

〈論 文〉

장섬유강화 열가소성고분자 복합판의 비등온 압축성형에 있어서
섬유함유율 분포의 예측

김석호*, 백남주**, 김이곤***

(1989년 11월 18일 접수)

Prediction of Fiber Content Distribution of Long Fiber-Reinforced
Thermoplastic Sheet for Nonisothermal Compression Molding

Suk Ho Kim, Nam Ju Baek and E Gon Kim

Key Words: Fiber Content Distribution(섬유함유율 분포), Long Fiber-Reinforced Thermoplastic Sheet(장섬유강화 열가소성고분자 복합판), Nonisothermal Compression Molding(비등온 압축성형)

Abstract

A method is proposed which can be used to obtain the fiber content distribution of compression molded long fiber-reinforced thermoplastic sheet for nonisothermal state. The fiber is modelled to be a sphere. Once the one-dimensional unsteady state heat conduction equation is solved, the mean temperature is defined across the thickness direction. The viscosity of matrix is determined with the mean temperature. Using the obtained viscosity, two-dimensional sheet-like part compression molding is simulated with the finite element method. Comparison with experiments shows that the method accurately predicts the distribution.

기 호 설 명

첨자 c, m, f 는 복합재료, 모재 및 섬유를 가리킨다.

b : 상수

d_{fs} : 상당직경

F_c : 성형하중

\dot{h} : 압축속도

h : 두께

h_o : 성형전의 두께

M : 상당 분리계수

n : 구조 점도지수

p : 압력

q_r : 중량 섬유함유율

q_{fo} : 성형전의 중량 섬유함유율

Q_{fr} : 섬유 함유율비

R_{cr} : 압축비

t : 시간

T : 온도

T_o : 초기의 재료온도

T_r : 상수(참조온도)

T_w : 금형의 벽면온도

v : 평균속도

α_i : 열확산계수

γ_f : 섬유의 비중량

μ : 점도

μ_{mo} : 상수

ζ : 상수

*정회원, 동의대학교 공과대학 기계설계학과

**정회원, 부산대학교 공과대학 생산기계공학과

***정회원, 국민대학교 공과대학 기계설계학과

1. 서 론

유리장섬유를 강화재로 해서 열가소성고분자에 복합시킨 장섬유강화 고분자복합재료로 만든 성형품의 기계적 성질은 성형시에 있어서 재료의 유동에 의해서 야기되는 모재와 섬유와의 분리 및 섬유의 배향에 크게 의존한다. 그래서 분리 및 배향을 성형조건, 재료등에 관련시켜서 명확히 하는 것은 뛰어난 성형품을 얻기 위해서 매우 중요하다. 특히 이 분리에 의해서 성형품은 불균질하게 되므로 성형중의 섬유함유율분포를 예측할 필요가 있다.

근래, Hojo등은 성형중의 섬유를 고체, 모재를 액체로 한 고체-액체의 혼상류 이론을 사용하여 섬유와 모재의 분리를 표현하는 분리방정식을 유도하고, 이것을 축대칭 압축의 경우에 적용해서 분리에 미치는 재료, 금형, 성형 조건 등의 영향을 검토하고, 이때 분리계수를 제안하였다⁽¹⁾. 또 분리계수를 가정해서 간단한 1차원 평판압축 성형품의 섬유함유율 분포를 계산하였으며⁽²⁾, 1차원 압축시험을 통해서 분리계수를 측정하고, 이 분리계수를 사용하여 금형과 재료가 동일한 온도, 즉 동온상태의 평판압축 성형품의 섬유함유율 분포를 계산하였다⁽³⁾.

본 연구에서는 두께방향의 1차원 열전도방정식을 사용하여 온도를 구하고, 이것을 두께방향으로 적분해서 평균온도를 계산한다. 이 온도에 의해서 점도가 결정된다고 하고, 어느 일정순간에 있어서의 분리방정식을 사용해서 섬유의 이동거리를 계산해서 섬유함유율 분포를 구하고 실험결과와 비교 검토한다.

