

<연구논문>

프리프레그의 점탄성 변형 및 기체 투과현상 연구

김성우[†] · 이기준 · 남재도* · J.C. Seferis**

서울대학교 화학공학과, *성균관대학교 고분자공학과, **워싱턴대학교 화학공학과

(1995년 3월 7일 접수)

In-Plane Gas Permeability Characterization under Viscoelastic Prepreg Consolidation

Seong-Woo Kim[†], Ki-Jun Lee, Jae-Do Nam* and J.C. Seferis**

Dept. of Chemical Engineering, Seoul National Univ., Seoul 151-742, Korea

*Dept. of Polymer Science and Engineering, Sung Kyun Kwan Univ., Suwon 440-746, Korea

**Dept. of Chemical Engineering, Univ. of Washington, U.S.A.

(Received March 7, 1995)

요 약

항공용 프리프레그의 기체 투과와 creep 변형 현상을 실험과 모델링을 통하여 autoclave 공정의 주요 공정변수인 시간, 온도 그리고 consolidation 압력에 대하여 연구하였다. 적층된 프리프레그를 이용한 실험을 통하여 진공/autoclave 압력이 프리프레그에 가해졌을 때, 프리프레그의 두께는 선형 점탄성 변형을 나타내며, in-plane 기체 흐름은 투과 hysteresis와 함께 non-Darcian flow 현상을 나타냄을 보여 주었다. 이러한 현상은 bulk dimensional relaxation 그리고 미세적 기공의 구조 재배열이라는 두 가지 점탄성 완화현상으로 관찰되고 분석되어졌다. Modified Standard Linear Solid (SLS) 점탄성 모델을 사용하여 실험결과를 분석한 결과 creep relaxation과 기체투과 속도를 대표하는 모델상수를 결정할 수 있었다.

Abstract—Gas permeation and creep deformation of a commercial prepreg were investigated as a function of time, temperature, and consolidation pressure, identifying the viscoelastic characteristic of prepreps. Experiments using a prepreg stack demonstrated that the material exhibited a linear viscoelastic bulk deformation under vacuum/autoclave pressure and the in-plane gas flow exhibited non-Darcian flow behavior with a permeation hysteresis. This behavior was viewed and analyzed by: (1) bulk dimensional relaxation, and (2) microscopic pore structure rearrangement. A modified standard linear solid (SLS) viscoelastic model was used to interpret the creep compliance and dynamic gas permeability utilizing two independent relaxation parameters.

Keywords: Prepreg, consolidation, linear viscoelasticity, relaxation, creep, gas permeation

1. 서 론

열 경화성 수지를 기본으로 한 프리프레그는 그 특성에 따라 경화와 consolidation이 행해지는 공정 조

[†]현재 삼성종합화학연구소

건이 좌우되고, 경화된 복합재료의 기계적 성질을 결정하는 중요한 중간재료이므로 다양한 연구가 수행되어 왔다[1-3]. Viscous fluid (부분적으로 경화된 resin)와 elastic solid (fibers)로 이루어진 프리프레그는 사용한 작업 조건의 선택에 따라 최종 물성에

깊은 영향을 미칠 수 있는 독특한 점탄성 특성을 보인다. 특히 consolidation과정에서 프리프레그의 점탄성 변형과 기체 투과 특성은 기공과 같은 주요한 복합재료의 결점을 없애거나 최소화하는 중요한 역할을 한다. 두 가지 현상은 온도, 진공, 그리고 consolidation압력에 의존하는 복잡한 mechanism을 통하여 발생한다.

특히 시간에 따라 변화하는 기체투과속도 및 프리프레그 변형 현상은 honeycomb sandwich 제조공정에 있어서 주요한 작업 조절 인자로 여겨진다. 비등방성 honeycomb sandwich를 co-curing하는 공정에서, core의 두께방향으로는 core가 강하지만, core의 길이 방향으로는 프리프레그 skin이 완전히 경화되기 전에는 매우 제한되어 있다. 따라서, 이 연약한 방향으로 진공과 autoclave압력에 의한 응력이 전달되고, 이 응력이 일정 부분의 UTS(ultimate strength)를 능가하게 되면 공정 중에 구조가 깨어지는 “core crush” 현상으로 나타날 수 있다. Core crushing 응력은 core의 내부와 외부 사이의 압력 기울기로부터 일어나고, 이는 chamfer 부분에 전달되어 chamfer의 꼭대기 부분에 집중되어 진다. 이러한 문제를 최소화하기 위하여, layup되어 진공상태를 유지하고 있는 honeycomb sandwich를 경화과정 중 autoclave 압력이 14.7 psig가 되었을 때 대기압으로 vent 시켜서 core내부로 공기를 투과시킴으로써 압력의 기울기를 감소시키는 방법이 시도되고 있다. 그러나 프리프레그 skin과 edge-band가 공정 초기에 밀폐될 수도 있기 때문에 단순히 venting 시킴으로 core cell의 압력을 순간적으로 조절할 수 있는 것은 아닐런 지 모른다. 즉 프리프레그의 밀폐속도(sealing rates)와 기체 투과속도는 온도, 진공압력, autoclave 압력 등의 작업 조건에 크게 의존하기 때문이다. 그러므로 honeycomb sandwich 공정과 같이 프리프레그를 사용하는 복합재료 제조공정에서는 정량화된 기체 투과속도와 이를 측정할 수 있는 신뢰성있는 실험기술이 요구되고 있다.

