

초경량 CF/SiC 하이브리드 복합섬유의 고온 보호 성능 향상

어수빈* · 윤세중* · 김우식** · 문숙영*†

Enhanced High-Temperature Protection of Ultra-Light CF/SiC Hybrid Composites

Su Bin Eo*, Sae Jung Yun*, Woo Sik Kim**, Sook Young Moon*†

ABSTRACT: This study presents the synthesis and high-temperature evaluation of ultra-light CF/SiC composite fibers fabricated through a SiO-C reaction environment combined with a controlled Chemical Vapor Reaction (CVR) process. Although CVR-based SiC deposition is widely used, the influence of carbon fiber crystallinity on SiC nucleation and coating growth remains insufficiently clarified. To address this gap, SiC coatings were formed at various reaction temperatures, and their microstructural evolution was analyzed to identify material-dependent reaction pathways. FE-SEM, TEM/SAED, XRD, and XPS analyses revealed that higher reaction temperatures promoted the transformation of amorphous Si-O-C intermediates into crystalline β -SiC, while the structural ordering of the carbon fibers governed nucleation density and crystal orientation. At 1500°C, a dense and continuous β -SiC coating approximately 1.3 μm thick was achieved without interfacial defects, indicating coherent CF/SiC bonding. Thermogravimetric analysis demonstrated the superior oxidation resistance of the coated fibers: pristine carbon fibers were fully oxidized by 1400°C, whereas CF/SiC fibers exhibited only ~1% mass loss due to the protective SiC layer. These results establish a clear relationship between carbon-fiber crystallinity, SiC growth behavior, and oxidation protection. The findings provide practical guidelines for designing lightweight, thermally robust CF/SiC composites suitable for aerospace and extreme-temperature applications.

초 록: 본 연구에서는 SiO-C 반응 환경과 CVR 공정을 이용하여 CF/SiC 복합섬유를 합성하고, 탄소섬유 결정성이 SiC 코팅 형성에 미치는 영향을 규명하였다. 반응 온도 증가에 따라 비정질 Si-O-C 종이 β -SiC로 전환되었으며, 1500°C에서 약 1.3 μm 두께의 치밀한 SiC 층이 형성되었다. 고온 산화 평가 결과, CF/SiC 복합섬유는 약 1%의 중량 손실만을 보여 우수한 산화 저항성을 나타냈다. 본 연구는 탄소섬유 구조와 SiC 성장 간의 상관관계를 제시함으로써 고내열 경량 복합섬유 설계를 위한 기반을 제공한다.

Key Words: 탄화규소코팅(SiC coating), 탄소섬유복합소재(Carbon fiber composites), CVR, 열보호시스템(Thermal protection)

1. 서 론

탄소섬유는 높은 비강도, 낮은 밀도 및 열팽창계수, 그리

고 우수한 내열성을 바탕으로 고성능 복합재 분야에서 핵심적인 소재로 활용되고 있다. 그러나 산소 존재 환경에서는 급격한 산화가 발생하여 고온 안정성이 저하되는 근본

Received 7 October 2025, received in revised form 25 October 2025, accepted 27 November 2025

*Institute of Advanced Composite Materials, Korea Institute of Science and Technology, Wanju 55324, Korea

**Aerospace Convergence Materials Center, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Jinju 52851, Korea

†Corresponding author (E-mail: moon.sookyoung@kist.re.kr)

적인 한계를 지니고 있으며, 이는 항공우주 및 극한 환경 구조재 적용에 중요한 제약으로 작용한다[1-4].

이를 개선하기 위해 탄소섬유 표면에 SiC 코팅을 형성하는 기술이 널리 연구되고 있다. SiC는 우수한 열충격 저항성, 화학적 안정성, 높은 열전도도 등의 특성을 갖고 있어 고온 열보호용 소재로 매력적이며, 탄소섬유 표면에 얇고 치밀한 SiC 층을 형성하면 산화 저항성을 크게 향상시킬 수 있다. 특히 CVR(Chemical Vapor Reaction) 공정은 공정 장비가 단순하고 반응 온도의 선택 폭이 넓으며, SiC 조성 및 미세구조 제어에 용이한 장점이 있다.

