

<연구논문>

## 나일론 6과 폴리프로필렌 수지에 유리섬유가 보강된 삼상 복합재료에 관한 연구

윤병선 · 서문호 · 이석현  
아주대학교 화학·생물 공학부  
(1998년 4월 3일 접수)

### A Study on the Three Phase Glass Fiber/Nylon 6/ Polypropylene Composites

Byung Seon Yoon, Moon Ho Suh and Suck Hyun Lee

School of Chemical Engineering and Biotechnology, Ajou University, Suwon 442-749, Korea  
(Received April 3, 1998)

#### 요 약

점도가 높은 열가소성 수지를 보강섬유에 직접 함침시켜 강화형 연속섬유를 제조할 수 있도록 본 연구실에서 개발한 인발수지 함침장치를 이용하여 나일론 6 수지(PA) 또는 폴리프로필렌 수지(PP)를 유리섬유(GF) 내로 함침시켜 연속섬유형 복합재료를 제조하고 이를 일정 길이로 절단하여 GFPA 및 GFPP master batch를 제조하였다. 여기에 나일론 6 수지, 폴리프로필렌 수지(PP), 그리고 폴리프로필렌 수지를 무수말레산 (maleic anhydride, MA)으로 개질한 PP-g-MA를 부가하여 일정 성분을 갖는 복합재료를 제조하였다. 인발수지함침장치를 이용하여 제조한 연속섬유형 복합재료의 형태학적 특성과 기계적 특성을 측정하고 결과 함침 및 혼합 상태는 양호하였으며, 복합재료들의 물성을 비교한 결과 GFPA master batch에 PP-g-MA를 첨가한 복합재료가 순수한 폴리프로필렌 수지를 첨가한 경우보다 수지와 수지 및 섬유와 수지 사이의 계면 결합력이 향상되어 기계적 특성이 크게 증가되는 것을 발견하였다. 이상의 연구 결과를 통하여 본 연구에서 사용한 인발수지함침장치가 적절한 가공 조건만 확립된다면 장섬유 강화 열가소성 복합재료의 제조에 유용하게 활용될 수 있음을 확인하였다.

**Abstract**—A pultrusion resin impregnation (PRI) die, which has been developed recently in our laboratory, was used to prepare various composite systems. The continuous fiber reinforced composites of glass fiber/polypropylene (GFPP) and glass fiber/polyamide 6 (GFPA) were first manufactured by means of the PRI die and then cut into chopped pellets of predetermined length. These pellets and either virgin or modified thermoplastic resin were melt-mixed by a twin screw extruder to prepare GF/PA/PP and GF/PA/PPMA system. The mechanical properties of these blends were investigated and discussed in terms of their morphological observations. These preliminary results revealed that this new impregnation die could be successfully applied to produce prepreps suitable for the final shaping process.

**Keywords:** Pultrusion resin impregnation die, Glass fiber, Polyamide 6, Polypropylene, GF/PA/PP composites

#### 1. 서 론

고분자 블렌드에 대한 연구는 상용성이 있거나 부분적인 상용성을 갖는 계의 추구에서, 비상용성인 계의 혼화성 증진을 통한 내열성 및 내충격성 향상에 관한 연구[1-3]로 발전되고 있다. 서로 잘 혼합되지 않는 고분자에 반응성 가공 또는 공중합체 합성과 같은 화학적인 방법이나 상용화제 및 아이오노모와 같은 제 3의 물질을 첨가한 후 물리적, 기계적 방법으로 서로 배척하지 않을 정도의 혼화성을 부여한 다음, 고강도와 고탄성률을 갖는 탄소섬유 및 유리섬유 등의 보강재를 부가하여 혼합계를 구성하면, 각 성분 고분자들과 보강재들의 물성이 상호 보완적인 역할을 하고, 상승효과(synergistic effect)를 나타내어 더욱 우수한 물성을 갖는 새로운 물질을

얻을 수 있다.

특히 범용성 플라스틱인 폴리프로필렌(PP)과 나일론 6(PA)의 블렌드는 두 수지간의 물성 차이를 극복하여 우수한 충격 특성 및 높은 굴곡 강도 등의 기계적 물성과 낮은 수분흡수율 및 향상된 가공성을 지니게 되고 비용 절감 효과도 기대되어 이에 대한 연구가 활발하게 진행되어 왔다. 하지만, 이들 블렌드는 직접 혼합할 경우 PP 분자는 극성이 없어 극성기를 지닌 PA 수지와 비상용성계를 형성하기 때문에 기대하는 효과를 얻지 못하였으나, Ide와 Hasegawa[4]가 PP 수지에 극성기를 도입한 무수말레산(maleic anhydride, MA)으로 그래프트된 공중합체를 상용화제로 사용함으로써 상용성이 향상되고, 내충격성이 향상된다는 연구 결과를 발표한 후, 이들 수지의 블렌드에 관한 연구들이 많이 보고되어 있다[5-12].

최근에는 PP 수지나 PA 수지에 보강제로 유리섬유를 혼합한 PP/유리섬유, PA/유리섬유계 복합재료에 관한 많은 연구[13-20] 뿐만 아니라 PP 수지, 유리섬유 및 제 3의 고분자를 혼합하는 삼성분의 고분자 복합재료에 대한 많은 연구들도 진행되고 있다[21-24]. 이들 삼성분계에서 제 3의 고분자는 PP/유리섬유 복합재료의 인장 및 충격 등과 같은 기계적 특성을 향상시킬 수 있으나, 각 성분들 사이의 화학적 친화력에 따라 형태학적 특성이나 유변학적 특성이 달라져 기계적 특성을 감소시키는 경우도 있다. 예를 들면, 유리섬유 강화된 PP 수지에 고밀도 폴리에틸렌(HDPE) 수지를 첨가할 경우 기계적 특성이 증가하나[23], 저밀도 폴리에틸렌(LDPE) 수지를 부가하면 인장 및 굴곡 강도는 감소하고 충격강도는 증가한다고 알려져 있다[24].

