

탄소섬유 펼침 기술 및 이를 적용한 적층 복합재료의 기계적 특성

박성민^{*†} · 김명순^{*} · 최윤성^{*} · 이은수^{*} · 유호욱^{**} · 천진성^{**}

Carbon Fiber Tow Spreading Technology and Mechanical Properties of Laminate Composites

Sung Min Park^{*†}, Myung Soon Kim^{*}, Yoon Sung Choi^{*}, Eun Soo Lee^{*},
Ho Wook Yoo^{**}, Jin Sung Chon^{**}

ABSTRACT: This paper reports a study on a method for achieving lightweight thermoplastic laminate composites referred to as tow spreading technology. Thickness of an unspreed 12 K carbon fiber tow is reduced by increasing the tow width from 7 mm to 20 mm. The polypropylene (PP) film was used to stabilize and impregnate the spread tow, covering it into a partially consolidated prepreg: 12 K carbon fiber spread tow/PP. Laminates were fabricated from the spread tow prepreg and control laminate composites were produced from unspreed tow prepreg consisting of 12 K carbon fiber and PP. The void content, tensile and flexural properties of the composite laminates were investigated. Consequently, the spread tow laminate composite exhibited lower void content and improved mechanical properties.

초 록: 본 연구는 탄소섬유 펼침 기술을 이용한 적층 복합재료의 특성을 평가하였다. 섬유 펼침 기술이 적용되어 기존 12 K 탄소섬유 토우의 폭이 7 mm에서 20 mm로 늘어나면서 두께가 더 얇아졌다. 폴리프로필렌 필름을 spread tow에 함침시켜 프리프레그를 만들고 이를 적층 후 열압축 성형을 통해 시편을 제조하였으며 이들의 기공함유량 및 인장, 굴곡 시험을 통해 물리적, 기계적 물성을 평가하였다. 그 결과, 탄소섬유 펼침 기술이 적용된 적층 복합재료의 기공함유량이 기존의 섬유 토우를 사용한 것보다 작게 나타났고, 섬유함유량이 낮았음에도 불구하고 기계적 물성이 향상됨을 알 수 있었다.

Key Words: 탄소섬유(Carbon fiber), 폴리프로필렌(Polypropylene), 펼쳐진 섬유(Spread tow), 프리프레그(Prepreg), 적층 복합재료(Laminate composites)

1. 서 론

고유가로 인한 산업분야의 고강성 경량화 소재의 수요가 증가함에 따라 섬유강화 복합소재에 대한 관심이 증가하고 있다. 그 중에서 CFRTP(Continuous fiber reinforced thermoplastics)는 기존에 사용하던 열 경화성 복합재료와 비교 시 여러 장점이 있어 각광받고 있다. 열 경화성 수지

는 점도가 낮아 함침성이 우수하여 기존에 다양한 연구와 더불어 제품생산에 사용되었지만 재활용이 어렵고, 수지의 경화 사이클이 길다는 단점이 있다[1]. 최근에는 친환경에 대한 세계적 관심이 증대되고 세계 시장을 토대로 가격 경쟁력 확보가 시급해짐에 따라 재활용 및 공정시간 단축을 이점으로 한 열 가소성 고분자 복합소재에 관심이 증대되고 있다. 하지만, 열 가소성 수지의 경우 용융점도가 매우

Received 7 September 2015, received in revised form 26 October 2015, accepted 27 October 2015

^{*}Korea Dyeing & Finishing Technology Institute (DYETEC)

^{*†}Korea Dyeing & Finishing Technology Institute (DYETEC), Corresponding author, (E-mail: aububa@dyetec.or.kr)

^{**}Textile For Life Co., Ltd. (T4L)

높기 때문에 함침성이 낮고 이로 인한 제품의 가격 경쟁력 저하에 대한 문제점을 고려하지 않을 수 없다. 이러한 열가소성 복합재료의 경우 공정 속도 증가로 인해 제품의 함침성이 떨어질 수 있기 때문에 제조 공정 효율성 향상을 고려하여 생산성을 높여야 한다[2].

