

## 論文

## 단섬유강화 폴리머 복합재료의 환경파괴강도에 관한 연구

임재규\* · 하재룡\*\* · 박한주\*\*\*

## A Study on Environmental Fracture Strength of Short Fiber Reinforced Polymer Composites

Jae-Kyoo Lim\*, Jae-Ryong Ha\*\* and Han-Ju Park\*\*\*

## ABSTRACT

Recently, it's required to research of polymer composites for replacing to structural material. Existing thermosetting composite materials are used mainly in making the structures because of the goodness of specific strength, specific elasticity. But it has a difficulties to improve the strength and toughness. So thermoplastics composite materials are developing now as a complemental composite materials. Therefore, this paper was discussed fiber distribution and strength properties of PPS, super engineering plastics, filled with short glass fiber 40% by means of the difference of cooling velocity of melting temperature and also evaluated environmental strength of PPS with various environmental temperature

## 초 록

최근 구조용 재료로 대체되는 폴리머 복합재료에 대한 연구가 요구되어지고 있다. 지금까지 열경화성 복합재료는 비강도, 비탄성율이 우수하여 구조용으로 주로 사용되고 있으나 강도와 인성의 향상에 어려움이 있어 이를 보완할 목적으로 열가소성 복합재료의 개발이 진행되고 있다. 그러므로 본 연구에서는 단유리섬유를 40%함유한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱인 PPS의 용융온도와 급냉온도의 냉각속도의 차이에 의한 섬유방향과 강도특성, 그리고 다양한 환경온도 변화에 따른 PPS의 환경파괴강도를 평가하고자 한다.

## 1. 서 론

재료성질에 대한 요구는 그 사용조건이 가혹해지고 복잡화되는 동시에 매우 다종다양한데, 가능한 많은 조건을 만족시키기 위해 복합재료가 이용되고 있으며 고성능 폴리머는 역학적 특성, 열적 특성, 치수 안정성등이 우수하여, 공업용 부품에 사

용되는 금속 대체 재료[1]로 의료, 우주항공, 해양, 바이오 분야는 물론이거니와, 나아가서는 자동차, 기계정밀분야 등으로 확대되고 있으며, 유리섬유나 탄소섬유를 혼입한 복합재료는 기계적 강도와 열적 안정성을 향상시키므로 용도가 점점 확대되어가고 있는 추세이다. 그 대표적인 것으로 파괴직전까지 영구변형이 극히 작고 아주 크게 변형시켜

\* 전북대학교 기계공학부, 자동차신기술연구소

\*\* 창원기능대학

\*\*\* 전북대학교 대학원

도 외력을 제거하면 원래형태로 복원하는 성질을 갖고 있는 유리섬유 강화 플라스틱(glass fiber reinforced plastics : GFRP)이 널리 이용되고 있다[2].

지금까지는 장섬유강화 플라스틱에 대해서는 많은 연구가 이뤄졌으나[3][4], 단섬유강화 플라스틱에 대해서는 섬유단, 섬유와 모재계면 및 제조과정에서 생기는 결함 등으로 파괴현상이 복잡하고, 장섬유보다 비강도, 비탄성률이 크게 높지 않는 등의 이유로 많은 연구가 이루어지지 않고 있다. 즉 균열성장과정중에 많은 미소 파괴기구를 포함하고 있어 그 해석이 간단하지 않다.

그러나 열가소성인 단섬유 강화 폴리머는 사출 성형에 의해 빠른 제조공정으로 다량의 부품을 제작할 수 있어 많은 분야에 응용되고 있으며, 폴리머 복합재료를 이용한 사출성형품에 용접부의 발생은 피할 수 없는 현상이다[5-7]. 그런데 용접부가 있는 부분은 없는 부분에 비해 강도가 크게 저하하고, 단섬유 열가소성 복합재료의 용접부 특성은 사출시 생기는 섬유방향에 의해 불균질 재료가 형성된다[8-10]. 따라서 용접부를 가지게 되는 사출성형품은 용접강도가 최저로 되기 때문에 용접부의 강도를 향상시키면 성형품 전체의 강도를 향상시키는 결과가 되므로 실용적으로 용접부의 강도평가에 대한 연구가 절대적으로 필요하며, 용접부의 기계적 특성을 향상시키는 데는 섬유상의 상태, 섬유방향 분포, 섬유길이 분포, 섬유집중부의 평가와 플라스틱 용탕과 성형의 최적온도 차이, 환경인자에 의한 내구강도 변화 등을 연구해야 한다.