2. 이론해석

고분자복합재료의 성형중의 유동상태 특히 섬유의 운동은 복잡하지만, 이것을 단순화해서 용융고분자를 액체, 섬유를 고체로 구성된 고액혼상류로서 취급한다. 성형중의 고분자 속도와 섬유 속도는 섬유함유율에 의존하고, 섬유함유율은 분리가 생기기 때문에 성형과정에 따라서 변하므로 복합재의 속도가 주어져도 그 결정은 곤란하므로, 고분자의 속도와 복합재의 속도는 같다고 가정한다. 여기서는 복합재의 속도를 구하고, 이것을 사용하여 분리방정식으로부터 섬유의 속도를 계산한다.

2.1 복합재료의 속도

재료를 Fig. 1과 같이 평행평판에서 하중 F_c 를 가해서 초기두께 h_0 에서 h 까지 압축한다. 성형중의 유동선단의 fountain effect는 무시해서 2차원 평판압축으로 한다. 금형과 재료의 계면에서 미끄럼이 없다고 가정하면, 성형중의 압력분포를 구하는 지배방정식은⁽⁴⁾

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(S \frac{\partial p_c}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(S \frac{\partial p_c}{\partial y} \right) - \dot{h} = 0 \quad (1)$$

여기서는 p_c 는 복합재료의 압력, \dot{h} 는 압축속도 그리고 S 는 유동 컨덕턴스이다. 식 (1)을 유한요소법을 사용하여 압력분포를 구하고, 이 압력분포를 x 및 y 방향으로 편미분하여 x 및 y 방향의 속도 v_{cx} , v_{cy} 를 구한다. 즉,

$$v_{cx} = -\frac{S}{h} \frac{\partial p_c}{\partial x}, \quad v_{cy} = -\frac{S}{h} \frac{\partial p_c}{\partial y} \quad (2)$$

여기서 h 는 재료의 두께이다.

2.2 모재와 섬유의 분리방정식

섬유를 구로 모델화한 경우, 성형중의 섬유의 속도 v_f 는 다음과 같이 주어진다⁽¹⁾.

$$v_f = v_c - k_{sp} \frac{\gamma_f d_{fs}^2}{\mu_m} \quad (3)$$

여기서 v_c , μ_m 은 각각 복합재의 속도, 모재의 점도이며, γ_f 는 섬유의 비중량, $d_{fs} (= \sqrt[3]{1.5 d_f^2 l_f})$, d_f : 섬유의 직경, l_f : 섬유의 길이)는 섬유의 구상당 직경이다. k_{sp} 는 분리계수이며 다음과 같이 복합재의 속도의 항으로 표현할 수 있다⁽⁵⁾.

$$k_{sp} = M v_c^{n_c} \quad (4)$$

여기서 M 은 상당분리계수이며, n_c 는 복합재의 구조점도지수이다.

식 (4)를 식 (3)에 대입하고, 섬유의 x 및 y 방향의 속도 v_{fx} , v_{fy} 로 분리하면

$$\begin{aligned} v_{fx} &= v_{cx} - K v_c^{n_c} \\ v_{fy} &= v_{cy} - K v_c^{n_c} \end{aligned} \quad (5)$$

단 $K = M \gamma_f d_{fs}^2 / \mu_m$ 이며, 식 (5)의 $K v_c^{n_c}$, $K v_c^{n_c}$ 는 각각 섬유가 모재와 분리되는 속도를 나타낸다.

식 (5)에서 모재의 점도 μ_m 은 온도와 전단속도의 함수로 표시할 수 있다.

즉 Carreau 모델⁽⁶⁾로 표현하면

$$\begin{aligned} \mu_m &= \mu_{m0} \{1 + (\zeta \dot{\gamma})^2\}^{(n_m-1)/2} \\ &\quad \times \exp\{-b(T - T_r)\} \end{aligned} \quad (6)$$

여기서 μ_{m0} , ζ , b , T_r 는 상수, n_m 은 모재의 점도지수이다.

