

사출성형용 열가소성 펠릿을 이용한 탄소섬유 복합소재 제작에 관한 연구

정의철^{1,2} · 윤경환¹ · 김종선² · 이성희[#]

A Study on the Production of Carbon Fiber Composites using Injection-molding Grade Thermoplastic Pellets

E. C. Jeong, K. H. Yoon, J. S. Kim, S. H. Lee

(Received September 27, 2016 / Revised November 16, 2016 / Accepted November 25, 2016)

Abstract

A manufacturing technology of carbon fiber composites with thermoplastic polymer pellets and continuous woven fiber was investigated using a compression molding process. To secure the impregnation of resin into the porosity of fabric the composite specimens were prepared with general injection-molding grade polypropylene pellets and low viscosity polycarbonate pellets. Tensile tests of polypropylene and polycarbonate composites were performed. Polycarbonate composites showed higher fracture strength than that of polypropylene composites because of the difference of matrix properties. However, the increase rate of strength was lower than that of polypropylene composites due to the difference of coherence between matrix and reinforcement. To investigate the effect of carbon fiber volume fraction on the fracture strength variation polypropylene composites with different volume fraction were compression molded and tensile tests were performed together. It was shown that the fracture strength of the polypropylene composites increased by 3.2, 5.4 and 6.9 times with the increase of carbon fabric volume fraction of 0.256, 0.367, and 0.480, respectively.

Key Words: Composites, Compression Molding, Pellets, Thermoplastic, Woven Fabric, Tensile Strength

1. 서론

복합소재란 서로 다른 두 가지 물질을 혼합하여 기존의 재료보다 우수한 성질을 갖는 물질을 뜻하며, 사용되는 모재(matrix)와 보강재(reinforcement)의 종류에 따라 고분자 복합소재, 금속 복합소재, 섬유강화 복합소재 등으로 나눌 수 있다[1]. 보강재로 탄소섬유를 사용하는 탄소섬유강화 복합소재는 내열성, 치수 안정성이 우수하며, 비강도(specific strength)와 비강성(specific stiffness)이 우수하여 차세대 금속 대체 경량화 소재로 각광받고 있다[2]. 탄

소섬유강화 복합소재는 사용되는 모재의 종류에 따라 열경화성 탄소섬유강화 플라스틱(carbon fiber reinforced thermoset: CFRSP)과 열가소성 탄소섬유강화 플라스틱(carbon fiber reinforced thermoplastic: CFRTP)으로 나눌 수 있다. 열경화성 탄소섬유강화 플라스틱은 주로 모재로 에폭시(epoxy)수지 또는 폴리에스터(polyester)계 수지를 사용하며, 모재의 낮은 점도와 용융온도로 인하여 복합소재 제작이 용이하다는 장점을 가지고 있다[3]. 그러나 열경화성 수지 특성상 성형과정에서 단계적으로 열과 압력을 가해 주어야 하는 경화과정(curing process)이

1. 단국대학교 기계공학과

2. 한국생산기술연구원 금형기술그룹

Corresponding Author: Korea Institute of Industrial Technology, Molds & Dies R&D Group, E-mail: birdlee@kitech.re.kr

필요하기 때문에 제품 성형공정 시간이 길다는 단점을 가지고 있다. 이와 다르게 열가소성 탄소섬유 강화 플라스틱은 성형과정에서 경화과정이 필요하지 않아 생산속도가 높고 대량생산에 적합하다는 장점을 가지고 있지만 모재가 가지는 높은 점도와 용융온도로 인하여 모재와 보강재 사이의 함침(impregnation)과정이 어렵다는 단점을 가지고 있다. 이러한 단점을 극복하기 위하여 1980년대부터 열가소성 섬유강화 복합소재의 제조방법과 물성평가에 대한 연구가 꾸준히 진행되어 왔다[4-8]. 1987년 Johnston 등은 복합소재에 사용할 수 있는 열가소성 플라스틱의 물성평가를 진행하였으며[9], 1995년 임순호는 열가소성 복합소재의 물성 및 특성에 대하여 연구하였다[10]. 2003년 신익재 등은 패브릭 형태에 따른 열가소성 복합소재의 성형성에 관한 연구를 진행하였으며[11], 2015년 Lee 등은 열분해 방법과 PP/PE 열가소성 섬유를 사용하여 복합소재 시트(sheet)를 제작하는 연구를 진행하였다[12].

