

탄소섬유 복합재료의 고속액상성형 공정기술

High Speed Liquid Molding Process of Carbon Fiber Reinforced Composites

성동기 | Dong Gi Seong

Department of Polymer Science and Engineering, Pusan National University,
2 Busandaehak-ro 63beon-gil, Geumjeong-gu, Busan 46241, Korea
E-mail: dgseong@pusan.ac.kr

1. 서론

소재의 경량화는 많은 산업에서 필수적으로 추구하는 기술 개발의 방향이라고 할 수 있는데, 특히 자동차와 같은 수송기기 산업에서는 그 중요성이 더 크다고 할 수 있다. 자동차 산업에서 소재의 경량화는 크게 두 가지 측면에서 그 필요성이 강조되고 있다. 첫째, 전통적인 내연기관 자동차에서는 전세계적인 환경오염 규제 정책으로 인하여 연비 개선과 이산화탄소 배출량 감소 등을 목적으로 경량화 소재 적용을 통한 차체의 경량화가 지속적으로 추진되고 있다. 둘째, 대표적인 미래 자동차로 꼽히는 전기 자동차 등에서는 기존의 자동차에 비해 전기 모터, 배터리 등의 추가 부품으로 인한 중량 증가분을 상쇄하기 위하여 기존에 금속으로 제작되는 구조재를 비롯한 차체 부품들을 경량화 소재로 대체하는 것도 필수적인 기술 개발 항목으로 꼽히고 있다.

고분자 재료는 낮은 밀도, 우수한 가공성 및 원가 경쟁력으로 인하여 대표적인 경량화 소재로 활용되고 있지만, 그 자체로는 철 등의 금속 재료와 같은 수준의 기계적 물성을 구현하기 어려우므로 자동차에서 큰 중량을 차지하는 구조용 부품에는 적용되지 못하고 내장재 등 비구조용 부품으로 제한된 활용을 하고 있는 실정이다. 섬유강화 고분자 복합재료는 금속 재료와 동등 수준 이상의 기계적 성능을 가지면서 낮은 밀도로 인하여 큰 경량화 효과를 나타내므로 가장 효과적인 경량화 소재로서의 위상을 가지고 있다. 특히, 탄소섬유 복합재료는 철 대비 50% 내외의 경량화가 가능하여 유럽의 선진 자동차 업체를 중심으로 적극적으로 채용되고 있는 등 관련된 소재 및 공정 기술이 빠른 속도로 개발되고 있다.^{1,2}

탄소섬유 복합재료는 뛰어난 기계적 강도와 강성을 지니고 있는 경량화 소재로서 항공기, 스포츠 레저 용품 등에서 많이 사용되고 있지만, 탄소섬유를 비롯한 소재 원가와 공정 비용이 높아서 자동차 부품과 같은 대량 생산이 필요한 산업에 적용하는 데에는 어려움이 따른다. 특히, 직물 형태의 연속섬유강화 복합재료를 제작할 때 사용하는 중간재인 프리프레그(prepreg)의 높은 가격과 오토클레이브 성형(autoclave molding), 열성형(thermoforming) 공정의 긴 시간 등으로 인하여 자동차용 부품의 대량 생산체계 구축에 불리한 점을 가지고 있다. 따라서 열경화성 수지가 직물에 미리 함침되어 있는 프리프레그를 사용하는 대신에 건조 상태의 직물을 금형에 넣고 액상의 열경화성 수지를 직접 사출하여 제작하는 복합재료 액상성형 공정은 자동차용 복합재료의 대량 생산을 위한 가장 효율적인 공정 중 하나이며, 특히 수지와 경화제 혼합과 사출에 높은 압력을 이용하여 탄소

Author



성동기

1999	서울대학교 섬유고분자공학과 (학사)
2001	서울대학교 재료공학부 (석사)
2006	서울대학교 재료공학부 (박사)
2006-2012	삼성전자 책임연구원
2012-2017	한국기계연구원부설 재료연구소 선임연구원
2017-현재	부산대학교 고분자공학과 조교수

섬유 직물과 사용하여 수지 주입시간을 줄이고 고속 경화형에 폭시 수지를 사용하여 경화 시간을 획기적으로 단축한 HP-RTM(high pressure resin transfer molding) 공정은 가장 많은 관심을 받으며 발전하고 있는 기술이다.³