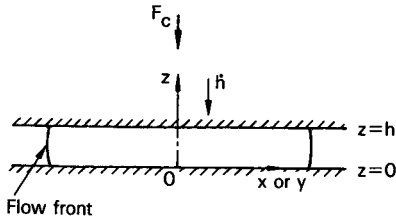


Fig. 1 Coordinate system used in analyzing compression molding

2.3 온도분포⁽⁷⁾

성형중의 재료의 온도는 Fig. 1의 z방향으로만 변화하고, x, y 방향에서는 일정하다고 하고, 일차원 문제로 취급한다. 성형중, 경화반응을 무시하고, 열확산계수는 일정하다고 하면

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \dot{h} \frac{\partial T}{\partial z} = \alpha_t \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \quad (7)$$

초기조건 t=0일때 T=T₀, 경계조건 z=0, z=h 일때 T=T_w이다. 식 (7)에서 α_t, T₀는 각각 재료의 열확산계수 및 재료의 초기온도, T_w는 금형벽면의 온도이다. 식 (7)을 변수분리법을 사용하여 풀면

$$T(z, t) = T_w + (T_w - T_0) \left\{ \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos \pi z - 1}{n} \times \sin n \pi \frac{z}{h} \exp \frac{-n^2 \pi^2 \alpha_t t}{h_0(h_0 - \dot{h}t)} \right\} \quad (8)$$

평균온도 \bar{T} 를 다음과 같이 정의한다.

$$\begin{aligned} \bar{T}(t) &= \frac{1}{h} \int_0^h T(z, t) dz \\ &= T_w + (T_w - T_0) \left\{ \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(1 - \cos \pi)^2}{n^2 \pi} \times \exp \frac{-n^2 \pi^2 \alpha_t t}{h_0(h_0 - \dot{h}t)} \right\} \quad (9) \end{aligned}$$

식 (9)를 사용하여 구한 온도를 식 (6)에 대입하여 점성계수를 결정한다.

3. 섬유함유율 분포의 계산

실제의 섬유와 물성치를 가지고 있는 가상섬유의 개념을 도입한다⁽²⁾. 성형중 가상섬유의 체적을 계산하여, 성형완료 후의 위치를 찾아서, 이것으로부터 섬유함유율 분포를 계산한다. 계산절차는 다음과 같다.

(1) 성형전, 가상섬유(물성치는 실제의 섬유의 것과 동일)를 재료내에 같은 간격으로 배치한다(본 계산에서는 x방향 70개, y방향 70개, 4900개소).

(2) 유한요소법(삼각형 2차요소, 요소수 40, 절점수 30)에 의해서 압력 [식 (1)], 복합재의 평균속도 [식 (2)]를 구한다. 초기의 점도는 가정한다.

(3) 평균온도를 계산한다[식 (9)]. 이 평균온도를 가지고 모재의 점도를 구한다.

(4) 식 (5)를 사용하여 섬유의 속도를 구한다.

(5) 각 요소의 정점 및 섬유의 속도에 Δt(0.02초)를 곱해서 좌표와 섬유의 이동거리를 구한다.

(6) 전 단계의 좌표와 가상섬유의 위치에 이동거리를 더해서 이것을 새로운 좌표와 가상섬유의 위치로 한다. 유동선단의 위치도 구한다.

(7) 성형이 완료될때까지 반복한다.

성형완료 후, 상당분리계수가 0일때, 즉 섬유가 분리를 일으키지 않을때의 각 요소의 섬유 수와 어떤 상수일때의 섬유수의 비로써 섬유함유율비 분포를 구한다.

4. 실험

실험에 사용된 재료는 모상이 폴리프로피렌, 강화재가 유리장섬유매트이다. 섬유함유율은 40wt%, 두께는 3.8mm이다. 이것을 75mm×60mm의 직사각형판으로 절단해서 시험편으로 한다. 그 경우의 평균섬유길이 l_f는 38.4mm이고, 섬유를 집속한 스트랜드의 직경 d_f는 0.14mm⁽¹⁾, 그래서 구상당 직경 d_{fs}는 1.04mm이다. 섬유밀도는 2.55g/cm³이다.

실험장치는 30ton의 유압프레스를 사용하였으며, 개략도는 Fig. 2와 같다. 금형의 온도는 봉 및 판 히타를 사용하여 조절하였다.