공정 효율을 향상시키기 위해서는 수지의 점도를 낮춰 흐름성을 개선하거나 높은 압력을 가하여 제조하거나 섬유의 두께를 감소시켜 함침되는 깊이를 줄이는 방법이 있다. 먼저, 수지의 점도를 낮춰 흐름성이 높은 수지를 사용할 경우 일반적으로 함침성은 개선될 수 있으나 분자량이 낮아짐에 따라 기지재의 성능이 낮아지는 문제점이 있어 고성능이 요구되는 제품 제조에는 적당하지 않다. 두 번째, 높은 압력을 가하여 수지의 함침성을 증가시킬 수 있으나 이를 위해서는 공정설비에 따른 비용이 증가되고 섬유에 손상을 가져올 수 있으므로 이상적이지 못하다. 이에 반해 섬유를 펼칠 경우, 폭이 넓어지면서 두께가 감소되어 함침 시간을 단축시킬 수 있으므로 같은 공정 조건보다 향상된 함침도를 확보할 수 있다. 이러한 현상은 아래 Darcy의 법칙에 따른다[3].

$$T = \eta s^2 / 2K\Delta P \quad (1)$$

위 식에서 t 는 함침 시간, s 는 함침 깊이(섬유의 두께), η 는 수지의 점도, ΔP 는 압력구배, K 는 투과성 계수를 나타낸다. 즉, 섬유의 폭을 넓히는 공정을 통해 섬유의 두께가 얇아지게 되므로 복합재료 제조 시 무게, 강도 등의 물성을 향상시킬 수 있고, 종래의 고온, 고압의 복잡한 기술을 사용하지 않아도 점도가 높은 열가소성 수지의 함침이 용이함을 의미한다. 초경량 복합재료를 제조하기 위해 이에 본 연구에서는 섬유 펼침 효과에 대한 이론적인 접근과 함께 섬유를 펼치는 방법과 열가소성 프리프레그 제조 및 이를 적용한 복합재료의 성능을 평가하고 결과를 제시하였다.

2. 섬유 펼침기술의 이론적 배경

함침 시간, 수지 점도, 투과성 계수, 압력 구배 조건을 고려하여 섬유 펼침 효과에 대해 아래 식 (2)와 같이 이론적으로 접근할 수 있다[4].

$$S_t = (2K\Delta P t / \eta)^{1/2} \quad (2)$$

$$D = S_t / h_z(P_a) \quad (3)$$

$$h_z(P_a) = A_c / W = N A_f / W V_f \quad (4)$$

위 식에서의 S_t 는 함침깊이(섬유두께), D 는 함침도, $h_z(P_a)$ 는 일정압력(P_a)에서 tow의 두께, A_c 는 tow의 단면적, W 는 tow의 폭, N 은 필라멘트 수, A_f 는 필라멘트의 단면적, V_f 는 섬유체적률을 나타낸다. 식 (3)에서 알 수 있듯이 기존 설비를 그대로 사용하면서 함침도를 높이기 위해서는 일정 압력하에서 tow의 두께를 감소시켜야 함침도를 증가시킬

수 있다. 또한 식 (4)와 같이 일정 압력에서의 tow의 두께는 폭에 반비례함을 알 수 있다. 그러므로 함침도가 높은 열가소성 고분자 복합재료를 제조하기 위해서는 tow의 폭을 넓혀 함침깊이 즉, 두께를 줄여야 한다.

3. 실험

3.1 Materials

본 연구에서는 12 K 탄소섬유(T700SC, TORAYCA, Japan)와 두께 15 μm , 평량 13.5 gsm의 PP 필름(Kolon, Korea)을 사용하였다.