본 특집에서는 자동차용 탄소섬유 복합재료의 대량 생산을 위한 가장 중요한 공정 중 하나인 복합재료 고속 액상성형 공정에 관한 이슈를 살펴 보고 이를 해결하고 발전시키기 위한 기술에 관하여 논의하고자 한다. 특히, 높은 소재 및 공정 원가를 절감하고 생산 속도를 증가하기 위하여 높은 수준의 공정 수율을 달성하는 것은 필수적이며 이를 위하여 공정 세부 단계별로 발생하는 주요 불량을 분석하고 이를 예측하고 해결할 수 있는 방법을 제시하는 형태의 기술 개발이 매우 중요하다. 세부적으로는 공정 각 단계에서 발생하는 변형의 가장 큰 원인 중 하나인 탄소섬유의 불규칙한 변형을 분석하고 이를 예측하기 위한 기술을 소개하고 해결을 위한 방안을 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 탄소섬유 복합재료 고속액상성형 공정

탄소섬유 직물과 액체 상태의 열경화성 수지를 원소재로 하여 다양한 형상의 탄소섬유 복합재료를 제작할 수 있는 액상성형(liquid composite molding 또는 resin transfer molding) 공정은 다음의 그림 1과 같이 구성되어 있다.

여러 단계의 단위 공정으로 구성되어 있는데, 특히 2차원의 탄소섬유 직물에 소량의 바인더 물질을 도포한 후 압축하여 형태 안정성을 가지는 3차원 직물 형상의 프리폼(preform)으로 만드는 프리포밍(preforming) 공정과 프리폼을 금형 내부에 적층한 후 액상의 수지를 사출하는 수지 주입(resin impregnation) 공정이 주요 공정이라고 할 수 있다.

첫째, 프리포밍 공정은 바인더가 함유된 2차원 형상의 탄

소섬유 직물에 열을 가하면서 압축하여 형상을 만드는 일종의 열성형(thermoforming) 공정으로서 이 과정에서 섬유 직물은 3차원의 최종 제품과 동일한 형상으로 변화하게 되는데 모서리 부분과 같이 변형량이 크고 응력이 집중되는 부위에서는 섬유의 주름, 절단 등과 같은 원하지 않는 변형이 나타날 수 있으며, 이는 최종 제품의 불량으로 이어진다.

둘째, 섬유 프리폼을 금형에 적층한 후 높은 압력으로 수지를 주입하게 되면 여전히 유연성을 가지고 있는 프리폼이 수지의 유동 외력에 의해 미끄러지거나(slip) 주름(wrinkle) 등이 발생할 수 있고, 이 또한 경화 공정을 거치게 되면 고착화되어 최종 복합재료 부품의 불량을 유발하게 된다.

위와 같은 원인으로 발생한 섬유의 불규칙한 변형은 복합재료의 최종 물성의 불균일성이나 저하를 유발하게 되고 섬유 패턴이 육안으로 보이는 제품에서는 외관 불량으로 판정되게 되어 복합재료 제조공정의 수율을 떨어뜨리는 중요한 원인이 된다. 따라서 두 가지 주요 단위공정에서 섬유 변형을 유발하는 메커니즘을 이해하고 이를 예측할 수 있는 기술을 적용하여 불량 발생을 방지하는 연구에 관하여 살펴 보도록 하겠다.

2.2 프리포밍 공정

탄소섬유 복합재료의 프리포밍 공정에서 발생하는 섬유 변형인 드레이핑(draping)을 해석하기 위해서는 탄소섬유 직물의 열압축성형 과정에서 응력과 변형의 관계를 수치 해석을 통해 계산해야 하고, 이를 위하여 공정이 진행되는 온도에서 나타날 수 있는 다양한 종류의 변형(전단, 인장, 굴곡 등)에서 탄소섬유 직물의 응력-변형 거동을 측정하여 정량화하는 과정이 필요하다. 특히 평직, 주자직 등의 직조 구조를 많이 사용하는 직물의 프리포밍 공정에서 가장 지배적인 변형은 전단 변형이다. 전단 변형은 직물 간의 전단(inter-ply shear) 변형과 직물 내의 전단(intra-ply shear) 변형으로 구분할 수 있는데, 전자는 주로 직물 간의 마찰력에 의해 발생하고 후자는 직물의 직조 구조에 따라 서로 다른 거동이 나타나는 특징이 있다.

