

Hybrid 열가소성 복합재료의 압축성형에서 공정변수의 최적화

이중희*·허석봉**·이봉신**

Optimization of Processing Parameters of Compression Molding of Hybrid Thermoplastic Composites.

Joong-Hee Lee^{*}, Seok-Bong Heo^{**}, Bong-Shin Lee^{**}

Key Words: Hybrid Thermoplastic Composite(하이브리드 열가소성 복합재료), Compression Molding(압축성형), Crystallinity(결정화도), Mechanical Property(기계적 특성), Carbon Fiber(탄소섬유), Carbon Black(카본블랙)

Abstract

The objective of this work was to optimize processing parameters of hybrid thermoplastic composites in compression molding. The mechanical properties of the composites manufactured with various forming conditions were measured to characterize processing parameters. Polypropylene(PP) composites containing randomly oriented long carbon fiber and carbon black were used in this work. The composite materials contained 5%, 10%, 15%, and 20% carbon fiber and 5%, 10%, 15%, 20%, and 25% carbon black by weight. Compression molding was conducted at various mold temperatures. The temperature of the material in the mid-plain was monitored during the forming. Crystallinity was also measured by using XRD. The tensile modulus of the composites increase, with increasing the mold temperature. However, the impact strength of the composites decreases as mold temperature increases.

1. 서 론

섬유 또는 입자가 강화된 hybrid 고분자 복합 재료는 가볍고, 높은 강도와 강성을 가지고 있어 항공기, 조선 및 자동차 산업에서 기존의 금속성 재료를 대체할 수 있는 가장 유망한 재료 중 하나로 등장하게 되었다. 특히 열가소성 복합재료는 일반 상온에서 보관하기 쉽고 제조 공정 시간이 비교적 짧으며, 재료를 반복적으로 녹일 때 비교적 그들의 분자구조에 많은 변화를 주지 않기 때문에 재활용 할 수 있다는 장점을 가지고 있

다. 긴 탄소섬유에 기능성 입자가 강화된 복합재료는 짧은 섬유가 강화된 복합재료에 비하여 보다 우수한 인장, 굽힘 및 충격강도를 가지면서, 기능성 입자강화가 발휘할 수 있는 기능들을(즉 내화성, 전도성 등) 가질 수 있는 특징이 있다. 이러한 장점에도 불구하고 아직 이러한 재료 및 공정에 대한 연구는 미미하다 하겠다. 본 실험에서는 탄소섬유에 카본블랙 입자가 강화된 열가소성 복합재료의 제품 제조에 가장 적합한 공정기술인 압축성형을 행함으로써 여러 성형 조건에서의 재료의 내부 변화 및 성형조건에 따른 성형품의 물성에 대해 관찰하였다. 본 연구에서 실제 제품 성형의 결정적인 영향을 미칠 것으로 생각되는 금형 온도, 탄소섬유 함유량, 카본블랙 함유량이 물성에 미치는 영향에 대하여 연구하였다.

* 회원, 전북대학교 신소재공학부

** 전북대학교 고분자공학과 대학원

2. 실험

2.1 복합재료 제작

열가소성 hybrid 복합재료 제조를 위하여 폴리프로필렌 수지에 탄소섬유의 함유량이 중량비로 5%, 10%, 15% 및 20%이고 카본블랙의 함유량이 중량비로 5%, 10%, 15%, 20% 및 25%인 복합재료를 제조하였다. 수지는 호남석유화학에서 제공한 폴리프로필렌(J-370)의 분말형태의 수지를 사용하였다. 탄소섬유는 태광산업(주)의 TZ-507(12K)(직경:6.872 μ m, 길이:12mm)를 사용하였다. 카본블랙은 (주)코리아카본블랙의 HIBLACK 40B2(직경:23nm)를 사용하였다. 복합재료 제작 순서는 수지와 카본블랙을 컴파운딩하고 면이 고른 금형에 컴파운딩한 카본블랙을 함유한 수지를 분산하여 얇은 층을 만들고 그 위에 binder를 제거한 탄소섬유를 적층하였다. 이와 같은 방법으로 각각의 재료를 모두 3층으로 적층한 후 가열, 가압하여 300mm \times 220mm의 복합재료 판재를 제작하였다.