따라서 본 연구에서는 고성능엔지니어링 플라스틱인 PPS에 단유리섬유가 혼합된 폴리머 복합재료의 용융온도와 성형온도의 냉각속도 차이에 의한 모재와 용접부에 단섬유의 배열상태를 분석하고, 인장실험을 통해 강도를 평가하여, 최적의 강도 특성을 갖는 성형온도를 찾고 환경온도를 변화시켜 환경강도를 평가하고자 한다.

## 2. 실험재료 및 방법

### 2-1. 재료 및 시험편

본 실험에 사용되어진 폴리머 복합재료는 PPS(polyphenylene sulfide)로 단유리섬유를 40%포함하고 있는 고성능의 열가소성 엔지니어링 플라스틱

틱(super engineering plastic)으로 유리섬유 치수는 직경이  $13\mu\text{m}$  길이가  $200 \sim 400\mu\text{m}$ 정도이고 성분은 Table 1[11]과 같다. 그리고 Fig.1에서 보이는 것처럼 double-gate mold에서 사출성형에 의해 하나의 덤벨형(dumbbell type)의 인장시험편을 제작[12]하고 입구밸브(P)의 조정으로 모재와 용접재를 구분하여 제작하였다. 모재는 밸브를 닫고 사출하고 용접재는 밸브를 열고 양쪽 gate를 이용하므로 중심부에서 용접부가 생성된다. 제작된 시험편은 모재와 용접부를 가지는  $3\text{mm} \times 18\text{mm} \times 180\text{mm}$ 의 인장시험편이다. 이때 용융온도는  $320^\circ\text{C}$ 로 일정하게 하고 성형온도를  $70^\circ\text{C}$ ,  $90^\circ\text{C}$ ,  $110^\circ\text{C}$ ,  $130^\circ\text{C}$ ,  $150^\circ\text{C}$ 까지 변화시켜 사출성형하므로 냉각속도에 따른 최적강도를 평가한다.

또한 제작된 시험편에서 미시조직을 관찰하기 위해 microtoming기법[13]을 이용하여 시험편을 폭, 두께, 너비방향으로 초박판 시험편을 가공하였다. 가공된 시험편은 #200-#800의 powder를 이용하여 기계연마하고 다시 #2000-#3000의 연마제를 이용하여 수동연마하여  $10 \sim 15\mu\text{m}$ 의 박편으로 가공한다.

### 2-2. 실험방법

GFRP를 대상으로 성형온도와 환경온도의 변화에 따른 재료의 강도와 섬유조직을 조사하고자 인장실험, SEM에 의한 파면관찰 그리고 편광현미경

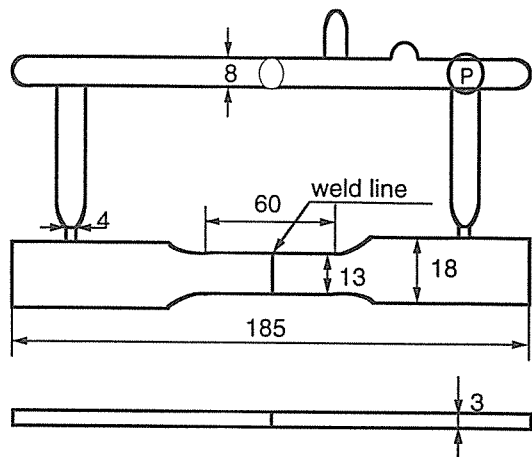


Fig. 1. Layout and dimension of injection mold specimen.

Table 1. Chemical composition and mechanical properties of glass fiber

(a) Mechanical properties(25℃)

Filament tensile strength (Kgf/mm <sup>2</sup> )	Strand tensile strength (Kgf/mm <sup>2</sup> )	Coefficient of thermal expansion (10 <sup>-6</sup> /℃)	Young's modulus
370	225	5	7700

(b) Chemical composition (wt.%)

SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO, MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	F <sub>2</sub>
55.2	14.8	7.3	22.0	0.3	0.2	0.3	0.3

을 통한 유리섬유의 방향을 관찰하였다.