3.2 Carbon fiber spread tow technology

Fig. 1에 tow spreading 장치의 사진 및 모식도를 나타내었다. 본 연구에서 제안한 매커니즘은 펼침성 향상을 위해 furnace(300°C)에서 탄소섬유의 일부가 탈호(Desizing)되고, 마찰롤러 및 트레이버스 장치를 거쳐 폭 20 mm의 spread tow가 된다. 본 연구에 사용된 spreading 장치의 롤러는 공정 중 섬유 손상을 최소화 하기 위해 롤러 표면에 특수 가공 하였으며, 섬유의 폭이 커짐에 따라 롤러의 곡률과 사이즈 변화를 고려하여 설계 및 제작하였다. Fig. 2에 본 연구에서 제안된 탄소섬유의 spreading 전, 후 폭을 비교하였다.

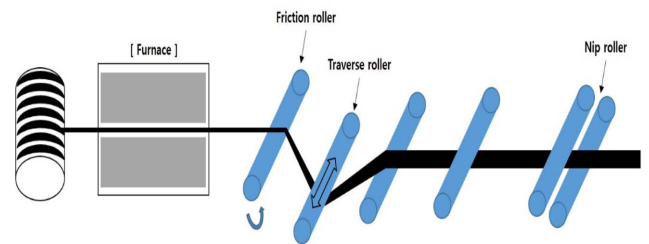


Fig. 1. Schematic diagram of carbon fiber tow spreading device

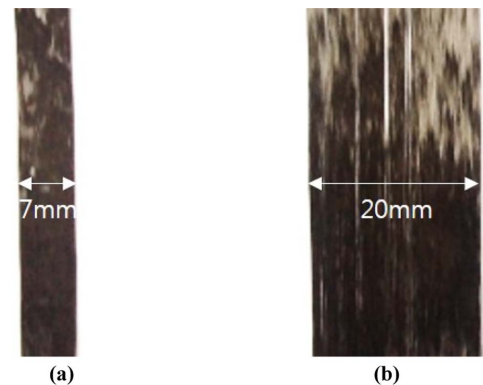


Fig. 2. The carbon fiber tow: (a) before (7 mm) and (b) after (20 mm) spreading

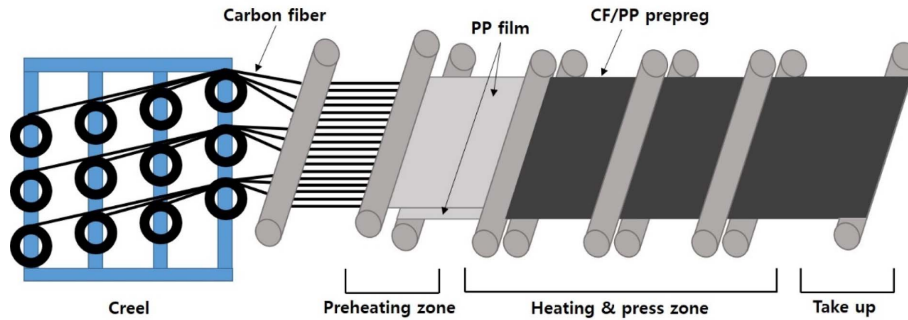


Fig. 3. Schematic diagram of thermoplastics prepreg line

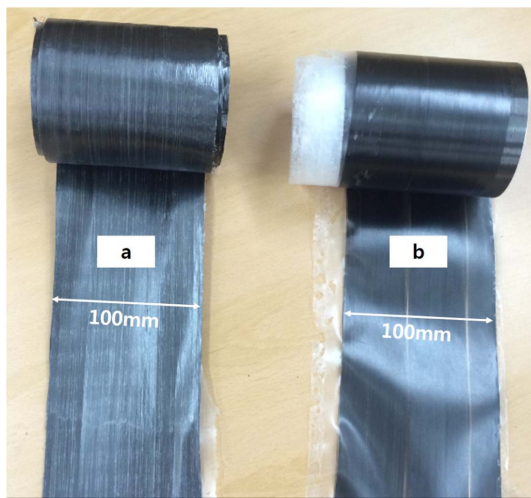


Fig. 4. CF/PP prepreg: (a) unspread tow prepreg, (b) spread tow prepreg

Table 1. Specifications of CF/PP prepreg

Spec.	Unspread tow prepreg	Spread tow prepreg
Number of tow	15	5
Fiber content (wt%)	33	30
Width (mm)	100	100
Thickness (mm)	0.26	0.14

