/h_0 \tag{13}$$

섬유함유율비 Q_{fr} 은 식(14)와 같이 정의한다.

$$Q_{fr} = q_f/q_{f0} \tag{14}$$

여기서 q_{f0} , q_f 는 성형전후의 중량섬유함유율이다. 성형중의 섬유를 고체, 모재를 액체로 한 고액혼상류는 성형이 진행됨에 따라 유동속도 차이에 의해 분리가 생기며 이로 인하여 성형품은 불균질하게 된다. Fig. 4는 압축성형후의 성형품의 섬유함유율 분포를 나타낸 한 예이며, 분리가 심하면 심할 수록 성형품은 불균질하게 되어 그림에서 사선부분의 영역이 더 크게 된다. 섬유함유율분포곡선 Q_{fr} 을 2차함수로하고 계수 c_1, c_2, c_3 를 최소화

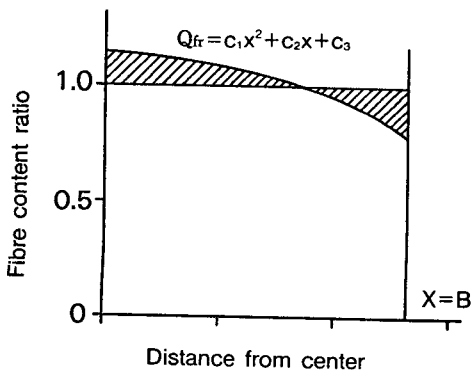


Fig. 4 Example of fibre content ratio

승법에 의해서 구한 후 사선의 면적을 계산하여 불균질도(Γ)를 식(15)와 같이 정의한다.

$$\Gamma = \text{사선의 면적} / B \tag{15}$$

여기서 Γ 는 무차원 수이며, 0에서 1의 사이에 있으나 0에 가까워지면 성형품은 균질에 가깝게 된다.

3. 실험

실험에 사용한 재료는 일본 出光石油化學(株) 제품인 스템퍼블시이트(모재: 폴리프로필렌, 강화재: 유리장섬유매트, 섬유함유율: 40 wt%, 25 wt%, 두께 h_0 : 3.8 mm)이며, 장섬유는 서로 강하게 엉켜져 있다. 그리고 섬유 및 플라스틱의 밀도는 각각 2.55 g/cm^3 , 0.9 g/cm^3 이다. 섬유유 분리 배향을 측정하기 위하여 스템퍼블시이트를 60 mm (폭) \times 70 mm (길이) \times 3.8 mm (두께)의 직사각형판으로 절단하여 시험편으로 하였다. 또 금형캐비티의 치수는 60 mm \times 400 mm 이고, 성형온도는 180°C , 200°C 및 압축속도는 14.4 mm/sec, 86.5 mm/sec 2종류이다. 가압장치는 30톤 유압프레스를 사용하였으며 금형에는 열전대를 부착시키고 가열은 봉 및 판히터를 사용하였다. 압축성형에 있어서 재료의 흐름은 Fig. 3과 같이 폭방향을 구속하여 길이방향으로만 되게 하였다. 이때 압축성형전후 직사각형복합판의 형상은 Fig. 5와 같으며, 여기서 h_0 는 성형전의 두께, h 는 성형후의 두께이

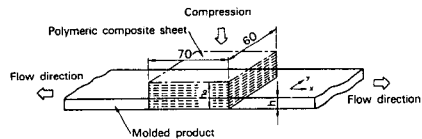


Fig. 5 Rectangular shaped-part before and after molding

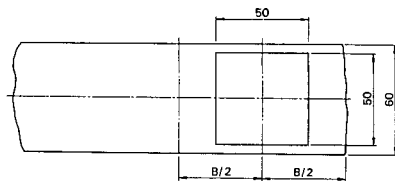


Fig. 6 Measurement area for orientation function J

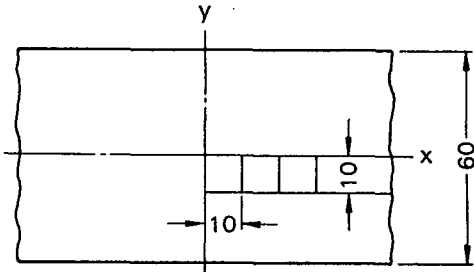
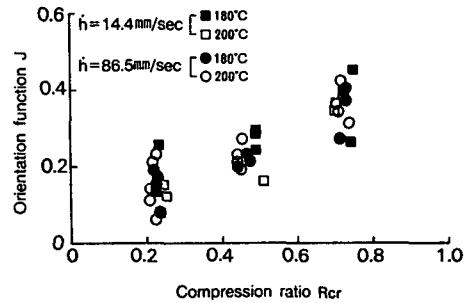


