

복합재료와 성형공정

엄문광 · 이우일

Composite Materials and Their Manufacturing Processes

Moon-Kwang Eom and Woo-Il Lee



- 엄문광 (서울대 기계공학과)
- 1965년생
- 열가소성수지 복합재료의 생산공정에 대한 모델링을 연구하고 있다.



- 이우일 (서울대 기계공학과)
- 1954년생
- 복합재료 및 고분자 재료의 생산공정과 관련된 열 및 유동에 대한 문제들에 관심이 있다.

1. 머리말

기존의 금속재료는 오랜 기술 개발의 역사로 말미암아 생산성 향상이 둔화 추세에 있으며 업계의 욕구(기계적 물성 및 환경 조건)를 충족시키기에는 부족한 점이 없지 않다. 따라서 금속 재료가 가지고 있는 기술혁신의 한계(높은 밀도 및 부식에 기인), 제품생산에 필요한 높은 에너지 요구(표 1) 및 물성의 등방성을 개선하기 위하여 공업용 플라스틱(engineering plastics) 및 강화 플라스틱(reinforced plastics)의 사용량(그림 1)이 급증하고 있다.⁽¹⁾

특히 경량, 고강도 구조물들을 요구하는

우주, 항공 산업 분야의 욕구를 충족시킬 수 있는 고성능 복합재료(ACM : advanced composite materials)를 대상으로 한 연구가

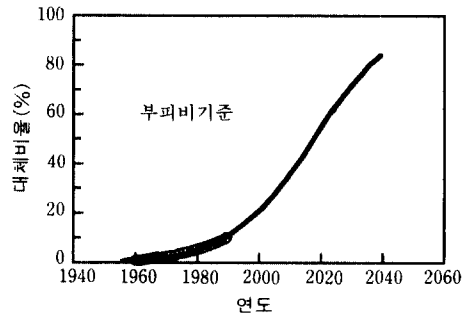


그림 1 고분자 및 복합재료의 금속재료 대체비율

표 2 항공기 경량화에 의한 비용 절감 효과

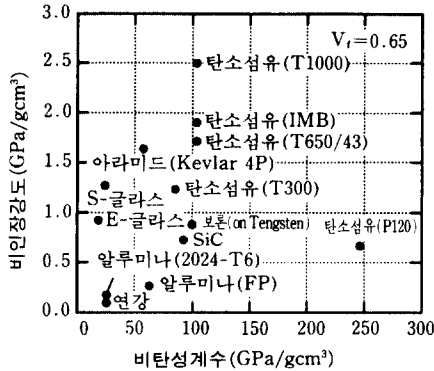
표 1 에너지 생산성(KWH/Lb, 원료 → 성형품)

종 류	원료	Scrap Factor	성형품
Carbon/Epoxy	15	1.5	33
철	16	5.0	100
알루미늄	22	7.0	178
타이타늄	86	7.0	700

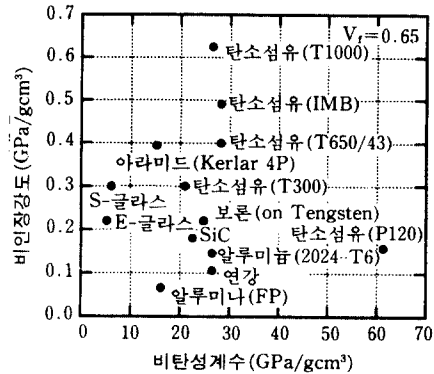
헬리콥터	\$ 300/lb
전투기	\$ 400/lb
상업용 항공기	\$ 800/lb
초음속 항공기	\$ 3,000/lb
궤도위성	\$ 6,000/lb
정지위성	\$ 20,000/lb
우주선	\$ 30,000/lb

현재까지 활발히 진행중에 있다. 참고로 항공기의 경량화를 통한 비용절감 효과는 표 2와 같다.⁽²⁾ 그림 2에 나타난 바와 같이 최소한의 무게로 높은 강도를 얻을 수 있는 복합

재료^(3,4)는 이외에도 긴 피로 수명 및 내식성, 전기절연성에서도 뛰어나고 제품이 일체화가 용이하며 생산자동화 및 생산단가 절감에도 유리하다.



(a) 일방향 섬유/에폭시 강화 복합재료



(b) 등방성 에폭시 복합재료

그림 2 복합재료와 금속재료의 비강도 및 비강성도 비교

표 3 여러 분야에서 복합재료의 응용예

강도, 강성, 경량에 기초한 응용	<ul style="list-style-type: none"> ○ 항공기의 표면 — 날개 제동판, 보조익, 승강타, 방향타 ○ 헬리콥터의 회전날개, ○ 항공기의 문과 착륙장치의 부품, ○ 이동 설치용 교각, 자동차의 구동축과 판스프링, ○ 자동차와 선박의 구조 지지부, ○ 운동기구 — 골프채, 라켓, 낚시대, 스키, 자전거대, 활 ○ 경주용차의 몸체 ○ 우주선, 로켓, 미사일, 고정밀 가공
열적 성질에 기초한 응용	<ul style="list-style-type: none"> ○ 미사일이나 로켓의 열 차단막, ○ 항공기 제동장치, ○ 항공기의 안테나(낮은 열팽창률 때문), ○ 우주관측대
화학적 안정성에 기초한 응용	<ul style="list-style-type: none"> ○ 저장 용기(특히 경량화가 요구되는 경우) ○ 원자핵 산업 — 우라늄 농축 원심 분리기
강성률 및 진동 특성에 기초한 응용	<ul style="list-style-type: none"> ○ 악기, 음향 스피커
전기 전도율에 기초한 응용	<ul style="list-style-type: none"> ○ 무선 주파수의 간섭 차단막(금속만큼 효과적이지는 못함), ○ 터치 스위치
생리학적 안정성과 X-ray 투과성에 기초한 응용	<ul style="list-style-type: none"> ○ 인공 관절, ○ 심장 판막 부품, ○ X-ray 기구
피로 저항성과 자체 윤활성에 기초한 응용	<ul style="list-style-type: none"> ○ 방직 기기 부품, ○ 공기 개폐 밸브, ○ 압축기 날개, ○ 의수·의족

표 3의 사용예⁽⁵⁾에서 보듯이 복합재료는 고성능을 요구하는 항공우주 분야 및 건설, 토목, 해양, 전기, 전자, 수송 등 사회 전 분야에서 수요가 창출되고 있으며⁽⁶⁾ 그림 3의 분야별 시장 점유율의 한 예에서 보듯이 구조 및 수송(자동차) 분야의 높은 비율은 기계공학자들에게 매우 고무적이다.

다른 기존의 재료와 마찬가지로 고분자 및 복합재료도 날로 사용량이 증가함에 따라 화학적 안정성이 환경오염의 주 요인으로 등장

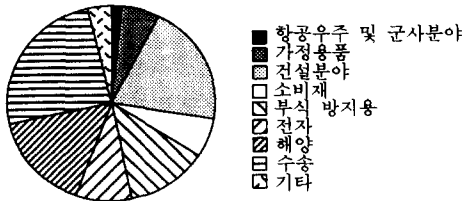


그림 3 분야별 시장 점유율(1991년)

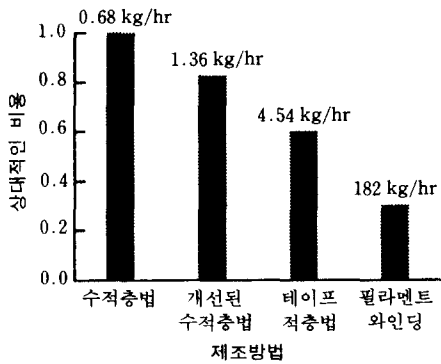


그림 4 Graphite/Epoxy 복합재료의 상대적인 생산비용

표 4 선진 각국들의 고분자 재활용 현황('91년)

지역	매립/기타 (%)	재활용/재사용 (%)	소각 (%)
미국	80	3	17
서부유럽	63	8	29
일본	23	12	65*

* 일본에서 소각되는 플라스틱의 25%는 발전용으로 쓰임.