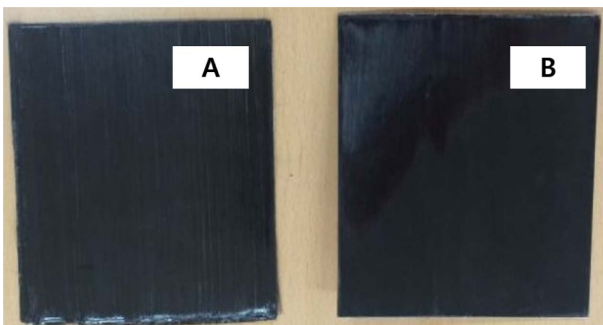


Fig. 5. Composite laminates: (a)unspread tow, (b)spread tow

3.3 Fabrication of the composite laminates

Spreading 전, 후의 tow와 PP 필름을 사용하여 프리프레그를 제조하기 위해 Fig. 3의 모식도와 같은 장비를 사용하였다. 각 구간 별 설정 조건은 preheating zone 210°C이고, heating & press zone의 온도 및 압력은 230°C, 5 bar이며, take up 속도는 1 m/min이다. Fig. 4에 제조된 CF/PP 프리 프레그를 나타내었고, Table 1에 시편의 사양을 나타내었다. 그리고 위와 같이 제조된 프리프레그를 일 방향으로 적층 후 230°C, 20 min, 6.8 MPa의 조건으로 compression molding을 통해 가로 100 mm, 세로 120 mm, 두께 2 mm의 최종 시편을 완성하였다(Fig. 5).

3.4 Density, fiber volume fraction and void content

제조된 적층 복합재료의 밀도를 측정하기 위해 ASTM D792 실험법에 준하여 밀도(ρ)를 측정하였고, ASTM D3171-09에 따라 아래 식에 의해 섬유체적률(V_f) 및 기공체적률(V_v)을 계산하였다.

$$V_f (\%) = (M_f/M_i) \times \rho_c/\rho_f \times 100 \quad (5)$$

$$V_m (\%) = (M_i - M_f)/M_i \times \rho_c/\rho_f \times 100 \quad (6)$$

$$V_v (\%) = 100 - (V_f - V_m) \quad (7)$$

여기에서, V_f 는 섬유의 체적(%)이고, V_m 은 매트릭스의 체적(%), V_v 는 기공의 체적(%), M_f 는 수지 제거 후 무게(g), M_i 는 초기 시편의 무게(g), ρ_c 는 시편의 밀도(g/cc) 그리고 ρ_f 는 섬유의 밀도(g/cc)이다.

3.5 Mechanical tests

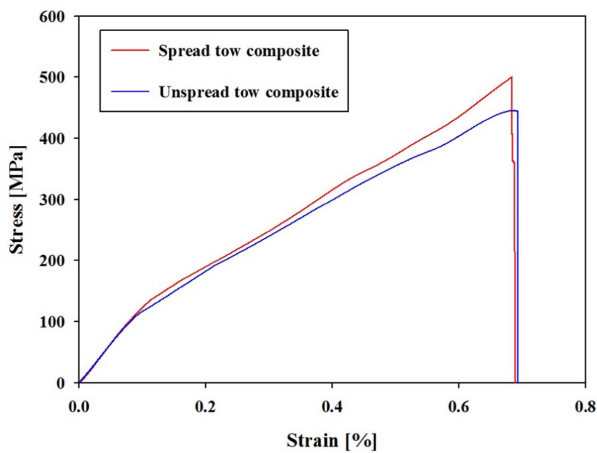
Spreading 전, 후 tow를 사용한 복합재료의 기계적 특성을 비교하였다. 인장시험은 ASTM D3039 시험에 준하여 cross head speed 2 mm/min 속도로 시험하였고, 굴곡시험은 ASTM D790 시험법에 따라 1 mm/min의 속도로 시험하였다.