또한 프리프레그에서의 개스투과 현상은 일반적인 복합재료의 제조뿐만 아니라 두꺼운 복합재료 제조에 있어서 중요한 쟁점으로 여겨지고 있다[7]. 여기에서의 문제점은 복합재료의 제조 후 기공이 발생하는 것이다. 물리적으로 잡혀 있거나 화학적으로 발생한 기공은 일정 수의 적층된 프리프레그를 적절한 온도와 진공 하에서 미리 consolidation시키는 “debulking

process”에 의해 줄일 수 있다. 그러나 오늘날의 복합재료 기술은 비록 공학적 법칙에 바탕을 두고 있지만, 부품간의 재생산성(part to part reproducibility)이나, 크고 복잡한 구조를 가진 복합재료의 제조에 있어서는 완벽한 이론적 정보를 가지고 있지 못하다. 특히 두껍고 큰 복합재료의 제조에 있어서 debulking과 경화과정 중에 발생하는 기공의 이동 현상에 대한 연구가 현재 부족한 것이다. 본 연구에서는 전형적인 autoclave 공정에서 프리프레그를 통과하는 기체의 “vent-off” 능력을 실험적으로 측정하고 이를 정량적으로 표현할 수 있는 분석적인 방법을 개발하였다. 상업화된 woven 프리프레그를 실험 대상 소재로 사용하여, 프리프레그 변형속도와 기체 투과속도를 온도를 변화시키면서 다양한 autoclave 압력 조건에서 시간에 대한 함수로 측정하였다. 실험결과는 기체투과와 creep relaxation이라는 두 가지 relaxation현상으로 분석되어졌고, 이는 점탄성 기체투과 현상이 프리프레그를 기본으로 사용하는 수많은 복합재료 공정에서 프리프레그 분석수단으로 유용하게 사용될 수 있다는 것을 보여주었다.

2. 이론적 배경

기체가 프리프레그 층을 통과할 때 기체의 흐름 속도를 나타내기 위해서 다음과 같은 Darcy's 법칙이 momentum equation으로 이용될 수 있다.

$$\frac{Q}{A} = -\frac{K}{\mu} \frac{dP}{dx} \tag{1}$$

여기서 Q는유속(volumetric flow rate), A는 프리프레그의 단면적, 는 유체 점도, P는 압력, K는 기체 투과도(permeability)를 각각 나타낸다.

일차원 계인 경우에는 식 (1)을 이용하여 유속을 입구와 출구의 압력의 함수로 나타낼 수 있다. 특히 대기압의 기체(P_a)가 진공(P_v)에 의해 빨려 들어갈 때 기체 흐름 속도는 다음과 같이 표현된다.

$$Q = \frac{AK}{2\mu L} \left(P_a - \frac{P_v}{P_a} \right) \tag{2}$$

여기서 P_a와 P_v는 각각 대기압과 진공 압력을 나타내고, Q는 P_a에서 측정된 유속을 나타낸다. 이때 프리프레그의 단면적, A는 프리프레그의 두께, h에

일정한 프리프레그의 폭을 곱한 값이 되리라는 것을 쉽게 알 수 있다. 기체의 투과속도를 측정하는 동안 프리프레그가 압축 또는 팽창의 형태로 변형되면 프리프레그의 투과도뿐만 아니라 두께 또한 변화하게 된다. 이러한 경우 일 때에도 두께의 변화속도가 유체의 투과속도 보다 매우 작기 때문에 pseudo steady-state approximation에 의해 식 (2)는 순간 유속과 순간 압력의 값을 구하는데 이용될 수 있다.

섬유 강화 프리프레그는 프리프레그의 tack특성 분석에서 점탄성 재료로 관찰되어 졌다 [6]. 특히, 프리프레그가 out-of-plane 방향으로 일정한 압축 응력(compressive stress)을 받을 때, 두께는 점탄성체의 특성을 포함하는 creep strain으로 기술되어질 수 있었다. 프리프레그 변형을 현상학적으로 표현할 때, standard linear solid (SLS) model은 열가소성 수지나 열경화성 수지 복합체의 dynamic mechanical 성질뿐 아니라 creep, stress relaxation 결과에 널리 적용 되어왔다[6, 8]. 이 모델에 기초하여 실제 stress (σ_t)와 strain(ϵ)과의 관계를 다음과 같은 1차 미분식으로 나타낼 수 있다.

$$\sigma_t + \tau \frac{d\sigma_t}{dt} = G_u \epsilon + G_r \tau \frac{d\epsilon}{dt} \quad (3)$$

여기서 relaxation time은 $\tau = \mu / (G_u - G_r)$ 로 정의되며, G_u 와 G_r 은 각각 unrelaxed modulus, relaxed modulus, 그리고 η 는 점도이다.