프리포밍 공정에서 가장 주된 변형인 직물 내의 전단 거동을 평가하는 방법으로는 picture frame test와 bias extension test가 있는데, 각각의 평가에 관한 개념도를 그림 2(참고문헌 5)에 나타내었다.⁵ Picture frame test는 직물을 전단 변형이 자유롭게 일어날 수 있는 마름모형의 프레임 내에 고정시킨 후 프레임의 변형과 동시에 일어나는 직물의 전단 거동을 측정하는 방법이고, bias extension test는 1:2의 비율로 절단한 직물을 별도의 프레임 없이 전단 변형의 방향으로 인장력을 가하여 전단 거동을 측정하는 방법이다. 특히 이러한 섬유 변형 거동의 평가는 실제 열성형 공정이 진행되는 고온 환경을 모사한 열챔버 내에서 이루어져야 한다.

Resin Transfer Molding – Process Cycle

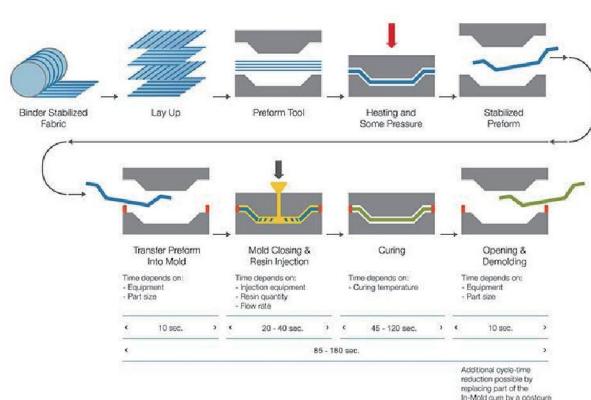


그림 1. 복합재료 액상성형 공정 개략도.⁴

Bias extension test를 이용하여 평직(plain woven) 탄소섬유 직물의 전단 변형을 측정한 결과의 예시를 그림 3에서 보여주고 있다. 변형량이 증가함에 따라 응력-변형률 관계가 비선형 거동을 보임을 확인할 수 있으며, 이러한 비선형 거동이 열성형 해석(thermoforming simulation)에 반영되어야 프리포밍 공정 해석의 정확도가 개선될 것이다.

이와 같은 탄소섬유 프리폼의 비선형 거동을 반영하여 자동차용 부품에 많이 사용되는 형상인 사각컵 모양의 복합재료를 제작하기 위한 열성형 공정 해석 결과의 예시를 그림 4에서 보여 주고 있다. 최외곽층인 평직 탄소섬유의 전단각을 살펴 보면 네 모서리 부분에서 가장 큰 변형을 하는 것을 알 수 있으며 임계값 이상의 큰 전단 변형이 발생하는 부분에서 주름 등의 불균일한 섬유 변형이 발생하는 것을 예측할 수 있다.

2.3 수지함침 공정

복합재료 액상성형의 수치함침 공정에서는 압력 구배(pressure gradient)를 가지는 수지가 섬유 직물 내부의 빈 공간으로 흘러 들어가는 유동이 발생하게 되고 이러한 유동은 Darcy's law를 이용한 수치 해석을 통해 모사할 수 있다.⁷ 그러나 대부분의 액상성형 해석에서는 섬유 프리폼이 금형 내부에서 고정되어 있는 상태에서 수지가 함침되는 거동을 모사하고 있으며, 수지가 함침되는 과정에서 발생하는 섬유의 변형을 반영하지 못하므로 실제 HP-RTM 공정 등에서 발생하는 섬유 변형에 의한 불량률을 예측하지 못한다. 프리포밍 공정에서 살펴본 바와 같이 섬유 직물이 압축 성형 과정에서