본 논문에서는 기존의 열가소성 복합소재를 성형하는 공정과 압축성형 공정을 응용하여 사출성형용 열가소성 플라스틱 펠릿(pellet)과 연속섬유를 이용한 열가소성 탄소섬유 복합소재 성형에 관한 연구를 진행하였으며, 제작된 성형품의 인장강도 시험을 통하여 복합소재의 성형성 및 기계적 강도를 파악하였다.

2. 열가소성 섬유강화 복합소재의 제조방법

연속섬유 형태의 탄소섬유를 직조하여 직물 형태로 제조한 것을 패브릭(fabric)이라고 하며, 일정한 길이로 분쇄한 것을 스테이플(staple) 섬유라고 한다. 스테이플 섬유는 고분자 컴파운드(compound) 펠릿의 형태로 제조되어 사출성형을 이용한 복합소재 성형품 제작의 재료로 사용되며, 패브릭 형태의 탄소섬유는 프리프레그(pre-impregnated material: prepreg)로 제작되어 적층방식의 탄소섬유 복합소재 성형품의 중간재로 사용된다. 프리프레그를 이용한 복합소재 성형품과 같이 연속섬유 형태의 섬유강화 복합소재는 스테이플 섬유를 이용한 단섬유 형태의 섬유강화 복합소재 성형품에 비하여 높은 비강도와 비강성을 가진다는 장점이 있으나, 모재의 높은 점도와 용융온도로 인하여 복합소재를 제작하는데 제한이 따른다는 단점을 지니고 있다. 따라서 고강도의 탄

소섬유 복합소재 제작을 위하여 열가소성 프리프레그 제조방법과 그 밖의 연속섬유를 사용하는 열가소성 복합소재 제조방법에 관한 연구가 진행되고 있으며[13], 현재 적용되고 있는 연속섬유를 이용한 열가소성 섬유강화 복합소재 제조방법과 본 논문에서 사용한 성형방법을 소개하면 다음과 같다.

2.1 Film impregnation 공정

Film impregnation 공정은 열가소성 수지 필름을 제조한 후 필름 사이에 보강재를 삽입하여 롤투롤(roll to roll) 또는 압축성형 공정을 이용하여 복합소재를 제작하는 방법이다. 롤투롤 공정에 적용이 가능하여 생산성이 높다는 장점을 가지고 있으나 열가소성 고분자 필름을 사용하기 때문에 필름 형태로 제작 가능한 고분자만을 모재로 사용할 수 있으며, 고온 상태에서 성형 공정을 진행하기 때문에 폭이 넓은 제품을 제조하는데 한계가 있다[13, 14].

2.2 Co-mingled fiber impregnation 공정

Co-mingled fiber impregnation 공정은 열가소성 고분자와 보강재 섬유를 패브릭 형상으로 같이 직조하여 복합소재를 제작하는 방법이다. 모재와 보강재가 같이 직조된 패브릭을 적층시켜 성형하기 때문에 모재와 보강재 사이의 함침이 용이하다는 장점이 있으나 열가소성 고분자를 섬유 형태로 직조하여야 하며, 다른 공정에 비하여 복합소재 내부의 섬유 체적분율(volume fraction)이 낮은 편이어서 고강도 제품을 제조하는데 한계가 있다[13, 15].

2.3 Resin impregnation 공정

Resin impregnation 공정은 열가소성 고분자의 높은 점도와 용융온도로 인하여 모재와 보강재 사이의 함침과정이 어렵다는 점을 개선한 방법이다. 올리고머(oligomer) 형태의 수지를 사용하여 모재를 보강재에 함침시키고 그 후 가압, 가열과정을 거쳐 올리고머 형태의 수지를 중합반응 시켜 복합소재를 제작한다. 올리고머 형태의 수지는 용융온도와 점도가 비교적 낮기 때문에 보강재에 모재를 함침시키기 용이하다는 장점을 가진다. 롤투롤 공정을 이용하기 때문에 생산성이 높으나 형상을 갖는 제품 성형이 불가능하다는 단점을 지니고 있다[14].

