

## 論文

## 섬유다발의 수지의 함침에 있어서의 압력의 영향에 관한 연구

김태욱\* · 전의진\* · 엄문광\*\* · 이우일\*\*\*

A Study on the Effect of Pressure on the Resin  
Impregnation of Fiber Bundles

Tae-Wook Kim\*, Eui-Jin Jun\*, Moon-Kwang Um\*\* and Woo Il Lee\*\*\*

## ABSTRACT

Impregnation of thermoplastic resin into continuous unidirectional fiber tows was investigated. The degree of impregnation, defined as the ratio between the number of impregnated fibers and the total number of fibers of a tow was modeled as a function of time, impregnation pressure, impregnation temperature and tow size assuming that the radial inward flow of resin through the fiber tow is governed by Darcy's law. The effect of the impregnation pressure on the permeability was also studied. Experiments were performed to evaluate the validity of the model. Toray T300 graphite fiber bundles and Poly-EtherEtherKetone(PEEK) resin were used. Pressure and temperature were applied to fiber tows surrounded with resin powder in a mold. After a predetermined time, the sample was taken out and the degree of impregnation was measured from the microphotographs of the cross-sections of samples. Experiments were performed for different impregnation conditions such as impregnation time, pressure, temperature and tow size. Good agreement was found between the model and the experimental data.

## 초 록

본 논문에서는 일방향 섬유다발 안으로 열가소성 수지가 함침되는 과정에 대하여 알아 보았다. 수지 함침도를 섬유다발 전체 가닥수에 대한 함침된 섬유 가닥수의 비로 정의하였는데 수지 함침도는 시간, 압력, 온도와 섬유다발 크기의 함수이다. 수지의 반경방향 유동은 Darcy's Law에 의해 지배된다고 가정할 수 있으며 섬유다발의 투과성(permeability)은 압력에 따라 달라지는데 Darcy's

\* 정회원, 한국기계연구소

\*\* 학생회원, 서울대학교

\*\*\* 정회원, 서울대학교

Law를 이용하여 함침도를 압력의 함수로 계산하였다. 이러한 이론 모델링의 정당성을 입증하기 위하여 Toray T300 섬유와 PEEK(poly Ether Ether Ketone) 수지를 사용하여 실험을 행하였다. 우선 금형에 섬유다발을 넣고 그 주위에 수지분말을 채운 후 온도와 압력을 가하고 일정 시간이 지난 후에 시편을 꺼내어 단면을 현미경 사진 촬영하여 수지 함침도를 측정하였으며, 여러 다른 시간, 압력, 온도와 섬유다발 크기 등의 공정조건에 대해서도 실험이 행해졌는데, 모델의 결과와 실험값이 잘 일치함을 알 수 있었다.

### I. 서 언

복합재료의 기지재료중 하나인 열가소성 수지는 열경화성 수지보다 많은 장점을 가지고 있는데, 예를 들면 반응(polymerization)이 완결된 상태이므로 화학반응에 시간이 필요없으며, 파괴 강도가 매우 높고, 저온에서 저장할 필요가 없으며, 공정후 모양 변화도 가능한 점 들이다. 그러나 반응이 완결되었으므로 점도가 매우 높아 공정상 여러가지 문제점을 안고 있다. PEEK와 같은 많은 결정성 열가소성 수지는 좋은 용매가 없어서 프리프레그를 만들 때 용액함침법(Solution dip method)을 사용할 수 없고 더우기 용융점이 분해온도에 가까워 공정온도를 높임으로써 점도를 낮추는 방법 또한 별 효과가 없으므로, 수지를 섬유다발 속으로 함침시키는 방법이 문제가 되고 있다.

압력을 가하지 않은 상태에서의 함침과정을 설명하는 모델을 Lee와 Springer[1]가 제안하였고 Coulter와 Güceri[2]는 압력이 섬유의 투과성(permeability)에 미치는 영향을 고려하지 않은 상태에서 Resin Transfer Molding(RTM)의 수지 모사를 행하였는데, 압력이 가해지면 투과성이 달라지므로 압력이 함침에 미치는 영향에 관한 연구가 필요하다. 따라서 본 논문에서는 섬유다발 안으로 열가소성 수지가 함침되는 과정에 있어서 압력의 영향을 모델링하고 실험에 의해 그 타당성을 알아보았다.