일정한 압축응력 하의 프리프레그 변형에 이 model을 적용할 때, 프리프레그의 압축변형은 프리프레그의 초기두께와 순간 두께에 의해 다음과 같이 정의될 수 있다.

$$\epsilon = \frac{h_m - h}{h_m} \quad (4)$$

이때 ϵ 는 시간에 따른 strain, h_m 는 압축 전 적층 프리프레그의 초기 두께, 그리고 h 는 시간에 따른 적층 프리프레그의 두께이다.

뚜렷한 섬유퍼짐 현상(fiber spreading)이 없고, 프리프레그의 조성이 비압축성이라는 가정 하에서 프리프레그의 두께변화는 단지 기공 함량의 변화에 따르는 것이라고 생각될 수 있다[7]. 이때 가해진 압축 응력은 부분적으로 기공 부피에 의해 감소한 프리프레그 표면적을 따라 층에서 층으로 전달이 된다고 추

정된다. 특히 woven 프리프레그에 가해진 응력은 짜여진 형태, warp이나 fill에 들어있는 섬유의 개수, yarn의 폭이나 두께 등에 의존하는 프리프레그 표면 topology에 커다란 영향을 받는다는 것을 주목해야 한다. 이러한 계에서 압축 하중(compressive load)은 미시적 접근으로 정량화 될 수 없는 매우 복잡한 방법으로 전달된다. 이러한 다양한 프리프레그 형태를 기술하기 위하여 prepreg surface parameter(β)를 도입하면, 실제 응력, σ_t 은 프리프레그적층에 총괄적으로 전달되어 실험적으로 측정되는 engineering stress, σ 와 다음의 관계식으로 표현될 수 있을 것이다[9].

$$\sigma_t = (1 + \beta)\sigma \quad (5)$$

이로부터 응력전달효율을 다음과 같이 표현할 수 있을 것이다.

$$1/(1 + \beta) = \sigma_t / \sigma \quad (6)$$

여기서 σ_t 는 가해진 힘을 완전한 접촉 면적으로 나눈 실제 응력이며, σ 는 가해진 힘을 표본(specimen)의 단면적으로 나눈 engineering stress, 그리고 β 는 프리프레그 유효 접촉면적을 보장하는 prepreg surface parameter로 정의된다. 기공이 없이 층 간에 완전한 접촉이 이루어진 프리프레그에서는 β 가 0이 되고 $\sigma = \sigma_t$ 이 된다. 층 간에 접촉이 잘 안된 프리프레그에서는 응력 전달 효율, $1/(1 + \beta)$,이 감소하고 β 는 0보다 큰 값을 갖게 된다.

이렇게 정의된 prepreg surface parameter를 이용하여 SLS model 식 (3)는 다음과 같이 engineering stress로 표현될 수 있다.

$$(1 - \beta)\left(\sigma + \tau \frac{d\sigma}{dt}\right) = G_u \epsilon + G_r \tau \frac{d\epsilon}{dt} \quad (7)$$

위의 모델식으로부터 일정한 응력이 점탄성체에 가해지는 상황에서의 분석적 해는 다음과 같은 전형적인 creep 응답으로 얻어질 수 있다.

$$\epsilon(t) = \frac{(1 + \beta)\sigma}{G_r} \left[1 - \exp\left(-\frac{G_r \tau}{G_u} t\right)\right] \quad (8)$$

또한, SLS model에서의 압축 creep compliance, $J(t)$ 는 실제 응력과 strain으로 정의될 수 있고, 이는 가해진 응력에 무관한 독립적인 material 함수가 된다.

$$J(t) = \frac{\epsilon(t)}{\sigma_t} = \frac{1}{G_r} \left[1 - \exp\left(-\frac{G_r \tau}{G_u} t\right)\right] \quad (9)$$

SLS model은 특히 stress와 strain의 조건이 시간에 따라 변화할 때, 주어진 조건에 부합하는 모델상수를 적절히 선택하여 다양한 점탄성 현상을 성공적으로 설명할 수 있음이 입증되었다[7]. 시간에 따라 일정한 응력 조건이 유지되는 일반적인 creep 실험에서는 오직 두개의 모델상수가 필요하게 된다. 즉 G_r 그리고 $\tau' = \tau(G_w/G_r)$ 인데 이 경우에 τ' 이 Voigt model에서 정의된 retardation time과 일치함을 주목해야 한다.