2.4 가열/압축 공정을 이용한 성형실험

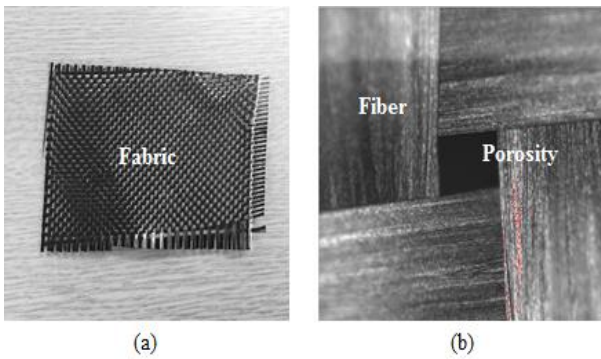


Fig. 1 Picture(a) and shape(b) of carbon fabric (CF3327)

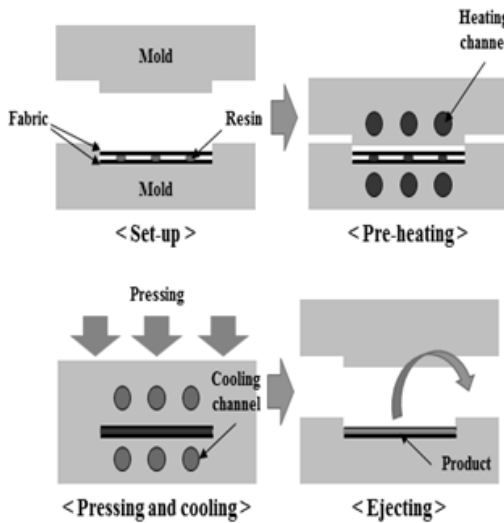


Fig. 2 Schematic diagram of thermoplastic matrix resin (pallets) impregnation into the grid of woven fabric by compression molding process

본 논문에서는 기존의 성형법과는 다르게 모재로 사출성형용 열가소성 펠렛을 사용하였으며, 보강재는 연속섬유 형태의 탄소섬유 패브릭을 사용하였다. 패브릭은 Fig. 1과 같이 경사(warp)와 위사(weft) 사이에 공극(porosity)을 가지고 있으며, 경사와 위사는 각각 약 3,000개의 탄소섬유 필라멘트(filament)로 이루어져 있다. 탄소섬유 패브릭의 자세한 사양 및 공극의 크기는 Table 1에 나타내었다. 복합소재 성형은 가열/압축 성형공정을 이용하였으며 Fig. 2와 같이 4 단계로 진행된다. 보강재와 모재를 핸드 레이업(hand lay-up) 구조로 금형에 적층하고 예열(pre-heating)과정을 거쳐 고체 상태의 펠렛을 용융시킨다. 그 후 압축 공정을 이용하여 패브릭 사이의 공극을 통해 모재를 함침시키며, 모재가 함침된 복합소재를 냉각하여 제품을 취출하는 과정으로 이루어진다.

Table 1 Properties of carbon fabric (CF3327)

Model	CF 3327	
Type of yarn	Warp	CARBON 3K
	Weft	CARBON 3K
Specific weight (g/m ²)	208 ± 12	
Density (count/in)	Warp	13
	Weft	13
Thickness (mm)	0.27 ± 0.05	
Average area of porosities (mm ²)	0.25	
Weave type	Plain	

3. 성형실험 및 인장강도 시험

실험은 모재의 종류에 따른 성형실험과 탄소섬유 체적분율에 따른 성형실험으로 구분하여 진행하였다. 펠렛을 이용한 복합소재 성형 시 복합소재 내부의 공동(void)현상을 피할 수 없기 때문에 각 성형품에 대하여 인장강도 시험을 진행하여 성형품의 기계적 물성을 파악하였다.