### II. 이 론

수지가 섬유다발에 함침될 때, 유동은 섬유다발을

원형으로 가정하면 반경방향 즉 섬유에 수직방향으로 일어나게 되는데 함침과정을 돕기 위하여 온도를 가능한 한 높게 하여 점도를 낮추고 압력도 가해지게 된다. 이상적인 경우 섬유가 완전히 닫고 서로 평행할 때 압력이 가해지면 섬유들이 안으로 뭉치게 되므로 수지가 통과할 공간이 없어지나, 실제로는 섬유가 완전히 닫지 않고 파형(wavy)이므로, 압력에 의해 섬유다발이 수축할 때 섬유가닥의 몇몇 부분에서 섬유들 사이에 접촉이 생기고 이러한 접촉점 사이에 생긴 공간을 통하여 수지가 통과할 수 있다. 그런데 압력이 커지면 섬유 사이의 공간이 적어지고, 섬유 사이의 공간은 수지유동에 있어서 저항의 척도인 투과성과 직접적인 관련이 있으므로, 투과성은 압력의 함수임을 알 수 있다.

수지의 반경방향 유동에 Darcy's Law를 적용할 수 있으므로 반경방향의 수지유동 속도는 다음과 같이 표시된다. 즉

$$V_r = - \frac{K}{\mu} \frac{dP}{dr} \dots\dots\dots (1)$$

인데, 여기서  $V_r$ 은 수지의 반경방향 속도,  $K$ 는 투과성,  $P$ 는 압력,  $\mu$ 는 수지의 점도,  $r$ 은 반경방향의 위치를 나타낸다(그림 1). 반경방향으로의 질량 유속식은 아래와 같다.

$$\dot{m} = \rho (-V_r) (2 \pi r) \varepsilon \dots\dots\dots (2)$$

여기서  $\rho$ 는 수지의 밀도,  $\varepsilon$ 은 섬유다발의 기공도이다. 식(1)과 (2)를 이용하여 다음 식을 얻을 수 있다.

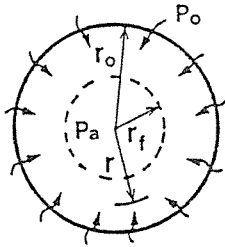


그림 1. 모델에서의 섬유다발의 기하학적 형상과 변수의 정의

$$\frac{\dot{m}}{2\pi\rho\varepsilon} \frac{dr}{r} = \frac{K}{\mu} dP \dots\dots\dots (3)$$

\$r=r\_o\$에서의 압력을 \$P\_o\$, 수지가 \$r=r\_f\$까지 진행하였다 할 때, 식(3)을 \$r\_o\$부터 \$r\_f\$까지 적분하면

$$\frac{\dot{m}}{2\pi\rho\varepsilon} \ln\left(\frac{r_f}{r_o}\right) = -\frac{K}{\mu}(P_o - P_a) \dots\dots\dots (4)$$

이 된다. 여기서 \$P\_a\$는 대기압이다.

질량 유속은 \$\frac{dr\_f}{dt}\$와 다음과 같은 관계가 있으므로

$$\dot{m} = 2\pi\rho r_f \varepsilon \left(-\frac{dr_f}{dt}\right) \dots\dots\dots (5)$$

식(4)와 (5)를 이용하여 아래와 같은 관계식을 얻을 수 있다.

$$r_f \ln\left(\frac{r_f}{r_o}\right) dr_f = \frac{K}{\mu}(P_o - P_a) dt \dots\dots\dots (6)$$

식(6)을 초기조건(\$r=r\_o\$ at \$t=0\$)에 대하여 적분하면 다음과 같다.

$$t = \frac{\mu r_o^2}{4K(P_o - P_a)} \left\{ 2\left(\frac{r_f}{r_o}\right)^2 \ln\left(\frac{r_f}{r_o}\right) + 1 - \left(\frac{r_f}{r_o}\right)^2 \right\} \dots\dots\dots (7)$$