일반적으로 기체 투과도는 특정한 다공성 매질의 성질을 나타내는 정적 상수로 간주되어야 한다. 그러나 기공의 구조가 불안정하여 시간에 따라 변화할 때 이는 더이상 정적 상수가 아닌 시간에 의존하는 동적 변수로 간주되어야 한다. 점탄성 특성을 보여주는 프리프레그의 두께의 변화 즉 다공성도 (porosity)의 변화와 더불어, 이때 필연적으로 수반되리라 사료되는 기공 구조의 재배열은 미시적인 tortuosity의 변화를 가져올 수 있다. 이를 위하여 본 연구에서는, 원래 non-Darcian 흐름의 다공성도의 변화를 나타내기 위해 제안된 다음과 같은 dynamic permeability function 모델식을 사용하였다[10].

$$K(t) = K_{\infty} \{1 + b \exp(-t/\tau_k)\} \quad (10)$$

여기서 $K(t)$ 와 K_{∞} 는 각각 순간 투과도와 평형 투과도이며, b 와 τ_k 는 모델 투과상수이다. 이 식은 시간에 대응하는 함수의 모양특성(characteristic shape)을 규정하는 시간 상수 k 를 포함하고 있는데 이는 creep 실험에 대하여 유도된 compliance 함수와 유사하다. 제안된 식은 세 개의 매개변수를 포함하고 있고, 각각 model의 예측에 있어서 독특한 특징을 결정한다. 시간이 무한에 접근함에 따라 투과도는 기공 구조가 평형에 도달함에 따라 K_{∞} 에 접근하며, 매개변수 b 와 τ_k 는 $\log(K/K_{\infty} - 1)$ 를 t 의 함수로 나타낼 때 각각 절편과 기울기로 결정되는 값이다.

3. 실험

본 연구에서는 상용화된 프리프레그 Hexcel F593-18/plain weave T-300 carbon fiber fabric (manufactured by Hexcel Corp., and specified by Boeing Commercial Airplane Co. as BMS 8-256)를 실험대상 프리프레그로 사용하였다. 이것은 일반적인 항공용 복합재료 구조물과 honeycomb sandwich 구조를 제

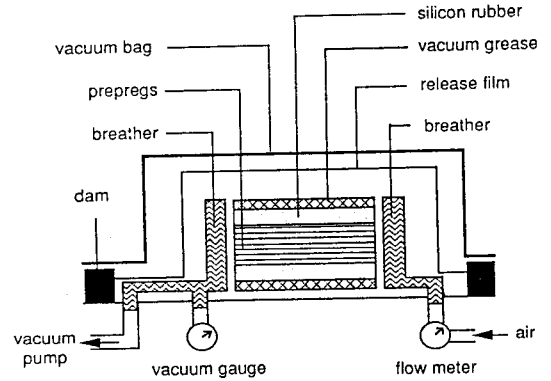


Fig. 1. Schematic representation of prepreg in-plane air permeation measurements

Table 1. Operating conditions for the prepreg compressive creep test.

Operating Parameters	Quantity
Sample size (cm×cm)	5.1×5.1
Number of Prepreg Plies	5
Orientation	[0°] _s
Compression Rate (mm/mm)	0.813
Holding Pressure (psi)	8.3, 13.3, 18.3
Holding Time (sec)	900
Temperature (°F)	75

조할 때 350°F(177°C)에서 경화되도록 흐름 특성이 조절된 널리 사용되는 프리프레그이다. 프리프레그의 투과도를 측정하기 위하여 길이와 폭이 각각 8.0과 5.0 cm이고 [0]_n 방향인 프리프레그 적층을 사용하였는데 이는 honeycomb sandwich의 전형적인 edge band 부분을 모사하기 위한 형태이다.

그림 1에서 보이는 바와 같이 프리프레그의 한 끝은 대기 중에 노출되었고 다른 한 쪽은 진공에 연결되어 있다. 기체가 release film과 프리프레그의 윗면 사이의 틈으로 흐르는 것을 막기 위해서 vacuum grease와 silicon rubber를 사용하였으며, 공기가 일정하게 프리프레그 판 사이를 통과하게 하기 위해서 polyester breather material (Air Weave N10, AIRTECH Inc.)를 프리프레그의 양쪽 끝에 적용시켰다. 공기의 유속은 프리프레그가 consolidation되는 동안 평형에 이를 때까지 시간의 함수로 기록되었다. 시험은 몇 가지 다른 autoclave 압력(P_w)과 진공 압력 (P_v)에 대하여 수행되었고, 온도 효과는 일정가열속도 (5°F/min) 조건을 이용함으로써 연구되었다. 특히, P_w 와 P_v 가 모두 적용

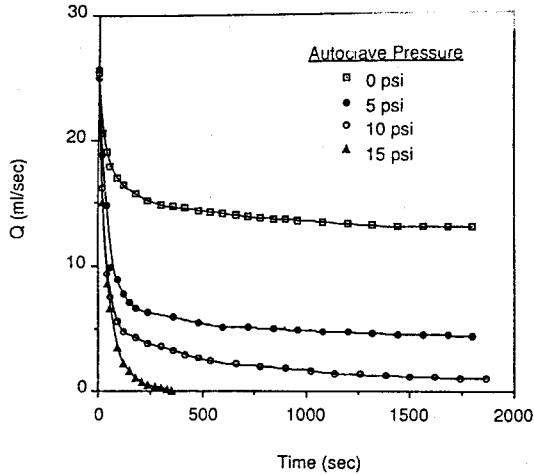


Fig. 2. In-plane air flow rates through 5-ply prepreg stack shown for different autoclave pressures (P_a). Vacuum pressure across the prepreg stack was fixed at 8.3 psi.

