

2차원 타원형의 충전제를 함유하는 복합재료의 열팽창 계수 연구

이기윤[†] · 김경환 · 정선경* · 전형진** · 주상일

충남대학교 고분자 바이오재료공학과, *자동차부품연구소, **엔브이에이치코리아(주)
(2007년 1월 23일 접수, 2007년 2월 28일 채택)

Study on the Coefficient of Thermal Expansion for Composites Containing 2-Dimensional Ellipsoidal Inclusions

Kee Yoon Lee[†], Kyung Hwan Kim, Sun Kyoung Jeoung*,
Hyoung Jin Jeon**, and Sang Il Joo

Department of Polymer and Biomaterial Engineering,
Chungnam National University, Daejeon, Korea

*Korea Automotive Technology Institute, Chonan, Korea

**NVH Korea Test & Research Team Research Engineer,
Hwasung-Si, Gyeonggi-Do, Korea

(Received January 23, 2007; accepted February 28, 2007)

초록 : 이 논문은 하나의 좌표축과 하나의 종횡비($\rho_a = a_1/a_3$)를 갖는 2차원적 형태의 섬유 형태($a_1 > a_2 = a_3$) 그리고 디스크 형태($a_1 = a_2 > a_3$)의 충전제의 기하학적 형상에 따른 복합체의 열팽창 계수의 변화를 예측하기 위한 모델을 제시한다. 분석은 Eshelby의 equivalent 텐서의 일반적인 접근과 Lee와 Paul의 접근 방식을 이용하여 이미 개발된 탄성 모듈러스의 전개 과정을 따른다. 배열된 등방성 충전제를 포함하는 복합체의 열팽창 계수의 영향이 종횡비에 따라 조사되었다. 이 모델은 복합체를 해석하기 위해서 한쪽 방향으로 배열된 충전제이어야 하며, 균일한 물성의 기지재와 충전제가 완전한 결합을 하고 있다는 가정 하에서 연구된다. 복합체의 열팽창 계수는 배열된 종단방향(α_{11})과 횡단방향(α_{33})으로 조사되었다. Chow와 Tandon 그리고 Weng이 발표한 에폭시 수지와 유리 섬유의 복합체의 재료특성 데이터로부터 종횡비에 따른 열팽창 값을 얻을 수 있었다. 종횡비가 증가함에 따라 길이 방향의 열팽창 계수 α_{11} 는 감소하여 충전제의 열팽창 계수에 접근한다. 그러나, 횡단방향의 열팽창 계수 α_{33} 는 증가 또는 감소하는 경향을 보인다. 충전제의 함량이 증가함에 따라 복합체의 열팽창 계수는 감소하여 충전제의 열팽창 계수에 수렴한다.

Abstract : This paper proposes a model for the solutions predicting the coefficient of thermal expansion of composites including fiber-like shaped ($a_1 > a_2 = a_3$) and disk-like shaped ($a_1 = a_2 > a_3$) inclusions like two dimensional geometries, which was analyzed by one axis and a single aspect ratio, $\rho_a = a_1/a_3$. The analysis follows the procedure developed for elastic moduli by using the Lee and Paul's approach. The effects of the aspect ratio on the coefficient of thermal expansion of composites containing aligned isotropic inclusions are examined. This model should be limited to analyze the composites with unidirectionally aligned inclusions and with complete binding to each other of both matrix and inclusions having homogeneous properties. The longitudinal coefficients of thermal expansion α_{11} decrease and approach the coefficient of thermal expansion of filler, as the aspect ratios increase. However, the transverse coefficients of thermal expansion α_{33} increase or decrease with the aspect ratios.

Keywords : composite, eshelby, two-dimension, disk-like, fiber-like, aspect ratio, linear thermal expansion.

서 론

선팽창 계수는 설계나 사용을 목적으로 할 때 온도의 변화에 따

른 부가되는 응력이나 두 물질의 접착에 따른 변형 발생과 관련된 중요한 물리적 특성이다. 대부분의 모든 물질이 온도의 상승에 따라 팽창을 하며 이를 열팽창(thermal expansion)이라 칭한다. 재질에 따라 열팽창의 차이가 존재하며, 이는 열팽창 계수(coefficient of thermal expansion)로 나타내고 있다.

[†]To whom correspondence should be addressed.
E-mail: kylee@cnu.ac.kr

복합재료를 구성하고 있는 요소들의 열팽창이 모두 동일하면 그에 대한 물성예측은 용이하지만, 일반적인 복합재료를 이렇게 구성하기가 어렵다. 따라서 각 요소들의 서로 다른 열팽창 계수를 정확히 분석하고, 해석하는 것이 필요하다. 추후 본 연구에서 시도하고 있는 이론적인 접근이 복합재료의 이해와 설계하는데 필요할 것이다.

최근에 Lee 와 Paul의¹ 타원 형태의 충전제의 복합체 내에서 영률 (Young's modulus)의 거동을 열팽창 이론으로 발전되었다. Tandon 과 Weng,² 그리고 Chow의^{3,4} 연구도 유용하게 사용되었다. 현실적으로는 열팽창을 이론적으로 연구할 때 실제 복합재료에서 충전제의 길이와 두께가 일정하지 않고 고분자 수지 내부에 완벽하게 분산되지 않는다. 충전제와 고분자 수지간의 계면에서의 접촉은 불완전하며, 사출 공정시 모든 충전제가 흐름 방향으로 모두 배열되지 않는다. 반면에 이론적 연구에서는 충전제의 크기는 동일한 형태를 가지며 배향방향은 사출의 흐름방향과 일치한다. 또한 충전제와 고분자 수지간의 계면에서의 접촉은 완벽하고, 상호작용은 무시한다. 이와 같은 복합재의 불균일한 특성을 단순화시키는 가정 하에서 복합재료에 작용하는 역학적 이론에 관한 연구가 발전되었다. 종단방향과 횡단방향의 사출-몰드의 시편에 대해서는 Yoon 등이⁵ 복잡하게 나타난 충전물의 조각형태의 단면을 보여준다. 그 형상은 구형이 아니며 타원체이고 두께는 얇은 디스크형상이다. 고분자 기지재료 내부의 충전제들이 불규칙한 면을 지니고 있으나 2차원의 해석상 단일 종횡비(aspect ratio)로 가정하여 해석하였다.