수지 함침도 \$D\_{imp}\$는 전체 섬유 가닥수에 대한 함침된 섬유 가닥수의 비로 정의할 수 있는데 섬유들이 일정하게 분포되어 있다면 함침도는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$D_{imp} = \frac{\text{함침된 면적}}{\text{전체 면적}} = \frac{\pi r_o^2 - \pi r_f^2}{\pi r_o^2} = 1 - \left(\frac{r_f}{r_o}\right)^2 \dots\dots\dots (8)$$

식(8)을 식(7)에 대입하면 최종적으로 수지 함침도와 시간, 압력, 점도, 초기 섬유다발 반경과 투과성 등의 공정변수 간의 관계를 얻을 수 있다.

$$t = \frac{\mu r_o^2}{4K(P_o - P_a)} \left\{ 2(1 - D_{imp}) \ln \sqrt{(1 - D_{imp})} + D_{imp} \right\} \dots\dots\dots (9)$$

Gutowski[3]는 압력과 섬유다발의 섬유 체적비와의 관계를 규정하는식을 아래와 같이 제안하였다.

$$P_o - P_a = A \frac{(\sqrt{\frac{v}{v_o}} - 1)}{(\sqrt{\frac{v_a}{v}} - 1)^4} \dots\dots\dots (10)$$

여기서 \$v\$는 주어진 압력에 대한 체적비, \$v\_a\$는 최대 가능 체적비, \$v\_o\$는 압력이 가해지지 않은 상태에서의 초기 체적비이다.

일단 체적비가 알려지면 투과성은 Carman-Kozeny 식[4]에 의해

$$K = \frac{R^2 (1-v)^3}{4k_{11} v^2} \dots\dots\dots (11)$$

식(10)과 (11)을 이용하여 투과성을 압력의 함수로 구할 수 있는데, 여기서 \$R\$은 섬유가닥 하나의 반경이고, \$k\_{11}\$는 Carman-Kozeny 상수이다. Gutowski[3]는 식(11)을 실험값에 맞추어 탄소섬유에 대한 다음과 같은 \$k\_{11}\$의 값을 얻었다.

$$k_{11} = 17.9 \dots\dots\dots (12)$$

로 표현할 수 있으며 그림 2에 T300 탄소 섬유다발(6K)의 투과성이 압력의 함수로 나와 있다. 압력이 가해지면 섬유다발이 안으로 수축하여 초기 섬유다발 반경이 변하는데, 이러한 반경의 변화량, \$\Delta\_r\$을 기하학적으로 고찰하여 섬유 체적비의 함수로 나타낼 수 있다.

$$\Delta_r = r_o \left(1 - \sqrt{\frac{v_o}{v}}\right) \dots\dots\dots (13)$$

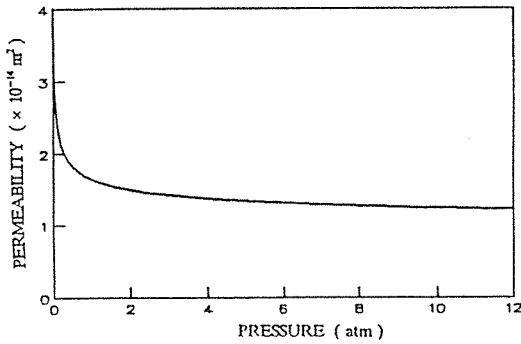


그림 2. 압력이 섬유다발의 투과성에 미치는 영향

따라서 식(9)는 다음과 같이 다시 쓸 수 있다.

$$t = \frac{\mu(r_o - \Delta_r)^2}{4K(P_o - P_a)} \{ 2(1 - D_{imp}) \ln \sqrt{1 - D_{imp}} + D_{imp} \} \dots\dots\dots (14)$$

여기서  $r_o$ 는 압력이 작용하지 않은 상태에서의 섬유다발의 반경이고  $\Delta_r$ 은 압력이 가해진 후의 반경의 변화량이다.

식(10)-(14)는 함침과정에서의 공정 변수들, 즉 압력, 온도, 섬유다발 크기와 시간 등과 수치 함침도 간의 관계를 나타내어 준다.