3.1 모재의 종류에 따른 성형실험

점도에 따른 복합소재 성형품의 성형성을 파악하기 위하여 사출성형용 폴리프로필렌(polypropylene: PP) 펠렛과 저점도 폴리카보네이트(polycarbonate: PC) 펠렛을 이용하여 성형실험을 진행하였다. 저점도 PC 펠렛의 경우 PP 펠렛보다 약 2 배의 MFR(melt flow rate) 값을 지니며, 항복강도 크기는 각각 26 MPa, 65 MPa 로 PC 펠렛이 PP 펠렛보다 약 2.5 배 큰 항복강도를 지니고 있다. 두 열가소성 펠렛의 자세한 물성은 Table 2,3 에 나타내었다. 성형실험은 Table 4 와 같이 펠렛의 용융온도 차이로 인한 성형온도 차이를 제외하고 주입되는 수지의 양과 패브릭 시트 수, 함침 시 가해지는 압력 모두 동일한 조건에서 진행하였다. 성형실험 결과 펠렛의 MFR 값의 차이에 불구하고 Fig. 3 과 같이 PC 복합소재와 PP 복합소재 모두 패브릭 사이에 있던 고분자가 함침되어 복합소재의 표면을 덮고 있음을 확인 할 수 있다. 이를 통하여 일반 사출성형용 펠렛을 모재로 사용하더라도 패브릭 공극을 통한 함침이 가능하다는 사실을 확인할 수 있다.

Table 2 Properties of PP (M1850, LG Chem)

Characteristics	Test Method	Unit	Value
Density	ASTM D1505	g/cm ³	0.9
MFR (250 °C, 2.16kg)	ASTM D1238	g/10min	70
Tensile strength at yield	ASTM D638	MPa	26
Elongation at break	ASTM D638	%	< 100

Table 3 Properties of PC (HL-8000, Mitsubishi)

Characteristics	Test Method	Unit	Value
Density	ISO 1188	g/cm ³	1.20
MFR (300 °C, 1.2kg)	ISO 1188	g/10min	140
Tensile strength at yield	ISO 527-2	MPa	65
Elongation at break	ISO 527-2	%	85

Table 4 Molding condition of PP and PC composites

Type of Resin	PP (M1850)	PC (HL-8000)
Resin amount (g)	27.0	27.0
Processing temperature (°C)	190	220
Impregnation pressure (MPa)	12.07	12.07
Number of inserted fabric sheets	3	3

성형된 복합소재를 Fig. 4와 같이 폭, 길이가 각각 10mm, 100mm의 도그본(dog-bone) 형태로 가공하여 인장시험을 진행하였으며, 인장시편은 모재의 밀도 차이로 인하여 두께 차이와 탄소섬유 체적분율 차이가 존재한다. 인장시험 결과 Table 5, Fig. 5와 같이 PP복합소재의 경우 PP 신재의 항복강도 26.0MPa 보다 약 5.4배 큰 140.3MPa에서 파단이 일어났으며, PC 복합소재의 경우 PC 신재의 항복강도 65.0MPa 보다 약 2.8배 큰 181.3MPa에서 파단이 일어났다.

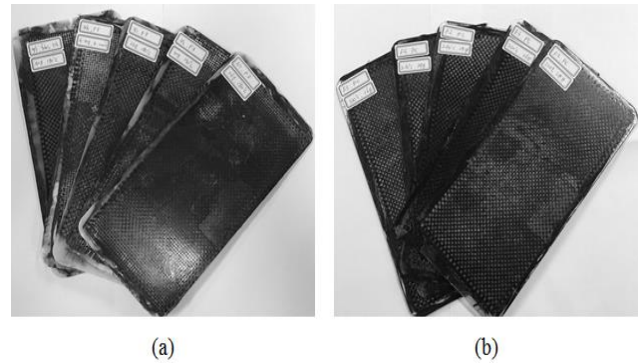


Fig. 3 The pictures of carbon fiber composites: (a) PP composites, (b) PC composites

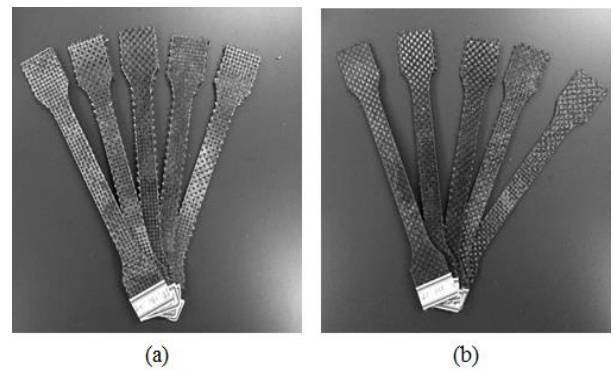


Fig. 4 The pictures of tensile specimens of composites: (a) PP composite, (b) PC composite

Table 5 Results of tensile test of PP and PC composites

Type of matrix	PP	PC
Thickness of specimen (mm)	2.12	1.53
Maximum tensile stress (MPa)	140.3	181.3
Volume fraction of carbon fabric	0.367	0.508

PC 복합소재가 PP 복합소재 보다 더 큰 파단강도를 가지는 것은 모재의 물성 차이에 의한 것으로 생각할 수 있으며, PC 복합소재의 경우 PP 복합소재 보다 높은 탄소섬유 체적분율을 가졌음에도 불구하고 강도 증가가 낮음을 알 수 있는데 이는 섬유와 모재 사이의 결합력에 의한 차이로 생각할 수 있다.