하여 환경문제를 줄이기 위한 노력이 필요한 시점에 와있다.^(7,8) 표 4를 보면 고분자의 경우 현재까지도 선진 각국들조차 재사용/재활용이 미미한 상태이며, 앞으로 이에 대한 노력이 요구된다. 열가소성수지 복합재료는 특성상 최종 제품의 상 변화를 통한 수리 및 재사용이 가능하며 노화 및 수선이 힘든 제품은 분쇄하여 제품의 재생산에 사용이 가능하나 열경화성수지 복합재료의 경우, 재사용에 상당한 어려움이 따르며, 이를 위한 연구가 필요한 상태이다.

그림 4에 나타난 바와 같이 복합재료의 성형공정에는 열 및 압력이 수반되므로 열전달 및 유동 문제 등이 발생하며 재료의 다양성으로 인해 많은 실험이 요구되지만 적절한 공정 모델링 및 수치해석을 통하여 이러한 어려움을 극복하여야 하며 생산성 향상을 위해 공정 자동화⁽⁸⁾가 요구된다.

2. 복합재료의 종류

기지재료(matrix)와 보강재(reinforcement)의 혼합으로 이루어진 복합재료는 기지재료의 종류에 따라 금속 기지 복합재료(metal matrix composites), 세라믹 기지 복합재료(ceramic matrix composites) 및 고분자 기지 복합재료(polymer matrix composites)로 분류할 수 있는데 이글에서는 가장 많이 쓰이고 있는 고분자 기지 복합재료에 대해서 다루고자 한다. 보강재의 기하학적 형상에 따라서는 휘스커(whisker) 형태, 단섬유(short fiber) 형태, 연속섬유(continuous fiber) 형태로 분류할 수 있으며, 기계적 성능이 우선적일 경우(우주, 항공분야)는 연속섬유를, 생산성 및 가격이 우선적일 경우(자동차 및 일반 구조물분야)는 단섬유 형태를 많이 쓴다. 그리고 성능 및 가격을 기준으로 범용 및 고성능 복합재료(ACM)로 나눌 수 있는데 ACM에서는 주로 연속섬유가 많이 쓰인다.

보강 섬유로는 유리섬유를 비롯하여, 탄소 섬유(graphite fiber, 혹은 carbon fiber) kevlar 섬유, boron 섬유 및 ceramic계 섬유(silicon carbide 섬유, alumina 섬유 등)들이 주로 쓰인다. 보강섬유 중 그 사용량에 있어서는 범용 FRP 때문에 유리섬유가 으뜸이나, 고성능복합재료와 관계되어 가장 많이 쓰이는 것은 탄소섬유이다. 탄소섬유는 현재까지는 가격 때문에 주로 우주항공용 부품 및 고급 스포츠 용품 등에 국한, 사용되어왔으나 새로운 섬유 제조기법의 개발로 그 가격이 현저히 떨어질 것으로 기대되어, 자동차 산업 등 대 수요 시장으로의 응용이 보다 본격화될 전망이다.

보강섬유는 기지재료에 비해 열 및 화학적 안정성이 우수하므로 물리적, 화학적 변화를 수반하는 기지재료에 의해 공정 조건이 달라지게 되며 성형시 기지재료는 화학 반응 유무에 따라 열경화성수지(TS : thermosetting resin)와 열가소성 수지(TP : thermoplastic resin)로 나눌 수 있는데 대표적인 열경화성

수지로는 불포화 polyester, vinylester, epoxy, phenolic, polyimide 등이 있으며 ACM에서는 우수한 기계적 성질을 가지는 Epoxy가, 고온용으로는 polyimide(350°C까지 사용 가능)가 많이 쓰이며 범용으로는 불포화 polyester가 많이 쓰인다. 열가소성 수지에는 결정성(crystalline)의 nylon, polypropylene(PP), polyethylene(PE), polyphenylene sulphide(PPS), polyetheretherketone(PEEK) 등이 있으며, PP, PE는 범용에, PEEK, PPS 등은 ACM에 많이 쓰인다. 무정질(Amorphous)에는 polystyrene(PS), polymethylmethacrylate(PMMA), polyvinylchloride(PVC) 등이 있다.

표 5에 나타낸 바와 같이 열가소성수지는 열경화성수지에 비해 파괴인성 및 후가공성, 보관용이 및 환경문제 등 여러 측면에서 장점에 많아 차츰 각광받고 있으나 높은 성형 온도 및 낮은 유동성으로 인하여 성형상 많은 어려움이 있다.

보강재와 수지를 효율적으로 섞는 방법(합

표 5 열가소성 및 경화성 수지의 특성

	열경화성 기지재료	열가소성 기지재료
특 징	<ul style="list-style-type: none"> ○성형시 화학반응 수반 ○비가역 과정 ○낮은 점도/높은 유동성 ○긴 경화시간 ○끈끈한 prepreg 	<ul style="list-style-type: none"> ○화학반응이 수반되지 않음 ○후가공 가능 ○높은 점도/낮은 유동성 ○짧은 공정 주기 가능 ○딱딱한 prepreg
장 점	<ul style="list-style-type: none"> ○비교적 낮은 공정 온도 ○섬유 함침이 우수 ○복잡한 형상으로 성형 가능 ○낮은 점도 	<ul style="list-style-type: none"> ○열경화성 재료보다 우수한 인성 ○재사용 가능한 scrap ○폐 재료의 재성형 가능 ○빠르고 값싼 공정 ○냉장이 필요없이 장기보관 가능 ○층간 균열에 대한 높은 저항성
단 점	<ul style="list-style-type: none"> ○긴 공정 주기 ○저장이 불편(냉장) 	<ul style="list-style-type: none"> ○열경화성에 비해 화학 저항성 낮음 ○매우 높은 공정 온도 요구 ○생산 경험의 부족 ○열경화성 재료보다 적은 자료축적

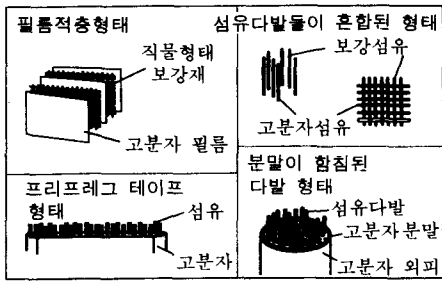


그림 5 열가소성 수지 복합재료 제조를 위한 중간재료

침방법)은 보강재가 연속섬유일 때 특히 중요한 문제이며 점도가 매우 높은 열가소성 수지가 기지재료일 경우 더욱 어렵게 된다. 이러한 문제를 해결하고, 제품의 품질 균일화 및 생산성 향상을 위하여 섬유와 수지가 미리 섞여 있는 테이프형태(prepreg라고 부름)로 만들어 사용하기기도 하는데 열가소성수지 복합재료의 경우는 함침성 증가 및 성형 시간 단축을 위하여 여러 형태의 prepreg가 개발되었다. (그림 5)

전술한 바와 같이 보통 보강섬유는 화학적, 물리적으로 안정되어 있어 공정 중에 전혀 변화가 없는 경우가 대부분이므로 공정 중 변화가 생기는 이들 수지의 특성은 복합재료의 제조공정의 선택 및 최적화에도 직접 연관이 되어 제조공정 중의 문제 해결 및 복합재료의 물성 향상을 위하여는 이들 수지의 열화학적 특성 및 유변학적 특성이 기계적 성질과 더불어 충분히 파악되어야 한다.