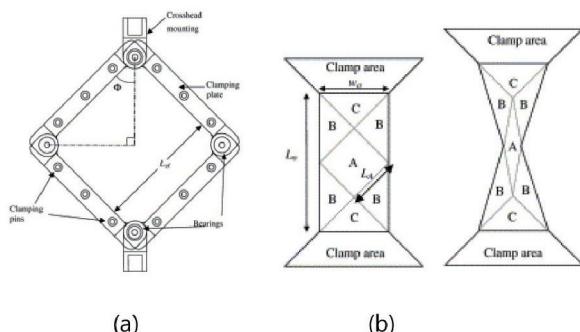


그림 2. Intra-ply shear test 방법: (a) picture frame test, (b) bias extension test.⁵

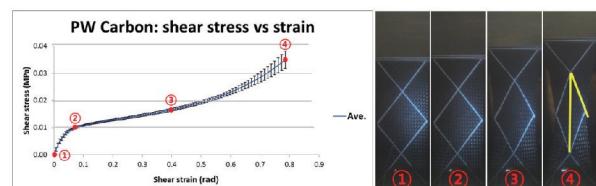


그림 3. Bias extension test를 이용한 평직 탄소섬유의 전단 거동 평가.⁶

발생하는 변형이나 수지 함침과 압축 성형이 혼합된 형태의 compression resin transfer molding(CRTM) 공정에서 섬유의 압축을 해석하는 연구 결과들이 보고된 바 있다.⁸ 최근 주목을 받고 있는 HP-RTM 공정에서 수지 함침 속도를 증가시키기 위해 고압의 수지 함침 공정을 진행함에 따라 유동에 의한 섬유의 변형은 높은 수율을 달성하기 위하여 반드시 해결해야 할 과제라고 할 수 있다.

섬유 프리폼은 금형 내부에서 적층되어 마찰력에 의해 고정된 상태로 수지 함침 공정이 진행되지만 수지의 유동에 의한 힘에 의해 힘의 불균형이 발생하면서 원하지 않는 변형을 하게 된다. 이러한 상황을 모사하기 위하여 액상성형 공정이 진행되는 금형 내부에서 존재하는 주요 힘을 정의하고 각 힘의 크기를 정량화하여 비교하는 과정이 필요하며, 그림 5는 그 상황을 개략적으로 나타내고 있다. 우선, 섬유 변형을 유발하는 힘은 수지의 압력 구배 유동이며, 이 유동 힘에 의한 변형에 저항하는 힘은 크게 두 가지로 구분할 수 있다. 먼저 섬유 프리폼과 인접한 물질과의 마찰력을 들 수 있는데, 섬유와 금형, 섬유와 인접한 섬유 간의 마찰력을 들 수 있다. 마찰력의 경우, 섬유가 수지에 함침되지 않았을 때에는 건조한 섬유가 가지는 마찰계수를 이용하여 계산해야 하고 섬유가 수지에 함침된 후에는 젖은 섬유가 가지는 수력학적 마찰계수