본 연구는 Eshelby의 텐서를 이용하여 고분자 기지재료에 결합되어 있는 타원형태의 충전제의 거동을 분석하고, Lee와 Paul 과¹ Tandon과 Weng의² 단성 해석을 적용하여 열응력에 의한 복합재료의 열팽창 거동을 에폭시와 유리섬유를 첨가시킨 복합체에 적용하여 2차원을 모델로 단순화하여 이론적인 해석을 하였다. 충전제의 고분자 기지재료 내부에서의 각 변수에 따른 종단방향과 횡단방향 및 부피 열팽창 계수의 거동에 대한 이론적인 접근을 제시하였다.

이 론

해석 모델. 복합체는 성분이나 형태가 다른 두 종류 이상의 재료가 거시적으로 균일하게 조합되어 유효한 성능을 갖는 재료이다. 복합재료의 구성은 충전제와 기지재료로 이루어져 있다. 복합재료에 사용되는 충전제의 형태는 Figure 1에서 보듯이 흐름방향의 종단방향과 그와 직교하는 횡단방향의 길이 비인 μ (종횡비 aspect ratio ; $=a_1/a_3$)에 따라 분류할 수 있는데, 이 종횡비가 1보다 크면 섬유로, 1과 같으면 구형 입자로, 1보다 작으면 디스크 형태의 입자로 분류할 수 있다. 이를 극대화 하여 섬유 형태와 디스크 형태를 도식화하면 Figure 2와 같아진다.

충전제의 타원형 모델. 충전제의 타원형 모델을 섬유상과 디스크상을 통합적으로 식 (1)과 같이 표현할 수 있다.⁴

$$\frac{x_1^2}{a_1^2} + \frac{(x_2^2 + x_3^2)}{a_3^2} = 1 \tag{1}$$

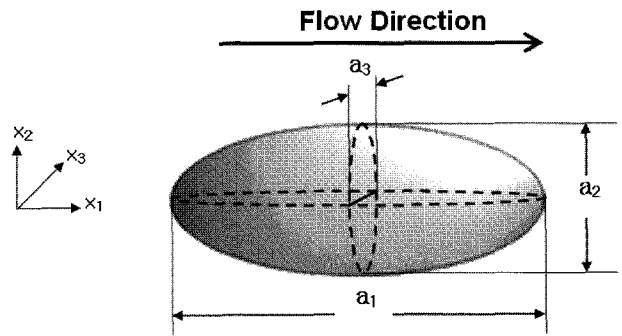


Figure 1. Schematic view of the ellipsoidal inclusions, or filler particles, characterized by a single aspect ratio, $\mu (=a_1/a_3)$ and $a_2=a_3$.

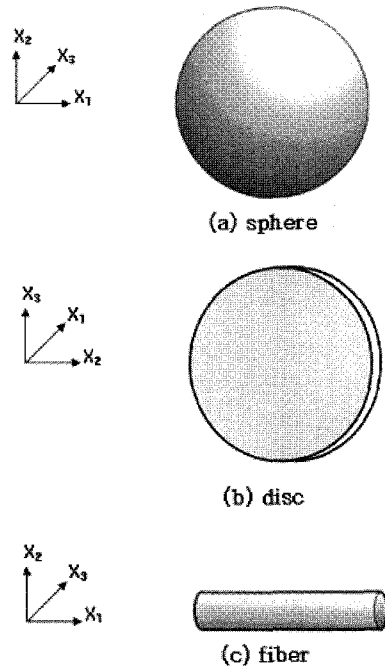


Figure 2. Schematic views of inclusions with the shape of a sphere, disc, and fiber and their orientation relative to sample axes.

여기에서 x_1, x_2 와 x_3 는 Figure 1의 세 가지의 축 방향을 뜻한다. 또한 충전제의 분산은 랜덤하게 분포되어 있고, 거시적으로 복합체를 균일한 상태를 지니고 있다. 마찬가지로 횡단방향으로도 x_1 축과 마찬가지로 등방성을 띠고 있다. 충전제의 종횡비에 의한 섬유 형태와 디스크 형태로 나타나는 실린더 형태의 면적/부피에 관한 관계를 Figure 3에 나타내었다. 그림에서 보여 지는 바와 같이 종횡비가 증가하면 섬유형태를 지니므로 x_2 축의 표면적이 증가한다. 또한 종횡비가 감소하게 되면 디스크형태를 지니며 x_2 와 x_3 축으로 배향하는 효과를 주므로 물성에 영향을 준다. 충전제의 종횡비에 따라 복합재료의 열적 거동이 방향의 영향을 받는 것을 예측할 수 있다.

복합재료는 거시적 관점에서 보게 되면 균일한 물성을 갖는다. Eshelby의 등가원리(Eshelby's equivalent principle)에 따르면,⁶ 응력이 주어 질 때 모든 등방성 충전제들의 탄성 모듈러스는 균일하

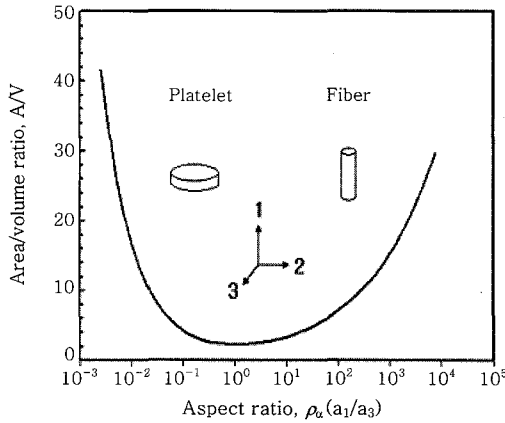


Figure 3. Surface area-to volume ratio(A/V) of a cylindrical particle of given volume plotted vs. particle aspect ratio, $\rho_x (= a_1/a_3)$. Sphere is $\rho_x=1$, fiber is $\rho_x > 1$, and disc is $\rho_x < 1$.