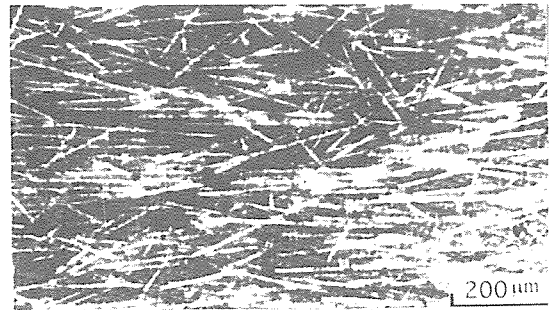
인장실험에 사용될 시험기는 프레임, 로드셀, 감속장치등으로 구성되어 있는 2톤의 용량을 갖는 SSRT(slow strain rate test)시험기이다. 이때 환경온도는 상온에서 110℃까지의 범위내에서 4종류(20℃, 50℃, 80℃, 110℃)실험을 실시하였으며 환경온도를 유지시키기 위해서 시험기의 중앙에 벨트형 heating coil을 설치하였고 석면을 이용하여 외부와 단열시켰다. 그리고 실험온도는 각 조건에 ±3℃로 유지하였으며 cross head speed를 0.3 mm/min로 실시하였다.

미소파괴가 일어난 후 어떤 양상을 보이고 있는가를 알아보기 위해서 파면을 주사전자현미경(scanning electron microscope : SEM)을 이용하여 관찰하므로 파괴형태를 비교하여 모재 및 용접부의 유리섬유와 matrix의 파괴기구를 해석하고 편광현미경(NIKON microphoto - SA)에 의해서 가공된 인장 시험편과 성형온도와 환경온도 변화에 따른 시험편의 섬유방향을 관찰하였다.

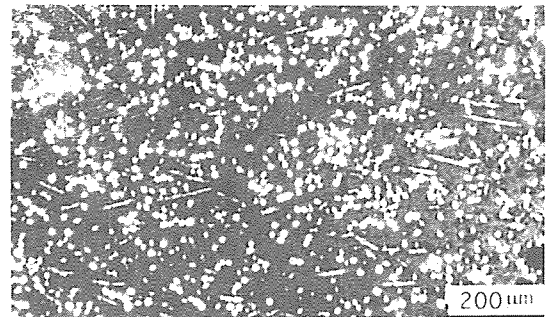
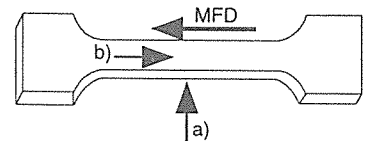
### 3. 실험결과 및 고찰

#### 3-1. 섬유분포의 특성

Fig.2는 초박판 시험편의 투과현미경 사진으로 모재부에 대한 섬유분포를 나타낸 것이다. a)는 사출방향과 평행한 단면의 섬유분포를 나타내며 Mold filled direction(MFD)은 사출방향으로 섬유방향과 잘 일치된 모습을 관찰할 수 있다. b)는 MFD에 수직인 미시조직을 보여준 것으로서 섬유의 단면만을 관찰할 수 있다. 이것은 단섬유가