결과적으로 비상용성계의 고분자 블렌드를 통해 향상된 물성을 가지는 새로운 물질을 창출하기 위해서는 고분자-고분자, 고분자-섬유 사이의 계면 상태와 입자의 형태 및 분산성을 향상시킬 수 있는 상용화제의 선택과 가공 방법 등이 중요한 요인으로 작용한다. 특히, 가공공정을 예를 들면 압출 또는 사출 가공에서는 구형 입자가 prolate 타원체 그리고 때로는 섬유형으로 변형이 되기도 하고[25], blow 가공에서는 2축 변형 때문에 구형 입자가 platelet 또는 oblate 타원체로 바뀌기도 한다. 그 밖에도 열역학적 특성에 따라 cocontinuous 또는 bi-continuous 네트워크 구조로 존재하여 뚜렷한 기지재가 존재하지 않는 경우도 있으므로, 가공 공정에 따른 형태학적 특성이 기계적 물성에 많은 영향을 미친다.

본 연구에서는 PA 수지의 우수한 물성과 PP 수지의 낮은 수분 흡수율 및 우수한 가공성 등의 장점을 이용하고 두 수지의 단점을 보완할 수 있는 복합재료를 제조하기 위하여 이들 수지 혼합물과 유리섬유로 구성된 GF/PA/PP 삼성분계 복합재료의 제조에 관한 연구를 시도하였다. 이미 보고한 연속섬유를 함침 및 코우팅시키는 인발수지 함침장치[20] 내의 로울러들을 개조한 후, 이를 이용하여 유리섬유와 PA 수지의 강화형 연속섬유를 제조한 다음, 일정 길이로 절단하여 master batch 펠렛을 만들었다. 여기에 PP 수지를 적당량 부가하여 압출 성형과 압축 성형을 통해 원하는 조성의 GF/PA/PP 복합재료를 제작한 후 이들의 형태학적 특성과 기계적 특성을 조사하였다. 특히, 형태학적 관점에서 두 고분자 사이의 상용성을 증진시켜 분산도를 높이고 구조적 안정성을 기하기 위하여 상용화제로 무수말레산(maleicanhydride, MA)을 도입하여 복합재료를 제조하고 이들의 제특성들도 비교 검토 하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 재료 선정

본 연구에서는 동양나일론의 PA 수지와 LG-Caltex의 PP 수지를 기지재로 사용하였고, 이때 PP 수지는 수지함침장치 내에서 가공성을 향상시키기 위하여 점도를 용융지수(Melt Index, MI)가 60이 되도록 재가공하여 이용하였다. 강화용 섬유는 한국베트로텍스사의 유리섬유를 선택하여 GF/PA/PP 복합

Table 1. List of raw materials

Material	Commercial Description	Suppliers	Comments
PA 6	1011R	Tongyang Nylon Co. Ltd.	Resin
PP	H320	LG-Caltex	Resin
Glass fiber	RO99 2200 P122	Hankuk Vetrotex Ltd.	Roving

재료를 제조하였으며, 이때 사용된 각각의 수지와 유리섬유의 제조사 및 상품명은 Table 1에 수록하였다.

GF/PA/PP 복합재료의 분산성을 향상시키고 구조적 안정성을 얻기 위하여 PP 수지 100 g당 무수말레산과 개시제인 벤질 퍼옥사이드(benzoyl peroxide, BPO, Fluka Co.)를 각각 1 g의 비율로 취하여 잘 섞은 다음 세개의 가열영역을 갖는 이축압출장치(Haake Co.)에서 140°C, 180°C, 200°C로 각각의 배럴 온도를 고정하고, 다이 온도 200°C 및 스크류 회전속도 30 rpm의 조건에서 PP-g-MA를 제조하였다. PP-g-MA의 그래프트 반응은 문헌[26, 27]을 참조하여 온도 140°C의 크실렌(xylene) 용액에서 PP-g-MA를 녹인 후, 미반응된 MA를 추출 제거하고, FTIR로 1750 cm<sup>-1</sup> 전후의 카르보닐기(C=O)의 흡수 피크를 통해 MA가 PP 수지에 그래프트된 것을 확인하였으며, 이때의 그래프트율은 약 0.3 wt% 이었다.

### 2.2. 복합재료의 제조

PA 수지, PP 수지와 유리섬유로 구성되는 복합재료를 제조하기 위하여 먼저 단일축 압출장치의 다이 헤드에 연속섬유를 함침 및 코우팅시키는 인발수지 함침장치를 부착하고 GFPA 및 GFPP 강화용 연속섬유를 제조하였는데, 이때의 유리섬유 함량은 각각 약 42 wt%와 53 wt% 이었다. 이를 일정 길이(6 mm)로 절단한 후, GFPA master batch에는 PA 수지, PP 수지 및 PP-g-MA를 각각 부가하였고, GFPP master batch에는 PP 수지를 첨가하여 유리섬유 함량을 조절하였다. 이축압출장치(Haake Co)에 T-die를 부착하여 두께 약 1 mm의 sheet형 복합재료를 제조한 다음, 시편 절단기를 이용하여 기계방향의 인장 시편을 제조하였고, 직경 3 mm의 round die를 이용하여 압축 성형 공정에 이용하기 위한 펠렛을 제조하였다. 굴곡특성 및 충격특성용 시편은 round die를 통해 제조된 펠렛을 단면이 150 mm×150 mm, 두께 3 mm 인 금형내에 압력을 일정하게 유지시킨 후, 압축성형하여 GF/PA/PP 복합재료를 제조하였다. 각각의 제조 공정은 Fig. 1에 도시하였고, 복합재료 시편들에 관한 명칭과 조성은 Table 2에 소개하였으며, 성형조건은 Table 3에 수록하였다.