다고 가정하고 이때 균일한 변형을 갖는다. 정확한 정보를 얻기 어려운 내부 충전제의 공간분포를 알 수 없을 뿐 아니라 일정 공간에서는 충전제의 함유량이 평균보다 많을 수도 적을 수도 있다. 따라서 평균 변형만을 고려할 수 있으며 실제로 물성의 불균일은 교란의 방식(perturbation)으로 접근한다.¹ 그 편차는 어떤 함유물이든 존재한다.

복합재의 등방성 함유물이 단방향으로 배열이 되어 있을 때 종단 방향의 열팽창 계수 α_{11} 와 횡단방향의 열팽창 계수 α_{33} 로 표현할 수 있다. 충전제와 기지재료의 선팽창 계수는 각각 α_f 와 α_m 로 표현하며, 열에 의해 변형되는 복합재료의 열변형은 식 (2)와 같이 표현된다.⁶

$$\epsilon_{ij} = (\alpha_f + \alpha_m) \Delta T \delta_{ij} \tag{2}$$

여기서 ΔT 는 온도의 변화를 나타내며 δ_{ij} 는 Kronecker delta 함수이다. 여기서 $i = j$ 이면 $\delta_{ij}=1$ 이고, $i \neq j$ 이면 $\delta_{ij}=0$ 이다.

복합재료의 2차원 해석 모델. 복합체의 표면에 작용되는 균일한 응력이 이상적인 조건에서 균일한 변형을 발생하면, 식 (3)으로 표현된다.

$$\bar{\sigma} = \bar{C} \bar{\epsilon} \tag{3}$$

복합체의 물성은 기지재료와 충전제의 영향을 각각 받으므로 기지재료의 탄성 모듈러스는 C^m 로 표현이 되며 완전하게 같은 방향성을 가지는 타원형 충전제는 C^f 로 표현된다.

일반적으로, 기지재료와 충전제의 관계는 다음과 같이 표현 된다.

$$\sigma^f = C^f \epsilon^f \tag{4}$$

$$\sigma^m = C^m \epsilon^m \tag{5}$$

이때 $\bar{\sigma}$ 는 평균 부피 응력, $\bar{\epsilon}$ 는 평균 부피 변형력, 그리고 \bar{C} 은

복합체의 탄성 모듈러스 텐서를 말한다.

만일 표면에서 수축이 일어나면 복합체가 균일한 상태가 아니므로 거시적으로 균일한 변형 상수는 σ^0 로 표현되며 이것은 복합체의 표면에서 작용한다. 부피 평균 응력 $\bar{\sigma}$ 의 균일 변형은 ϵ^0 로 표현할 수 있다.

복합재 σ^0 에서 순수한 매트릭스일 경우에는 σ^m 과 같이 표현된다. 따라서 단일 기지재료에서의 균일한 스트레인은 ϵ^m 로 표현할 수 있다. 같은 방법으로 복합재의 기지재료의 관계는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\bar{\sigma} = \sigma^m \text{ and } \bar{\epsilon} = \epsilon^m \tag{6}$$

$$\bar{\sigma} = \sigma^m = C^m \epsilon^m \tag{7}$$

이상적인 스트레스와 스트레인을 연결하는 텐서는 A 와 B 로 나타내며, Hill에 의해 concentration tensor로 소개되었다.⁹ Hill의 이론을 도입하면 기지재료와 충전제 사이에서 상응하는 평균 변형과 평균 응력의 관계는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\epsilon^f = A \bar{\epsilon} \tag{8}$$

$$\sigma^f = B \bar{\sigma} \tag{9}$$

이때 A 와 B 는 4차 텐서를 말하며 미시적으로 관찰했을 때 발생하는 문제를 표현할 수 있다.

일반적인 평균 응력은 그에 따른 시스템의 부피를 고려할 때 충분히 $\bar{\epsilon}$ 로 표현할 수 있다. 이것은 엄밀하게 볼 때 ϵ^m 와 일치하지 않는다.

국부적인 응력 $\sigma(x)$ 와 국부적인 변형률인 $\epsilon(x)$ 는 국부적인 곳에서 균일한 구성을 갖는 것은 아니다. 그 위치적인 구분은 x 로 표현을 한다.

또한 이것은 충전제의 존재를 감안할 때 교란된 변형인 $\tilde{\epsilon}^m$ 을 고려해야 한다. 이와 상응하는 평균 교란된 응력은 $\tilde{\sigma}^m$ 로 다음과 같이 표현이 된다.

$$\bar{\epsilon} = \epsilon^m + \tilde{\epsilon}^m \tag{10}$$

$$\tilde{\sigma}^m = C^m \tilde{\epsilon}^m \tag{11}$$

$$\bar{\sigma} + \tilde{\sigma}^m = C^m (\epsilon^m + \tilde{\epsilon}^m) \tag{12}$$

복합체에서 충전제가 존재한다면 반드시 그로 인해 교란된 변형 $\tilde{\epsilon}^f$ 을 고려해야 하며, 이것은 $\epsilon^m + \tilde{\epsilon}^m$ 과 함께 표현할 수 있으므로 다음과 같이 표현이 된다.

$$\bar{\epsilon} = \epsilon^m + \tilde{\epsilon}^m + \tilde{\epsilon}^f \tag{13}$$

이와 마찬가지로 교란된 응력 $\tilde{\sigma}^f$ 는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\bar{\sigma}^f = C^f \bar{\epsilon}^f \quad (14)$$

또한 충전제의 변형 변위에 상응하는 변형은 ϵ^f 으로 표현할 수 있으며, 이것은 Eshelby의 등가 이론에⁶ 따른다. 따라서 충전제와 기지재료 사이에서 일어나는 복합체의 전체적인 변형 관계는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\bar{\sigma} + \bar{\sigma}^m + \bar{\sigma}^f = C^f(\epsilon^m + \tilde{\epsilon}^m + \tilde{\epsilon}^f) = C^m(\epsilon^m + \tilde{\epsilon}^m + \tilde{\epsilon}^f - \epsilon^f) \quad (15)$$

여기에서 ϵ^f 는 Eshelby가 도입한 변형률로서 전환 변형률(Eshelby's transformation strain)로 칭하며 가상적인 값으로 모듈러스의 변화를 변형률로 대체하여 표현한다.