Fig. 7 Part for measuring fibre content

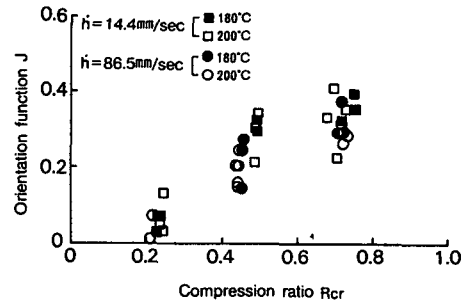
다. 화상처리에 이용한 이미즈스캐너는 일본 세이코 에스제 GT-4000V이며 해상도는 400×400 화소, 1화소 $1/8 \text{ mm} \times 1/8 \text{ mm}$, 농도계조 8비트(256계조)이다. 그리고 연X-선 발생장치는 미국 베니트 CM205(의료용)이며, 필름은 일본 후지사 제품(MI-NC의의료용 X-레이필름, $180 \text{ mm} \times 240 \text{ mm}$)이다. 섬유배향함수 J 를 측정하기 위하여 Fig. 6과 같이 성형품의 길이 $B/2$ 인 점(평균속도에 해당되는 점)을 기준으로 하여 $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ 의 영역을 화상처리함으로써 배향함수 J 를 측정하였다. 또 불균질도를 구하기 위한 시험편의 연소는 Fig. 7과 같이 시험편의 중립면에서 x 축을 따라서 가로 $10 \text{ mm} \times$ 세로 10 mm 를 채취하여 전기로에서 폴리프로필렌을 620°C 로 30분간 가열 연소하고, 연소전후의 무게를 천평으로 측정하여 섬유함유율 분포를 구하였다.

4. 결과 및 고찰

섬유의 배향함수와 불균질도를 구하기 위하여 유압프레스에 스텝퍼블시트를 넣고 1차원 평판압축 시험을 하였다. 이 성형품의 섬유배향함수는 성형품을 연X-선 촬영하여 얻은 사진으로 화상처리하여, 그리고 불균질도는 폴리프로필렌을 연소하여 섬유함유율 분포로부터 구하였다. Fig. 8은 섬유함유율 25 wt%, 40 wt%인 경우, 섬유의 배향함수와 압축비의 관계이다. 압축속도는 14.4 mm/sec , 86.5 mm/sec 이며 금형의 온도는 각각 180°C , 200°C 이다. Fig. 8(a)와 (b)에서 알 수 있듯이 압축비가 크면 클수록 성형품의 변형량이 커지므로 섬유배향함수 J 는 커짐을 알 수 있다. 여기서 실험 데이터는 많은 편차가 있는데 복합재료가 자체가 갖고 있는 불균질성 때문으로 판단된다. 또 Fig. 8로부터 장섬유의 경우, 배향함수 J 는 성형중 프레스의 압축



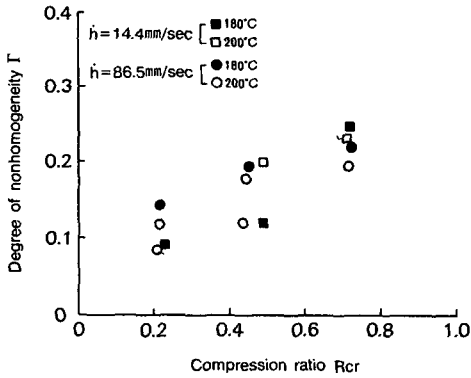
(a) Fibre content 25 wt%



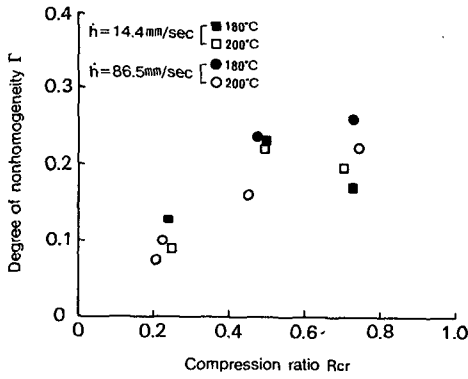
(b) Fibre content 40 wt%

Fig. 8 Effect of compression ratio R_{cr} on fibre orientation function J

속도 영향보다는 압축비에 크게 영향을 받음을 알 수 있다.⁽⁷⁾ Fig. 9는 불균질도와 압축비와의 관계이다. 시험편의 불균질도는 압축비가 크면 클수록 성형품내의 섬유와 모재와의 분리로 인하여 커진다. Fig. 10(a)와 (b)는 섬유함유율 변화에 따른 섬유의 배향함수 J 와 성형품의 불균질도 Γ 와의 상관관계이다. 불균질도가 증가하면 배향함수도 증가하는 상관관계가 있음을 알 수 있다. 섬유함유율 변화에 따른 Γ 와 J 사이의 기울기를 최소자승법으로 구하여 1차 함수로 표시하면 섬유함유율 25 wt%인 경우 $\Gamma=0.80$, J , 섬유함유율 40 wt%인 경우는 $\Gamma=0.86$ J 이다. 만일 복합재의 섬유구조가 서로 강하게 엉켜져 있다면 성형품의 분리의 척도인 불균질도는 증가하나 섬유의 배향은 잘 되지 않게 되고, 또 섬유구조가 서로 엉켜 있지 않으면 섬유의 배향은 잘 되나 성형품의 불균질도는 작게 된다. 여기서 불균질도가 크다는 의미는 모재인 폴리프로필렌만 섬유사이를 흘러 나가는 것이고, 불균질도가 작다는 의미는 모재와 섬유가 서로 같이 이동하는 것을 말한다. 즉, 모재와 섬유의 분리 및 섬유의 배향은 서로 불가분의 관계가 있다. 그러므로