보강재와 모재 사이의 결합력은 복합소재 강도에 영향을 주는 요소로 실제 복합소재 제품성형 시 이를 고려해 탄소섬유 계면처리를 통하여 복합소재의 강도를 향상시킨다. 이와 관련하여 보강재 계면처리에 따른 복합소재의 기계적 강도 변화에 대한 연구도 이루어지고 있지만[16] 본 논문에서의 실험은 패

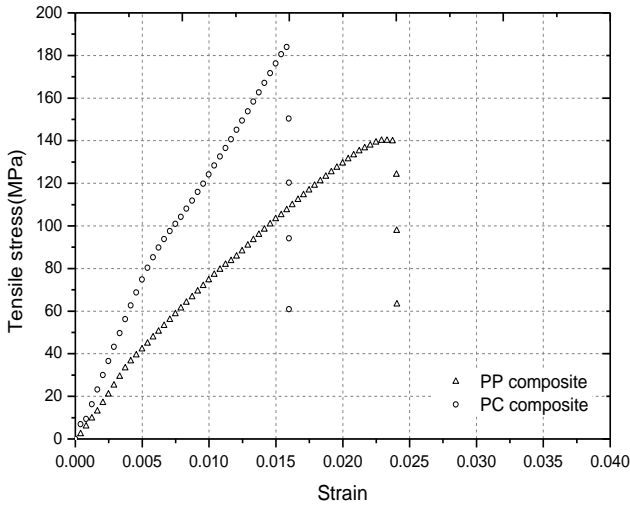


Fig. 5 Strain-stress curve of PP and PC composites

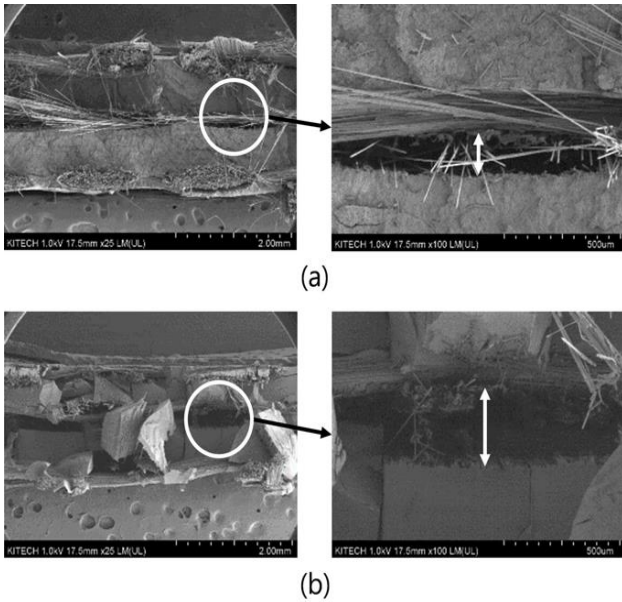


Fig. 6 SEM images of fracture at the composite tensile specimens: (a) PP composite, (b) PC composites

브릭 공극을 통한 모재의 함침성을 확인하기 위한 기초 실험이기 때문에 위 실험에서 사용한 패브릭의 경우 별도의 계면처리를 거치지 않았다. 따라서 Fig. 6과 같이 인장시편 파단면에서 모재와 보강재 사이의 박리(delamination) 현상이 발생하였음을 확인할 수 있다.