적용된 평균 응력 $\bar{\sigma}$ 이 0일 때 기지재와 충전제의 평균 교란 응력에 의해 다음과 같은 식을 얻을 수 있다.⁷

$$\bar{\sigma}^m + \phi \bar{\sigma}^f = 0 \quad (16)$$

여기서 ϕ 는 충전제의 함량이다. 식 (10)-(12) 그리고 (15)로부터 다음과 같이 간단하게 표현할 수 있다.

$$\bar{\sigma}^f = C^m(\tilde{\epsilon}^f - \epsilon^f) \quad (17)$$

식 (11), (16) 그리고 (17)로부터 임의의 C^m 에 의하여 기지재 안에서 평균 교란 변형 값을 다시 나열하면 다음과 같다.

$$\tilde{\epsilon}^m = \phi(\tilde{\epsilon}^f - \epsilon^f) \quad (18)$$

또한 복합체의 평균 변형 $\bar{\epsilon}$ 는 충전제의 함량과 관계가 있으며 다음과 같다.

$$\bar{\epsilon} = \epsilon^m + \tilde{\epsilon}^m + \phi \tilde{\epsilon}^f \quad (19)$$

식 (18)과 식 (19)에 의하여 다음과 같은 식을 얻을 수 있다.

$$\frac{\bar{\epsilon}}{\epsilon^m} = 1 + \phi \frac{\epsilon^f}{\epsilon^m} \quad (20)$$

전환 변형률 ϵ^f 의 계산. Lee와 Paul은¹ 충전제가 열응력에 의해 일어난 열변형에 관한 식 (15)에서 Eshelby의 텐서⁶ 열응력 거동에 대해 전개하여 충전제의 평균 변화를 나타내는 변형 값인 ϵ^f 를 계산하였다.

$$\bar{\sigma}_{ij}^f = C_{ijkl}^m(\tilde{\epsilon}_{kl}^f - \epsilon_{kl}^f) \quad (21)$$

여기서 $\bar{\sigma}_{ij}^f$ 는 기지재료에 주어지는 평균 변형에 의해 교란된 충전제의 변형 응력을 말한다. 교란된 충전제의 변형 응력 ϵ_{kl}^f 에 의해 Eshelby's 전환 변형 ϵ^f 을 다음과 같이 표시한다.

$$\tilde{\epsilon}_{ij}^f = S_{ijkl} \epsilon_{kl}^f \quad (22)$$

여기서 S_{ijkl} 은 Eshelby가 제안한 등가전환 변형 텐서이며 Appendix에 충전제의 형상에 따라 자세히 기술하였다. 식 (15)는 ϵ_{kl}^f 을 이용하여 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$(C_{ijkl}^f - C_{ijkl}^m)[\epsilon_{mn}^m + (1-\phi)S_{klmn} \epsilon_{mn}^f + \phi \epsilon_{kl}^f] + C_{ijkl}^m \epsilon_{kl}^f = 0 \quad (23)$$

여기에서 기지재료와 충전제의 4차 탄성 텐서는 C_{ijkl}^m 와 C_{ijkl}^f 로 표현하며 이것은 등방성 재료일 경우 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$C_{ijkl}^m = \lambda_m \delta_{ij} \delta_{kl} + \mu_m (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (24)$$

$$C_{ijkl}^f = \lambda_f \delta_{ij} \delta_{kl} + \mu_f (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (25)$$

이때 λ_m, μ_m 와 λ_f, μ_f 는 기지재료와 충전제의 라메 상수이다. Eshelby의 전환 변형률 ϵ_{kl}^f 을 구하기 위해 식 (23)-(25)을 정리하면 식 (26)-(28)과 같이 표현된다.

$$D_1 \epsilon_{11}^0 + \epsilon_{22}^0 + \epsilon_{33}^0 + B_1 \epsilon_{11}^f + B_2 (\epsilon_{22}^f + \epsilon_{33}^f) = 0 \quad (26)$$

$$\epsilon_{11}^0 + D_1 \epsilon_{22}^0 + \epsilon_{33}^0 + B_3 \epsilon_{11}^f + B_4 \epsilon_{22}^f + B_5 \epsilon_{33}^f = 0 \quad (27)$$

$$\epsilon_{11}^0 + \epsilon_{22}^0 + D_1 \epsilon_{33}^0 + B_3 \epsilon_{11}^f + B_5 \epsilon_{22}^f + B_4 \epsilon_{33}^f = 0 \quad (28)$$

여기에서

$$\begin{aligned} B_1 &= \phi D_1 + D_2 + (1-\phi) (D_1 S_{1111} + 2S_{2211}) \\ B_2 &= \phi + D_3 + (1-\phi) (D_1 S_{1122} + S_{2222} + S_{2233}) \\ B_3 &= \phi + D_3 + (1-\phi) [S_{1111} + (1+D_1)S_{2211}] \\ B_4 &= \phi D_1 + D_2 + (1-\phi) (S_{1122} + D_1 S_{2222} + S_{2233}) \\ B_5 &= \phi + D_3 + (1-\phi) (S_{1122} + S_{2222} + D_1 S_{2233}) \end{aligned}$$

그리고

$$\begin{aligned} D_1 &= 1 + 2(\mu_f - \mu_m) / (\lambda_f - \lambda_m) \\ D_2 &= (\lambda_f + 2\mu_m) / (\lambda_f - \lambda_m) \\ D_3 &= \lambda_m / (\lambda_f - \lambda_m) \end{aligned}$$

Eshelby 전환 변형률 (ϵ_{ij}^f) 을 구하기 위해 기본적인 관계식 $\epsilon^m = \epsilon_{11}^m = \epsilon_{22}^m = \epsilon_{33}^m$ 를 이용하여 식 (26)-(28)에 대입하면 식 (29)와 (30)과 같이 표현된다.

$$\frac{\epsilon_{11}^f}{\epsilon^m} = \frac{(D_4(2B_2 - B_4 - B_5))}{(2B_2 B_3 - B_1 B_4 - B_1 B_5)} \quad (29)$$

$$\frac{\epsilon_{22}^f}{\epsilon^m} = \frac{D_4(B_3 - B_1)}{(2B_2 B_3 - B_1 B_4 - B_1 B_5)} \quad (30)$$

충전제의 형상에 따라 $a_2 = a_3$ 이므로,

$$\epsilon_{22}^l = \epsilon_{33}^l \quad (31)$$

이다.