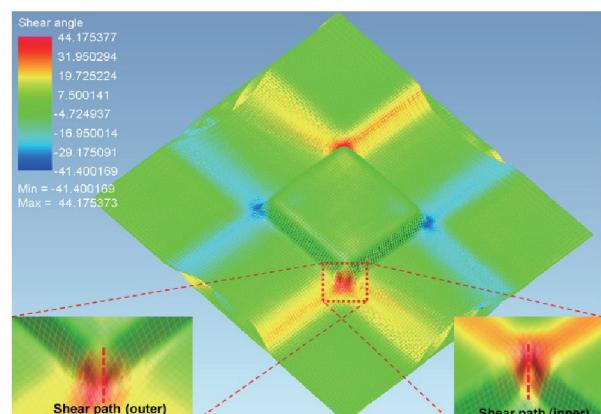


그림 4. 사각컵 금형 형상을 적용한 탄소섬유 직물의 열성형 공정 해석: 전단각(shear angle) 해석 결과.⁶

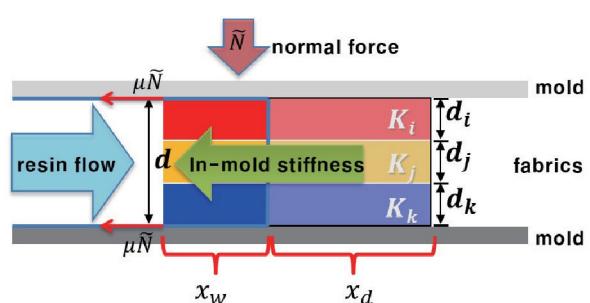


그림 5. 복합재료 액상성형 공정에서 금형 내부의 수지 함침 과정에서 섬유 프리폼에 작용하는 주요 힘들의 관계에 관한 개략도.⁹

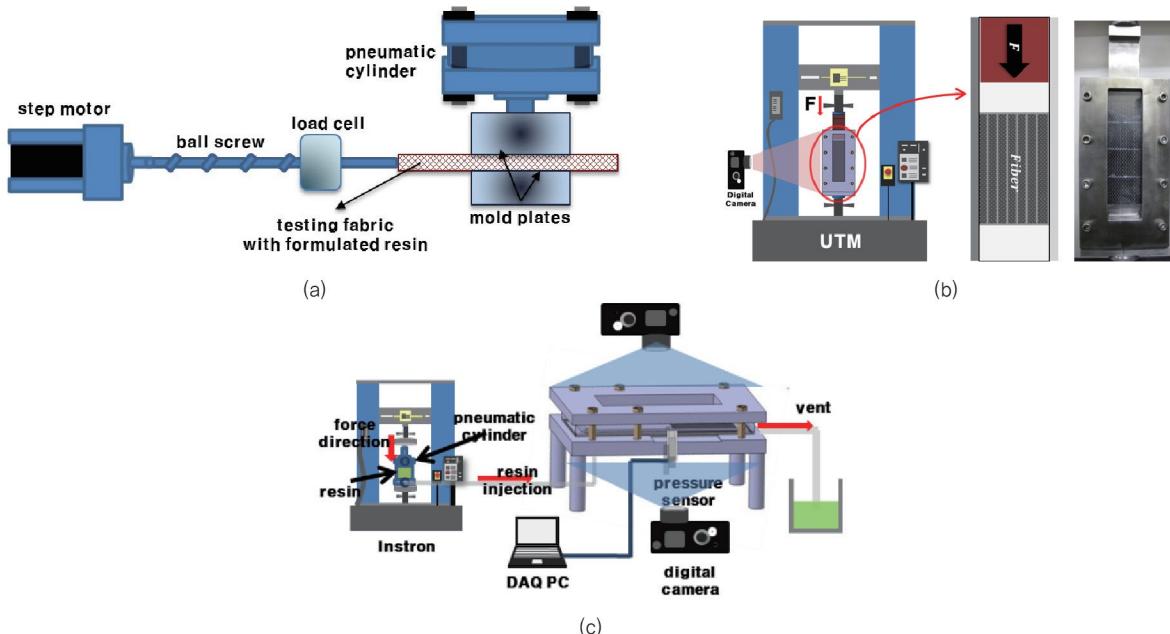


그림 6. 복합재료 액상성형에서 수지 함침과정에서의 섬유 프리폼 변형에 관련된 힘을 측정하는 장치 개략도. (a) 마찰계수, (b) 금형 내에서의 섬유 프리폼의 압축 강성, (c) 수지 유동에 의한 힘 및 섬유 변형 측정 장치.¹⁰

를 이용하여 계산하여야 한다. 두번째로 섬유 프리폼이 딱딱한 물질이 아니라 유연성을 가지는 물질로서 수지 유동 방향으로 압축력을 받았을 때 금형 내부의 섬유 자체가 가지는 강성에 의한 저항력이 존재한다.

섬유 프리폼 내부로의 수지 함침 과정에서 섬유 변형에 영향을 미치는 힘의 균형을 분석하기 위하여 우선 각 힘들을 측정해야 한다. 그림 6은 복합재료 액상성형 공정에서 섬유 변형을 유발하는 수지 유동 힘과 이에 저항하는 마찰력과 금형 내 섬유 프리폼의 압축 강성(in-mold stiffness)를 측정할 수 있는 장비들의 개념도를 보여 주고 있다. 건조한 상태와 수지로 함침된 상태에서의 섬유 직물의 마찰계수를 측정하는 장비(그림 6a)와, RTM용 금형 내부에 섬유 프리폼을 적층한 상태로 압축 시험기에서 응력-변형 거동을 측정할 수 있는 장비(그림 6b), 그리고 실제 RTM 유동을 형성하면서 수지 압력, 유동 선단 및 섬유 변형을 측정할 수 있는 장비(그림 6c)를 나타내고 있으며, 이들 장비를 이용하여 주요 힘을 정량화할 수 있다.