a) parallel

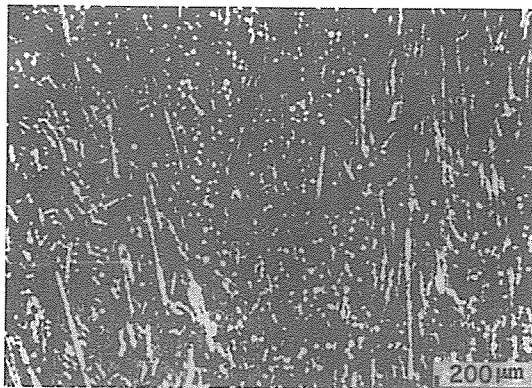


b) perpendicular

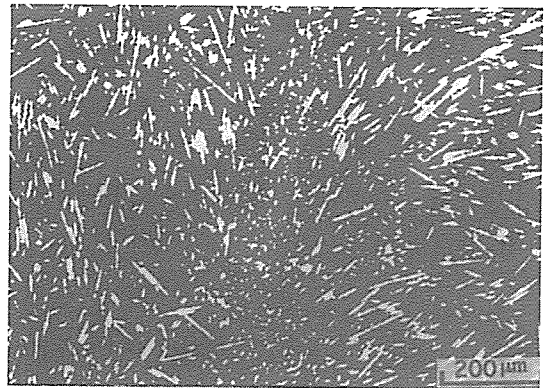
Fig. 2. Photomicrograph of fiber orientation in PPS parent with the mold temperature 130℃.

MFD에 평행하게 배열됨을 알 수 있다.

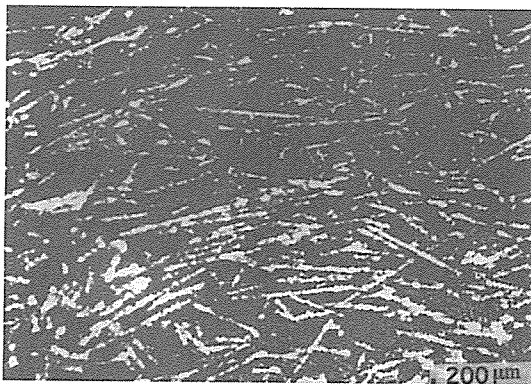
Fig.3은 사출시에 두 개의 flow가 만나 형성되는 용접부의 섬유의 미시조직[14]을 성형온도별로 보여준 사진이다. a)는 injection gate에서 나온 두 개의 flow가 부딪히는 부분, 즉 용접부에서의 섬유방향을 보여주며 섬유가 서로 직각으로 위치하고 있는 것을 알 수 있으며 b)는 flow가 부딪친 후 혼합되는 영역을 나타내 주고 있다. 성형온도의 변화는 섬유방향에 영향을 주며 온도가 증가함에 따라 matrix의 점도가 낮아 섬유의 방향이 많이 변하고 있어 130℃에서 가장 변화가 큰 것으로 나타났다.



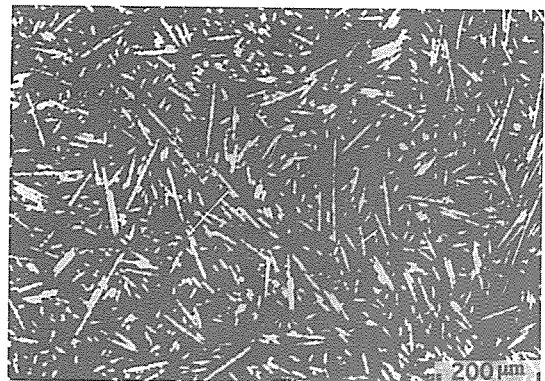
(a) weld line



(a) weld line



(b) mixing zone



(b) mixing zone

Mold Temp. 90°C

Mold Temp. 130°C

Fig. 3. Fiber orientation of PPS weld in mold temperature 90°C and 130°C.

Fig.4는 성형온도 130°C에서 사출한 용접부를 사출방향과 직각 방향으로 관찰하여 섬유방향을 거시적으로 나타낸 조직사진이다. 두 개의 injection flow가 만나는 부분인 용접부에서는 유리 섬유가 사출방향에 대해 90° 방향으로 변하며 섬유방향이 화산모양을 하고 있어 volcano-like pattern이라고 한다. 표면부에서는 사출방향과 수직인 섬유형태를 하고 있으며 중앙부에서는 flow line이 교차후 혼합된 모습을 나타낸다.