3. 복합재료 설계시 제반 문제점

복합재료는 많은 장점을 가지고 있지만 제품 설계의 어려움 또한 적지 않다. 미세구조 관점에서 보면 크게는 두 성분으로 이루어져 각각 다른 탄성계수, 강도 및 열팽창률을 가진 비균질(heterogeneous) 상태여서 물리적 구조적 성질은 그들의 부피분율, 기하학적

배열 및 경계면 특성에 따라 다르게 된다. 그래서 물성이 균질재료의 등방성 특성과는 달리 방향성을 가지게 된다. 따라서 복합재료 설계시는 사용재료, 적층방향 및 부피분율에 따른 성능도표를 참고하여야 하며, 온도, 습도 및 화학물질 등 환경에 대한 영향도 고려하여야 한다.

부분품 접합(joining)의 경우, 물성의 이방성으로 인하여 층간 전단 강도 및 두께방향 인장강도가 길이 방향에 비해 매우 작으므로 응력 집중이 쉬운, 접합부위에서 파괴가 쉽게 일어나 많은 어려움이 있으며, 금속재료와 같이 단순한 볼트결합을 할 경우라도 복잡한 파괴 양상으로 말미암아 결합강도의 예측이 쉽지 않다. 이러한 파괴거동은 보강재(reinforcement)의 종류나 형태(random mat, woven fabric, unidirectional), 기지재료(matrix)의 종류, 복합 재료내 함유 비율 및 결합 부위 형상, 부하의 방향 및 종류 등에 따라 다르며 금속재료에 비해 매우 복잡하다.^(4,9)

압축강도도 인장강도에 비해서 대체로 50% 정도이거나 그 이하이며 파괴시의 변형률 또한 인장보다는 압축 하중이 걸릴 때 낮아서 설계시 제품의 응력 분포 해석이 필수적이다. 압축에 의한 재료의 파괴 또한 복합적인 요인(보강재 및 기지재료 각각의 압축 강도 및 이들 간의 계면 접착력, 내부의 기포 등)에 의한 것으로 압축강도 향상을 위한 연구가 필요하며,⁽¹⁰⁾ 보다 정확한 강도 측정 방법에 대한 연구 또한 시급한 실정이다.

또한 복합 재료 제조시 및 사용시 형성되는 여러 형태의 손상과 온도변화에 따른 잔류응력에 의한 성능의 저하 등도 고려하여야 한다.⁽⁴⁾ 충격 손상의 경우 충격 에너지의 양, 충격 주파수 크기, 검사 및 수선 여부, 잔류 강도 등이 연구의 주관심사이다.

이 글에서는 전술한 설계시의 제반 문제점들과 밀접한 연관이 있는 성형공정 위주로 기술하고자 한다.

4. 성형공정과 문제점

최초에 분리 상태로 존재하던 기지재료와 보강 섬유를 균일하게 혼합된 고상으로 만들기 위해서는 기지재료의 섬유다발 내로의 압력에 의한 유동(함침, impregnation) 및 열에 의한 상변화(열경화성 수지: 경화 반응, 열가소성 수지: 용해 및 응고)가 수반된다. 발열 반응인 경화 과정은 수지의 화학반응에 기인하며 이 화학반응의 정도는 시간과 온도의 함수로 모델링^(11,12)할 수 있는데 경화 정도에 따라 다른 물성을 나타낸다. 열가소성 수지의 발열은 응고 잠열에 의한 것(결정성 수지의 경우)으로 결정화도(crystallinity)⁽¹³⁻¹⁵⁾에 따라 물성의 변화가 생긴다. 복합재료는 두 재료가 섞여 있는 상태이므로 성형시 열전달 해석에 필요한 밀도와 비열은 재료의 혼합비율로 결정할 수 있으며,⁽¹⁶⁾ 열전달 계수는 기하학적 배열을 고려하여 계산할 수 있다.^(17,18)

열경화성 수지 복합재료의 성형시 수지 점도는 경화 반응이 진행됨에 따라 증가하므로 원하는 제품의 생산을 위한 최적 경화 사이클(cure cycle: 공정시 가하여 주는 온도 및 압력을 시간에 따라 표시한 것) 결정은 제품의 질과 생산비 절감을 위해 매우 중요한데 실험에 의존하던 것을 탈피하여 많은 모델링⁽¹⁹⁻²⁴⁾이 시도되었고 컴퓨터를 이용하여 복합재 내부의 온도 및 경화도 분포 및 수지 유동을 비교적 정확하게 계산할 수 있게 되었다.

열가소성 수지 복합재료는 ACM의 경우 주로 프리프레그(prepreg)를 적당히 재단하여 적층한 후 금형에 집어넣어 온도를 수지의 용점 이상으로 올리고 압력을 가한 상태에서 일정 시간 지속시킨 후 적당한 냉각률로 냉각시켜 만들게 되는데, 수지가 이미 함침되어 있는 프리프레그를 사용하지 않을 경우는 수지의 함침도 공정의 한 단계로서 고려되어야 한다. 수지의 함침은 프리프레그

제조시 혹은 막바로 수지와 보강섬유를 적당히 섞어 온도와 압력을 가해 성형을 할 경우 수지의 낮은 유동성(점도 100~10,000 Pa·sec)으로 인하여 문제가 된다. 또 함침을 촉진시키기 위하여 압력을 가하였을 경우 수지의 유동은 다공성 매질을 침투하는 유체의 유동⁽²⁴⁾으로 생각할 수 있는데 이때에는 가압으로 인한 섬유 다발의 압착도 고려하여야 한다.⁽²⁵⁾

고성능 복합재료(ACM)와 범용 복합재료의 제조 공정 상의 두드러진 차이점은 그 성능 및 가격외에도 성형공정에도 있다. 즉 ACM의 경우 효율의 극대화를 위하여 주로 프리프레그를 사용하므로 제조 공정중 보강 섬유는 제자리에 있고 수지만 유동하게 되거나, 혹은 수지의 유동이 매우 적게 된다. 범용 복합재료의 경우에는 보통 공정시간의 감축 및 제조원가 절감 등의 이유로 수지와 보강섬유의 혼합물이 같이 유동하게 되므로 수지/보강섬유 혼합물의 유변학적 특성 및 유동으로 섬유 배열 방향의 예측 및 조절 등이 중요한 문제가 된다.