수지 함침이 진행되는 특정한 위치와 시간에서 위에서 측정한 세 가지 힘의 크기를 비교하면 섬유 변형의 발생 유무와 종류를 예측할 수 있다. 예를 들어, 수지 유동의 힘이 섬유와 금형 간의 마찰력보다 크면 섬유 프리폼이 금형 표면을 따라 미끄러지는 슬립(slip) 변형이 나타나게 되고, 수지 유동의 힘이 마찰력보다 작지만 금형 내부 섬유 프리폼의 압축 강성(in-mold stiffness)보다 크면 전체적인 슬립은 발생하지 않지만 부분적인 변형인 주름(wrinkle)이 나타나게 된다. 그림 7은 일방향 탄소섬유(unidirectional, UD) 직물의 배향

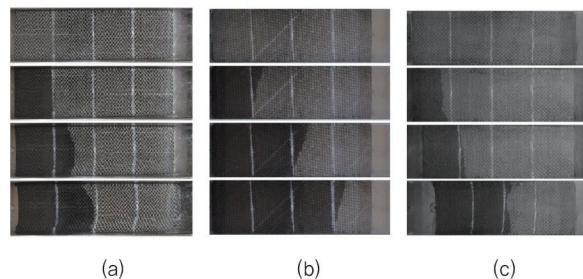


그림 7. 일방향 탄소섬유 직물의 수지함침 공정에서 섬유배향 방향에 따른 섬유 변형 관찰: (a) 0°, (b) 45°, (c) 90°.¹⁰

방향에 따른 섬유 변형을 보여주고 있다.

이러한 섬유의 변형에 관련된 주요 힘들은 여러 가지 구조 및 공정 인자들에 의해 결정된다. 우선 섬유의 직조 구조, 배향 방향과 섬유 체적율은 마찰계수나 압축 강성에 영향을 미치게 되므로 섬유 변형 여부나 형태를 결정하는 주요 인자가 된다. 수지의 점도와 주입 압력은 수지의 유동 힘을 결정하게 되는데, 그림 8은 일방향 탄소섬유가 유동 방향과 45°일 때 수지가 함침됨에 따라 유동 압력과 섬유 변형을 관찰한 예시를 보여 주고 있다. 섬유 체적율이 높을수록 섬유의 마찰력과 금형 내 압축 강성이 증가하여 동일한 유동에서 섬유 변형이 발생할 확률이 감소하고, 동일한 섬유 체적율과 배향 방향에 서도 유속이 증가할수록 유동 압력이 증가하여 섬유 변형이 쉽게 발생하는 것을 확인할 수 있다.

마지막으로 섬유 변형이 발생하는 조건에서 세 가지 힘의 크기를 비교해 본 결과를 그림 9에 나타내었는데, 유동 힘, 마찰력 및 섬유의 압축 강성에 의한 힘의 크기를 비교함으로