기존 연구에서는 CVR 조건(온도, 시간, 분위기)에 따른 SiC 성장 거동, SiO/SiC/C 반응 경로, 코팅 두께 및 조성 변화가 많이 연구되었으나, 실제로 SiC코팅층이 형성되는 메커니즘에 대한 규명은 미비하다[5-8]. 탄소섬유의 미세구조는 SiC 핵생성 밀도, 성장 방향성, 계면 접합 품질, 그리고 최종 열적 안정성에 직접적인 영향을 미칠 수 있음에도 불구하고, 기존 연구는 공정 변수 중심 접근이 대부분이었다.

이에 본 연구에서는 SiC 분말 기반 SiO-C 반응계를 이용한 CVR 공정을 적용하여 탄소섬유의 결정성이 SiC 핵생성 및 결정 성장, 코팅 치밀도 형성에 미치는 재료기반 메커니즘을 규명하고자 하였다. 다양한 열처리 조건에서 형성된 CF/SiC 복합섬유의 미세구조(SEM/TEM), 결정구조(XRD/SAED), 표면 화학상태(XPS), 그리고 고온 산화 안정성(TGA)을 체계적으로 분석하였다. 이를 통해 CF/SiC 복합섬유의 고온 열보호 성능 향상을 위한 미세구조-성능 상관관계를 규명하고 최적 설계 지침을 제시하고자 한다.

2. 실험

SiC 코팅 전구체는 기존 연구에서 확립된 방법을 바탕으로 합성하였으며[9], 에탄올, 물, HCl, APTES 및 TEOS를 이용해 혼합 용액을 제조한 후 60°C에서 24시간 교반하여 졸(sol)을 형성하였다. PAN계 탄소섬유는 합성된 졸 위에 적층하였고, Ar 분위기에서 승온 속도 5°C/min 조건으로 1200°C(30분), 이어서 1500°C(5시간) 열처리를 수행하였다.

미세구조는 FE-SEM(Verios 460), TEM(Tecnai G2 F20)으로 분석하였고, TEM 시편은 FIB(Helios 650)를 이용해 제작하였다. X-ray microscopy(XRM)를 통해 기공률 및 밀도를 확인하였으며, 결정구조는 XRD(SmartLab)를 통해 분석하였다. 표면 결합 상태는 XPS(Thermo Fisher)를 이용해 평가하였고, 열적 안정성은 TG-DSC(Labsys Evo)를 이용해 공기 분위기, 10°C/min 조건에서 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

CF표면에 SiC 코팅층의 형성과정을 고찰하기 위해 열처리 과정의 온도에서 SiC 코팅층의 미세구조를 분석하였

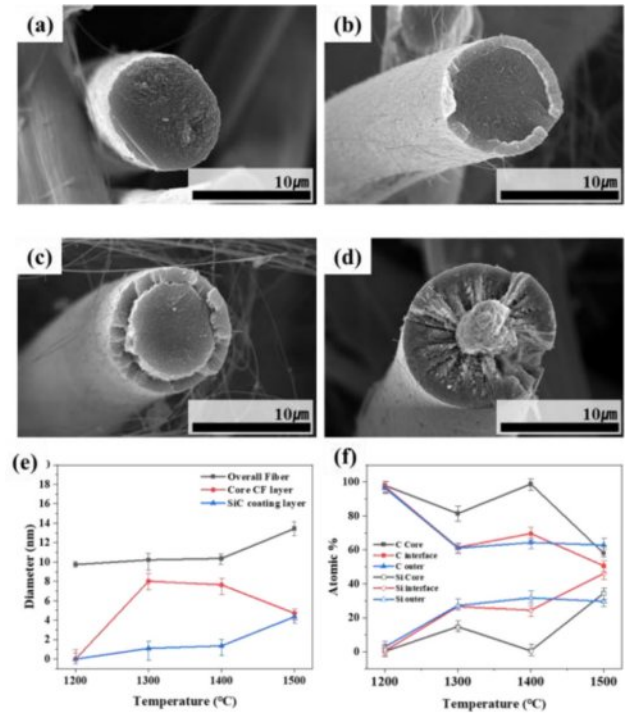
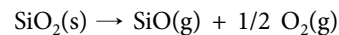