### 2.3. 형태학적 특성

GF/PA/PP 복합재료들의 형태학적 특성 연구를 위하여 인장 특성 실험 후, 각 시편들의 파단면을 금으로 코팅한 다음 주사 전자현미경(SEM, Model XL-30, Philips Co.)으로 관찰하였다.

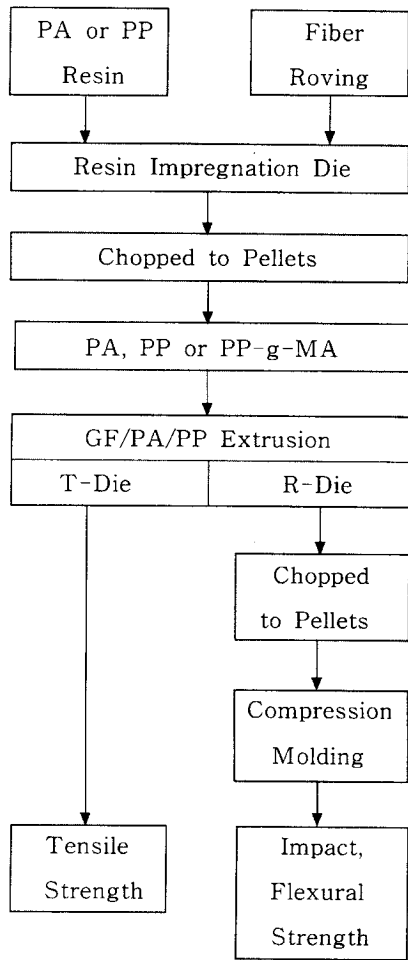


Fig. 1. Manufacturing processes of GF/PA/PP composites.

Table 2. Compositions of GF/PA/PP composites

Designation	Description	Composition			
		GF	PA	PP	PPMA
GFPP	Roving GF+PP by pultrusion resin impregnation apparatus	10		90	
		20		80	
		30		70	
		40		60	
GFPA	Roving GF+PA6 by pultrusion resin impregnation apparatus	10	90		
		20	80		
		30	70		
GFPAPP	GFPA+PP	10	13.8	76.2	
		20	27.6	52.4	
		30	41.4	28.6	
GFPAPPMA	GFPA+PPMA	10	13.8		76.2
		20	27.6		52.4
		30	41.4		58.6

2.4. 기계적 특성

인발수지 함침장치로 제조한 복합재료의 인장 및 굴곡 특성은 만능 재료시험기(Universal Testing Machine, Model SFM-20, United Calibration Co.)를 이용하여 측정하였다. 인장 특성

Table 3. Processing conditions

Extrusion		Single screw extrusion (Continuous fiber)		Twin screw extrusion (Blending)	
		PP	PA	GFPP	GF/PA/PP
Temperature (°C)	Feed section	175	220	175	220
	Transition section	200	240	185	235
	Metering section			205	230
	Die	190 <sup>a</sup>	240 <sup>a</sup>	190 <sup>b</sup>	225 <sup>b</sup>
Screw speed (rpm)		15.0	25.0	10~15	
Take up speed(m/min)		1.5		1	

a: Temperature of the resin impregnation die.

b: Temperature of the extruder die.

및 굴곡 특성의 경우 각각의 cross head speed는 2 mm/min와 10 mm/min로 수행하였다.

Izod 충격 특성은 압축성형을 통하여 제조한 두께 3 mm의 시험편을 60 mm×12.7 mm로 절단한 후, Izod 충격 시험기 (Amityville, U.S.A, model 43-02, Testing Machines INC.)를 이용하여 2 mm notch를 준 시험편에 대하여 고정된 시험편에 해머로 1회 충격을 주어 파괴 되었을 때의 충격에너지를 측정하였다. 각각의 측정치는 5개의 시험편을 조사하여 평균값을 취하였다.

3. 결과 및 검토

3.1. 형태학적 특성

인발수지 함침장치 및 이축압출장치를 통해 제조한 복합재료 시험편에 대하여 인장 특성을 조사한 후, 파괴된 파단면에 관해 모폴로지의 변화를 주사전자현미경으로 관찰한 사진을 Fig. 2와 3에 나타내었다. GFPA 및 GFPP 복합재료의 형태학적 특성을 나타낸 Fig. 2(a)와 (b)에서 보는 바와 같이 유리섬유는 기지재인 PA 수지 및 PP 수지에 손상없이 고르게 잘 분산되어 있다. 유리섬유의 표면은 매끄럽게 보이고, 각각의 기지재 바닥면으로 부터 뿜혀 나오게된 섬유의 길이는 GFPA 및 GFPP 복합재료에서 상당한 차이가 있음을 알 수 있다. 이는 유리섬유와 각각의 수지들 사이의 계면 결합력 차에 의한 결과로 생각되어, 배율을 높혀 유리섬유의 표면 상태를 조사하였다. 유리섬유가 PA 수지로 함침된 Fig. 2(c)의 경우 유리섬유는 PA 수지로 잘 함침되어 뿜혀 나온 상태에서도 유리섬유 표면에 수지가 붙어 있으나, 비극성인 PP 수지로 함침된 Fig. 2(d)의 경우 유리섬유 표면에 PP 수지가 거의 붙어 있지 않았다. 이 결과는 유리섬유와 PA 수지간의 계면에 젖음성과 접착력이 좋기 때문에 상용성이 있다는 Benderly와 Siegmann[21,22], Sawyer와 Grubb[28]의 보고 내용 및 PP 수지와 유리섬유 상간에 표면 접착력이 거의 없다고 보고한 Gibson[15]의 내용과 잘 일치한다.