2.2 실험방법

탄소섬유와 카본블랙의 함량이 변함에 따른 공정변수와의 관계를 연구하기 위하여 각 함량별로 제작된 복합재료를 95mm \times 170mm의 크기로 잘라 220 $^{\circ}$ C의 오븐 안에서 30분 동안 유지시켜 완전 용융시켰다. 금형 온도는 성형에 큰 영향을 주는 중요한 요소로서 이들에 대한 영향을 연구하기 위해 금형의 온도를 30 $^{\circ}$ C, 70 $^{\circ}$ C, 110 $^{\circ}$ C로 증가시키면서 실험을 행하였다. 성형속도는 2mm/sec로 제어하였으며, 성형압력은 50MPa로 하였으며, 600초 동안 동일 압력으로 유지하였다.

성형 조건의 변화와 강화재의 함량이 재료 내부의 결정화도와 성형품의 기계적 성질에 어떤 영향을 주는지 알아보기 위하여 각각의 성형품에서 인장시편과 충격시편을 채취하여 인장시험과 충격시험을 행하였다. 인장 시편은 150mm \times 25mm인 직사각형 형태로 밀링을 이용하여 기계 가공하였다. 인장시험은 ASTM D3039에 따라 UTM(United Testing Machine)을 사용해 실시하였다. 충격시편은 63mm \times 12.5mm인 직사각형 형태로 가공하여, ASTM D4812-93에 제시한 방법중 임의 방향으로 배향된 섬유강화 복합재료에 많이 사용되는 notch가 없는 시편으로 Izod 충격시험을 행하였다. 충격시험은 Zwick회사의 충격시험기를

사용하였다.

성형시 금형 온도와 카본블랙의 함량에 따른 재료 내부의 결정화도의 차이를 확인하기 위해 X-선 회절 분석기(X-ray Diffractometer, XRD, Rigaku D/MAX 2500)로 X-선 회절 패턴들을 얻어 결정화도를 측정하였다. 주사속도는 3 $^{\circ}$ /min이었고 $2\theta = 5^{\circ} \sim 50^{\circ}$ 범위에서 측정하였으며, Cu-K α 선이 사용되었다. 전압과 전류는 각각 40kV, 30mA로 하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

성형된 복합재료 물성은 수지의 물성에 많은 영향을 받으며 수지의 물성에 영향을 주는 결정화도는 성형시 재료가 결정화온도 이상의 온도에서 유지되는 시간에 많은 영향을 받는다. 그러므로 본 연구에서는 성형동안의 복합재료 내부에서의 온도변화를 관찰하였다. 내부온도는 복합재료 판재를 적층할 때 중앙부위에 열전대를 삽입하여 측정하였다.

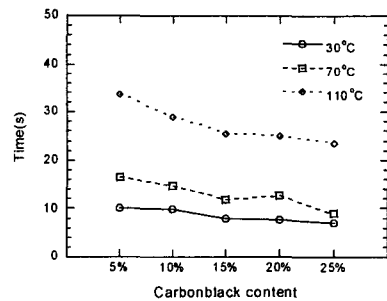


Fig. 1 The time kept above 130 $^{\circ}$ C in the mid-plane material.

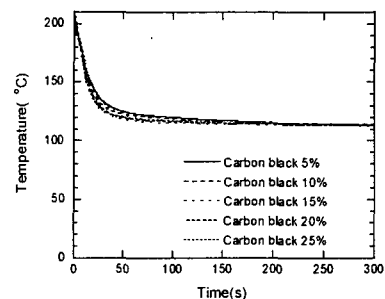
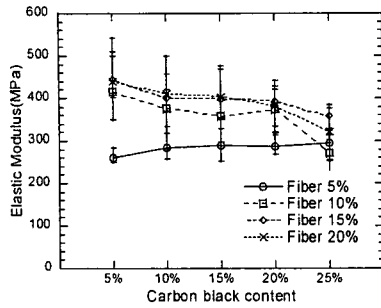
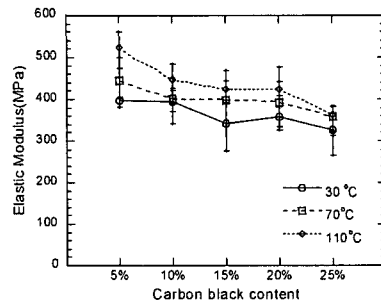


Fig. 2 Temperature profile in the mid-plane of the composite for the mold temperature of 110 $^{\circ}$ C.