4. 결과 및 고찰

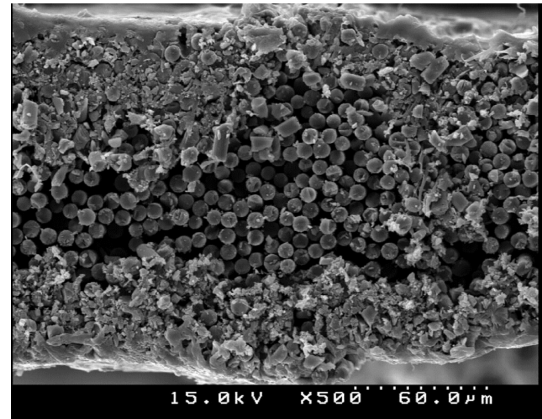
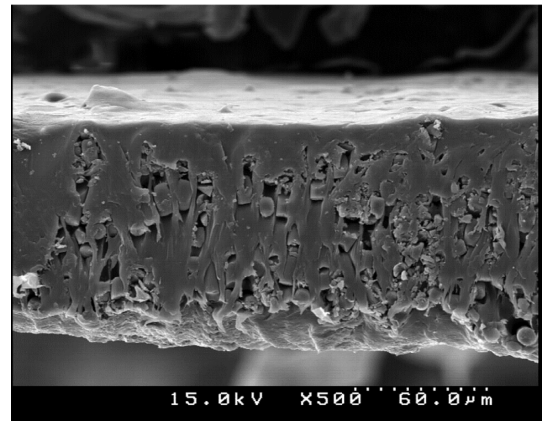
Spread tow 사용에 따른 적층 복합재료의 물리적, 기계적 특성을 조사하여 Table 2에 나타내었다. 시편의 두께를 2 mm

Table 2. Results of the composite laminates made from carbon fiber spread and unspread tow

Spec.	Unspread tow composite	Spread tow composite
Number of plies	8	15
Measured density (g/cm ³)	1.09 ± 0.03	1.06 ± 0.02
Fiber volume fraction (%)	23.17 ± 1.47	19.83 ± 0.85
Void content (%)	3.21 ± 1.22	0.16 ± 0.04
Tensile strength (MPa)	458.52 ± 73.25	513.73 ± 58.63
Tensile modulus (GPa)	2.29 ± 0.08	2.35 ± 0.06
Flexural strength (MPa)	559.03 ± 45.07	607.54 ± 62.74
Flexural modulus (GPa)	2.06 ± 0.05	2.17 ± 0.06

**Fig. 6.** Stress-strain curve of the spread tow and unspread tow composite laminates

로 제조하기 위해 프리프레그 적층 수를 각각 달리하였으나, 밀도 측정 결과 거의 비슷한 수치로 측정되었다. 기공 함유량은 spread tow를 사용한 시편보다 기존의 tow를 사용한 시편이 더 높게 측정되었는데, 이는 앞서 언급한 식 (3)의 함침도는 tow의 두께에 반비례함에 기인한다. 즉, 복합재료 내 기공은 섬유 사이에 함침 되지 않은 공간(RRAs, Resin rich area)에 존재하는데, 기존의 tow는 섬유가 조밀하게 밀집되어 있기 때문에 수지가 쉽게 침투하지 못한다. 반면 spread tow는 섬유 구조를 물리적으로 펼쳐줌으로써 각 섬유 사이의 공간이 충분하여 PP수지가 좀 더 쉽게 흐를 수 있으므로 함침성이 좋아지며, 또한 기공도 줄어든다[5]. 이러한 현상은 Fig. 7의 프리프레그 단면 사진을 통해 확인할 수 있었다. (a)의 경우 표면은 함침되었으나 두께 방향으로 갈수록 전혀 함침이 이루어지지 않았다. 이와는 대조적으로 (b)의 경우 두께 방향으로도 균일하게 함침이 잘 되어있음을 확인할 수 있었다. Fig. 6에 인장시험 결과를 나타내었다. 기계적 특성 시험 결과 인장 및 굴곡 탄성률은 거의 같거나 아주 약간 상승하는 경향을 보였고, 강도의 경우 spread tow를 사용한 시편이 기존 tow를 사용한 시편 보다 섬유 체적