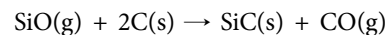
Fig. 1. SEM images of CF/SiC composite fiber with different reaction temperature; (a) 1200°C, (b) 1300°C, (c) 1400°C, and (d) 1500°C, (e) Diameter and thickness of coating layer, (f) EDS analysis

다. SiC 코팅 형성 거동을 규명하기 위해 1200–1500°C 범위에서 CVR 반응을 수행한 복합섬유의 미세구조를 분석하였다(Fig. 1). 반응 온도가 증가함에 따라 코팅층의 존재 여부, 조성, 치밀도, 결정구조가 뚜렷하게 변화하였으며, 이는 SiO-C 반응계의 열역학적 활성화와 직접적으로 연관된다.

1200°C에서는 SiC 코팅층이 관찰되지 않았으며, 이는 SiO₂의 열분해가 아직 충분히 일어나지 않아 SiO(g)의 생성량이 제한적이기 때문이다. SiO(g)는 SiC 핵생성과 성장에 필수적인 전구체이나, 다음 반응은 1200°C 부근에서 ΔG°가 양(+)으로 반응 자발성이 낮다.



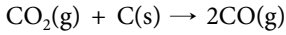
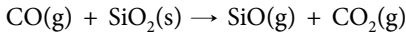
1300–1400°C에서는 SiO₂ 분해가 부분적으로 활성화되며, FE-SEM과 EDS 분석에서 초기 Si-O-C 기반 비정질 코팅이 확인되었다. 이 온도 영역에서 EDS 원자비(C/Si 비율)가 높게 나타난 것은 SiO 공급이 제한되어 있으며, 아래 반응이 부분적으로만 진행되기 때문이다.



특히 1300°C와 1400°C에서의 C/Si 조성 변화는 비정질 Si-O-C 종이 우세한 과도기적 단계임을 의미한다.

1500°C에서는 SiO₂ → SiO(g) 전환 반응의 ΔG°가 음(-)으로 전환되며 SiO 생성이 열역학적으로 우세해진다. 이에 따

라 SiO(g)가 풍부하게 공급되고, CF 표면과의 반응이 빠르게 진행되며 결정성 β -SiC의 핵생성과 성장이 본격적으로 일어난다. 이는 섬유 단면을 FE-SEM으로 측정한 결과, 코팅층이 약 1.3 μm 두께의 치밀한 SiC 결정층이 형성되었고, 최종적으로 약 4 μm 까지 증가하는 것으로 볼 때 autocatalytic cycle이 활성화되기 때문이다.



위 반응 루프는 SiO(g) 공급을 지속적으로 유지해 SiC 성장을 증가 및 코팅 치밀화를 유도한다.