또한, GFPA master batch에 PP 수지와 PP-g-MA를 각각 부가한 GFPAPP 및 GFPAPPMA 복합재료의 형태학적 특성을 나타낸

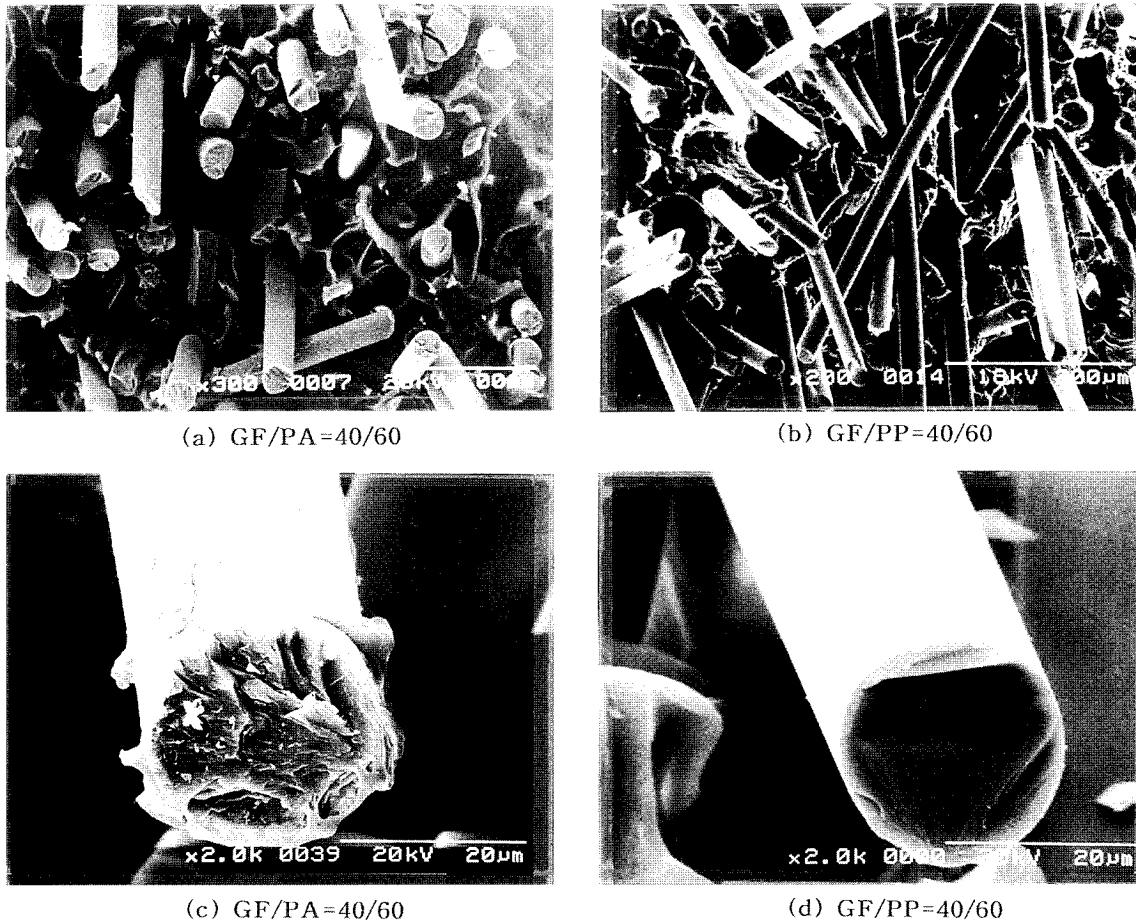


Fig. 2. Scanning electron micrographs for tensile fractured surface of GFPA and GFPP composites.

Fig. 3을 보면, 상용화제의 유무에 관계 없이 기지재인 두 수지상 내에 유리섬유는 고르게 잘 분산되어 있으나 각각 수지들의 혼합 형태는 상용화제의 존재 여부에 따라 크게 차이가 있었다.

Fig. 3(a)와 (b)는 기지재내에 PA 수지가 분산상인 경우를 나타낸 것이다. 먼저, GFPA master batch에 순수한 PP 수지를 첨가한 Fig. 3(a)를 보면 기지재인 PP 수지내에 분산상인 PA 수지가 연신되어 불균일한 크기의 섬유상 형태로 존재하거나 이들이 파괴 및 절단시 빠져나간 흔적들이 군데군데 나타남을 볼 수 있다. 이러한 섬유상의 수지 형태는 PA 수지와 PP 수지 상간의 상대적인 부피비가 막대형 미세구조 형성에 알맞고 여기에 계면 접착력의 결함 때문에 수지가 분리되면서 만들어진 것으로 생각된다. 또한, 일부 유리섬유 표면에는 수지가 붙어 있지 않아 유리섬유와 상용성이 있는 PA 수지라도 PP 수지가 혼합되면서 부분적으로 유리섬유 표면에서 이탈되어 버림을 알 수 있다. 이러한 결과는 먼저 유리섬유와 상용성이 있는 PA 수지로 유리섬유를 함침시켜 GFPA master batch를 제조한 다음 비극성인 PP 수지를 두 번째 단계에 도입하더라도 가공 공정 중에 부가된 전단력 때문에 국부적인 혼합상태가 달라질 수 있음을 의미한다. Benderly와 Siegmann[21,22]은 GF/PA/PP 복합재료 제조시 각 성분의 혼합 순서를 달리하여 가공하

여도 비극성인 PP 수지 보다 큰 극성기를 갖는 PA 수지가 가공 공정 동안에 유리섬유의 표면 근처로 이주(migration)하여 유리섬유 표면에 PA 수지가 존재한다고 보고한 내용과는 잘 일치하지 않는 것으로서 보다 심층적인 연구가 요구된다.