### 3-2. 강도평가

강도에 대한 성형온도와 환경온도의 효과를 평가하기 위해 성형온도 70°C~150°C, 환경온도 20°C~110°C까지 변화를 주어 실험한 결과 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

Fig.5는 섬유를 포함하지 않은 폴리머와 섬유강화 폴리머의 성형온도별 인장하중과 변위(P-δ)와의 관계를 보여준 곡선이다. 섬유를 포함하지 않은 폴리머의 경우 모재와 용접재가 비슷한 특성을 보이지만 섬유를 강화한 폴리머의 모재는 성형온도에 따라 약간의 차이는 있지만 인장하중의 값이 matrix에 비해 2배정도 향상되었으며 용접재에서는

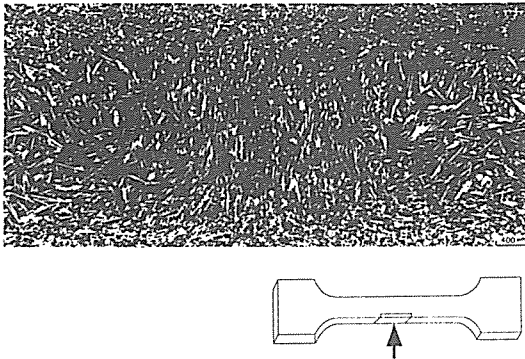


Fig. 4. Microstructure at transverse direction in the mold temperature of PPS weld.

비슷한 하중분포를 보였다. 그러나 섬유강화 폴리머는 섬유와 matrix의 결합력으로 인해 강도는 향상되었지만 변위는 상대적으로 감소하였다. 따라서 강도는 재료의 matrix보다는 섬유의 영향을 받는 인자라는 것을 알 수 있다.

Fig.6은 섬유강화 복합재료의 성형온도와 인장강도와의 관계를 보여주는데 성형온도의 변화에 관계없이 유사한 강도특성을 나타내어 인장강도는 성형온도 변화에 크게 영향을 받지 않음을 알 수 있었으며 모재는 용접재에 비해 2배 이상의 우수한 강도특성을 갖는 것으로 나타났다.

Fig.7은 파괴변형에너지와 성형온도와의 관계를 보여준다. 성형온도의 변화에 의한 강도특성은 모재와 용접재에서 모두 비슷하다는 것을 알 수 있었지만, 파괴변형에너지는 모재의 경우 섬유강화 폴리머가 크게 향상되었으며, 특히 성형온도 130℃에서 가장 우수하게 평가되었다. 따라서 용융온도와 성형온도 차이에 의한 파괴변형에너지를 향상시키는 최적의 섬유분포특성을 갖는 성형온도는 130℃임을 알 수 있었다.

Fig.8은 섬유를 함유하지 않은 폴리머의 모재와 용접재의 인장하중에 대한 환경온도의 효과를 보여준다. 환경온도 80℃이상에서는 온도의 영향으로 matrix가 약해져서, 치형모양의 거동을 하는 세레이션 현상이 나타나는 것을 관찰할 수 있었으며, 최대하중후에도 에너지가 존재함을 볼 수 있다.

Fig.9는 환경온도의 변화에 따른 섬유강화 폴리머의 성형온도별 강도를 보여준다. 환경온도가 증

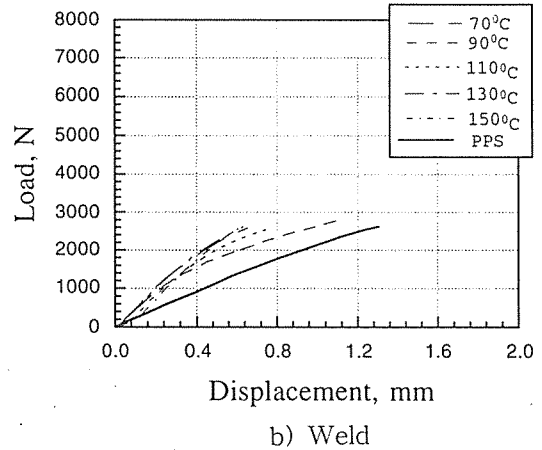
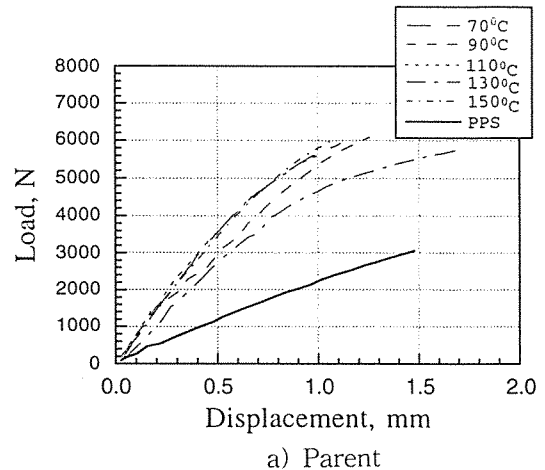


Fig. 5. Load-displacement curves in the various mold temperature.