압축속도 \dot{h} 는 5.0mm/sec이며, 압축비 R_{cr}은 2종류를 택하였으며, 재료온도는 190℃, 금형온도는

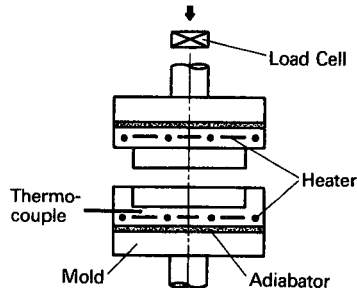


Fig. 2 Schematic diagram of experimental apparatus

20°C, 80°C로 하였다.

섬유함유율 분포를 구하기 위해서, 시험편을 x 축, y 축을 따라서 10mm×10mm를 채취하였고, 전기로에서 620°C로 폴리프로피렌을 연소하여, 연소전후의 무게를 천평으로 측정하여 섬유함유율 분포를 구하였다.

5. 실험결과 및 고찰

실험에 사용된 복합재료의 구조점도지수 n_c 는 평판압축시험에 의해서 측정된 결과이며⁽⁸⁾, 0.22이다. 또 모재(폴리프로피렌)의 물성치는 Carreau 모델로 표현하였을 때 μ_{m0} , ζ , n_m , b 는 각각 4.92×10^4 dyne sec ^{n_m} /cm², 0.2465, 0.5, 0.015이고, 참조온도 $T_r=20^\circ\text{C}$, 복합재의 열확산계수 α_t 는 1.483×10^{-3} cm²/sec이다.

Fig. 3은 금형온도 80°C, 재료온도 190°C, R_{cr}

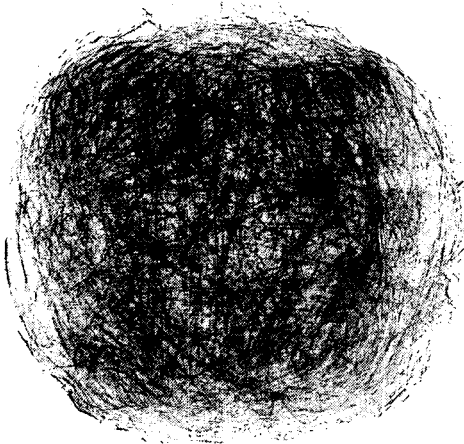


Fig. 3 Soft X-ray photograph of experimented specimen ($T_0=190^\circ\text{C}$, $T_w=80^\circ\text{C}$, $R_{cr}=1.553$)

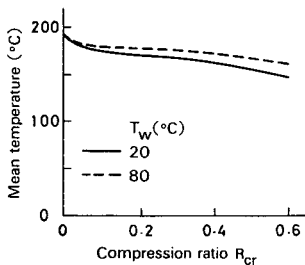
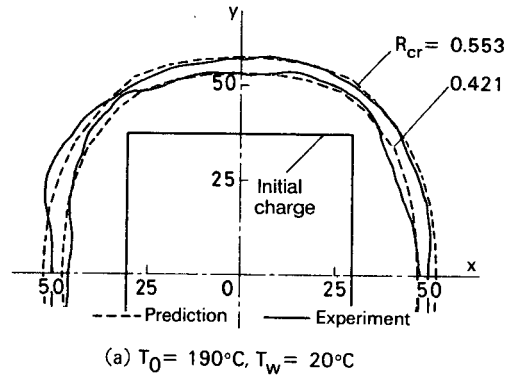


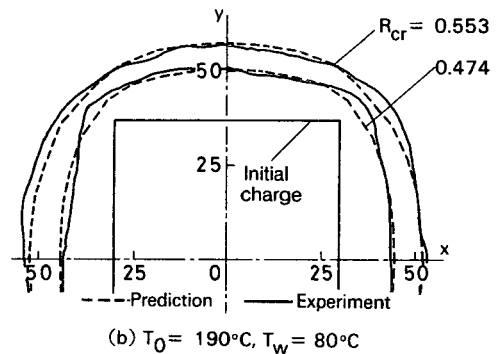
Fig. 4 Effect of compression ratio R_{cr} on mean temperature \bar{T}

0.553인 경우, 성형품의 X선 사진이다. 검은 부분이 섬유의 형상이며, 중앙에서는 섬유함유율이 높고, 가장자리로 갈수록 섬유함유율이 낮음을 알 수 있다.