열팽창 계수의 계산. 식 (2)와 (20)으로부터 다음 식을 얻을 수 있다.

$$\frac{\alpha_{li}}{\alpha_m} = 1 + \phi \frac{\epsilon^l}{\epsilon^m} \quad (32)$$

결론적으로, 식 (29)와 (30)을 식(32)에 대입하면

$$\frac{\alpha_{11}}{\alpha_m} = 1 + \phi \frac{D_4(2B_2 - B_4 - B_5)}{(2B_2B_3 - B_1B_4 - B_1B_5)} \quad (33)$$

$$\frac{\alpha_{33}}{\alpha_m} = 1 + \phi \frac{D_4(B_3 - B_1)}{(2B_2B_3 - B_1B_4 - B_1B_5)} \quad (34)$$

이다. 여기서 α_{11} 은 종단방향의 선팽창 계수, α_{33} 는 횡단방향의 선팽창 계수이다. 부피 열팽창률은 식 (31), (33), (34)를 이용하면 다음과 같이 표현된다.

$$\gamma = \alpha_{11} + 2\alpha_{33} \quad (35)$$

결과 및 토론

Table 1에 분석에 사용된 재료의 물성은 Chow와^{3,4} Tandon과 Weng의² 논문을 참조하여 다음과 같이 조사하였다.

열팽창 계수의 중형비에 따른 해석결과. Figure 4는 종단방향

Table 1. Material Properties of Epoxy and Glass Fiber

	Density (g/cm ³)	Modulus (Gpa)	Linear CTE (K ⁻¹)	Poisson's ratio
Epoxy	1.24	2.8	81 × 10 ⁻⁶	0.35
Glass fiber	2.54	72.4	5.0 × 10 ⁻⁶	0.22

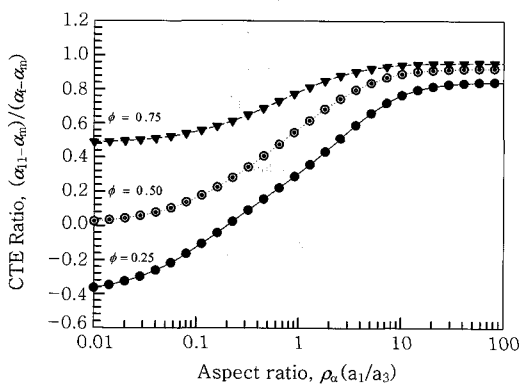


Figure 4. Normalized coefficient of longitudinal thermal expansion, $(\alpha_{11} - \alpha_m)/(\alpha_l - \alpha_m)$, as a function of aspect ratio, ρ_a , for various filler volume fractions of filler, $\phi = 0.25, 0.50,$ and 0.75 .

의 열팽창 계수를 정해진 부피분율($\phi=0.25, 0.50, 0.75$)에서 중형비의 함수로 정규화하여(normalized) 나타낸 그림이다. 종단방향의 열팽창 계수는 중형비의 증가에 따라 증가함을 일관성 있게 보여준다. Figure 3에서 보듯이 중형비가 1.0 이상에서는 섬유형의 형상이고, 1.0 이하에서는 디스크의 형상이므로 구별하여 관찰한다. 섬유상의 경우에 주어진 모든 충전제의 함량에서 중형비가 증가함에 따라 정규화된 열팽창 계수는 증가하는 현상을 보인다. 이는 종단방향의 열팽창 계수(α_{11})가 디스크형상의 충전제일 경우 충전제의 열팽창 계수(α_f)에 접근하는 것을 나타낸다. 디스크 형상에서, 특히, 충전제의 함량 $\phi=0.25$ 의 경우에 중형비가 약 0.2 이하에서 음의 값이 나타난다. 이는 정규화하여 수식으로 볼 때, 복합체의 종단 열팽창 계수(α_{11})가 디스크 형상의 충전제일 경우 고분자 기지재료(epoxy)의 열팽창 계수(α_m ; $81 \times 10^{-6} K^{-1}$) 보다 커지는 것을 의미한다. 이는 디스크 형상(Figure 4에서 중형비가 1보다 작은 영역)에서 횡단방향의 팽창하려는 경향을 열팽창 계수가 상대적으로 작은 충전제가 열팽창을 억제시킴으로 이에 대한 반발로 종단방향의 열팽창이 증가함을 나타낸다.^{4,10} 이러한 열팽창의 증가가 적절한 조건이 성립할 경우 고분자 기지재료의 높은 열팽창 계수를 초과할 수 있음을 보여준다.

Figure 5은 횡단방향의 열팽창 계수(α_{33})를 정해진 부피분율에서 중형비의 함수로 정규화하여 나타낸 그림이다. 횡단방향의 열팽창 계수(α_{33})는 중형비의 증가에 따라 감소함을 일관성 있게 보여준다. 섬유상의 경우에 충전제의 함량 $\phi = 0.25$ 의 조건에도 정규화된 횡단방향의 값은 0보다 크다. 따라서 디스크의 형상과는 다르게 고분자 기지재료의 열팽창 계수(α_m) 보다 증가하지는 않는다. 디스크 형상의 모든 충전제의 함량에서 중형비가 감소함에 따라 열팽창 계수의 정규화된 결과값은 증가하는 현상을 보인다. 이는 횡단방향의 열팽창 계수(α_{33})가 디스크 형상에서 중형비가 감소할수록 충전제의 열팽창 계수(α_f)에 접근하는 것을 나타낸다.