한편 개질된 PP-g-MA를 부가한 Fig. 3(b)의 경우를 보면 기지재내에 분산상인 PA 수지와 기지재인 PP 수지를 구별하기가 어려울 정도로 수지간 혼합이 잘 되어있음을 알 수 있다. 이 같은 결과는 예견된 것으로서 PA/PP 블렌드에 상용화제를 첨가하였을 경우 분산상의 형태가 너무 미세해져 두 상을 구분할 수 없기 때문이며, 문헌의 보고 내용과도 일치한다[12]. 또한, 유리섬유 표면에 여전히 수지가 붙어 있음을 관찰할 수 있는데, 이 사실은 MA를 상용화제로 사용하여 PP 수지를 개질시키더라도 이들 PA 수지와 PP 수지 사이의 계면 결합력은 유리섬유와 PA 수지 상간의 결합력 보다 낮아 파괴시에 두 수지 상 사이에서 분리가 일어남을 의미한다.

Fig. 3(c)와 (d)는 분산상인 PP 수지인 경우의 SEM 사진을 나타내었다. Fig. 3(c)를 보면, 기지재면에 유리섬유가 길게 뿔려 있거나 군데군데 빠져나간 자국들을 볼 수 있으나, 기지재내에 PA 수지와 PP 수지 상간의 구별은 어려웠으며, Fig. 3(a)에서 나타난 섬유형 분산상은 많지 않았다.



Fig. 3. Scanning electron micrographs for tensile fractured surface of GFPAPP and GFPAPPMA composites.

PP-g-MA를 부가한 Fig. 3(d)의 경우도 Fig. 3(b)에 비하여 PA 수지가 주성분으로 되면서 유리섬유는 짧게 절단되어 있음을 볼 수 있는데, 이로부터 각각의 수지 및 유리섬유와 두 수지간에 결합력이 더욱 증가되었음을 알 수 있다. 결국 PP 수지가 주성분인 Fig. 3(a)와 (b) 및 PA 수지가 주성분인 Fig. 3(c)와 (d)는 섬유 형태나 두 수지의 미세 구조가 다르게 형성되어 있음을 보여주고 있는데 이 결과로 부터 가공공정 및 조건뿐만 아니라 조성에 따라서도 형태학적 특성이 달라지게 되며 제품의 물성이 큰 영향을 받을 수 있을 것으로 생각된다.

### 3.2. 기계적 특성

제조된 GF/PA/PP 복합재료의 인장특성을 유리섬유 함량에 따라 Fig. 4에 도시하였다. 인장강도 시험 결과를 나타낸 Fig. 4(a)를 보면 GFPP 복합재료의 경우 유리섬유의 보강효과를 나타내지 못하고, 인장강도가 유리섬유의 함량이 낮은 범위에서는 순수한 PP 수지와 유사한 값을 나타내지만 유리섬유의 함량이 30 wt% 이상이 되면 순수한 PP 수지 보다도 저하됨을 관찰할 수 있었다. 이는 Fig. 2(b)의 모폴로지 결과에서 이미 예

견하였던 바와 같이 유리섬유와 PP 수지 사이에는 상용성이 없어 강화제와 기지재 사이에 응력 전달이 효과적으로 일어나지 못하였기 때문에 생각되고, 비극성인 PP 수지에 유리섬유나 유리구슬을 첨가하여도 기계적 특성이 감소한다고 보고한 Gibson[15]과 Sjogren[29]의 내용과도 일치한다. 또한, 이들은 PP 수지에 강화제로 유리섬유나 유리구슬을 첨가하여 기계적 특성을 향상시키기 위해서는 PP 수지를 무수말레산이나 아크릴산 등으로 개질된 수지를 사용하거나, 강화제를 PP 수지 용으로 적절하게 표면 처리하여 두 상간의 상용성과 계면 접착력을 부가하여야 기대하는 보강 효과를 얻을 수 있다고 보고하였다. 그러나, GFPA 복합재료의 경우는 유리섬유의 함량에 따라 인장강도가 크게 증가됨을 볼 수 있다. 이 사실은 형태학적 특성을 관찰한 Fig. 2(a)와 잘 일치되는 결과로 유리섬유와 PA 수지 사이의 계면에서 좋은 젖음성에 의한 접착력 때문에 인장강도가 향상된 것으로 이해되고, 유리섬유와 기지재로 사용된 PP 수지 및 PA 수지 간의 상용성에 의한 보강성 결과는 문헌의 보고 내용과도 일치한다[15,21,22,27,29]. 또한, GFPAPP 복합재료의 경우 GFPP 복합재료 보다 인장강도가 약

간 증가 하고 GFPA 복합재료보다는 크게 감소하였으나, GFPAPPMA 복합재료의 경우 GFPAPP 복합재료 보다 유리섬유 함량에 따라 인장강도가 증가함을 알 수 있고, 특히 기지재 내에 PA 수지가 주성분인 유리섬유 함량이 30 wt% 일때는 인

장 강도가 더욱 크게 향상됨을 볼 수 있다. 이는 시험 전 범위에 걸쳐 상용화제인 MA의 첨가효과에 의해 카르복실기와 유리섬유 사이의 화학 결합이 유도되고[30], PA 수지와 PP 수지 상간의 상용성[4] 향상 및 기지재내의 주성분이 PP 수지에서