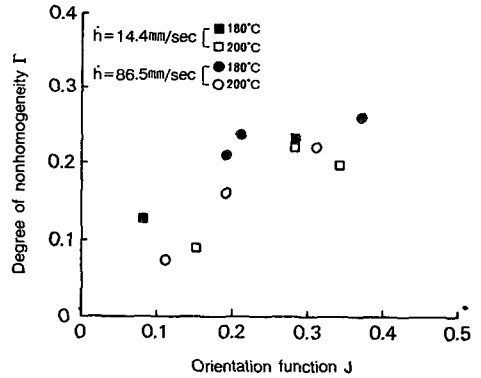


(a) Fibre content 25 wt%

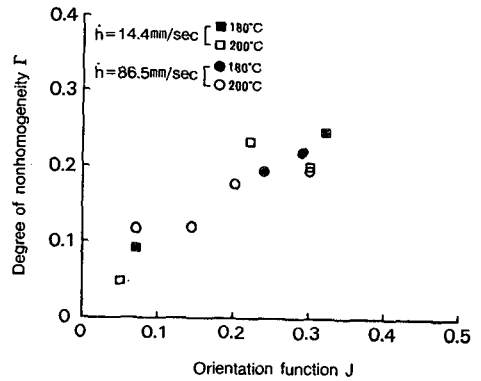


(b) Fibre content 40 wt%

Fig. 9 Effect of compression ratio R_{cr} on degree of nonhomogeneity Γ



(a) Fibre content 25wt%



(b) Fibre content 40wt%

Fig. 10 Relationship between orientation function J and degree of nonhomogeneity Γ

배향함수와 불균질도의 상관관계로부터 복합재의 섬유구조의 설계에 지침을 줄 수 있다고 생각된다.

5. 결론

장섬유강화 고분자복합판을 압축성형할 때, 반드시 분리와 배향이 발생하며 이 분리를 표시하는 불균질도와 배향의 정도를 나타내는 배향함수는 상관관계가 있으며, 불균질도가 증가하면 배향함수도 증가하고 섬유의 배향과 분리는 압축비의 증가와 더불어 증가하였다.

후 기

본 연구는 국민대학교 1991년도 교내연구비에 의해서 수행된 연구이며, 관계자에게 감사드립니다.

참고문헌

- (1) Hojo, H., Kim, E.G., Tamaka, K. and Nagatsukawa, C., 1986, "Separation of Matrix and Fibers during Molding of Long Fiber-Reinforced Thermoplastics," Proceedings of the Third Japan-U.S. Conference on Composite Materials, Tokyo, pp. 605~612.
- (2) Hojo, H., Kim, E.G. and Tamakawa, K., 1987, "The Fibre Content Distribution of Compression Molded Long Fibre-Reinforced Thermoplastic Products," International Polymer Processing, Vol. 1, Issue 2, pp. 60~65.
- (3) Hojo, H., Kim, S.H., Baek, N.J. and Kim, E.G., 1989, "Prediction of Fibre Content Distribution

- in Compression Molded Fibre-Reinforced Thermoplastics," Proceedings of the 5th Annual Meeting of the Polymer Processing Society, Kyoto, Japan, 12~20.
- (4) Hojo, H., Kim, E.G., Yajuchi, H. and Onodera, T., 1988, "Simulation of Compression Molding with Matrix-Fibre Separation and Fibre Orientation for Long Fibre-Reinforced Thermoplastics," International Polymer Processing, Vol. 3, Issue 1, pp. 54~61.
- (5) 矢口 仁, 北條英典, 鬼海英夫, 玉川規一, 越本勝, 1988, "纖維充てん複合材料成形品の纖維配向角分布の表示とその簡易測定," 第39回 日本塑性加工連合講演會論文集, No. 232.
- (6) 矢口 仁, 北條英典, 鬼海英夫, 玉川規一, 越本勝, 1988, "長纖維 集合體の纖維影濃度情報を用いた纖維配向角分布の測定," 第39回 日本塑性加工連合講演會論文集, No. 233.
- (7) 조선형, 이동기, 김이곤, 1991, "長纖維強化高分子複合板의 프레스成形에 있어서 畫像處理에 의한 纖維의 配向에 관한 研究," 大韓機械學會論文集, 第15卷 第3號, pp. 834~842.
- (8) 山田國廣, 堀川 明, 1984, "2次元纖維集合體の確率幾何," 纖維學論文集, 37, 12, pp. 51~64.