또한 Fig. 1(e)에 나타난 바와 같이, SiC 코팅된 탄소섬유의 평균 직경은 반응 온도가 증가함에 따라 점진적으로 증가하는 경향을 보였다. 이는 주로 CVR 반응에서 생성된 SiO 기체가 고온 조건에서 더 높은 반응성을 가지며 섬유 표면으로 공급됨에 따라 SiC 코팅층이 외측으로 성장해 두께가 증가하기 때문이다. 아울러 탄소섬유 표면의 탄소가 SiO와 반응해 점진적으로 SiC로 치환되면서 표면 구조가 재구성되고, 초기 온도 영역에서 형성된 비정질 Si-O-C 중간상이 고온에서 결정질 β -SiC로 전환될 때 발생하는 미세한 체적 증가도 직경 확장에 기여한다. 여기에 β -SiC가 (111), (200) 등의 방향성을 갖고 외부로 성장하며 코팅층이 더욱 치밀해지는 현상, 그리고 온도 상승에 따른 미세기공 소멸과 재배열 과정에서 외층이 단단하게 형성되는 효과까지 복합적으로 작용하여 전체 섬유 외경이 증가하는 것으로 해석된다. 탄소섬유의 결정성은 SiC 코팅층의 형성과 품질에 직접적인 영향을 미친다. 일반적으로 결정성이 높은 탄소섬유는 결정격자가 더 정렬되어 있어 Si 침투 및 반응(예: $\text{C} + \text{Si} \rightarrow \text{SiC}$)이 균일하게 진행되므로, 코팅층 두께가 고르게 형성되고 기계적 결합이 적은 치밀한 SiC 층이 생성된다. 반대로 결정성이 낮은 탄소섬유는 비정질 영역과 결합이 많아 반응성이 높지만, 반응이 국부적으로 과도하게 진행되거나 미세공극이 발달해 SiC 코팅층이 불균일하게 성장하거나 박리 취약성이 증가할 수 있다. 따라서 탄소섬유의 결정성이 높을수록 SiC 코팅층의 균질성·접착력·내열성이 향상되는 경향이 있으며, 코팅 공정 최적화에서도 섬유의 결정 구조는 중요한 변수로 작용한다. 본 연구에서 사용된 탄소섬유는 PAN계 탄소섬유로 비교적 높은 결정화도를 가지고 있어 SiC코팅층의 두께가 고르게 형성되고, 구조적 결합이 적은 치밀한 SiC층을 형성한 것을 확인할 수 있다.

SiC와 CF 계면의 나노구조는 고분해능 TEM(HR-TEM)을 이용하여 관찰하였다(Fig. 2). TEM 및 SAED 분석 결과, 1500°C에서 형성된 SiC 코팅층과 CF 기지 사이에는 계면 결합이 없었으며 연속적 결합이 형성됨을 확인하였다. SAED 패턴에서는 β -SiC의 (111), (200) 결정면이 뚜렷하게 나타났으며, 이는 충분한 SiO 공급에 의해 결정 성장 방향성이 확립되었음을 의미한다.

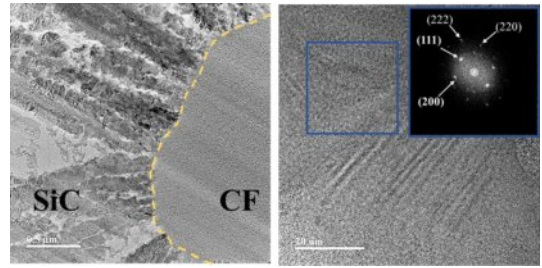


Fig. 2. TEM images and SAED pattern of prepared CF/SiC composite fiber

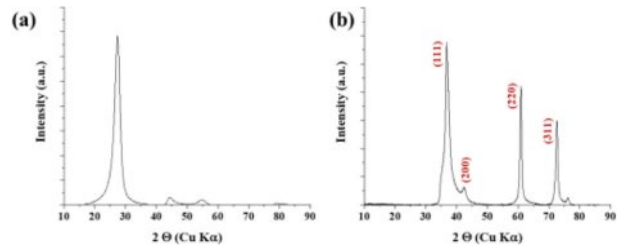


Fig. 3. XRD pattern of (a) carbon fiber and (b) CF/SiC composite fiber

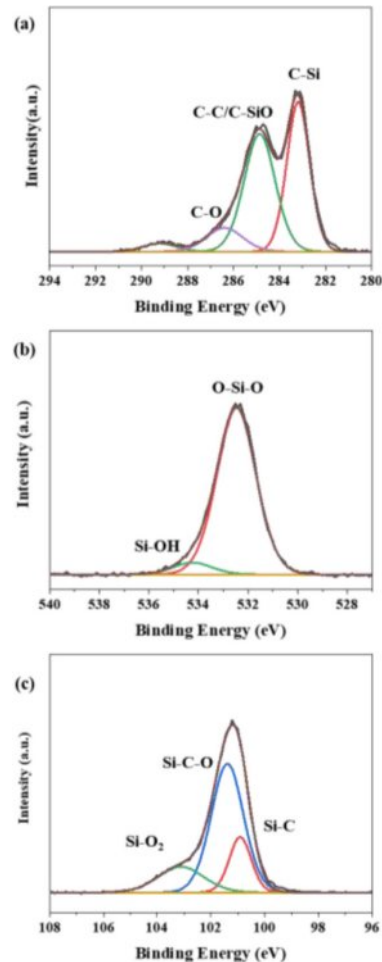


Fig. 4. XPS spectroscopy of CF/SiC composite fiber: (a) C1s, (b) O1s, and (c) Si2p