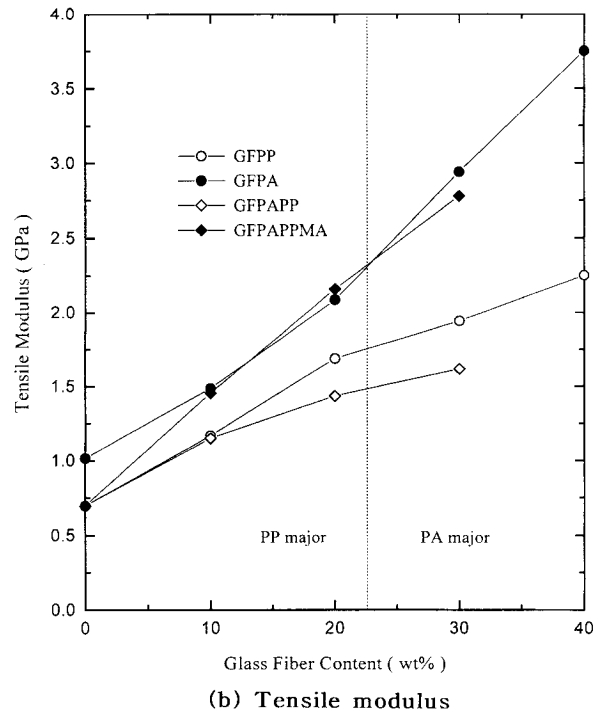
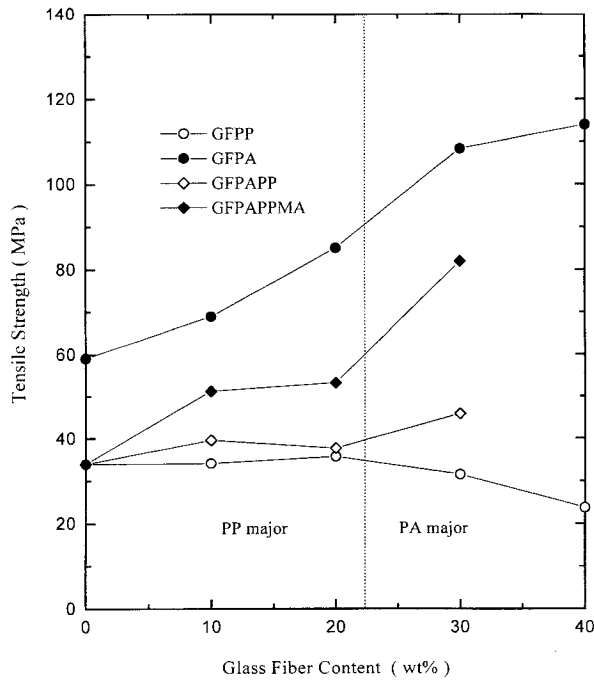


Fig. 4. Tensile properties of composites as a function of glass fiber content.

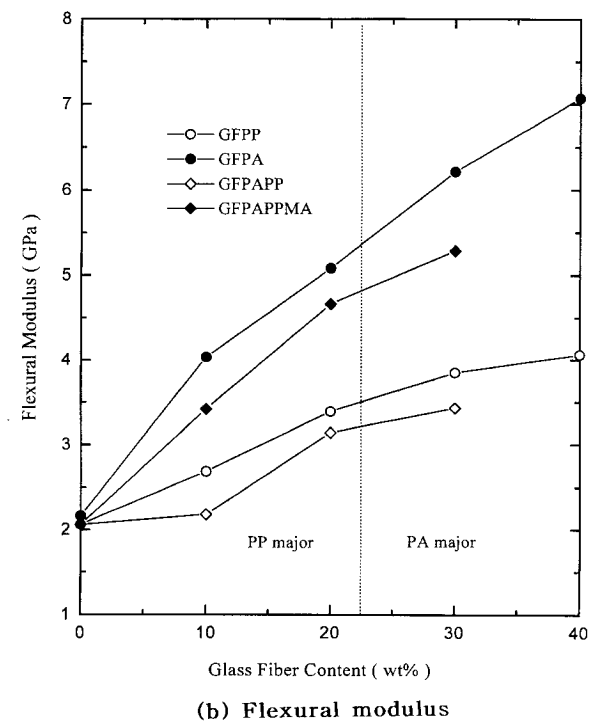
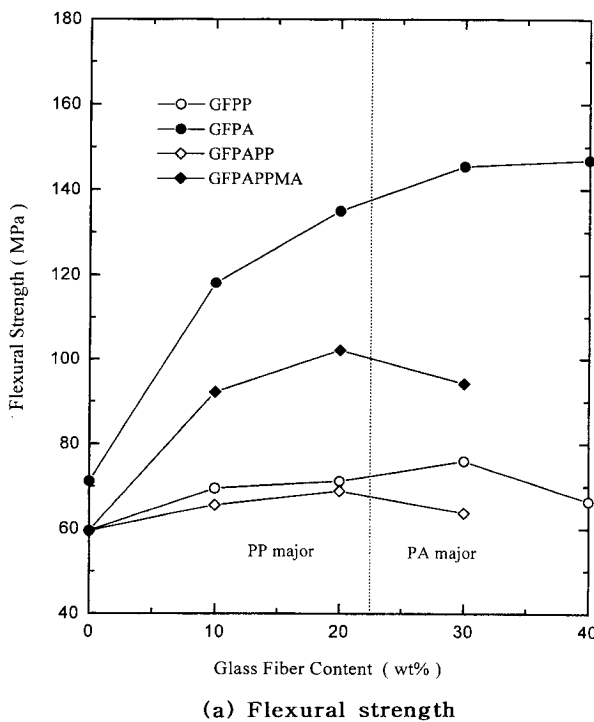


Fig. 5. Flexural properties of composites as a function of glass fiber content.