복합재료 성형시 온도 변화는 필수적인데, 이로 인해 제품에 국부적인 온도차가 생기므로 열경화성 수지는 경화도(degree of cure)의 차이, 열가소성 수지는 결정화도(crystallinity)의 국부적인 차이가 난다. 이와 함께 원래 복합소재가 가진 재료 물성의 방향성으로 인하여 온도변화를 겪으면서 재료는 위치에 따라 다른 팽창 및 수축 이력을 가지게 된다. 따라서 재료가 열변형을 하거나 잔류응력이 존재하게 되어 물성의 저하를 유발시키므로 제품 생산시나 사용시 균일하게 열응력을 받도록 온도 제어를 하거나 열부하가 큰 곳을 미리 강화하여야 한다.

다음에 현재 많이 사용되고 있는 주요한 제조방법들과 문제점을 열거하여 보았다.

4.1 대량생산에 적합한 공정

범용 분야에서의 수요 충족을 위해서는 아

직도 기존 금속 재료에 비해서 비교적 높은 생산단가를 낮추는 것이 급선무이다. 이러한 관점에서 대량생산 기술에 많은 관심이 기울여지고 있다.

4.1.1 압축성형(Compression Molding, Matched Die Molding)

표면이 잘 가공된 압, 수의 금형 사이에 주로 열경화성 수지와 보강섬유의 혼합물을 넣고 금형의 온도를 올리고 프레스를 이용, 압력을 가해 성형하는 방법으로 자동차 부품 생산분야에 많이 쓰이고 있다. 압축성형시에는 금형을 채우기 위하여 보강섬유와 기지재료의 혼합물이 많이 움직이고, 또 화학반응이 유기되므로 유동과 열전달이 문제가 된다. 유동은 자유표면이 존재하는 경우이며, 이 해석에 있어서는 보강섬유/수지 혼합물의 유변학적 특성 및 온도 및 경화도 변화에 따른 점도 변화를 고려하여 열전달과 유동을 서로 연계하여 해석하고 있다.^(26~28) 압축성형에서 보강재의 비율이 높거나, 서로 얽혀 있는 연속섬유형태의 보강재를 사용할 때는 보강섬유와 수지의 분리에 의한 섬유함유율의 불균일화 및 금형 표면에서의 미끄러짐 등(No-Slip이 아닐 경우)이 문제가 된다.^(28,29) 이와 함께 전열면의 균일한 온도 분포를 위한 냉각관 배열의 최적화 등도 주된 연구 대상이다.^(30,31)

압축성형을 열가소성 수지 복합재료의 제조에 적용시킨 방법(그림 6)으로 열간성형법(thermoforming)이 있다. 이 성형법에서는 미리 판상의 보강섬유/수지의 혼합물을 가열하여 부드럽게 만든 후 금형에 집어넣고 금형 사이에서 압력을 가하며 냉각시켜 원하는 모양을 만들어낸다.^(32~34) 열가소성 수지는 화학반응이 더 이상 필요치 않으므로 화학반응을 유발시켜주어야 하는 열경화성 수지의 압축성형에 비하여 공정시간이 1/3 가량 짧아져 생산성이 많이 높아지게 된다.

대량생산에 적합한 열간성형법 용 열가소

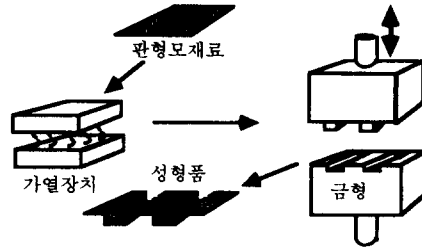
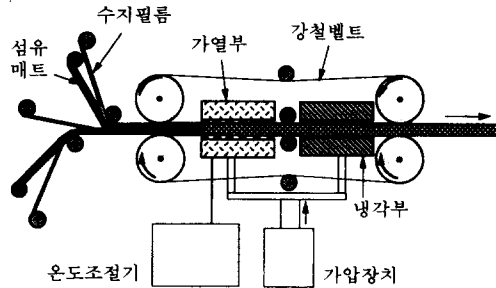
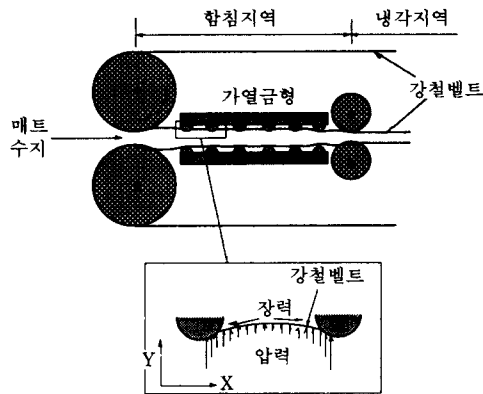


그림 6 열간성형법의 개략도



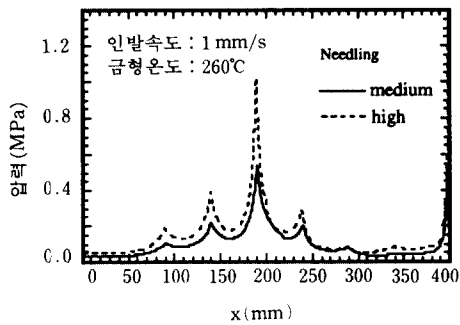
(a) 더블 벨트 프레스 공정의 개략도



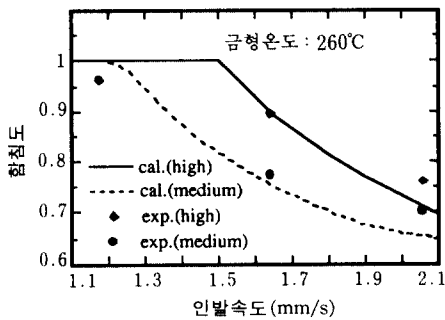
(b) 합침 부위의 개략도

그림 7 더블 벨트 프레스 공정

성 수지 복합재료 생산의 중간재료로 많이 쓰이고 있는 장섬유 강화 열가소성 수지 판재 생산에 적합한 대표적인 공정에는 double belt press 공정(그림 7)과 slurry(섬유+수지분말+물) deposition 공정이 있다. 이중 slurry deposition 공정은 slurry를 만들기 위해서 수지 분쇄 및 혼합이 필요하고 공정 전



(a) 벨트 위치에 따른 압력 분포



(b) 인발 속도에 따른 함침도

그림 8 더블 벨트 프레스 공정에서 압력분포 및 함침도

에 수분을 제거하여야 하는 단점이 있어 보다 손쉬운 double belt press법이 많이 이용되고 있다. 공정에는 불규칙 배열 섬유 매트(random mat) 형태의 보강재가 주로 쓰이는데 이들의 함침 정도를 계산하기 위해서는 투과성 계수, 압력에 의한 매트 변형정도, 수지 점도 및 double belt의 변형에 의해 유도되는 생성 압력 등을 측정하여야 한다.^(35,36) 측정된 물성과 생성 압력으로부터 다공성 매질내의 유체 유동식인 Darcy's Law를 이용하여 수지의 매질 내로의 전진 정도(함침도)를 계산할 수 있다. (그림 8)⁽³⁷⁾

4.1.2 펄트루전(Pultrusion)