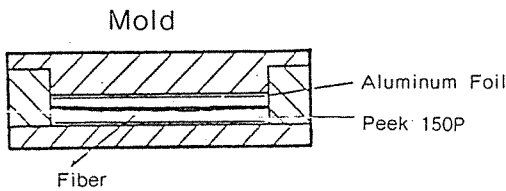


그림 3. 함침실험에 사용된 금형의 구조

### III. 실험

모델링의 타당성을 입증하기 위하여 Toray T 300 탄소 섬유다발(3K, 6K 와 12K)가 PEEK 150 P 수지를 이용하여 함침과정을 관찰하였다. 실험하

기 전에 섬유의 피복물질(sizing)을 제거하기 위하여 섬유다발을 MEK(Methyl Ethyl Ketone)에 24 시간 동안 담아 놓은 후 초음파 세척기 속에서 MEK로 30분 동안 씻고 80°C의 진공 건조기에서 두시간 가량 건조시켰다. 이와 같은 과정을 두번 거친 후에 니켈 도금된 강철로 만든 금형속에 섬유다발을 넣고 섬유다발을 PEEK 분말로 잘 둘러싸이게 한 후, 금형을 Hot Press 에 넣고 압력을 가하지 않은 상태에서 실험 온도까지 가열하여 10여분 동안 실험 온도에서 금형을 놓아 두었다. 금형이 열적 평형에 도달하면 압력을 가하여 실험 온도에서 일정한 시간이 경과한 후에 Hot Press 에서 금형을 꺼내어 상온까지 냉각시킨 후, 금형에서 함침된 섬유다발을 꺼내어 섬유방향과 수직방향으로 절단하여 광학현미경으로 단면을 조사하여, 함침된 섬유 가닥수를 세어 아래 식으로 함침도를 계산하였다.

$$D_{imp} = \frac{\text{함침된 섬유 가닥수}}{\text{전체 섬유 가닥수}} \dots\dots\dots (15)$$

이러한 실험과정을 각각 다른 압력(2atm, 4atm, 5atm, 10atm), 온도(370°C, 380°C, 390°C, 400°C), 섬유다발 크기(3K, 6K, 12K), 시간(5분, 10분, 20분, 30분)에 대하여 반복하였는데 그 실험 결과가 그림 4-7에 수록되어 있다.

실험값과 이론치를 비교하기 위하여 위의 실험조건에 대하여 식(10)-(14)로부터 함침도를 계산하였는데  $r_o$ 와 수지점도  $\mu$  에 대해서는 다음의 값과 식이 사용되었다.

$$r_o = 400 \mu\text{m for 6K tow} \dots\dots\dots (16)$$

$$\mu = 1.13 \times 10^{-10} \exp\left(\frac{19123}{T(K)}\right) \text{ Pa} \cdot \text{sec}$$

여기서 T는 절대온도이다.

초기 체적비  $v_o$ 는 0.5로, 최대 체적비  $v_a$ 는 0.69로 하였고 식(10)에서 상수 A의 값은 10atm, 20분, 370°C와 6K 섬유다발에서의 실험값을 만족하도록 하여 결정하였는데 A의 값은 다음과 같았다.

$$A = 4.4 \dots\dots\dots (17)$$

모델링에 의한 계산결과가 그림 4-7에 주어져 있

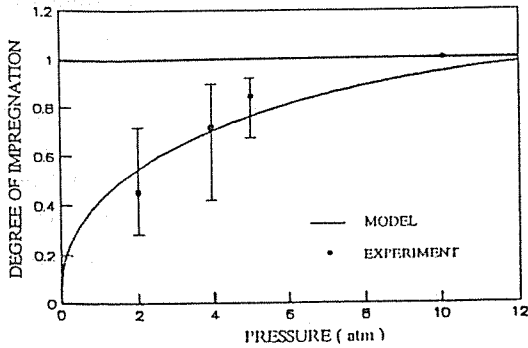


그림 4. 압력의 함수로 나타낸 수지 함침도.  
온도=370°C, 섬유다발 크기=6K 이고 함침시간=30분.