가할수록 강도의 저하가 모재에서 용접부보다 크게 나타나고 있어 모재의 인장강도에 대한 온도의 효과가 용접부보다 크다는 것을 알 수 있었다. 따라서 모재에서는 matrix, 용접부에서는 섬유방향이 환경강도에 크게 영향을 주고 있음을 알 수 있다.

### 3-3. 파면관찰

Fig.10과 Fig.11은 SEM사진에 의한 파면관찰을

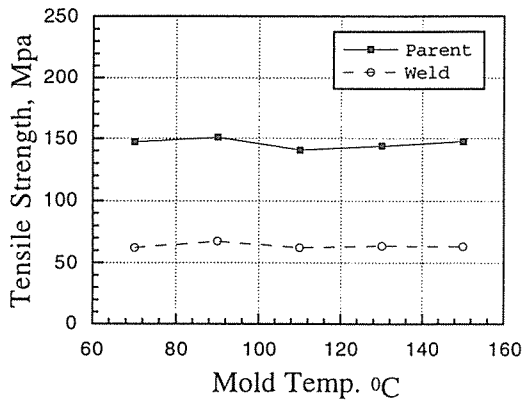


Fig. 6. Relation between tensile strength and mold temperature.

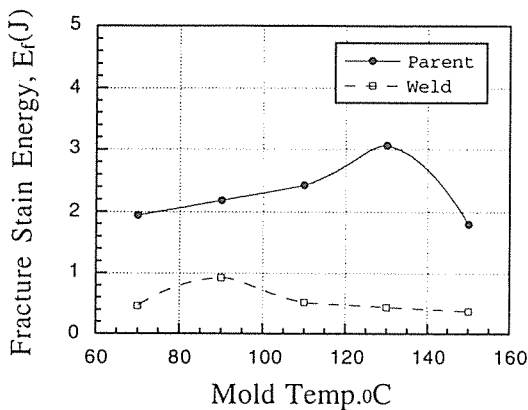
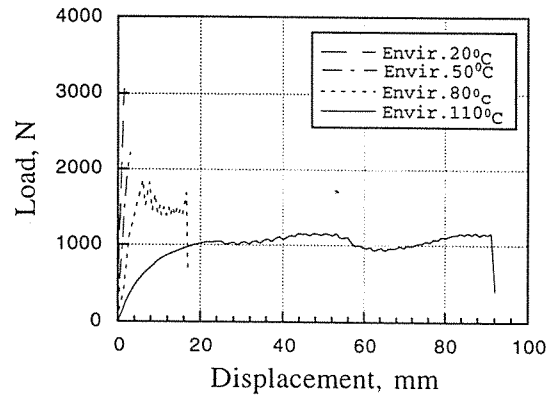


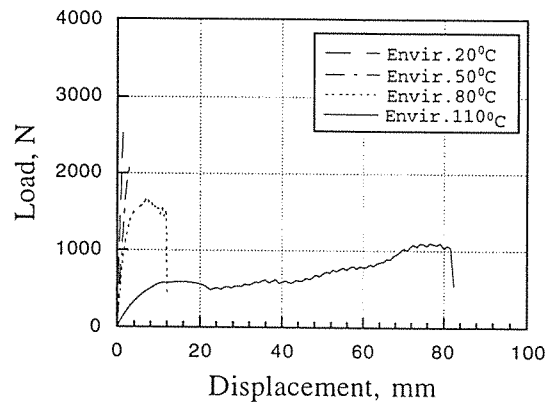
Fig. 7. Relation between fracture strain energy and mold temperature.

통해 성형온도와 환경온도 변화에 따른 폴리머 복합재료의 조직을 관찰한 것이다.