열경화성 수지의 경우는 섬유에 수지를 묻혀 긴 다이(die)를 통해 뽑아내어 제품을 만들고 열가소성 수지의 경우는 필라멘트 와인

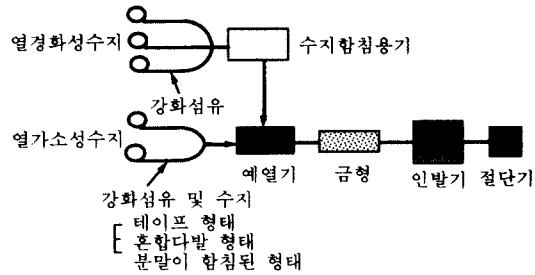
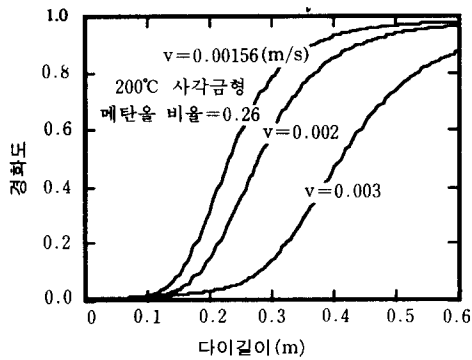


그림 9 펄트루전 공정의 개략도

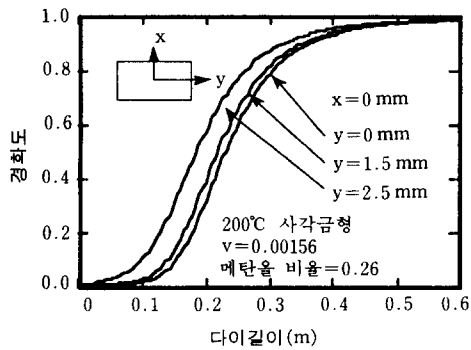
딩(filament winding) 공정에서와 같은 프리프레그(그림 5)를 사용하여 일정단면을 갖는 제품을 생산하는 공정이다(그림 9). 이 방법으로 앵글(angle), 튜브(tube) 등의 구조재를 연속적으로 만들어낼 수 있으며, 많은 복합재료 제조공정이 배치 공정(batch process)임에 반해 펄트루전은 연속공정이라는 점이 특이하며, 열경화성 수지의 경우 뽑아내는 속도에 따라 다르나 복합재료가 다이 안에 머무는 시간이 짧으므로 다이 안에서 경화반응(그림 10)에 의한 온도분포가 매우 중요하고, 열가소성 수지의 경우는 높은 점도에 비해 압력 유지 시간이 짧으므로 충분한 함침이 이루어지기가 쉽지 않다.⁽³⁷⁾ 함침을 최대로 하고 인발력을 최소로 하며 제품 표면을 매끄럽게 하기 위해서는, 금형의 적절한 설계, 보강섬유의 적절한 배치, 예열기 설계 및 인발기의 설계가 중요하다. 보통 펄트루전에서는 다이의 길이가 다이의 단면에 비해 훨씬 길며 따라서 온도분포는 다음의 식으로부터 구할 수 있다.^(38,39)

$$\rho c U \frac{\partial T}{\partial x} = \nabla \cdot (k \nabla T) + u''' \quad (1)$$

여기서, U 는 잡아당기는 속도(pulling speed)이며, u''' 는 화학반응에 의한 발열량이거나 응고잠열이다. 펄트루전에서 온도분포 못지 않게 중요한 인자는 잡아당기는 힘(pulling force; 그림 11)인데 이는 수지의 경화도와 밀접한 관련이 있다. 수지의 화학반응에 의한 고화점(gel point) 이전에는 점



(a) 인발속도에 따른 경화도 분포



(b) 제품위치에 따른 경화도 분포

그림 10 펄프루전 공정에서 경화도의 한 예

성에 의한 항력과 금형 표면에서의 마찰력이 힘 발생의 주요인이고 고화점 이후에는 고화된 재료와 금형간의 고체 마찰이 주가 된다. 점성 항력은 금형 입구의 단면적이 줄어들음에 의한 수지 유동으로 생기고, 균일 단면적 부분에서는 온도상승에 의한 체적 열팽창으로 인하여 섬유와 금형간의 마찰에 의해 항력이 생기며, 고화점 이후에는 온도에 의한 체적 팽창 및 경화에 의한 수축이 복합적으로 고체 마찰 항력으로 나타난다.⁽⁴⁰⁾

펄프루전은 주로 열경화성 수지 복합재료에 적용되었으나 최근들어 열가소성 수지 복합재료에도 본격적으로 적용되고 있다.⁽⁴¹⁻⁴³⁾

4.2 고품질 제품 생산에 적합한 공정

지금까지는 주로 열경화성 수지 복합재료

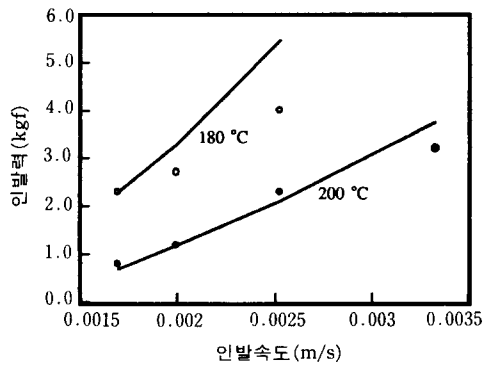
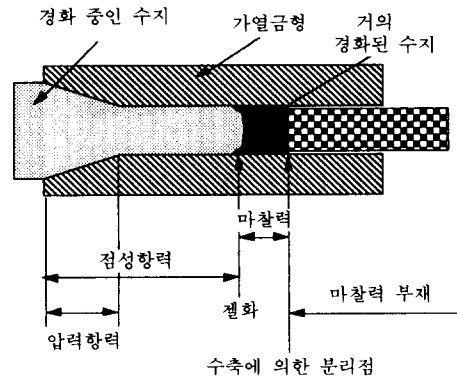


그림 11 펄프루전 공정에서 작용력의 종류 및 인발력의 예

의 제조공법 중심으로 성형공법이 개발되었으나 파괴인성(fracture toughness), 후가공성 및 보수유지의 취약점을 극복하기 위하여 열가소성 수지 복합재료의 성형공법 개발로 연구의 방향이 바뀌고 있다.

4.2.1 Bag Molding

이 방법에는 vacuum bag molding, pressure bag molding, autoclave molding 등이 있는데 보강섬유와 수지의 혼합물을 밀폐된 bag으로 싼 다음 bag 안에 진공을 걸거나(vacuum bag molding), bag 바깥쪽에 압력을 가하거나(pressure bag molding), bag 안에는 진공을 걸고 bag 바깥에는 압력을 가하는(autoclave molding) 방법이다. 이 방법은 다이를 비교적 쉽게 제작할 수 있고 진

공을 걸 경우 수지에 함유된 휘발성 물질을 제거할 수 있다는 장점은 있으나, 대량생산에는 적합하지 못한 단점도 가지고 있다. 이 중 autoclave molding은 우주항공용 등 고성능 복합재료(ACM) 부품 제조용으로 가장 많이 쓰이는 방법이다. Autoclave molding에서의 주된 관심사는 적층판 내부의 온도 및 경화도 예측과, 수지 유동, 기공함유율(void content) 및 잔류응력의 예측 등이며 이들에 대한 연구가 활발히 진행되어 왔다. (11,12,16,21,44~46)