되었을 때 프리프레그에 가해진 총 engineering 응력은 두 가지 압력의 합이 됨을 유의해야 한다. 즉 $\sigma = P_a + P_v$ 의 관계가 성립한다. 투과도 측정에서는 일정한 진공 압력 8.3 psi(17 in Hg)를 사용하였고 autoclave 압력을 0, 5, 10, 15로 주어서 총 engineering 응력이 각각 8.3, 13.3, 18.3, 23.3이 되게 하였다.

프리프레그 creep 실험의 장치는 평면 장력/압축 fixture와 유사한데, Ahn과 Seferis에 의해 상세히 기술되진 바 있다[11]. fixture는 screw-type mechanical testing machine (INSTRON 4505)에 맞도록 특별히 설계되어졌고 controller(2150 series)와 개인용 컴퓨터(IBM)에 연결하였다. Load와 holding 시간은 공기 투과 측정에 이용된 실험 조건에 상응하도록, 그리고 mechanical holding load는 표 1에 나와있는 공기가 투과하는 동안 autoclave 압력과 진공 압력에 의해 발생하는 응력에 일치하도록 조절하였다.

4. 결과 및 고찰

그림 2는 75°F에서 진공 압력(P_v)을 8.3 psig로 유지하면서 autoclave 압력(P_a)을 0, 5, 10, 15 psig로 유지하였을 때 5장의 프리프레그를 통과하는 in-plane 공기 유속을 나타낸다. 보는 바와 같이 흐름 속도는 매우 급격히 감소하다가 평형상태에 도달했다. 특히, autoclave 압력이 15 psig일 때 프리프레그는 6분 후에

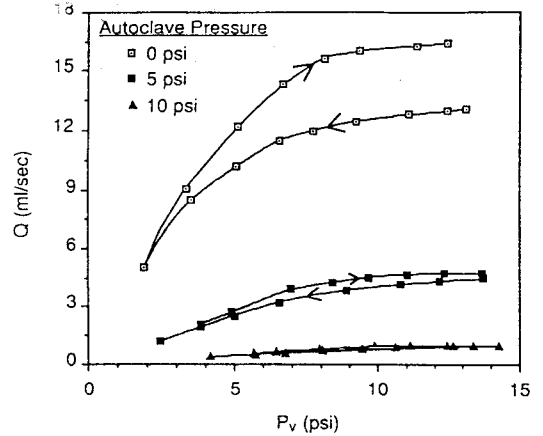


Fig. 3. Steady state in-plane air flow rates (5-ply prepreg stack) plotted as a function of vacuum pressure (P_v) showing a hysteresis in releasing-compaction processes.

완전히 밀폐되는(sealed off) 것으로 관찰되었다. honeycomb sandwich 구조물의 제조에서 autoclave 압력이 14.7 psig에 도달할 때 core가 깨지는 것을 막기 위해 진공 bag을 상압으로 열어 주는 경우를 고려할 수 있는데, 실험 대상 프리프레그의 경우에서 볼 수 있는 바와 같이 상온에서도 적용된 프리프레그는 효과적으로 core cell을 vent 시키기 위한 기체의 통로를 제공해 주지 못하는 것으로 보인다. 이는 현재 사용되고 있는 honeycomb sandwich구조의 제조공정 조건을 신중하게 검토해 보아야 할 필요성이 있다는 것을 의미한다.

기체 투과에 있어서 프리프레그의 consolidation의 history영향을 연구하기 위해서 평형상태에 도달한 기체의 유속을 진공 압력(P_v)의 함수로 측정하였다. 기체의 흐름을 유발시키는 진공압력을 진공과 대기압 사이에서 1~2 psig씩 증가 또는 감소시키면서 정류 상태 기체 흐름 속도를 측정된 결과가 그림 3에 나타나 있다. 여기서 볼 수 있는 바와 같이 기체 유속은 진공 압력에 대하여 비선형인 non-Darcian 거동을 나타낸다. 이 비선형 거동은 낮은 점도를 가진 유체가 좁은 기공내를 높은 속도로 흐를 때 non-Darcian 흐름 영역이 존재할 수 있기 때문으로 사료된다[12]. 또한 기체 투과 실험 도중 적용된 프리프레그에 압축 응력으로 작용하는 진공압력에 의하여 프리프레그가 consolidation/swelling을 경험하기 때문에 관찰되는 non-Darcian 현상이라 해석할 수도 있다. 또한 이 그림에서