Figures 4와 5에서 보듯이 선팽창 계수와 종단방향과 횡단방향의 열팽창 계수 변화거동은 중형비의 변화에 따라 서로 반대방향임을 알 수 있다. 따라서 중형비에 따른 부피팽창 계수의 변화는 서로 상쇄되어 크지 않을 것으로 판단되며, 부피 열팽창 계수(γ)를 정해진 부피분율에서 중형비의 함수로 정규화하여 나타낸 Figure

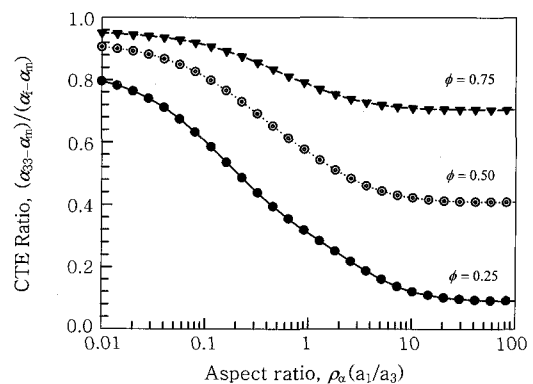


Figure 5. Normalized coefficient of transverse thermal expansion, $(\alpha_{33} - \alpha_m)/(\alpha_l - \alpha_m)$, as a function of aspect ratio, ρ_a , for various filler volume fractions of filler, $\phi = 0.25, 0.50,$ and 0.75 .

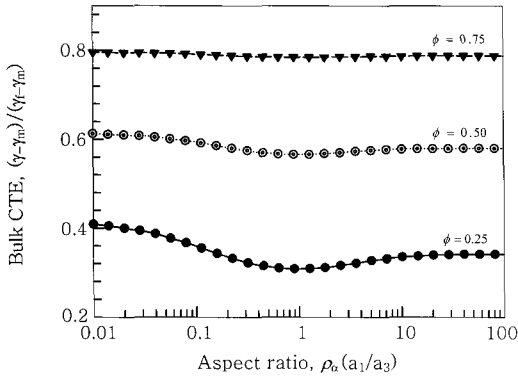


Figure 6. Normalized coefficient of bulk thermal expansion, $(\gamma_t - \gamma_m)/(\gamma_t - \gamma_m)$, as a function of aspect ratio, ρ_α , for various filler volume fractions of filler, $\phi = 0.25, 0.50,$ and 0.75 .

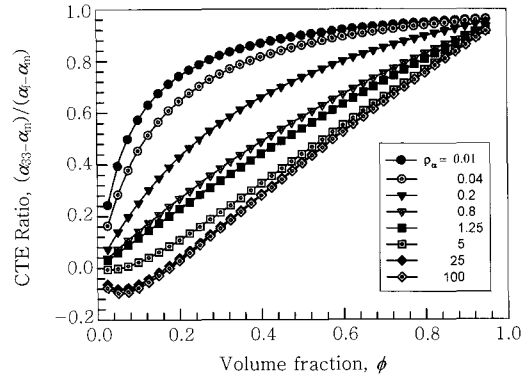


Figure 8. Normalized coefficient of transverse thermal expansion, $(\alpha_{33} - \alpha_m)/(\alpha_t - \alpha_m)$, as a function of volume fraction, ϕ , for various aspect ratios, $\rho_\alpha = 0.01, 0.04, 0.2, 0.8, 1.28, 5, 25,$ and 100 , where $\alpha_t = 81 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\alpha_m = 5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$.

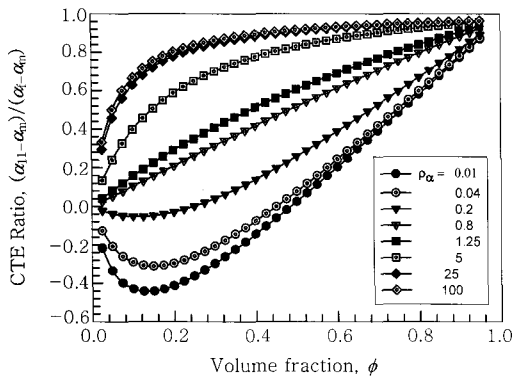


Figure 7. Normalized coefficient of longitudinal thermal expansion, $(\alpha_{11} - \alpha_m)/(\alpha_t - \alpha_m)$, as a function of volume fraction, ϕ , for various aspect ratios, $\rho_\alpha = 0.01, 0.04, 0.2, 0.8, 1.28, 5, 25,$ and 100 , where $\alpha_t = 81 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\alpha_m = 5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$.

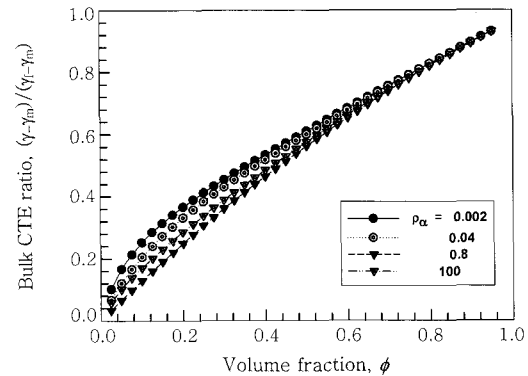


Figure 9. Normalized coefficient of bulk thermal expansion, $(\gamma_t - \gamma_m)/(\gamma_t - \gamma_m)$, as a function of volume fraction, ϕ , for various aspect ratios, $\rho_\alpha = 0.002, 0.04, 0.8,$ and 100 , where $\gamma_t = 243 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\gamma_m = 15 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$.

6에서 볼 수 있다. 섬유상의 경우 종횡비가 증가함에 따라 약간 증가하는 현상을 보이나 그 차이는 선펡창 계수에 비해 미소하다. 이는 증가하는 종횡비에서 부피팽창 계수가 실제적으로 약간 감소함을 나타낸다. 디스크상의 경우도 섬유상의 경우와 비슷한 경향을 보여준다.