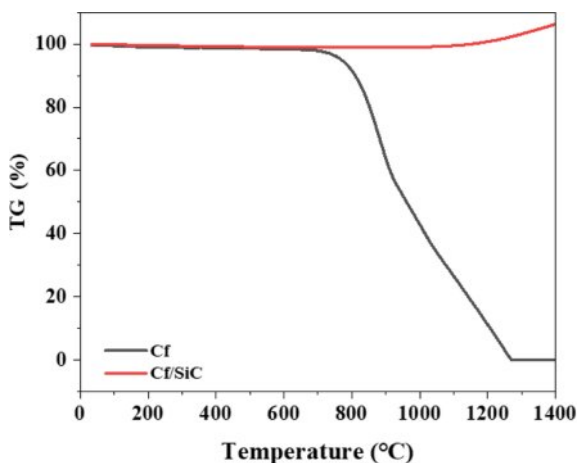


Fig. 5. TG of carbon fiber and CF/SiC composite fiber

합성된 CF/SiC 복합섬유의 결정구조는 XRD(PDF Card No.: 9008856)를 통해 분석하였다. CF의 (002) 피크는 반응 온도 증가에 따라 감소하였고, β -SiC의 주요 피크($35.74^\circ(111)$, $41.5^\circ(200)$, $60.14^\circ(220)$, $71.97^\circ(311)$)는 증가하였다. 이러한 결과는 CF 표면에서 탄소와 SiO_2 분해로 생성된 SiO가 반응하여 SiC 결정이 안정적으로 형성되었음을 보여준다. 이는 SAED에서 β -SiC (111) 및 (200) 면의 회절점이 뚜렷이 관찰된 것과 일치한다.

CF/SiC 복합섬유의 표면의 화학적 상태는 XPS 분석을 통해 확인하였다(Fig. 4). 피크는 Gaussian 피팅을 통해 분석되었으며, C1s 스펙트럼이 283.21, 284.4, 286.7 eV에서 각각 C-Si, C-C/C-Si-O, C-O, 결합에 해당하는 피크를 보였다. O1s 스펙트럼은 532.6, 534.2 eV에서 각각 O-Si-O, Si-OH 피크가 확인되었다. 또한 Si2p 스펙트럼에서는 100.9, 101.4, 103.2 eV에서 각각 Si-C, Si-C-O, O-Si-O 결합에 해당하는 피크가 나타났다. 반응 온도가 증가함에 따라 Si-C 피크의 강도는 점진적으로 증가하고 Si-O 기반 피크는 감소하였다. 이는 CF의 탄소 및 잔존 탄소가 산소와 반응하여 SiO를 형성하고, 생성된 SiO가 다시 CF 표면의 탄소와 반응해 SiC로 구조적으로 치환되는 SiO-C 반응 경로가 활성화되기 때문이다. 이러한 구조적 치환은 CF 표면에서 C-C 결합이 점차 Si-C 결합으로 대체되며 SiC 특유의 결합 구조가 형성되고 있음을 의미한다. 따라서 XPS 분석 결과는 SiC 코팅층이 온도 증가에 따라 더욱 치밀하고 결정성이 높은 형태로 성장하고 있음을 뒷받침한다.

산화 안정성은 TGA 분석을 통해 확인하였다. 탄소섬유는 약 650°C 부터 산화가 급격히 진행되어 1400°C 에서 완전 소실되었으나, CF/SiC 복합섬유는 약 1%의 중량 손실만 발생하였다. 이는 SiC 층이 산소 확산을 효과적으로 차단하며, 1300°C 이상에서 Si-O 기반 보호층이 추가적으로 형성되어 산화 반응을 저해하기 때문이다.