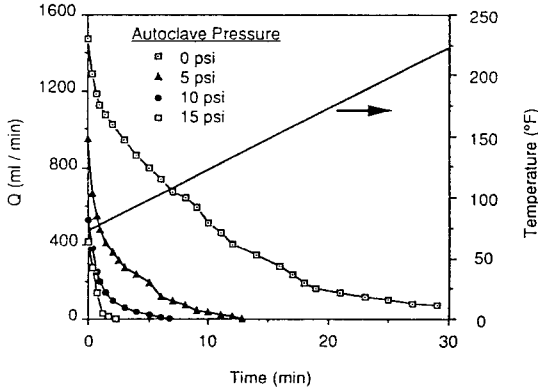


Fig. 4. In-plane air flow rates through 5-ply prepreg stack measured as a function of time for different autoclave pressures during a 5°F/min heating. Vacuum pressure (P_v) across the prepreg stack was fixed at 8.3 psi.

보이는 바와 같이 기체의 평형유속은 swelling과 consolidation 과정에서 같은 경로를 보이지 않았다. 이러한 “permeation hysteresis” 현상은 진공 압력에 의해서 프리프레그가 swelling/consolidation될 때 서로 다른 기공구조의 변형을 발생시키기 때문이라 사료된다.

실제 autoclave 가열 경화공정을 모사하는 실험을 위하여, autoclave 압력을 0, 5, 10, 15 psig로 각각 고정시키고, 일정한 속도로 프리프레그를 가열(5°F/min)하면서 공기 흐름 속도를 시간에 대한 함수로 측정하였다. 그림 4에서 보이는 바와 같이 온도가 증가함에 따라 프리프레그의 기공이 매우 빨리 닫히게 되어 공기의 흐름이 차단되는 것을 관찰할 수 있다. 이 가속화된 기공의 밀폐현상은 높은 온도에서 매트릭스가 interlaminar open pore를 보다 효과적으로 고립화시키는 결과로 나타나는 현상이다. 다시 말해서 pore network의 relaxation이 온도가 증가함에 따라 가속화되는 것이다. 실제 autoclave공정에 있어서 온도는 짧은 시간동안 core volume을 차폐시키는 역할을 하여 core cell 압력을 적절히 조절할 수 있게 하는 중요한 공정요소로 보인다. 예를 들어 바람직한 core-cell 압력을 우선 고정시키고, 그림 4에서 보이는 바와 같이, 상승된 온도에서 프리프레그를 급속히 밀폐시킴으로써 적절한 core cell 압력을 전체 공정을 통하여 유지할 수 있을 것이다.

프리프레그를 압축시키는 동안, 매트릭스와 섬유

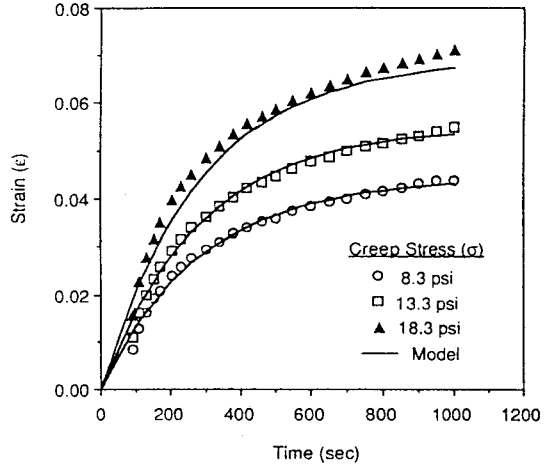


Fig. 5. Compressive creep strain(ϵ) of 5-ply prepreg stack measured as a function of time for different holding stresses. SLS model shown in eq(9) and Table 2 in the text is compared with experimental results.

Table 2. Model parameters determined for creep deformation and gas permeability

σ (psi)	β	G_c (psi)	τ (sec)	K_w (cm ²)	b	τ_c (sec)
8.3	1.10			3.98×10^{-8}	0.288	
13.3	0.69	402	284	3.98×10^{-8}	0.288	232
18.3	0.50			0.59×10^{-8}	2.451	

는 비압축성이지만 inter- 그리고 intra-pore 부피가 감소하기 때문에 프리프레그 두께(h)는 감소한다. 따라서, 평균 기공부피 또는 기체행로의 유효 단면적은 프리프레그의 두께 변화를 측정함으로써 얻을 수 있다. 이는 결국 점탄성체의 creep response로 해석되어질 수 있는데, 그림 5는 식 (4)에서 정의된 프리프레그 creep strain을 여러 holding stress에 대하여 나타낸 것이다. creep 응력은 이미 기술한 투과 실험압력에 상응하는 autoclave와 진공압력의 합을 사용하였다. 예를 들어 σ 가 13.3 psi가 되는 것은 진공 압력(P_v) 8.3 psi와 autoclave 압력(P_a) 5 psi를 합한 것이다. 이 결과에 SLS model을 적용하는데 있어서 매개변수는 비선형 regression방법에 의해 결정되었고 그 값은 표 2에 요약되어 있다. 표에서 보는 바와 같이 G_c 과 τ 는 각각 402 psi와 284 sec로써 서로 다른 응력값에 대하여 동일한 값이 얻어졌다. 식 (5)에 의하여 정의된 프리프레그 surface parameter b는 가해진 응력 8.3.