Fig. 4는 금형온도 20°C, 80°C의 그 종류에서 압축속도 5mm/sec인 경우에 있어서 압축비($=1-h/h_0$)에 대한 평균 온도를 나타낸 것이다. 압축비가 증가함에 따라서 평균 온도는 감소하고 있다. Fig. 5(a), (b)는 $T_0=190^\circ\text{C}$, $T_w=20^\circ\text{C}$, 80°C, 압축속도 5mm/sec의 경우 금형온도, 압축비의 변화에 의한 유동선단(flow front)의 실험과 이론의 비교이다. 재료와 금형에서 미끄럼이 없다고 하여 복합재료의 속도를 구하였으나, 보다 엄밀한 해를 구하기 위해서는 금형벽면의 미끄럼을 고려하여야 할 것으로 사료된다⁽⁹⁾. 그림으로부터 이론과 실험의 결과가 거의 일치하므로 속도분포가 타당함을 알 수 있다. 섬유함유율비 $Q_{fr}(=q_f/q_{fo})$ 분포의 이론 및 실험결

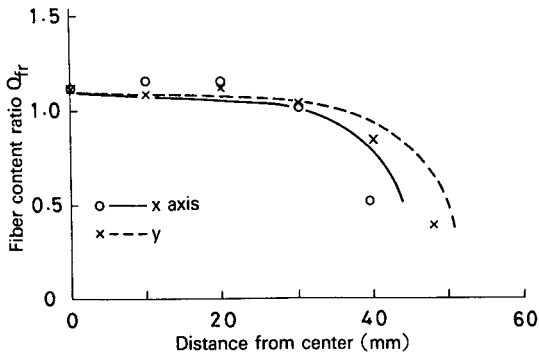


(a) $T_0=190^\circ\text{C}$, $T_w=20^\circ\text{C}$

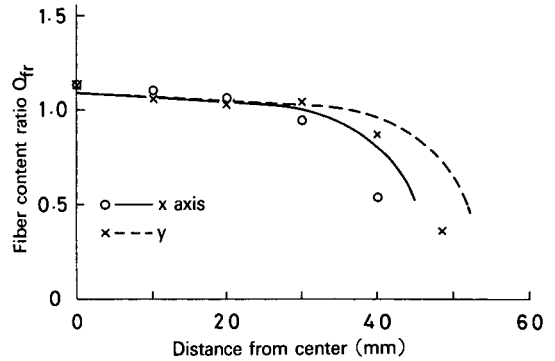


(b) $T_0=190^\circ\text{C}$, $T_w=80^\circ\text{C}$

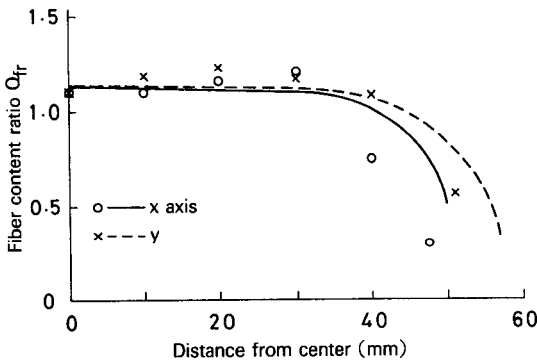
Fig. 5 Predicted(dashed) and experimental(solid) shapes of rectangular charge



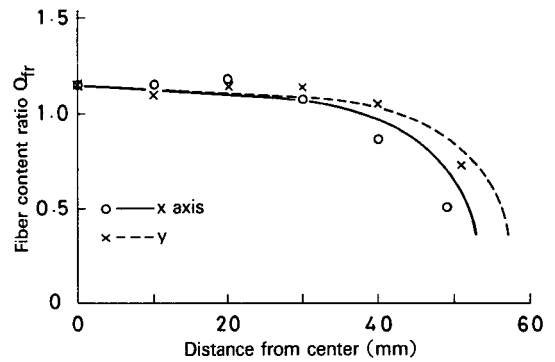
(a) Compression ratio $R_{cr} = 0.421$



(a) Compression ratio $R_{cr} = 0.474$



(b) Compression ratio $R_{cr} = 0.553$



(b) Compression ratio $R_{cr} = 0.553$

Fig. 6 Comparison between theoretical and experimental results for fiber content ratio $O_{fr}(T_o = 190^\circ\text{C}, T_w = 20^\circ\text{C})$