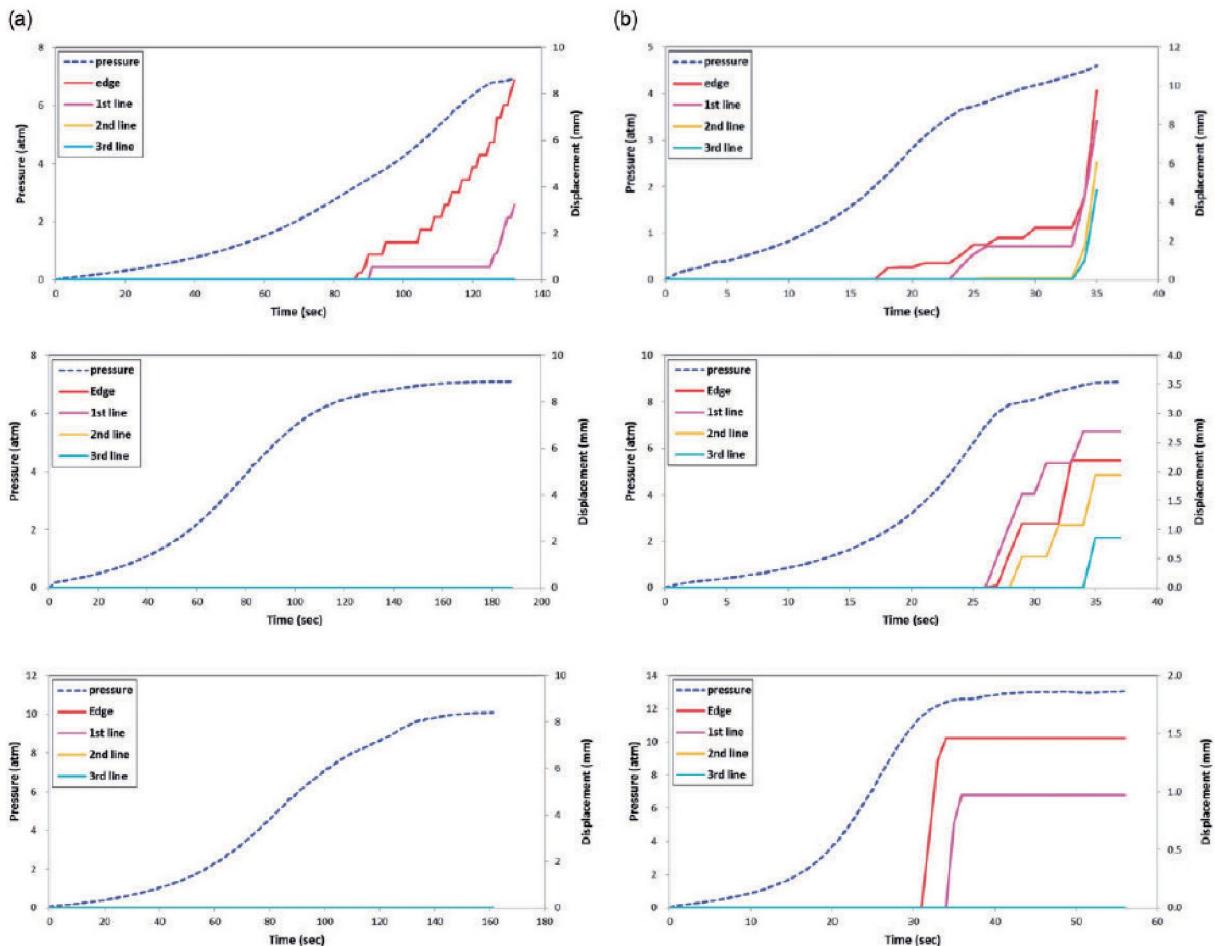


그림 8. 일방향(UD) 탄소섬유 직물에 45° 방향으로 수지가 유동할 때의 유동 압력과 섬유 변형 측정결과: (a) 섬유 체적율 40, 50, 55%로 느린 유동(0.8 ml/s), (b) 섬유 체적율 40, 50, 55%로 빠른 유동(2.5 ml/s).¹⁰

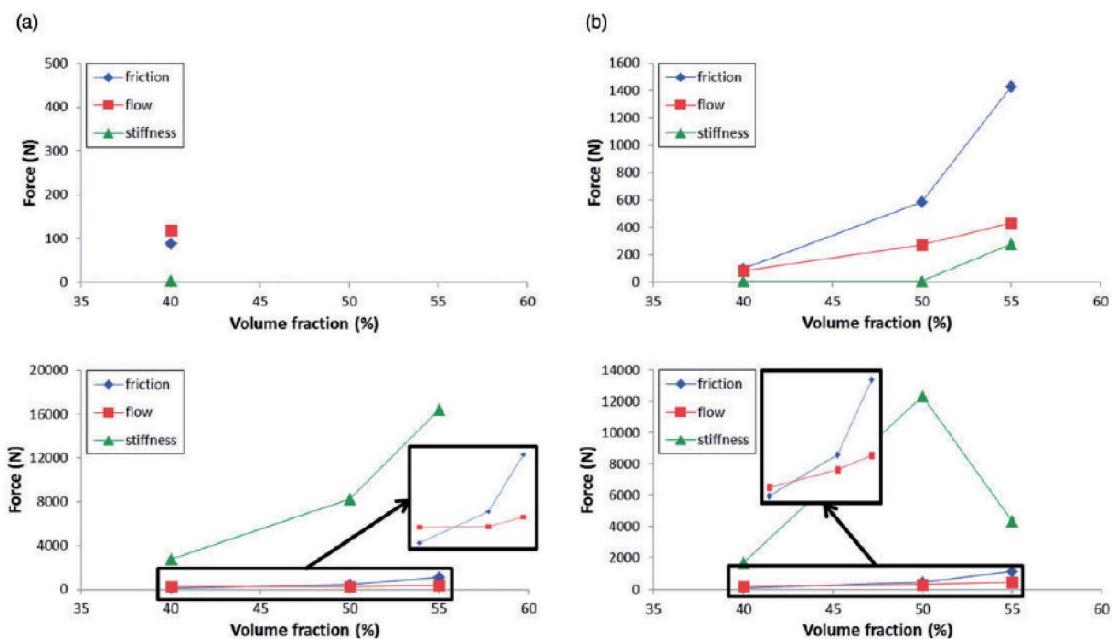


그림 9. 45° 방향으로 배향된 일방향 탄소섬유의 섬유 체적율에 따른 마찰, 압축강성 및 유동에 의한 힘의 비교: (a) 느린 유동 (0.8 ml/s), (b) 빠른 유동(2.5 ml/s).¹⁰

써 섬유 변형의 발생 유무와 종류(슬립, 주름 등)를 예측할 수 있음을 확인할 수 있다.