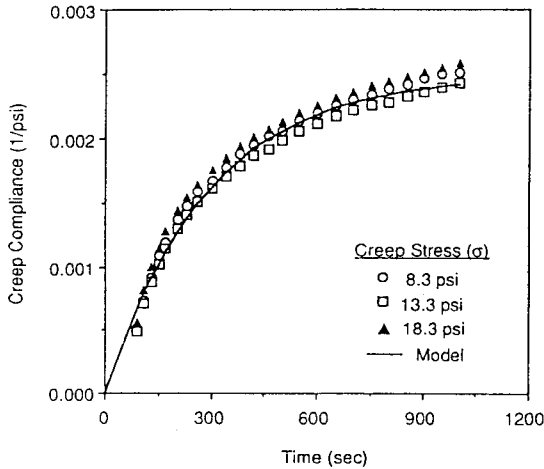


Fig. 6. Compressive creep compliance (J) of 5-ply prepreg stack measured as a function of time for different holding stresses. SLS model shown in eq (11) and Table 2 in the text is compared with experimental results.

13.3, 18.3 psig에 대해 각각 1.1, 0.69, 0.5가 얻어졌다. 의 정의에 따르면, 만약 기공부피가 없이 프리프레그가 완전히 밀착되었으면 β 는 0에 가까워진다. 이때 응력 전달 효율 $1/(1+\beta)$ 는 세 가지 유효 응력 8.3, 13.3, 18.3에 대해 각각 48, 57, 67%로 계산된다. 압축 응력이 높아짐에 따라 프리프레그는 더욱 효율적으로 밀착되고 이는 응력 전달 효율의 향상으로 나타나게 될 것이므로 제시된 모델과 매개변수가 물리적 현상을 정확히 표현하고 있음을 알 수 있다. 이 프리프레그 surface parameter β 는 단지 기공부피뿐 아니라 프리프레그 접촉 효율을 포괄적으로 표현하는 값으로써 프리프레그의 compaction정도를 정량적으로 묘사할 수 있는 유용한 변수로 사용될 수 있을 것이다.

서로 다른 압축응력값에서 구해진 creep compliance를 보여주는 그림 6은 creep compliance가 실험이 수행된 압축 응력값에 대해 독립적이며, 따라서 실험이 수행된 응력의 범위 내에서는 프리프레그를 대표할 수 있는 고유 material function임을 보여준다. 또한 실험결과와 비교된 모델의 예측에서 볼 수 있는 바와 같이, 본 연구에 사용된 SLS model은 연구대상 프리프레그에 대해 만족스러운 creep compliance를 묘사하는 것을 확인할 수 있다. 이를 이용하여 측정된 프리프레그의 순간 두께를 creep strain으로부터 얻을 수 있었고, 이는 그림 2에 나와 있는 시간에 따라 변

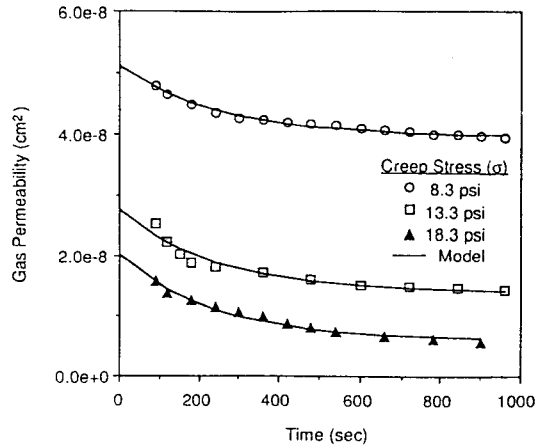


Fig. 7. In-plane gas permeability (K) of 5-ply prepreg stack as a function of time for different stress levels compared with the permeability model shown in eq (12) and Table 2 in the text.

화하는 유속을 예측하는 데에 사용되었다. 그러나 이러한 프리프레그의 단면적 보정에도 불구하고 식 (2)에 있는 일정한 투과도, K 값을 이용할 때에는 유속을 시간의 함수로 묘사하는 데에 실패하였다. 따라서 기체투과 과정에서는 프리프레그의 외형적인 두께의 변화에 의한 creep relaxation뿐만 아니라 미시적 기공구조의 재배열에 의해 유발되는 또 다른 relaxation 과정이 발생한다는 것을 확인할 수 있었다. 본 연구에서는 이 효과를 식 (10)에서 정의된 dynamic permeability function을 사용하여 해석하고자 하였다.