**(a)****(b)****Fig. 7.** SEM images of tow prepreg: (a) unspread tow prepreg, (b) spread tow prepreg

률이 낮음에도 불구하고 더 높게 측정되었다. 이와 비슷한 연구 사례 중, Kim과 Son의 층 두께에 따른 층간 분리에 의한 파단에 대한 연구 결과에서 파단 되기 시작하는 최대 응력이 얇은 층으로 이루어진 복합재료가 더 우수함이 입증되었고[6], Rodini와 Eisenmann의 시뮬레이션에 의한 연구에서도 얇은 층으로 된 적층 복합재료보다 두꺼운 층으로 이루어진 적층 구조에서 미세균열, 층간 분리와 같은 결함이 더 많이 발생하는 것으로 조사되었다[7]. 결과적으로, 두꺼운 층의 적층 복합재료는 적은 응력으로도 파괴될 수 있음을 의미한다. 위와 같이 결함에 대한 저항이 우수한 복합재료를 만들기 위해서는 얇은 층을 균일하게 여러 겹 적층하는 것이 바람직하다.

5. 결 론

Fig. 2에서 보듯이 12k spread tow의 폭은 약 3배가 넓어졌고, 두께는 0.10 mm에서 0.04 mm로 2.5배 줄어들었다. 다시 말해, 탄소섬유의 직경이 7 μm라고 가정하면 하나의 tow에

섬유 층이 14에서 6층으로 축소되었음을 의미한다. 이렇듯, 물리적으로 섬유를 펼쳐줌으로써 PP 수지가 좀 더 쉽게 섬유 사이를 침투할 수 있어 기공을 줄임과 동시에 기계적 물성을 향상시킨 결과를 얻었다. 기존의 섬유 tow를 사용한 복합재료의 섬유함유량이 더 높았음에도 불구하고 spread tow를 사용한 복합재료의 기계적 특성이 더 높은 경향을 나타내었다. 결과적으로, 궁극적인 복합재료를 제조하기 위해서는 기공을 최소화하는 것이고, 이를 위해서는 함침 깊이가 짊을수록 유리함을 본 연구를 통해 조사되었다.

후 기

본 연구는 한국산업기술평가관리원의 산업핵심기술개발 사업과제(10049054)의 지원을 받아 수행하였습니다.

REFERENCES

1. Shin, S., Kim, R.Y., Kawabe, K., and Tsai, S.W., "Experimental Studies of Thin-ply Laminated Composites," *Composite Science and Technology*, Vol. 67, 2007, pp. 996-1008.
2. Roh, J.U. and Lee, W.I., "Review : Continuous Fiber Tow Spreading Technologies and Its Applications," *Journal of the Korean Society for Composites Materials*, Vol. 26, No. 3, 2013, pp. 155-159.
3. Kim, T.W., Jun, E.J., Um, M.K., and Lee, W.I., "A Study on the Effect of Pressure on the Resin Impregnation of Fiber Bundles," *Journal of the Korean Society for Composites Materials*, Vol. 1, No. 1, 1988, pp. 67-72.
4. Chang, I.L. and Lee, J.K., "Recent Development in Thermoplastic Composites: A Review of Matrix Systems and Processing Methods," *Journal of thermoplastic composite materials*, Vol. 1, 1988, pp. 277-296.
5. Hassan M. EL-Dessouky and Carl A. Lawrence, "Ultra-light-weight Carbon Fiber/thermoplastic Composite Material Using Spread Tow Technology," *Composite Part B*, Vol. 50, 2013, pp. 91-97.
6. Kim, R.Y. and Soni, S.R., "Experimental and Analytical Studies on the Onset of Delamination in Laminated Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 18, 1984, pp. 70-80.
7. Rodini, B.T. Jr. and Eisenmann, J.R., "An Analytical and Experimental Investigation of Edge Delamination in Composite Laminates," *Fibrous Composites in Structural Design*, 1980, pp. 441-457.