먼저 Fig.10은 성형온도의 변화에 따른 파면사진을 나타내고 있으며 성형온도에 관계없이 비슷한 양상의 파면형태를 보여주고 있다. 모재의 경우 70°C에서는 matrix의 결합력이 약한 것으로 나타나 성형온도가 낮으므로 냉각속도가 빨라 유동혼합이 완전히 이루어지지 않은 것으로 보이고 150°C에서는 fiber에 matrix가 탈착되어 있는 것으로 보아 유동혼합이 충분한 것으로 보인다. 그리고 용접재의 파면사진은 성형온도에 따라 섬유방향은 크게 변하지 않으나 matrix의 강도에 미치는



a) Parent



b) Weld

Fig. 8. Load-displacement curves with varied environmental temperature of non-fiber PPS.

영향은 크게 작용한 것으로 추측된다.

Fig.11은 성형온도 130°C의 섬유강화 복합재료의 환경온도가 상온과 110°C에서의 파면모습을 보여준 것이다. 상온에서의 파면형태는 주로 fiber break현상과 표면이 거칠게 나타난 것을 관찰할 수 있는데 이는 선형적인 하중-변위곡선을 잘 뒷받침해준다.

그러나 온도가 상승할수록 fiber와 matrix사이의 debonding현상이 나타났으며, 고온에서는 matrix가 약해져서 fiber pull-out현상이 두드러지게 나타남을 볼 수 있다. 또한 110°C를 기준으로 저온에서는 matrix의 변형없이 파괴가 이루어진 반면,

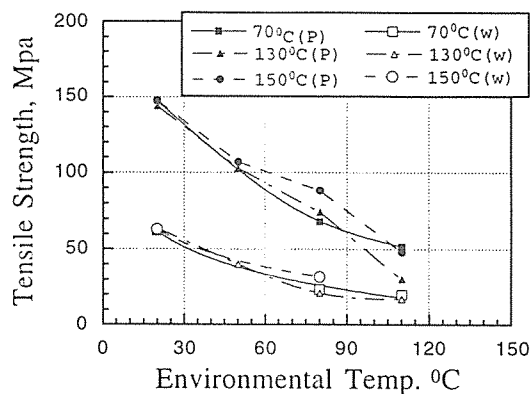


Fig. 9. Relation between tensile strength and environmental temperature in the varied mold temperature.

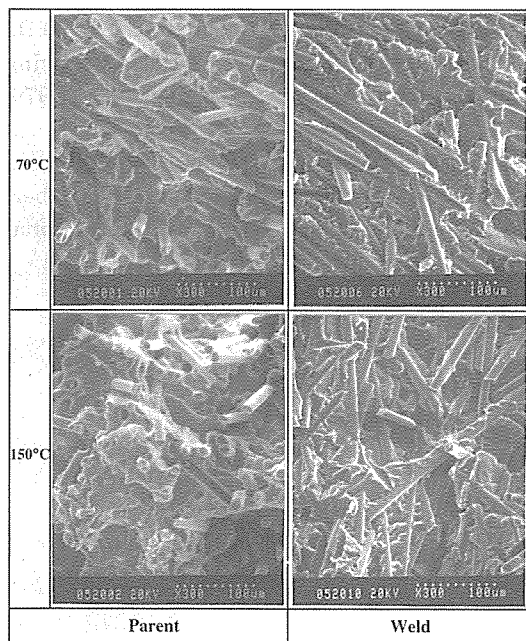


Fig. 10. SEM photographs of the specimens molded at 70°C and 130°C in room temperature condition.

이 이상의 고온의 환경에서는 matrix의 소성변형이 수반되는 파괴양상이 나타남을 관찰할 수 있었다.