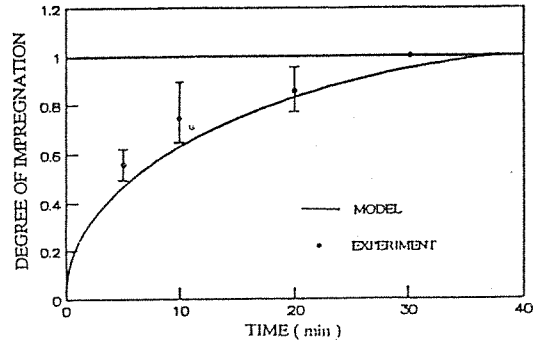


그림 7. 함침시간의 함수로 나타낸 수지 함침도.  
압력=10atm, 온도=370°C이고 섬유다발 크기=6K.

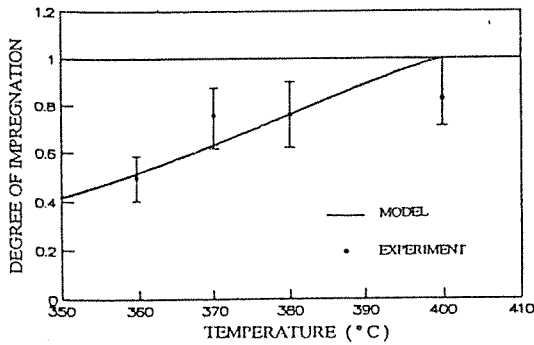


그림 5. 온도의 함수로 나타낸 수지 함침도.  
압력=10atm, 섬유다발 크기=6K 이고 함침시간=10분.

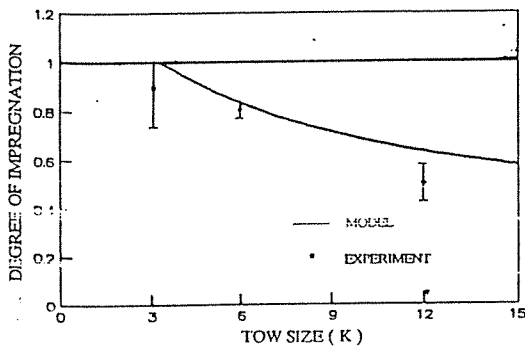


그림 6. 섬유다발 크기의 함수로 나타낸 수지 함침도.  
압력=10atm, 온도=370°C이고 함침시간=20분.

다. 그림 4-7에서 보는 바와 같이 실험값과 모델링에 의한 계산결과가 비교적 잘 일치함을 알 수 있었다.

#### IV. 결 론

위에서 제시한 모델로 압력과 기타 다른 공정 변수들이 함침과정에 미치는 영향을 예측할 수 있었다. 모델에서는 투과성이 섬유다발의 전 구간에서 같다고 가정하였는데 RTM에서처럼 수지가 통과하는 길이가 길어지면 이러한 가정은 타당하지 않을 수도 있으며, 그런 경우 투과성은 압력의 크기 뿐만 아니라 압력구배의 함수일 수도 있다.

실험을 통하여 모델에 의한 계산값과 실험값이 비교적 잘 일치하였으므로, 위의 모델이 열가소성 기지복합재료의 함침과정을 해석하는데 적합하며, 또 나아가서 열가소성 수지 복합재료의 성형공정을 최적화 하는데 이용할 수 있을 것이다.

#### 후 기

본 연구는 문교부 학술진흥재단 연구비 및 과학기술처 연구비의 지원을 받아 이루어졌습니다. 관계자들에게 감사드립니다.

## 참고문헌

1. Lee, W.I. and Springer, G.S., "A Model of the Manufacturing Process of Thermoplastic Matrix Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 21, pp.1017-1055, 1987.
  2. Coulter, J.P. and Güçeri, S.I., "Resin Impregnation During The Manufacturing of Thermoplastic Matrix Composite Materials," *ASTM Advanced Thermoplastics Conference*, Oct. 19-20, Bay Harvour, Fl, 1987.
  3. Gutowski, T.G., Z. Cai, S. Bauer and D. Boucher, "Consolidation Experiments for Laminated Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 21, pp.651 - 669, 1987.
  4. Greenkorn, R.A., *Flow Phenomena in Porous Media*, Marcel Dekker, 1983.
-