3.2 탄소섬유 체적분율에 따른 성형실험 복합소재를 구성하고 있는 탄소섬유 체적분율 변화에 따른 성형품의 성형성 및 인장강도 변화를 알

Table 6 Molding condition of PP composites

Type of matrix	PP (M1850)		
Resin amount (g)	27.0	27.0	27.0
Processing temperature (°C)	190	190	190
Impregnation pressure (MPa)	12.07	12.07	12.07
Number of inserted fabric sheets	2	3	4

Table 7 Results of tensile test of PP composites as a function of number of carbon fabric layers

Type of matrix	PP (M1850)		
Thickness of specimen (mm)	2.02	2.12	2.16
Maximum tensile stress (MPa)	84.28	140.3	179.9
Volume fraction of carbon fabric	0.256	0.367	0.480
Number of inserted fabric sheets	2	3	4

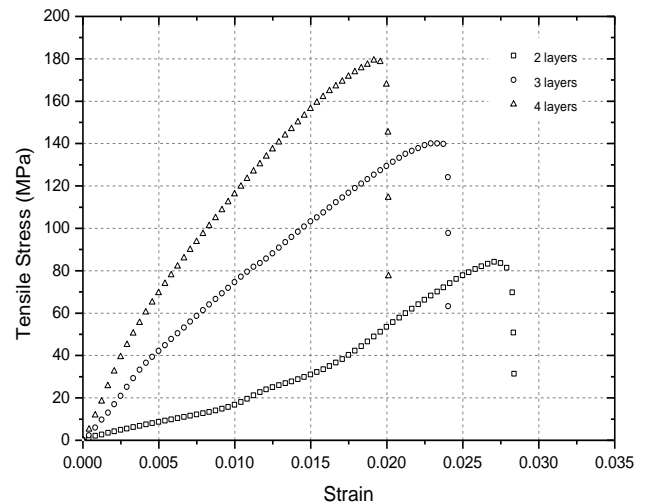


Fig. 7 Stress-strain curve of PP composites as a function of number of carbon fabric layers

아보기 위하여 복합소재 성형 시 삽입되는 탄소섬유 패브릭 시트 수를 증가시켜가며 성형실험을 진행하였다. 모재는 PP 펠렛을 사용하였으며, 성형조건은 Table 6과 같이 삽입되는 탄소섬유 패브릭 시트 수를 제외하고 모두 동일한 조건으로 실험을 진행하였다. 삽입되는 탄소섬유 패브릭 수를 늘려주며 성형품을 제작하였을 때 세 조건의 성형품 모두 패

브릭 공극을 통한 모재의 함침이 일어나 복합소재 표면을 고분자가 덮고 있음을 확인할 수 있었으며, 성형품에 대한 인장강도 시험을 통하여 기계적 강도 변화를 파악하였다. 인장시험 결과 Table 7, Fig. 7 과 같이 복합소재를 구성하는 탄소섬유 체적분율이 각각 0.256, 0.367, 0.480로 증가함에 따라 복합소재의 파단강도가 84.28MPa, 140.3MPa, 179.9MPa로 증가하였으며 PP 신재의 항복강도 26MPa과 비교하였을 때, 복합소재의 파단강도는 각각 3.2배, 5.4배, 6.9배 증가함을 확인할 수 있다.

이를 통해 기존의 고분자 필름을 이용하거나 울리고며 형태의 수지를 이용한 복합소재 성형과 달리 일반 사출성형용 펠렛을 이용하더라도 패브릭 공극을 통한 모재의 함침으로 복합소재 성형이 가능하며, 비록 파단 시 모재와 보강재 사이의 박리 현상이 발생하지만 복합소재를 구성하는 탄소섬유 체적분율을 증가시켜 줌으로써 강도 증가 효과를 볼 수 있음을 확인할 수 있다. 따라서 복합소재 성형 시 복합소재 내부에 생기는 공동 현상이나 보강재의 계면처리를 고려해 준다면, 탄소섬유 체적분율 증가에 따라 일정 수준 이상의 강도를 지니는 복합소재를 성형할 수 있을 것으로 예상된다.

4. 결론

본 연구를 통하여 얻을 수 있는 결론은 다음과 같다.

(1) 사출성형용 펠렛을 이용한 탄소섬유 복합소재 성형 시 패브릭 사이의 공극을 통하여 모재의 함침이 일어나게 되며 일반 사출성형용 PP 펠렛과 저점도 PC 펠렛을 이용하여 열가소성 복합소재를 성형하였다. 그 결과 일반 사출성형용 펠렛으로도 복합소재 성형이 가능하다는 사실을 알 수 있다.