이러한 연구 결과를 토대로 하여 HP-RTM과 같은 복합재료 액상성형 공정에서 섬유의 구조적 인자(섬유 체적율, 직조구조 등)나 공정 조건(주입압력, 유속 등)이 수지 함침 과정에서 섬유 프리폼의 변형 여부와 유형을 결정한다는 것을 알 수 있었다. 특히, 주름과 같은 섬유의 부분 변형은 섬유 프리폼의 금형 내부에서의 압축 강성과 관련성이 높고 슬립(slip)과 같은 섬유의 전체 변형은 섬유 프리폼과 금형 간의 마찰력에 주로 영향을 받는다는 것을 확인하였다.

3. 결론

경량화 자동차 부품에 적용하기 위한 탄소섬유 복합재료의 대량 생산에 가장 적합한 기술로 알려진 액상성형공정에서 발생하는 대표적인 불량인 섬유의 불규칙한 변형을 예측하기 위한 기술을 살펴 보았다. 액상성형의 주요 단위 공정인 프리포밍 공정과 수지함침 공정에서 섬유가 변형하는 메커니즘을 분석하여 이를 예측할 수 있는 방안을 제시하였다. 프리포밍 공정에서는 탄소섬유 직물이 열압축성형을 거치면서 발생하는 드레이핑 거동을 모사하기 위하여 전단, 인장, 굽곡 등 다양한 변형 모드에서의 응력-변형 관계를 측정하여 이를 열성형 공정 해석에 반영하였다. 수지함침 공정에서는 섬유를 변형시킬려는 수지의 유동 힘과 이에 저항하려는 마찰력과 금형 내 섬유의 압축 강성에 의한 힘을 정량화하여 그 크기를 비교함으로써 섬유의 변형 여부와 슬립, 주름 등의 변형 종류를 예측할 수 있었다.

이러한 섬유 변형 예측 기술을 복합재료 액상성형 공정 해

석에 적용한다면, 기존에 수지의 함침 속도, 압력장과 미함침 구간 등을 예측하는 수준에서 섬유 변형에 의한 불량 발생을 예측함으로써 이를 방지할 수 있는 소재, 구조 및 공정 설계 안을 제시할 수 있을 것으로 기대된다. 이러한 고도의 공정 해석 기술이 복합재료 액상성형 공정에 도입된다면 공정의 사이클 타임을 단축하고 수율을 획기적으로 개선함으로써 자동차용 탄소섬유 복합재료 부품의 대량 생산이나 타 산업 분야로의 횡전개를 촉진시키는 역할을 할 수 있을 것이다.

참고문헌

1. P. Feraboli, A. Masini, and A. Bonfatti, *Int. J. Veh. Des.*, **44**, 233 (2007).
2. M. Pervaiz, S. Panthapulakkal, K. Birat, M. Sain, and J. Tjong, *Mat. Sci. Appl.*, **7**, 26 (2016).
3. M. Baskaran, I. O. de Mendibil, M. Sarriónandia, J. Aurrekoetxea, J. Acosta, U. Argarate, and D. Chico, *Proceedings of ECCM-16*, Sevilla, Spain, 22-26 June, 2014.
4. <http://www.hexion.com>.
5. P. Harrison, M.J. Clifford, and A.C. Long, *Comp. Sci. Tech.*, **64**, 1453 (2004).
6. D. Bae, S. Kim, W. Kim, J.W. Yi, M. K. Um, and D. G. Seong, *Mater.*, **11**, 857 (2018).
7. H. Darcy, *Victor Dalmont, Paris, France*, 1856.
8. J. Merrot, P. Simacek, and S. G. Advani, *Compos. A: Appl. Sci. Manufac.*, **41**, 881 (2010).
9. D. G. Seong, S. Kim, D. Lee, J. W. Yi, S. W. Kim, and S. Y. Kim, *Mater.*, **11**, 2055 (2018).
10. D. G. Seong, S. Kim, M. K. Um, and Y. S. Song, *J. Comp. Mater.*, **52**, 1265 (2018).