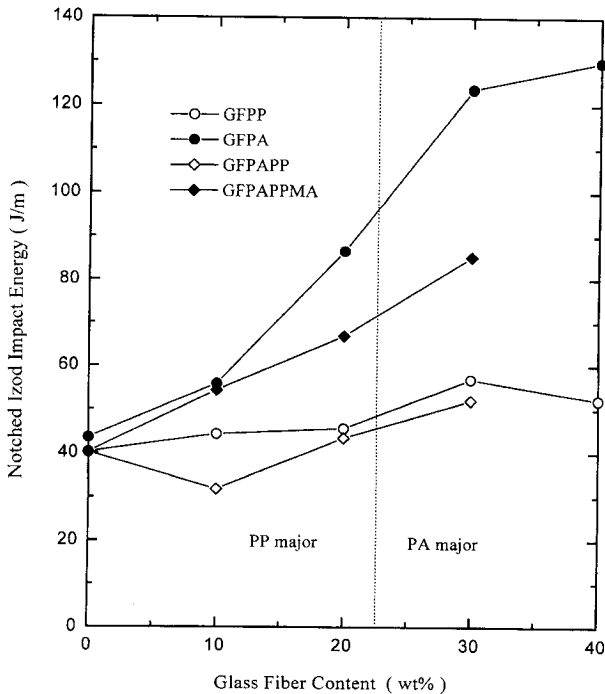


Fig. 6. Notched Izod impact energy of composites as a function of glass fiber content.

PA 수지로 서로 바뀌었기 때문에 유리섬유와의 젖음성이나 계면 접착력이 좋은 PA 수지가 유리섬유 주변을 둘러 싸아 응력 전달이 효과적으로 일어날 수 있기 때문으로 생각된다.

Fig. 4(b)에는 유리섬유 함량에 따라 각각의 복합재료에 관한 인장 탄성률을 나타내었는데, Fig. 4(a)에 나타난 인장강도와는 달리 GFPP와 GFPAPP 복합재료계의 인장 탄성률은 섬유 함량에 따라 큰 폭으로 증가하고 있음을 볼 수 있다. 이는 인장강도와는 달리 인장 탄성률은 초기 변형률에 대한 응력의 비로서 응력 전달에 의한 효과 보다는 강화제로 사용된 유리섬유의 탄성률 자체가 변형 초기에 지배적으로 작용하였기 때문으로 생각된다. GFPA와 상용화제가 도입된 GFPAPPMA 복합재료계의 경우도 인장 탄성률은 유리섬유 함량에 따라 거의 직선적으로 증가함을 볼 수 있고, 모든 실험 범위내에서 두 복합재료는 거의 유사한 값을 갖고 있음을 알 수 있다. 이 결과는 매우 흥미있는 것으로서 개질된 PP 수지가 28.6 wt%에서 76.2 wt%까지 PA 수지에 첨가되더라도 PA 수지와 동일한 수준의 탄성률을 보여 주고 있어 계면 결합력만 증가시킨다면 큰 불성저하 없이 두 가지 수지의 장점을 갖는 보다 더 경제적인 복합재료 제조가 가능함을 의미한다.

Fig. 5에는 계면 특성이나 섬유의 길이 분포에 더 민감한 복합재료의 굴곡 특성을 유리섬유 함량에 따라 나타내었다. 각각의 복합재료에 관한 굴곡강도를 나타낸 Fig. 5(a)를 보면, GFPP와 GFPAPP 복합재료계의 굴곡강도는 인장강도 결과와 같이 유리섬유 함량의 증가에 따른 보강 효과가 크게 나타나지 않았으나, GFPA와 GFPAPPMA 복합재료계의 경우는 굴곡강도가 유리섬유 함량이 10 wt%인 경우 순수한 수지에 비해

큰 폭으로 증가하였으나 20 wt% 이상에서는 유리섬유 함량의 증가에 따라 완만하게 향상되다 오히려 약간 감소하였다. 그러나 굴곡 탄성률을 나타낸 Fig. 5(b)를 보면, 유리섬유 함량 증가에 따라 각각의 복합재료들에 대한 굴곡 탄성률은 인장 탄성률에서 설명한 바와 같이 큰 폭으로 증가하였다.

Fig. 6은 복합재료들의 Izod 충격 특성을 나타낸 결과이다. 앞에서 살펴본 인장특성 결과(Fig. 4)와 유사한 거동을 나타내고 있으며, 유리섬유 함량 증가에 따라 GFPA와 GFPAPPMA 복합재료의 경우 순수한 수지들 보다 충격 에너지가 크게 향상되었으나, GFPP와 GFPAPP 복합재료의 경우는 유리섬유에 의한 보강 효과가 크지 않았다. 이러한 사실은 분산상과 연속상의 계면이 완전히 분리되지 않고 좋은 접착성을 보이는 경우 외부에서의 충격이 계면을 통해 분산상으로 전달되고 분산상에서 이를 흡수할 수 있게 되지만, 계면이 분리되어 있고 상용성이 없는 경우에는 계면이 오히려 균열(crack)의 시작점으로 작용해서 충격흡수가 이루어지지 않고 파괴를 촉진하는 결과를 가져오기 때문으로 사료된다[31]. 또한, GFPAPPMA 복합재료의 경우 상용화제로 사용된 MA에 의해 각각의 성분들 간에 상용성이 증대되어 GFPAPP 복합재료보다 더욱 향상된 충격에너지를 보인 것으로 해석된다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 인발수지함침장치와 이축압출장치를 이용하여 GF/PA/PP 복합재료들을 제조한 후, 형태학적 특성 및 기계적 특성 변화를 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