측정된 프리프레그 strain을 식 (2)에 포함된 단면적 A로 환산하여 대입하면 기체 투과도 K를 시간에 대한 함수로 얻을 수 있다. 이렇게 계산된 투과도를 그림 7에서 볼 수 있고, 이 결과는 식(10)에서 제안된 dynamic permeability function으로 fitting되었다. 역시 비선형 regression 법을 사용하여 매개변수를 결정하였으며 그 값을 표 2에 정리하였다. 여기서 흥미로운 것은 이때 얻어진 τ_k 가 232초로써 앞서 구해진 creep relaxation time 283초에 상응한다는 점이다. 어 두 relaxation time을 비교하면 프리프레그에 있어서 두 가지 relaxation process가 거의 비슷한 속도로 평형 상태로 접근하고 있다는 것을 추정할 수 있다. 그러나 이 relaxation time은 온도에 크게 영향을 받는 물성이므로 실제 복합재료의 제조에 있어서 온도가 상승하는 경우에는 증가된 relaxation time 때문에 프리

프레그의 기체투과 통로가 더욱 일찍 차폐될 수 있다는 점에 주의하여야 할 것이다. 마지막으로 Fig. 5와 7을 비교하면 prepreg의 strain은 계속적으로 감소하고 있는 반면에 gas permeability는 약 400초 이후에는 변화가 없는 일정한 steady state값을 보여주고 있음을 알 수 있다. 이는 prepreg의 open pore가 400초 이전에 닫히게 되어 gas의 통로를 제공하지 못하게 되며 이때 closed pore로 전이된 pore volume은 계속적으로 감소하여 연속적인 strain의 감소로 나타나게 되는 것을 알 수 있다.

5. 결 론

본 연구에서는 탄소섬유/에폭시로 이루어진 항공용 프리프레그의 in-plane 기체 투과와 through-thickness creep 변형을 측정함으로써 프리프레그가 consolidation되는 동안 발생하는 기체투과 현상을 실험과 모델링을 통하여 연구하였다. 프리프레그 기체 투과 현상은 유속 hysteresis와 함께 non-Darcian 특성을 보여주었다. 이것들은 프리프레그의 consolidation/swelling에 의한 서로 다른 기공 구조의 변형과 연관된 것으로 판단된다. 프리프레그의 점탄성 relaxation을 해석하기 위하여 프리프레그 surface parameter를 도입하였고 수정된 SLS모형을 사용하였으며, 미시적 기공 구조의 재배열 현상을 dynamic permeability function을 도입하여 해석하였다.

이렇게 개발된 modeling methodology는 프리프레그의 고유 특성인 개스투과도와 점탄성 변형을 정량적으로 정확히 표현할 수 있었으며, 이는 프리프레그를 사용하는 다양한 autoclave 공정에 매우 유용한 수단으로 사용될 수 있으리라 사료된다.

기 호

- A : cross section area
- G_r : relaxed modulus
- G_u : unrelaxed modulus
- h : height
- J : creep compliance function

- K : permeability
- L : length
- P : pressure
- P_a : ambient pressure
- P_v : vacuum pressure
- Q : volumetric flow rate
- t : time
- x : distance in the x direction
- β : prepreg surface parameter
- ϵ : strain
- μ : viscosity
- τ : true stress
- τ : relaxation time

참고문헌

1. J.C. Seferis and K.J. Ahn, *Proc. Tech. Conf. Soc. Adv. Mat. Proc. Eng.*, **34**(1), 63 (1989).
2. P.E. Morgan, "Carbon Fibers: Their Place in Modern Technology," The Plastics Institute, 154, London, 1974.
3. P. Joulin, D. Pollock, and E. Rudisill, *J. Comp. Mat.*, **10**, 293 (1992).
4. J.J. Breukers, E.M. Woo, and J.C. Seferis, *Proc. Ann. Tech. Conf., Am. Soc. Comp.*, 12 (1988).
5. K.J. Ahn and J.C. Seferis, *Polym. Eng. Sci.*, **33**(18), 1177 (1993).
6. K.J. Ahn, J.C. Seferis, J.O. Price, and A.J. Berg, *SAMPE Journal*, **27**(6), 19 (1991).
7. E.S. Wright and B.M. Halpin, Jr., Ed., "Thick Section Composite Technology," Plymouth, MA, 1989.
8. I.M. Ward, "Mechanical Properties of Solid Polymers," 2nd Ed., John Wiley & Sons, New York, 1983.
9. T. Pelton, M. Wilhelm, K.J. Ahn, and J.C. Seferis, *Proc. 23rd SAMPE Technical Conference*, 196 (1991).
10. M.L. Hunt and C.L. Tien, *Chem. Eng. Sci.*, **45**(1), 55 (1990).
11. K.J. Ahn, J.C. Seferis, T. Pelton, and Wilhelm, *Polym. Comp.*, **13**(3), 197 (1992).
12. R.A. Greenkorn, "Flow Phenomena in Porous Media," Mercel Dekker, New York, 1983.