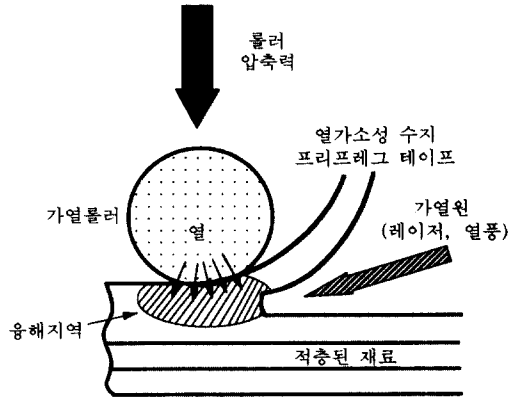


그림 12 테이프 적층 공정의 개략도

4.2.2 테이프 적층(T/L : Tape Layup)

열가소성수지 프리프레그(그림 5)를 이용하여 주로 판형의 복합재료를 성형하는 공법(그림 12)으로 이미 함침이 되어 있는 가닥을 녹여 적층함으로써 제품을 생산하게 된다. 이 공정은 프리프레그 테이프 접합을 위한 기본공정으로 필라멘트 와인딩 공정에도 연구결과를 이용할 수 있다. 열원으로는 레이저 및 고온의 열풍 등이 사용된다. 이 때 층간의 완전한 접합이 이루어지려면 적절한 온도 및 압력이 일정 시간 유지되어야 하므로 이러한 조건이 충족되도록 할 수 있는 열원의 세기 등과 국부적으로 심한 온도차에 의한 열 변형을 줄이는 것이 주 관심사이며 수치해석과 실험을 병행하여 최적조건을 찾아내려는 연구들이 진행 중이다. (47,48)

4.2.3 필라멘트 와인딩(F/W : Filament Winding)

F/W은 축대칭 등 다양한 형상의 부품을 만드는데 사용되는데(그림 13), 성형중 섬유 다발의 접착경로가 제한적이며 성형 후 맨드렐(mandrel) 처리를 고려하여야 한다. 대체로 제품표면이 매끄럽지 못하고 두께 방향으로의 섬유체적률이 일정하지 않은 단점이 있다. 열경화성 수지의 경우는 함침이 용이하므로 연속 보강섬유를 직접 수지 용기 속으로 통과시켜 맨드렐 위에 감거나(wet winding), 얇은 프리프레그 테이프를 감는 방법(dry winding)이 있다. 로켓 모터 케이스, 압력용기 등이 이 방법으로 만들어지는

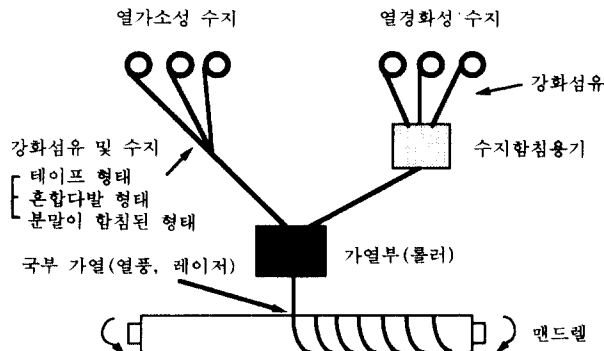


그림 13 필라멘트 와인딩 공정의 개략도

데 이 경우는 섬유의 올바른 배치, 섬유에 가해질 장력 및 경화시에 유기되는 온도분포 및 그에 따른 잔류응력 등이 중요한 연구과제이며, (19) 열가소성 수지 복합재료의 경우에는 T/L 공정을 확대칭 제품에 적용한 것으로 로봇을 이용한 다축 제어를 통하여 접합 경로를 따라서 적층하게 된다. (49-51)

4.2.4 Resin Transfer Molding(RTM)

금형 내에 보강재를 미리 위치시켜 놓고 외부에서 압력을 가해 수지를 함침시킨 후 경화시켜 제품을 생산하는 방법이다(그림 14). 이 방법은 수적층법을 대체할 수 있는데, 수적층법에 비하여 생산성이 높고 기계적 성질이 우수한 제품을 얻을 수 있다. 다른 복합재료 성형법에 비해 장치 및 설비비가 저렴하고, 복잡한 형상의 대형 부품을 쉽게 성형할 수 있으며 보강재의 양과 방향성을 조절하여 제품의 기계적인 성질을 향상시킬 수 있는 등의 장점을 가지고 있어 최근 크게 각광받는 성형법이다. 수지로는 점도가 비교적 낮은(0.1~1 Pa·sec) 열경화성 수지를 주로 사용하며, 일반적으로 경화를 촉진시키기 위해 수지와 경화제를 약 100:1의 비율로 혼합하여 사용한다. 보강재로는 주로 직물 형태(fabric)나 불규칙 배열 섬유매트(random chopped mat)의 형태를 많이 쓰는

데 이 경우 금형 형상에 적합하도록 직조하거나 결합제(binder)를 사용하여 프리폼(preform)을 제조하여야 하며, 금형내 수지 유동 예측을 위하여 프리폼의 투과성 계수도 실험으로 측정하여야 한다. 이 공정은 자동차의 내외장 부품이나 의료기구, 저장탱크, 배관용 부품 등 여러 분야에 적용되고 있다.

RTM공정의 생산성을 좌우하는 중요한 과정은 수지의 주입과 경화과정인데 수지의 주입에서는 주입 위치, 압력, 온도, 점도, 유동속도 등이 고려되어야 하며, 기포형성, 불완전한 함침, 프리폼의 변형 등을 방지할 수 있도록 주입조건을 결정하여야 한다. 경화과정에 있어서는 경화진행에 따른 점도의 변화와 유동의 상관관계를 고려하여야 하며, 압력과 온도를 조절하여 빠른 경화와 유동을 동시에 얻을 수 있도록 최적화하여야 한다.

섬유다발 내 수지의 유동은 다공성 매질내에서의 수지유동으로 가정하여 질량보존식을 이용하여 수지유동을 모델링하면 아래와 같다.

$$\nabla \cdot \bar{u} = \nabla \cdot \left(-\frac{K}{\mu} \nabla p \right) = 0 \quad (2)$$

여기서, \bar{u} 는 다공성 매질내에서의 수지 유동 속이고, K 는 프리폼의 투과성 텐서(permeability tensor), μ 는 수지의 점도이다. 수지의 점도는 온도와 경화도에 따라 변

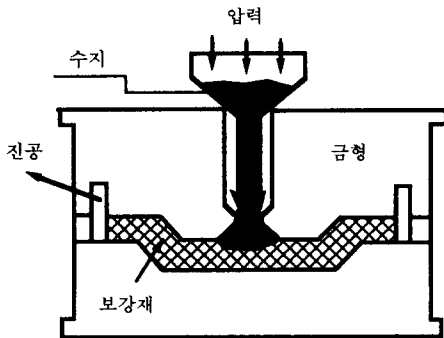


그림 14 RTM 공정의 개략도

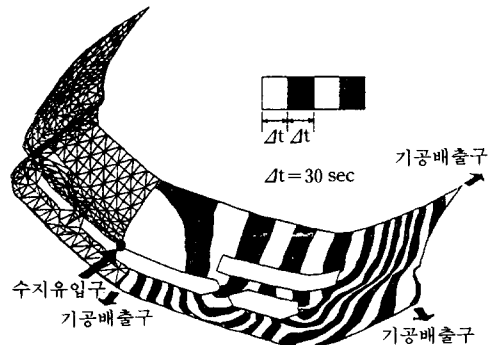


그림 15 RTM이 적용된 자동차 앞 범퍼의 수지 충전 과정

화하므로 정확한 점도를 구하기 위해서는 에너지 방정식 및 경화반응식을 풀어야 한다.