Fig. 7 Comparison between theoretical and experimental results for fiber content ratio $O_{fr}(T_o = 190^\circ\text{C}, T_w = 80^\circ\text{C})$

과의 비교를 Fig. 6(a), (b) 및 Fig. 7(a), (b)에 나타내었다. 상당분리계수 M 은 필자들이 구한 18.29를 사용하였다⁽⁹⁾. 섬유함유율 분포는 시험편의 중앙부분에서는 1.0보다 크고, 끝부분에서는 1.0보다 작으며, 압축비가 클수록 크다는 것, 압축속도가 빠르므로 금형의 온도 영향은 거의 없다는 것, 이론과 실험 결과가 잘 일치 하다는 것을 알 수 있다.

6. 결 론

비등온상태의 2차원 평판압축성형의 경우 섬유함유율 분포를 구하였으며, 시험편의 중앙부분에서는 성형전 보다 섬유함유율이 높고 끝으로 갈수록 저하한다. 또 압축비가 크면 클수록 시험편의 불균질성이 크게되고, 실제의 압축성형에 있어서는 압축속도가 빠르므로 재료의 평균속도는 금형의 온도 영향이 없음을 알 수 있었다.

금후의 과제로서는, 본 연구에서는 두께가 다른 치수에 비해서 얇으므로, 2차원 문제로 하였으나, 두꺼운 제품에 있어서는 3차원 해석을 하여야 하고, 이때 금형과 재료 계면의 미끄러움을 고려하여야 될 것으로 사료된다. 본 연구의 결과는 압축성형 뿐만 아니라, 사출성형 등 복합재료의 성형에 의한 제품의 섬유함유율 분포를 예측하는데 도움이 되리라 생각된다.

참 고 문 헌

- (1) Hojo, H., Kim, E.G., Tamaka, K., Nagatsuka, C., 1986, "Separation of Matrix and Fibers during Molding of Long Fiber-Reinforced Thermoplastics", Proceedings of the Third Japan-U.S. Conference on Composite Materials, Tokyo, pp.605~612.
- (2) Hojo, H., Kim, E. G., Tamakawa, K., 1987, "The

- Fibre Content Distribution of Compression Molded Long Fibre-Reinforced Thermoplastic Products”, *International Polymer processing*, Vol. 1, Issue 2, pp. 60~65.
- (3) Hojo, H., Kim, S. H., Baek, N. J., Kim, E. G., 1989, Prediction of Fibre Content Distribution in Compression Molded Fibre-Reinforced Thermoplastics”, *Proceedings of the 5th Annual Meeting of the Polymer Processing Society*, Kyoto, Japan, 12-20.
- (4) Lee, C. C., Folgar, F., Tucker, C. L., 1984, “Simulation of Compression Molding for Fiber-Reinforced Thermosetting Polymers”, *ASME, J. of Eng.*, Vol. 106, pp.114~125.
- (5) Hojo, H., Kim, E. G., Yajuchi, H., Onodera, T., 1988, “Simulation of Compression Molding with Matrix-Fibre Separation and Fibre Orientation for Long Fibre-Reinforced Thermoplastics”, *International Polymer Processing*, Vol. 3, Issue 1, pp.54~61.
- (6) Bird, R. B., Armstrong, R. C., Hassager, O., 1977, “Dynamics of Polymeric Liquids: Vol. 1, Fluid Mechanics, Wiley, New York.
- (7) Lee, L. J., Marker, L. F., Griffith, R. M., 1981, “The Rheology and Mold Flow of Polyester Sheet Molding Compound”, *Polymer Composites*, Vol.2, No. 4, pp.209~218.
- (8) 北條英典, 金 二坤, 玉川規一, 失口 仁, 1985, “長纖維強化プラスチック複合板の壓縮流動に伴う不均質性の生成(第一報, 不均質度と粘度)”, 第36回 塑性加工論文集, 日本塑性加工學會, pp.599~602.
- (9) Barone, M. R., Caulk, D. A., 1988, “Mechnaics of Compression Molding”, *Proceedings of Manufacturing International '88: Gutowski, T. G.(Ed.)*, ASME, Atlanta, pp.63~77.