제조된 복합재료의 형태학적 특성을 관찰한 결과 기지재내에 유리섬유는 손상없이 고루 잘 분산되어 있었고, 유리섬유 표면에 주로 PA 수지가 존재하는 것으로 보아 유리섬유와 PA 수지간에는 상용성이 있음을 확인할 수 있었다. 그러나, GFPP 복합재료의 경우 PP 수지에 적합하지 않은 유리섬유를 사용하였기 때문에 비극성인 PP 수지와 유리섬유는 상용성이 없음을 알 수 있었고 이로 인해 유리섬유와 PP 수지간에 응력 전달이 효과적으로 이루어지지 않아 기대하는 기계적 특성의 결과를 얻지 못하였다. GFPAPP 복합재료의 경우 두 수지의 조성비에 따라 기지재 안에 분산상의 형태는 다르게 존재함을 볼 수 있었다. 특히, 상용화제가 첨가된 GFPAPPMA 복합재료에서는 분산상의 입자가 작아 두 상을 구분할 수 없을 정도로 잘 혼합되어 있었으며, 섬유와 수지 사이의 계면 결합력이 증가하여 기계적 특성이 크게 향상되었다. 이상의 결과로부터 상용성이 있는 복합계를 구성한 후, 적절한 가공공정 및 가공조건 하에서 인발수지함침장치를 이용하여 복합재료를 제조할 경우 원하는 높은 기계적 특성을 갖는 블렌드나 복합재료의 창출이 가능함을 확인할 수 있었다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국과학재단(96-0502-06-01-3)의 부분적인 재정

지원에 의해서 수행된 결과이며, 연구비를 지원해준 동 재단에 감사드립니다.

### 참고문헌

1. S. Wu, *J. Appl. Polym. Sci.*, **21**, 699 (1983).
2. S. Cimmino, *Polym. Eng. Sci.*, **24**, 48 (1984).
3. S. Y. Hobb, R. C. Bopp, and V. H. Watkins, *Polym. Eng. Sci.*, **23**, 380 (1983).
4. F. Ide and A. Hasegawa, *J. Appl. Polym. Sci.*, **18**, 963 (1974).
5. L. A. Utracki, M. M. Dumoulin and P. Toma, *Polym. Eng. Sci.*, **26**, 34 (1986).
6. H. K. Chung and C. D. Han, *J. Appl. Polym. Sci.*, **30**, 2457 (1985).
7. G. Serpe, J. Jarrin and F. Dawans, *Polym. Eng. Sci.*, **30**, 553 (1990).
8. K. Min, J. L. White and J. F. Fellers, *Polym. Eng. Sci.*, **24**, 1327 (1984).
9. J. M. Willis and B. D. Favis, *Polym. Eng. Sci.*, **28**, 21 (1988).
10. C. C. Chen, E. Fontan, K. Min and J. L. White, *Polym. Eng. Sci.*, **28**, 69 (1988).
11. A. Gonzalez-Montiel, H. Keskkula and D. R. Paul, *J. Polym. Sci., Part B: Polym. Phys.*, **33**, 1751 (1995).
12. R. Holsti-Miettine, J. Seppala and O. T. Ikkala, *Polym. Eng. Sci.*, **32**, 868 (1992).
13. V. B. Gupta, R. K. Mittal, P. K. Sharma, G. Mennig and J. Wolters, *Polym. Compos.*, **10**, 8 (1989).
14. V. B. Gupta, R. K. Mittal, P. K. Sharma, G. Mennig, and J. Wolters, *Polym. Compos.*, **10**, 16 (1989).
15. A. G. Gibson, In "Polypropylene", J. Karger-Kocsis, ed., Chapman & Hall, London (1995).
16. M. J. Carling and J. G. Williams, *Polym. Compos.*, **11**, 307(1990).
17. F. Ulrych, M. Sova, J. Vokrouhlecky, and B. Turcic, *Polym. Compos.*, **14**, 229 (1993).
18. R. S. Bailey, M. Davies and D. R. Moore, *Composites*, **20**, 453 (1989).
19. M. G. Wyzgoski and G. E. Novak, *J. Mater. Sci.*, **26**, 6314 (1991).
20. D. Benderly and A. Siegmann, *Polym. Compos.*, **17**, 86 (1996).
21. D. Benderly and A. Siegmann, *Polym. Compos.*, **17**, 343 (1996).
22. B. S. Yoon, S. H. Lee and M. H. Suh, *Polym. Compos.*, **18**, 656 (1997).
23. A. K. Gupta, *J. Appl. Polym. Sci.*, **27**, 4689 (1982).
24. F. Avalos, *J. Polym. Eng.*, **9**, 157 (1990).
25. J. L. White, In "Polymer Blends and Mixtures", D. J. Walsh, J. S. Higgins, A. Maconnachie, ed., Dordrecht, Netherlands, (1985).
26. F. Ide, K. Kamade, and A. Hasegawa, *Kobunshi Kagaku*, **25**, 107 (1968).
27. A. S. Bratawidjaja, I. Gitopadmoyo, Y. Watanabe, and T. Hatakeyama, *J. Appl. Polym. Sci.*, **37**, 1141 (1989).
28. L. C. Sawyer and D. T. Grubb, In "Polymer Microscopy", Chapman & Hall London (1987).
29. B. A. Sjogren and L. A. Berglund, *Polym. Compos.*, **18**, 1 (1997).
30. M. Xanthos, J. Greci, S. H. Patel, C. Jacob, S. Dey, and S. S. Dagli, *Polym. Compos.*, **16**, 204 (1995).
31. M. Joshi, S. N. Maiti, A. Misra and R. K. Mittal, *Polym. Compos.*, **15**, 349 (1994).