일반적으로 수지 주입에 소요되는 시간이 짧으므로 주입 도중에 경화 반응이 그다지 많이 진행되지 않으며 온도와 점도가 일정하므로 에너지 방정식 및 경화반응식을 제외하고 등은 유동으로 단순화하여 압력에 대한 라플라스 방정식(Laplace equation)을 풀기도 한다. RTM에 있어서는 금형충전 과정이 주된 관심사(그림 15)⁽⁵²⁾이며, 보강재를(비등방성) 다공성 매질로 생각할 때, 지배방정식 등은 사출성형의 경우와 거의 같다. RTM에서의 금형충전 과정은 수치 및 실험에 의한 방법으로 많은 연구가 진행되고 있다.^(53~58)

이상에 설명한 방법들 외에 제품의 형상 및 보강재/수지의 성질에 따라 여러가지 다른 방법들을 사용할 수 있다.

최근에는 복합재료를 항공기 등의 주 구조물(primary structure), 잠수함 등에도 사용하려는 시도들이 활발하며, 이에 따라 복합재료 구조물의 두께가 두꺼운 것이 요구된다. 열경화성 수지 복합재료에서는 화학 반응에 따른 발열로 인하여 성형중 내부의 온도가 지나치게 올라가면 좋은 제품을 만들 수가 없는데 이를 피하기 위하여 cure cycle을 미리 정해 주지 않고 성형공정 중의 부품 온도 등을 입력받아 컴퓨터를 이용, 미리 정해진 적절한 규칙에 의해 온도를 제어하려는 시도들도 있다.⁽⁵⁹⁾ 열가소성 수지 복합재료의 경우는 수지함침이 매우 힘들므로 낮은 압력에서 빠른 함침이 가능한 중간재료의 대량 생산 기술 개발에 관심이 집중되고 있다.

5. 맺음말

이상에서 설명한 바와 같이 복합재료는 원자재의 특성에 따라 성형 공정이 각각 다르다. 생산단가 절감을 위하여 최적 공정 및 자동화가 가장 큰 관심의 대상이므로 공정의 모델링과 이에 의거해 컴퓨터를 이용한 수치

해석들이 많이 이루어지고 있으며 이 결과를 제조 공정의 최적화에 이용할 경우 비용이 많이 들고 시간이 오래 걸리는 실험에 의한 방법을 많이 대체할 수 있어 새로운 기지재료가 소개되었을 경우, 제조 공정의 결정에 있어 시간과 비용을 대폭 절감시킬 수 있다. 앞으로 소재의 기능화, 경량화 추세에 힘입어 복합재료의 수요는 계속 늘어날 전망이어서 환경문제에 대한 관심도 소홀히 할 수 없으며, 기존의 재료 성형 공정과는 비교적 색다른 성형 공정의 개발에도 관심을 가져야 할 것이다.

참고문헌

- (1) Dhingra, A. K. and Doherty, T. P., 1993, "Future Trends in Advanced Fibers and Composite Materials Technology," *Advanced Composites '93 International Conference on Advanced Composite Materials*, pp. 29~34.
- (2) Niu, M. C. Y., 1992, *Composite Airframe Structures*, Conmilit Press.
- (3) Schwartz, M. M., 1984, *Composite Materials Handbook*, McGraw-Hill Book Co..
- (4) ASM, 1987, *Engineered Materials Handbook Vol. 1 Composites*, ASME International.
- (5) Strong, A. B., 1989, *Fundamentals of Composites Manufacturing*, Society of Manufacturing Engineers.
- (6) Mallick, P. K. and Newman, S., 1990, *Composite Materials Technology*, Hanser.
- (7) Ehrig, R. J., 1992, *Plastics Recycling*, Hanser.
- (8) Barley, K., "Waste Minimization, Recycling and Reuse of Pultruded Reinforced Plastics," *Proceedings of the SPI Composites Institute's 47th Annual Conference EXPO '92, Session 4-A*, pp. 1~4.

- (9) Tsai, S. W., 1988, *Composites Design*, Think Composites.
- (10) Carlsson, L. A., 1991, *Thermoplastic Composite Materials*, Composite Materials Series Vol. 7, Elsevier.
- (11) Lee, W. I., Loos, A. C. and Springer, G. S., 1982, "Heat of Reaction, Degree of Cure, and Viscosity of Hercules 3501-6 Resin," *Journal of Composite Materials*, Vol. 16, pp. 510~520.
- (12) Dusi, M. R., Lee, W. I., Ciriscioli, P. R. and Springer, G. S., 1987, "Cure Kinetics and Viscosity of Fiberite 976 Resin," *Journal of Composite Materials*, Vol. 21, pp. 243~261.
- (13) Ozawa, T., 1971, "Kinetics of Non-Isothermal Crystallization," *Polymer*, Vol. 12, pp. 150~158.
- (14) Kamal, M. R. and Chu, E., 1983, "Isothermal and Nonisothermal Crystallization of Polyethylene," *Polymer Engineering and Science*, Vol. 23, pp. 27~31.
- (15) Velisaris, C. N. and Seferis, J. C., 1986, "Crystallization Kinetics of Polyetheretherketone (PEEK) Matrices," *Polymer Engineering and Science*, Vol. 26, pp. 1574~1581.
- (16) Loos, A. C. and Springer, G. S., 1983, "Curing of Epoxy Matrix Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 17, pp. 135~169.
- (17) Springer, G. S. and Tsai, S. W., 1967, "Thermal Conductivities of Unidirectional Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 1, pp. 166~173.
- (18) McCullough, R. L., 1984, "Generalized Combining Rules for Predicting Transport Properties of Composite Materials," *CCM Report*, Center for Composite Materials, University of Delaware.
- (19) Calius, E. P. and Springer, G. S., 1985, "Modeling of Filament Winding of Composites," *Proceedings of the Fifth International Conference on Composite Materials*, The Metallurgical Society, pp. 1071~1088.
- (20) Lee, W. I. and Springer, G. S., 1984, "Microwave Curing of Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 18, pp. 387~409.
- (21) Springer, G. S., 1988, "The Role of Models in Manufacturing Thermosetting and Thermoplastic Matrix Composites," in *the Manufacturing Science of Composites*, Proceedings of Manufacturing International '88, Gutowsky, T. G., Editor, The American Society of Mechanical Engineers.
- (22) Batch, G. L. and Macosko, C. W., 1988, "Pultrusion Modeling," in *the Manufacturing Science of Composites*, Proceedings of Manufacturing International '88, Gutowsky, T. G., Editor, The American Society of Mechanical Engineers.
- (23) Muzzy, J. D., 1988, "Processing of Advanced Thermoplastic Composites," in *the Manufacturing Science of Composites*, Proceedings of Manufacturing International '88, Gutowsky, T. G., Editor, The American Society of Mechanical Engineers.
- (24) Lee, W. I. and Springer, G. S., 1987, "A Model of the Manufacturing Process of Thermoplastic Matrix Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 21, pp. 1017~1055.
- (25) Kim, T. W., Jun, E. J., Um, M. K. and Lee, W. I., 1989, "Effect of Pressure on the Impregnation of Thermoplastic Resin into an Unidirectional Fiber Bundle," *Advances in Polymer Technology*, Vol. 9,

