

# 유리섬유/폴리프로필렌 복합계의 계면 모폴로지

박수현\*·이광희\*·김준경\*\*·임순호\*\*·박민\*\*·이상수\*\*·권성진\*\*\*

## Interfacial Morphology of Glass Fiber/Polypropylene Composite

S. H. Park\*, K. H. Lee\*, J. K. Kim\*\*, S. H. Lim\*\*, M. Park\*\*, S. S. Lee\*\* and  
S. J. Kwon\*\*\*

**Key Words:** Glass fiber, Polypropylene, Coupling agent, Interphase.

### Abstract

It is well known that the interaction and adhesion between the glass fiber(GF) and polymer matrix has a significant effect in determining the properties of fiber-reinforced materials. Therefore, it is one of most important to modify the surface of GF with an appropriate sizing. We investigated the treatment method of GF with coupling agent to improve the interaction of the interfacial regions, and then the correlation between interfacial property and interphase microstructure was examined in an attempt to realize a proper morphology around the GF surface.

### 1. 서 론

유리섬유와 고분자로 구성된 복합계에서는 이종재료 간의 계면 상호작용과 접착력이 재료의 성능과 기능에 큰 영향을 미친다[1-5]. 이러한 계면의 중요성 때문에 계면 결합력 향상을 위한 여러 종류의 강화재 표면처리 방법이 제시되었다[6-8]. 그 중 실란커플링제에 대한 연구가 가장 활발한데, 실란커플링제는 다음과 같은 메커니즘으로 복합재료의 계면 결합력을 향상시키는 것으로 알려져 있다. 첫째로는 매트릭스와 강화재 사이에서 각각에 대하여 화학적 결합을 하여, 복합재료에 가해지는 응력을 강화재로 효과적으로 전

달하는 역할을 하며, 둘째로는 interface 영역에서 실란 분자들과 매트릭스 분자들 간의 상호확산을 거쳐 형성된 interpenetrating polymer network (IPN)에 의해 계면 결합력을 증가시킨다. 마지막으로 실란커플링제와 매트릭스가 완전히 wetting 됨으로써 물리적 접촉을 통해 계면결합력을 유도한다[9-13].

한편, 결정성 고분자를 매트릭스로 사용하였을 경우에는 강화재 표면의 기핵 효과로 인하여 transcrystallization이 일어날 수 있으며, 이러한 transcrystallization은 강화재와 매트릭스 간의 계면 결합력을 강화시키는 결과를 가져온다.

본 연구에서는 고분자 복합재료 계면에서의 물리화학적 현상을 개선하기 위해 실란커플링제를 이용한 표면처리방법을 조사하였으며, 매트릭스 수지에 반응성 공중합체를 도입하여 실란커플링제와 매트릭스의 물리적 접촉을 향상하고자 하였

\* 인하대학교 고분자공학과

\*\* KIST, 고분자하이브리드연구센터

\*\*\* 신안상사(주)

다. 또한 표면처리방법과 처리조건, 매트릭스 개질에 따른 계면 특성과 이와 연관된 미세구조 분석을 통하여 유리섬유/폴리프로필렌 복합계의 계면설계기법을 제시하고자 하였다.

## 2. 결과 및 고찰

실란커플링제 처리 농도에 따른 단섬유 복합계의 계면 모폴로지를 비교해 보면, 실란커플링제 종류와 관계없이 sizing한 섬유에서는 모두 *transcrystal*이 생성되었으며, *octyltriethoxysilane*으로 처리한 섬유에서 좀더 높은 기핵 밀도가 나타났다. 이는 *octyltriethoxysilane*의 *octyl*기와 PP 분자 간의 상호확산이 좋아서 IPN 구조를 많이 이룸으로써 결합력 증가와 함께 계면에서의 기핵작용을 촉진시킨 것으로 생각된다. 한편, 처리 농도 증가에 따라서는 예상과는 달리 기핵 밀도가 감소하였다. 농도 증가에 따라 섬유 표면에 고르게 코팅되는 결과를 고려해 볼 때, 기핵 밀도의 감소 원인을 다음과 같이 생각해 볼 수 있다. 이는 나노수준 이하의 표면 분자 분포에 의해 지배되며, SEM 상에서 나타나는 마이크론 수준의 코팅 두께 변화나 균일도 차이 등과는 직접적인 관계가 없다. 따라서 처리 농도가 특정 수준을 넘을 경우에는 물리적 흡착층의 두께가 증가하여 약한 표면층이 나타나고, 그 결과 계면층이 연화되어 기핵 효과가 감소한 것으로 판단된다.