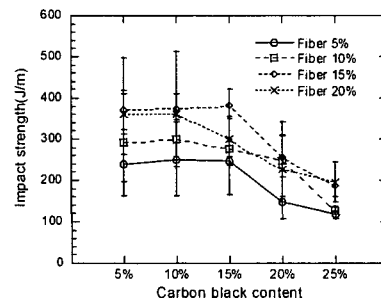


(a)

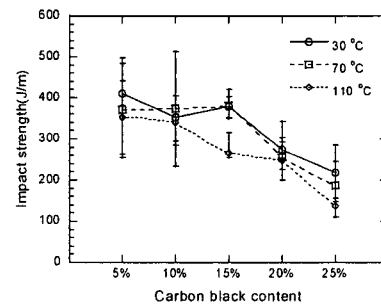


(b)

Fig. 3 Measured tensile modulus for (a) various fiber contents and (b) various mold temperatures.

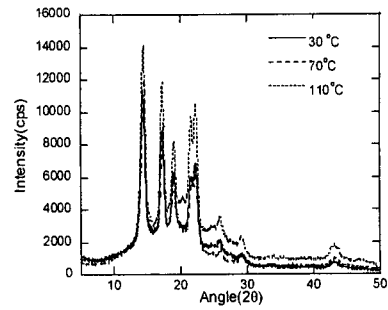


(a)

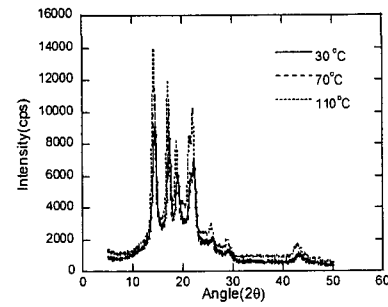


(b)

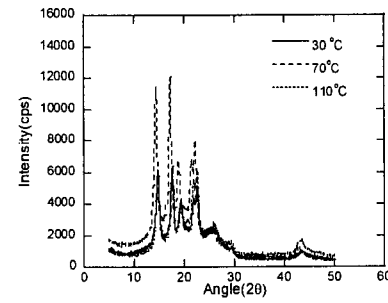
Fig. 4 Measured impact strength for (a) various fiber contents and (b) various mold temperatures.



(a)



(b)



(c)

Fig. 5 X-ray diffraction patterns of the composite for (a) 5%, (b) 15% and (c) 25% carbon black contents.

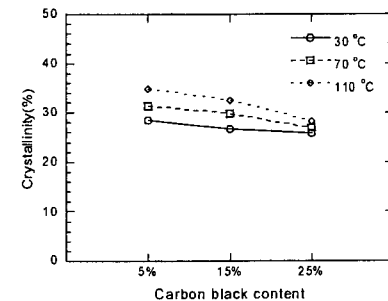


Fig. 6 Measured crystallinity at various mold temperatures and various carbon black contents.

Fig. 1은 금형 온도가 30℃, 70℃, 110℃로 변함에 따른 재료 내부에서 130℃이상으로 유지되는 시간이다. Fig. 2는 탄소섬유를 15%함유하고, 금형 온도가 110℃일 때 카본블랙의 함량에 따른 복합재료 내부에서의 온도 변화를 보여준다. 카본블랙의 함량이 많아질수록 복합재료가 빨리 냉각되는 것을 알 수 있다.