충전제의 함유량에 따른 해석결과. Figure 7은 종단방향의 열팽창 계수를 정해진 종횡비에서 충전제의 부피 분율의 함수로 정규화하여 나타낸 그림이다. 섬유상의 경우 종단방향의 열팽창 계수는 부피 분율의 증가에 따라 증가함을 일관성있게 보여준다. 이는 종단방향의 열팽창 계수(α_{11})가 부피 분율이 증가하면, 충전제의 열팽창 계수(α_t)에 접근하는 것을 의미한다. 디스크 형상에서, 종횡비가 약 0.2 이하의 경우 충전제의 부피 분율의 증가에 따라 종단 열팽창 계수가 처음에는 음의 값으로 감소하였다가 다시 증가하여 1의 값에 수렴함을 보인다. 종단 열팽창 계수의 최저 값은 부피분율 $\phi = 0.12$ 의 전후에서 나타나며, 이는 Figure 5의 복합체의 열팽창 계수가 $\phi = 0.25$ 보다 더욱 증가할 가능성이 있음을 보여준다. 이는 Figure 4에서 나타난 현상과 동일한 경향이며, 횡단방향 열팽창의 역제가 종단방향의 열팽창의 증가에 밀접한 영향을 주는 것을 나타낸다.

Figure 8은 횡단방향의 열팽창 계수를 정해진 종횡비에서 부피 분율의 함수로 정규화하여 나타낸 그림이다. Figure 7과는 다르게 섬유형상인 종횡비 25 이상의 경우에만 음의 값을 보여준다. 종횡비 15 이하에서 횡단방향의 열팽창 계수는 부피 분율의 증가에 따라 증가함을 보여준다. Figures 7과 8에서 종단방향과 횡단방향의 열팽창 계수가 서로 다른 경향을 나타낸다고 볼 수 있다.

Figure 9는 부피 열팽창 계수를 정해진 종횡비에서 부피 분율의 함수로 정규화하여 나타낸 그림이다. Figures 7 또는 8과는 다르게 종횡비에 따른 변화가 거의 없다. 이는 종단방향과 횡단방향에서 열팽창의 경향이 서로 반대로 나타나므로 그 경향이 서로 상쇄됨이 Figure 9에서 나타남을 알 수 있다.

결론

본 연구에서는 충전제가 한쪽 방향으로 배열된 경우에 유리섬유와 에폭시 수지로 구성된 복합체의 열팽창 계수에 관한 이론적인 해석을 시도하였다. 에폭시 기지재료에 결합되어 있는 유한한

유리섬유 충전제의 종횡비(ρ_a)와 함유량(ϕ)의 변화에 따른 종단방향과 횡단방향의 열팽창 계수에 대해 수식적인 접근을 하였다.

일반적으로, 종단방향과 열팽창 계수가 종횡비가 증가할수록 충전제의 열팽창 계수에 더욱 급속히 접근함을 알 수 있었다. 또 횡단방향 열팽창 계수는 종횡비가 감소할수록 충전제의 열팽창 계수에 접근하고 있었다. 다만 디스크 형상에서 횡단방향의 팽창하려는 경향을 충전제가 억제시킴으로 이에 대한 반발로 종단방향의 열팽창이 오히려 증가함을 알 수 있었다. 이러한 열팽창의 증가는 적절한 충전제의 함량과 종횡비에서 고분자 기지재의 열팽창 계수를 초과할 수 있음을 보였다.

충전제 함유량의 따른 결과에서는 종단방향의 열팽창 계수가 충전제의 부피 분율 증가에 따라 충전제의 열팽창 계수에 수렴하는 것을 알 수 있다. 또 디스크 형상에서는 종횡비에 따른 경향과 같이, 열팽창 계수가 에폭시 기지재료의 열팽창을 초과하는 현상을 보인다.

부피 열팽창 계수는 방향에 따른 경향이 서로 상쇄되어 종횡비에 따른 차이가 크지 않았다.

Appendix

Eshelby의 전환 변환 텐서 S_{ijkl} 을 표현하면 다음과 같다.

1. 구형의 경우 ($\rho_a=1$ or $a_1=a_2=a_3$),

$$S_{1111} = S_{2222} = S_{3333} = \frac{7-5\nu_m}{15(1-\nu_m)}$$

$$S_{1122} = S_{2233} = S_{3311} = \frac{5\nu_m - 1}{15(1-\nu_m)}$$

$$S_{1212} = S_{2323} = S_{3131} = \frac{4-5\nu_m}{15(1-\nu_m)}$$

2. Disk 형상의 경우 ($\rho_a < 1, a_2=a_3$),

$$S_{1111} = \frac{1}{2(1-\nu_m)} \left\{ 1-2\nu_m + \frac{\rho_a^2-3}{\rho_a^2-1} \left[1-2\nu_m - \frac{3}{\rho_a^2-1} \right] G_d(\rho_a) \right\}$$

$$S_{2222} = S_{3333} = -\frac{3}{8(1-\nu_m)} \frac{1}{\rho_a^2-1} + \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left[1-2\nu_m + \frac{9\rho_a^2}{4(\rho_a^2-1)} \right] G_d(\rho_a)$$

$$S_{2233} = S_{3322} = -\frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{1}{2(\rho_a^2-1)} \left[1-2\nu_m - \frac{3\rho_a^2}{4(\rho_a^2-1)} \right] G_d(\rho_a) \right\}$$

$$S_{2211} = S_{3311} = \frac{1}{2(1-\nu_m)} \frac{1}{\rho_a^2-1} - \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{3}{\rho_a^2-1} + (1-2\nu_m) \right\} G_d(\rho_a)$$

$$S_{1122} = S_{1133} = -\frac{1}{2(1-\nu_m)} \left[1-2\nu_m - \frac{\rho_a^2}{\rho_a^2-1} \right] + \frac{1}{2(1-\nu_m)} \left[1-2\nu_m - \frac{3\rho_a^2}{2(\rho_a^2-1)} \right] G_d(\rho_a)$$

$$S_{2323} = S_{2332} = -\frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{1}{2(\rho_a^2-1)} \left[1-2\nu_m + \frac{3\rho_a^2}{4(\rho_a^2-1)} \right] G_d(\rho_a) \right\}$$

$$S_{1212} = S_{1313} = \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ 1-2\nu_m + \frac{\rho_a^2+1}{\rho_a^2-1} - \frac{1}{2} \left[1-2\nu_m + \frac{3(\rho_a^2+1)}{\rho_a^2-1} \right] G_d(\rho_a) \right\}$$