열처리 온도가 증가할수록 비정질 Si-O-C 종이 β -SiC 결

정으로 전환되며, 이 과정에서 탄소섬유의 결정성은 SiC 핵 생성 밀도 및 성장 방향성을 결정한다. 특히 1500°C 에서는 SiO-C 반응계의 열역학적 활성화가 극대화되어 치밀한 SiC 층이 형성되며, 이에 따라 CF/SiC 복합섬유의 고온 산화 저항성이 크게 향상된다.

4. 결 론

본 연구에서는 CVR 기반 SiC 코팅 공정을 통해 탄소섬유 표면에 치밀한 SiC 보호층을 형성하였으며, 탄소섬유 결정성이 SiC 형성-성장-결정화 과정에 미치는 영향을 규명하였다.

1) 1500°C 에서 안정적인 β -SiC 결정층이 형성되었으며, 계면 결함없이 CF-SiC 구조가 연속적으로 성장하였다.

2) XRD, XPS 및 TEM 분석을 통해 CF 구조가 SiC로 구조적 치환되는 반응 경로가 확인되었다.

3) 형성된 SiC 코팅층은 고온 산화에 대한 저항성을 획기적으로 향상시켰으며, TGA에서 1% 이하의 중량 손실을 보였다.

본 연구는 공정 변수 중심의 기존 연구에서 벗어나, 탄소섬유의 결정성이라는 재료적 요인을 중심으로 CVR 기반 SiC 형성 메커니즘을 규명하였다는 점에서 의의가 크다. 이는 항공우주 및 극한 환경 응용을 위한 고내열-경량 복합재 설계의 새로운 기반을 제공한다.

후 기

본 연구는 산업통상자원부 및 산업기술평가관리원의 산업기술혁신사업의(RS-2023-00257573)의 지원을 받아 수행되었습니다.

REFERENCES

- Wang, Y.Q., Zhou, B.L., and Wang, Z.M., "Oxidation protection of carbon fibers by coatings", *Carbon*, Vol. 33, 1995, pp. 427-433.
- Lindsay, B., Abel, M.L., and Watts, J.F., "A study of electrochemically treated PAN based carbon fibres by IGC and XPS", *Carbon*, Vol. 45, 2007, pp. 2433-2444.
- Wen, S., and Chung, D.D.L., "Effect of carbon fiber grade on the electrical behavior of carbon fiber reinforced cement", *Carbon*, Vol. 39, 2001, pp. 369-373.
- Frank, E., Steudle, L.M., and Ingildeev, D., et al., "Carbon fibers: Precursor systems, processing, structure, and properties," *Angew Chemie Int Ed.*, Vol. 53, 2014, pp. 5262-5298.
- Tkachenko, L.A., Shaulov, A.Y., and Berlin, A.A., "High-temperature protective coatings for carbon fibers," *Inorganic Materials*, Vol. 48, 2012, pp. 213-221.
- Prakash, J., Venugopalan, R., Paul, B., Bahadur, J., Ghosh, S.K., and Sathiyamoorthy, D., "Study of thermal degradation behavior of dense and nanostructured silicon carbide coated carbon

- fibers in oxidative environments,” *Corrosion Science*, Vol. 67, 2013, pp. 142–151.
7. Zeng, K., Ma, Q., and Gu, X., “Effects of SiC interfacial coating on mechanical properties of carbon fiber needled felt reinforced sol-derived Al_2O_3 composites,” *Trans Nonferrous Met Soc China*, Vol. 30, 2020, pp. 463–471.
8. Dai, K.W., Zhang, C.C., Ma, Q.S., and Liu, H.T., “Fabrication and properties of 3D-CF/mullite composites with SiC interfacial coatings,” *Advanced Materials Research*, Vol. 833, 2014, pp. 150–153.
9. Eo, S.B., Tak, W.S., Jeong, Y.K., Kim, W.S., and Moon, S.Y., “Oxidation resistance improvement of carbon fiber nonwoven fabrics,” *Ceramics International*, Vol. 49, 2023, pp. 30677–30684