Fig. 3의 (a)는 금형 온도가 70℃로 동일할 때 탄소섬유 함량에 따른 인장시험 결과이며 탄소섬유의 함량이 증가할수록 탄성계수는 증가한다. (b)는 탄소섬유를 15% 함유한 재료로 금형 온도 변화에 따른 탄성계수의 변화를 나타낸 것으로 금형 온도가 높아질수록 탄성계수는 증가하고 있는 것을 나타낸다. 금형 온도가 높아질수록 재료 내부에서의 결정화시간이 늘어나 결정화도가 증가함에 따라서 재료의 탄성계수가 증가하는 것으로 사려된다. 또한 Fig. 3의 결과에서 알 수 있듯이 카본블랙의 함량이 증가할수록 탄성계수는 감소한다.

Fig. 4의 (a)는 금형 온도가 70℃일 때 탄소섬유 함량에 따른 충격시험 결과이며 탄소섬유의 함량이 증가할수록 충격강도는 증가한다. (b)는 탄소섬유를 15% 함유한 재료로 금형 온도 변화에 따른 충격강도의 변화를 나타낸 것으로 금형 온도가 높아질수록 충격강도는 감소한다. 또한 Fig. 4의 결과에서 카본블랙의 함량이 증가할수록 충격강도는 감소한다.

Fig. 5는 탄소섬유의 함유량이 15%인 재료를 금형 온도가 30℃, 70℃, 110℃일 때와 카본블랙의 함량이 5%, 15%, 25%일 때 시편에서 얻어진 XRD 패턴이다. 결과로부터 금형 온도가 30℃, 70℃, 110℃로 증가할수록 peak의 intensity도 증가하는 것을 알 수 있으며, 카본블랙의 함량이 증가할수록 peak의 intensity는 감소하는 것을 알 수 있다. Fig. 6은 이러한 XRD결과로부터 얻은 무정형부분과 결정성부분의 비율로 측정한 결정화도를 나타낸다. 결정화도는 금형 온도와 카본블랙의 함량에 많은 영향을 받음을 보인다.

4. 결론

열가소성 hybrid 복합재료의 압축성형동안의 금형 온도 및 강화재의 함량이 성형품에 미치는 영향을 파악함으로써 최적의 공정조건을 선정하

기 위한 본 연구를 통하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

(1) 압축성형동안의 금형 온도가 증가할수록 재료 내부의 결정화도가 증가하여 재료의 탄성계수는 증가하고, 충격강도는 감소한다.

(2) 같은 온도의 성형조건에서 탄소섬유와 카본블랙의 함량이 증가할수록 냉각속도가 빨라지며 탄성계수와 충격강도의 변화를 보인다.

(3) 성형된 시편의 XRD 분석을 통해 열가소성 hybrid 복합재료의 금형 온도와 강화재의 함량이 수지의 결정화에 많은 영향을 미치며 첨가량이 증가할수록, 금형 온도가 낮아질수록 결정화도가 낮아짐을 보인다.

(4) 강화재의 함량에 따른 cycle time과 hybrid 복합재료의 물성을 관찰함으로써 요구되는 물성치를 만족하는 최적의 공정조건을 선정할 수 있다.

후 기

본 연구는 학술진흥재단 신진교수연구지원(과제번호: 2000-03-E00046)에 의해 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) Fallon, Michael R., "Thermoplastic Sheet Stamping: Ready for the Big time," *Plastic Technology*, 1989, pp. 95-103.
- (2) Avalos, F, Lopez-Machado, M. A. and Arroyo, M, "Crystallization kinetics of polypropylene: II. Effect of the addition of short glass fibres," *Polymer* Vol. 38, No. 22, 1997, pp. 5587-5593.
- (3) Perez-Cardnas, Fernando C., Del Castillo, L. Felipe, and Vera-Graziano, Ricardo, "Modified Avrami Expression for Polymer Crystallization Kinetics," *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 43, 1991, pp. 779-782.
- (4) S. -Y. Fu, B. Lauke, E. Mader, C. -Y. Yue and X. Hu, "Tensile properties of short glass fiber and short carbon fiber reinforced polypropylene composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 31, October 2000, pp 1117-1125.
- (5) N. Sato, T. Kurauchi, S. Sato and O. Kamigaito, "Mechanism of fracture of short glass fibre reinforced polyamide thermoplastic," *Journal of Materials Science*, Vol. 19, 1984, pp. 1145-1152.