여기에서 ν_m 과 ρ_a 는 기지재료의 Poisson's비와 충전제의 종횡비이다. 그리고 $G_d(\rho_a)$ 는 다음과 같다

$$G_d(\rho_a) = \frac{1}{(\rho_a^2-1)^{3/2}} \left\{ \rho_a^2 \cosh^{-1} \left(\frac{1}{\rho_a} \right) - (\rho_a^2-1)^{1/2} \right\}$$

3. 섬유 형상의 경우 ($\rho_a > 1, a_2=a_3$),

$$S_{1111} = \frac{1}{2(1-\nu_m)} \left\{ 1-2\nu_m + \frac{3\rho_a^2-1}{\rho_a^2-1} \left[1-2\nu_m + \frac{3\rho_a^2}{\rho_a^2-1} \right] G_f(\rho_a) \right\}$$

$$S_{2222} = S_{3333} = \frac{3}{8(1-\nu_m)} \frac{\rho_a^2}{\rho_a^2-1} + \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left[1-2\nu_m - \frac{9}{4(\rho_a^2-1)} \right] G_f(\rho_a)$$

$$S_{2233} = S_{3322} = \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{\rho_a^2}{2(\rho_a^2-1)} \left[1-2\nu_m + \frac{3}{4(\rho_a^2-1)} \right] G_f(\rho_a) \right\}$$

$$S_{2211} = S_{3311} = -\frac{1}{2(1-\nu_m)} \frac{\rho_a^2}{\rho_a^2-1} + \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{3\rho_a^2}{\rho_a^2-1} - (1-2\nu_m) \right\} G_f(\rho_a)$$

$$S_{1122} = S_{1133} = -\frac{1}{2(1-\nu_m)} \left[1-2\nu_m + \frac{1}{\rho_a^2-1} \right] + \frac{1}{2(1-\nu_m)} \left[1-2\nu_m + \frac{3}{2(\rho_a^2-1)} \right] G_f(\rho_a)$$

$$S_{2323} = S_{2332} = \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ \frac{\rho_a^2}{2(\rho_a^2-1)} \left[1-2\nu_m - \frac{3}{4(\rho_a^2-1)} \right] G_f(\rho_a) \right\}$$

$$S_{1212} = S_{1313} = \frac{1}{4(1-\nu_m)} \left\{ 1-2\nu_m - \frac{\rho_a^2+1}{\rho_a^2-1} - \frac{1}{2} \left[1-2\nu_m - \frac{3(\rho_a^2+1)}{\rho_a^2-1} \right] G_f(\rho_a) \right\}$$

여기에서 $G_f(\rho_a)$ 는 다음과 같다

$$G_f(\rho_a) = \frac{\rho_a}{(\rho_a^2-1)^{3/2}} \left\{ \rho_a (\rho_a^2-1)^{1/2} \cosh^{-1} \rho_a \right\}$$

참고 문헌

1. K. Y. Lee and D. R. Paul, *Polymer*, **46**, 9064 (2005).
2. G. P. Tandon and G. J. Weng, *Polym. Composite*, **5**, 327 (1984).
3. T. S. Chow, *J. Polym. Sci., Polym. Phys. Ed.*, **16**, 959 (1978).
4. T. S. Chow, *J. Polym. Sci., Polym. Phys. Ed.*, **16**, 967 (1978).
5. P. J. Yoon, T. D. Fornes, and D. R. Paul, *Polymer*, **43**, 6727 (2002).
6. J. D. Eshelby, *Proc. Roy. Soc. Lond.*, **A241**, 376 (1957).
7. T. Mori and K. Tanaka, *Acta Metall.*, **21**, 571 (1963).
8. T. Mura, *Micromechanics of Defects in Solids*, 2nd Ed., The Hague, Martinus Nijhoff, p. 74 (1987).
9. R. Hill, *J. Mech. Phys. Solids*, **12**, 199 (1964).
10. J. C. Halpin, *Primer on Composite Materials Analysis*, Technomic Pub. Co. Inc., Lancaster, 1992.
11. C. L. Tucker and E. Liang, *Compos. Sci. Technol.*, **59**, 655

- (1999).
12. K. Wakashima, M. Otsuka, and S. Umekawa, *J. Compos. Mater.*, **8**, 391 (1974).
 13. B. Yalcin and M. Cakmak, *Polymer*, **45**, 6623 (2004).
 14. Z. Hashin and B. W. Rosen, *J. Appl. Mech.*, **31**, 223 (1964).
 15. T. W. Chou, S. Nomura, and M. Taya, *J. Compos. Mater.*, **14**, 178 (1980).
 16. W. B. Russel, *Appl. Math. Phys.*, **24**, 581 (1973).
 17. Y. Benveniste, *Mech. Mater.*, **6**, 147 (1987).
 18. T. D. Fornes and D. R. Paul, *Polymer*, **44**, 4993 (2003).
 19. D. A. Brune and Bicerano, *J. Polymer*, **43**, 369 (2002).
 20. R. F. Gibson, *Principles of Composite Material Mechanics*, McGraw-Hill, New York, 1994.
 21. R. Hill, *J. Mech. Phys. Solids*, **11**, 357 (1963).
 22. J. E. Ashton, J. C. Halpin, and P. H. Petit, *Primer on composite materials: analysis*, Technomic Pub., Stamford & Conn., 1969.
 23. T. D. Fornes and D. R. Paul, *Polymer*, **44**, 4993 (2003).
 24. J. C. Halpin, *J. Compos. Mater.*, **3**, 732 (1969).
 25. J. C. Halpin and N. J. Pagano, *J. Compos. Mater.*, **3**, 720 (1969).