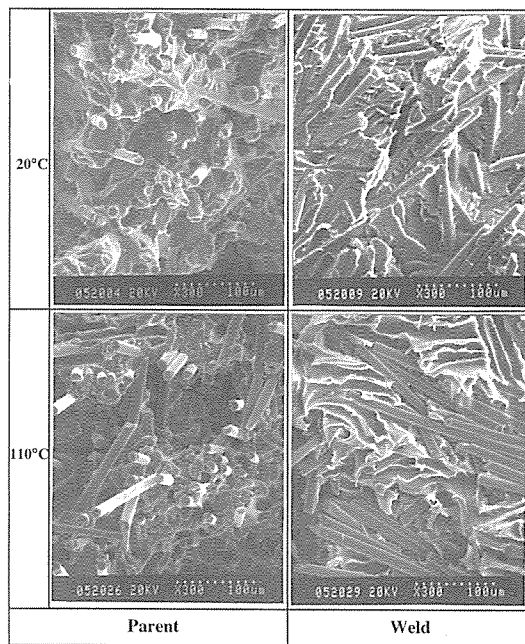


Fig. 11. SEM photographs of mold temperature 130°C specimen with the environmental temperature.

이상에서 볼 수 있듯이 성형온도에 따른 파괴기구는 비슷한 현상을 보였으나, 환경온도의 변화에 따른 파괴기구는 저온에서는 fiber break현상이 두드러지게 나타났으며, 취성특성을 갖는 파면의 형태를 보였으나, 온도가 상승함에 따라 matrix가 약해져서, matrix의 소성변형 그리고 fiber와 matrix사이의 debonding현상이나 fiber pull-out현상이 주로 나타남을 볼 수 있었다.

#### 4. 결 론

단섬유강화 폴리머 복합재료의 다양한 성형온도와 환경온도의 변화에 따른 강도평가를 실시한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 섬유를 첨가하지 않은 폴리머의 경우 환경온도 80°C이상에서 온도의 영향으로 인해 치형모양의 거동을 하는 세레이션현상이 관찰되었다.
2. 사출온도를 일정하게 유지하고 성형온도를 변화시켰을 때 유사한 인장강도 특성을 나타냈으

나 파괴변형에너지는 큰 차이를 보이는 것으로 평가되었다.

3. 환경온도가 변할 때, 모재에서 인장강도의 변화는 용접부에서 변화보다 큰데 이는 모재에서는 matrix, 용접부에서는 섬유방향이 환경강도에 큰 영향을 주고 있음을 알 수 있었다.

### 참 고 문 헌

1. 高分子學會編, 新片反高分子辭典, 朝倉書店, 1988, p.44.
2. L.C. Trimble, R.L. Waid, W.J. Connly, "Composite Cold Water Pipe for Ocean an Thermal Energy Conversion System", 37th Conf. Rein. Plas./Compos. Inst., The SPI, Inc., Sec.26-B, 1982.
3. 般橋池上, 日本機械學會論文集(A) 52-48, 1986, pp.2117.
4. Hull, D., An Introduction to Composite Material, Cambrige Uni. Press, 1981, p.125.
5. Grafton, P., Handbook of Plastics and Elastomers, Mcgrow-Hill, New York, 1975, p. 124.
6. Tomari, K., Tonogari, S. and Harada, T., Polymer Eng. and Science, Vol. 30, No. 15, 1990, p.31.
7. Tadmore, Z., and Gogas, C.G., Principles of Polymer Processing, John Wily, New York, 1979, p.603.
8. Hobbs, S.Y., Polymer Eng. and Science, Vol.14, No.16, 1990, p.621.
9. Matsuoka, T., Takabake, J. I, Inoue, Y., and Takahasi, H., Polymer Eng., and Scinece, Vol. 30, No. 16, 1990, p.57.
10. Kamal, M, R., and Singh, P. ANTEC'89, 1989, p.140.
11. Miller, D.M., "Glass Fibers Composite", Engineered Materials Hanbook, ASM International, Vol.1, 1987, pp.45-48.
12. Jae-Kyoo Lim, T. Shoji, "Fiber Orientation of Polymer Injection Weld and Its Strength Evaluation" KSME Journal, Vol. 7, No. 2, 1993, pp.178-181.
13. Bell, G.R, Cook, D.C, and Rogers, D.D., Microtoming; An Emerging Tool for Analysing Polymer Structures, Plastic. Eng., No. 35, 1979, p.18.
14. Jae-Kyoo Lim, T. Shoji, "Fiber Orientation and Weld Strength of Short Glass Fiber-Filled Polycarbonate", JSME International Journal, Vol. 36, No. 3, 1993, pp.319-326.