(2) PC 복합소재의 경우 PP 복합소재 보다 모재가 가지는 물성 차이로 인하여 약 40MPa의 더 높은 파단강도를 지녔지만 더 높은 탄소섬유 체적분율에도 불구하고 강도 증가 효과가 낮음을 알 수 있다. 이는 모재와 보강재 사이의 결합력에 의한 차이로 생각할 수 있다.

(3) PP 펠렛을 모재로 사용하여 탄소섬유 체적분율을 증가에 따른 복합소재의 성형성 및 강도 변화를 파악하였으며, 보강재의 계면 미처리에도 불구하고 탄소섬유 체적분율이 0.256, 0.367, 0.480으로 증가

함에 따라 복합소재 파단강도가 각각 3.2, 5.4, 6.9배 증가함을 확인할 수 있다. 이를 통해 기존의 가공방법과 다르게 사출성형용 펠렛을 이용해 일정 수준 이상의 강도를 지니는 복합소재의 성형 가능성을 확인할 수 있다.

후 기

이 논문은 한국생산기술연구원의 RCOE 육성사업에 의해 지원받아 진행되었습니다. (EO160030).

REFERENCES

- [1] Korea Institute of Science and Technology Information, 2011, Manufacturing Technology of Carbon Fiber Composites, Inf. Res.
- [2] M. K. Seo, S. J. Park, 2010, Manufacturing Method of Carbon Fibers and Their Application Fields, Polym. Sci. Tech., Vol. 21, No. 2, pp.130~140.
- [3] S. Yamini, R. J. Young, 1980, The Mechanical Properties of Epoxy Resins, J. Mater. Sci., Vol. 15, No. 7, pp 1823~1831.
- [4] D. M. Bigg, J. R. Preston, 1989, Stamping of Thermoplastic Matrix Composites, Polym. Compos., Vol. 10, No. 4, pp. 261~268.
- [5] J. Crosby, 1988, Recent Advances in Thermoplastic Composites, Adv. Mater. Processes, Vol. 133, pp. 56~59.
- [6] M. R. Fallon, 1989, Thermoplastic Sheet Stamping: Ready for the Big Time, Plast. Tech., Vol. 35, pp. 95~103.
- [7] D. Maass, J. Bertolet, 1986, Forming Thermoplastic Composites, Tech.1 Rep. EM86-714, S.M.E, Tech. Pap.
- [8] J. D. Muzzy, A. O. Kays, 1984, Thermoplastic vs Thermosetting Structural Composites, Polym. Compos., Vol. 15, No. 13, pp. 169~172
- [9] N. J. Johnston, P. M. Hergenrother, 1987, High Performance Thermoplastic: A Review of Neat Resin and Composite Properties, SAMPE Symp., Process, 32nd Int, p. 1400.
- [10] S. H. Lim, 1995, High Performance Thermoplastic

- Composites, Polym. Sci. Tech., Vol. 6, No. 5, pp. 451~458.
- [11] I. J. Shin, D. J. Lee, 2003, Formability of Thermoplastic Laminar Composite depending on the Types of Fabric, Trans. Kor. Soc. Mech. Eng. A, Vol. 27, No. 8, pp. 1338~2003.
- [12] Y. S. Lee, S. A. Song, W. J Kim, S. S. Kim, Y. S. Jung, 2015, Fabrication and Characterization of the Carbon Fiber Composite Sheets, Compos, Res., Vol. 28, No. 4, pp. 168~175.
- [13] S. T. Kim, 2013, Development Trend for Thermoplastic Polymer Composite, Polym. Sci. Tech., Vol. 24, No. 1, pp. 25~28.
- [14] S. T. Jespersen, M. D. Wakeman, V. Michaud, D. Cramer, J.-A. E. Manson, 2008, Film Stacking Impregnation Model for a Novel Net Shape Thermoplastic Composite Preforming Process, Compos. Sci. Tech., Vol. 68, No. 7, pp. 1822-1830
- [15] L. Long, W. Shanyuan, Y. Jianyong, 2002, Mechanical Properties of Commingled Yarn Composites, Indian J. Fibre Text. Res., Vol. 27, No. 3, pp. 287~289.
- [16] J. H. Lee, J. K. Lee, K. Y. Rhee, 2002, Effects of the Glass Fiber Characteristics on the Mechanical Properties of Thermoplastic Composite, Trans. Korean Soc. Mech. Eng. A, Vol. 24, No. 7, pp. 1697~1702.