- pp. 275~279.
- (26) Barone, M. R. and Caulk, D. A., 1988, "Mechanics of Compression Molding," in *the Manufacturing Science of Composites*, Proceedings of Manufacturing International '88, Gutowski, T. G., Editor, The American Society of Mechanical Engineers.
- (27) Kim, J., Fan, J. D., Im, Y. -T. and Lee, L. J., 1989, "Compression Molding of Sheet Molding Compound (SMC) in Molds with Substructures," Presented at the Fifth Annual Meeting, Polymer Processing Society, Kyoto, Japan.
- (28) Hojo, H., Yaguchi, H., Onodera, T. and Kim, E. G., 1988, "Simulation of Compression Molding with Matrix-Fiber Separation and Fiber Orientation for Long Fiber-Reinforced Thermoplastics," *International Polymer Processing*, Vol. 3, pp. 54~61.
- (29) 장수학, 김석호, 김이곤, 1989, "장섬유강화 플라스틱복합판의 압축성형에 관한 연구(제5보, 금형-재료 계면의 미끄럼을 고려한 경우의 유동해석," 대한기계학회 '89년도 춘계학술대회 초록집, pp. 369~372.
- (30) Barone, M. R. and Caulk, D. A., 1982, "Optimal Arrangement of Holes in a Two-Dimensional Heat Conductor by a Special Boundary Integral Method," *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, Vol. 18, pp. 675~685.
- (31) Kwon, T. H. and Forcucci, S. J., 1989, "Optimal Heating System Design for Compression Molds," *Polymer Engineering and Science*, Vol. 29, pp. 1027~1038.
- (32) Throne, J. L., 1987, *Thermoforming*, Hanser Publishers.
- (33) 김석호, 백남주, 김이곤, 1990, "장섬유강화 열가소성 고분자 복합판의 비등온 압축성형에 있어서 섬유함유율 분포의 예측," 대한기계학회논문집, Vol. 14, pp. 393~398.
- (34) Hylton, D., 1991, "Laboratory Techniques for Predicting Material Thermoformability: A Review," Society of Plastics Engineers, INC. Technical Papers, Vol. 37, pp. 580~583.
- (35) Van West, B. P., Pipes, R. B. and Advani, S. G., 1991, "The Consolidation of Commingled Thermoplastic Fabrics," *Polymer Composites*, Vol. 12, No. 6, pp. 417~427.
- (36) Bigg, D. M., 1992, "Processing Characteristics of Thermoplastic Sheet Composites," *Intern. Polymer Processing VII*, Vol. 2, pp. 172~185.
- (37) 정충식, 1994, "Thermoforming용 복합재료판의 연속함침에 관한 연구," 공학석사 학위논문, 서울대학교.
- (38) Walsh, S. M. and Charmchi, M., 1988, "Heat Transfer Characteristics of a Pultrusion Process," *Proceedings of 1988 National Heat Transfer Conference*, The American Society of Mechanical Engineers, pp. 23~28.
- (39) Batch, G. L., 1989, *Crosslinking Free Radical Kinetics and the Pultrusion Processing of Composites*, Ph. D. Thesis, University of Minnesota.
- (40) 진근하, 1993, "열경화성 수지를 이용한 Pultrusion공정에서의 경화도 및 당기는 힘 해석," 공학석사 학위논문, 서울대학교.
- (41) Larock, J. A., Hahn, H. T. and Evans, D. J., 1989, "Pultrusion Processes for Thermoplastic Composites," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, Vol. 2, pp. 216~228.
- (42) Lee, W. I., Springer, G. S. and Smith, F.

- N., 1991, "Pultrusion of Thermoplastics-A Model," *Journal of Composite Materials*, Vol. 25, pp. 1632~1652.
- (43) Åström, B. T., 1992, "Development and Application of a Process Model for Thermoplastic Pultrusion," in the *3rd SICOMP Conference on Manufacturing and Design of Composites*, Piteå, Sweden, 19~20 May.
- (44) Springer, G. S., 1982, "Resin Flow During the Cure of Fiber Reinforced Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 16, pp. 400~410.
- (45) Gutowski, T. G., Morigaki, T. and Cai, Z., 1987, "The Consolidation of Laminate Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 21, pp. 172~188.
- (46) Gutowski, Cai, Z., Bauer, S., Boucher, D., Kingery J. and Wineman, S., 1987, "Consolidation Experiments for Laminate Composites," *Journal of Composite Materials*, Vol. 21, pp. 650~669.
- (47) Nejhad, M. N. G., Cope, R. D. and Güceri, S. I., 1991, "Thermal Analysis of in-situ Thermoplastic Composite Tape Laying," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, Vol. 4, pp. 20~45.
- (48) Nejhad, M. N. G., 1993, "Issues Related to Processability during the Manufacture of Thermoplastic Composites Using On-Line Consolidation Techniques," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, Vol. 6, pp. 130~146.
- (49) Brage, A. and Lamrell, C., 1988, "Heat Flow Analysis in Connection with Thermoplastic Filament Winding," *SAMPE Quarterly*, Vol. 19, pp. 31~35.
- (50) Buijs, J. A. H. M. and Nederveen, P. J., 1992, "A Study of Consolidation in Filament Winding with Thermoplastic Prepregs," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, Vol. 5, pp. 276~287.
- (51) Agarwal, V., Güceri, S. I., McCullough, R. L. and Schultz, J. M., 1992, "Thermal Characterization of the Laser-Assisted Consolidation Process," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, Vol. 5, pp. 115~135.
- (52) 강문구, 1993, "가열 금형을 이용한 Resin Transfer Molding에서의 수지 유동 및 경화에 관한 연구," 공학석사 학위논문, 서울대학교.
- (53) Coulter, J. P. and Güceri, S. I., 1988, "Resin Impregnation During the Manufacturing of Composite Materials," *CCM Report No. 88~07*, Center for Composite Materials, University of Delaware.
- (54) Bruschke, M. V. and Advani, S. G., 1990, "A Finite Element/Control Volume Approach to Mold Filling in Anisotropic Porous Media," *Polymer Composites*, Vol. 11, No. 6, pp. 393~405.
- (55) Um, M. K. and Lee, W. I., 1991, "A Study on the Mold Filling Process in Resin Transfer Molding," *Polymer Engineering and Science*, Vol. 31, No. 11, pp. 765~771.
- (56) Trevino, L., Rupel, K., Young, W. B., Liou, M. J. and Lee, L. J., 1991, "Analysis of Resin Injection Molding in Molds with Preplaced Fiber Mats. I: Permeability and Compressibility Measurements," *Polymer Composites*, Vol. 12, No. 1, pp. 20~29.
- (57) Young, W. B., Rupel, K., Han, K., Lee, L. J. and Liou, M. J., 1991, "Analysis of Resin Injection Molding in Molds with Preplaced Fiber Mats. II: Numerical Simulation and Experiments of Mold Filling," *Polymer Composites*, Vol. 12, No. 1, pp. 30~38.
- (58) Chan, A. W. and Hwang, S., 1992,

- "Modeling Resin Transfer Molding of Axisymmetric Composite Parts," *Journal of Materials Processing & Manufacturing Science*, Vol. 1, pp. 105~118.
- (59) Ciriscioli, P. R., Springer, G. S. and Lee, W. I., 1991, "An Expert System for Autoclave Curing of Composites," Submitted to the *Journal of Composite Materials*, Vol. 25, pp. 1542~1587. ■■