강화재와 매트릭스 간의 적절한 접촉력이나 계면구조는 섬유 표면처리 뿐만 아니라 매트릭스 수지의 개질을 통하여서도 구현될 수 있다. 본 연구에서는 MA함량이 다른 두 종류의 MA-g-PP 공중합체를 분자량이 다른 두 종류의 PP와 블렌딩하여 매트릭스 수지의 개질을 시도하였다. 블렌드 시료의 MA 함량은 0.03wt%와 0.1wt%로 하였다. 단섬유를 PP/MA-g-PP 블렌드에 함침하여 결정화시킨 결과를 보면, 분자량이 높은 PP 시료는 전반적으로 *transcrystal* 생성이 미미하였으나, 저분자량 PP의 경우에는 *transcrystal*이 잘 형성되었다. 특히 MA 함량이 0.03wt%인 경우에 *transcrystal*의 발달이 현저하였다. 한편, MA 함량이 0.1wt%인 경우에는 MA 함량이 높은 공중합체를 블렌딩 할 때가 기핵 밀도가 높았다. 따라서 *transcrystal*의 생성을 촉진하기 위해서는 블렌드 시료의 전체적인 MA 함량 뿐만 아니라 블렌딩

하는 공중합체 자체의 MA 함량도 고려해야 할 것이다.

## 3. 결론

유리섬유/폴리프로필렌 계합계의 표면처리방법과 처리조건, 매트릭스 개질에 따른 계면 미세구조를 분석하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. sizing된 섬유에서는 구정과 섬유표면에 수직으로 성장한 *transcrystal*이 혼재하는 반면에, Desizing한 섬유에서는 *transcrystal*이 생성되지 않았다. 따라서 유리섬유의 표면처리는 복합재료 계면에서의 기핵작용에 중요한 역할을 한다는 것을 알 수 있었다.

2. *Transcrystal*의 생성은 매트릭스 수지를 MA-g-PP와 블렌딩하여서도 촉진시킬 수 있었는데, 이때는 블렌드 시료의 전체적인 MA 함량 뿐만 아니라 블렌딩하는 공중합체 자체의 MA 함량도 고려해야 한다.

## 감사의 글

본 연구는 차세대소재성형기술개발사업 (21세기 프론티어 연구개발사업)의 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

## 참고문헌

- (1) D. J. Vaughan, R. C. Peek, and M. H. Creech, *Ann. Conf. Reinforced Plastics/Composites Institute, SPI, Inc., January 16-19, 1984.*
- (2) A. Takahara, T. Magome, and T. Kajiyama, *J. Polym. Sci., Part B, 32, 839 (1994).*
- (3) M. J. Folkes and W. K. Wong, *Polymer, 28, 1309 (1987).*
- (4) C. Y. Yue and M. Y. Quek, *J. Mat. Sci., 29, 2487 (1994).*
- (5) M. R. Piggott, *Carbon, 27(5), 657 (1989).*
- (6) C. D. Han, C. Sandford, and H. J. Yoo, *Polym. Eng. Sci., 18(11), 849 (1987).*

- (7) H. Ishida and J. D. Miller, 38th Ann. Conf. Reinforced Plastics/Composites Institute, SPI, Inc., February 7-11, 1983.
- (8) H. Al-Moussawi, E. K. Drown, and L. T. Drazal, Polym. Comps., **14(3)**, 195 (1993).
- (9) H. Ishida and J. L. Koenig, Polym. Eng. Sci., **18(2)**, 128 (1978).
- (10) C. H. Chiang and J. L. Koenig, J. Colloid and Interface. Sci., **83(2)**, 361 (1981).
- (11) R. T. Graf, J. L. Koenig, and H. Ishida, Anal. Chem., **56**, 773 (1984)
- (12) H. Ishida and K. Nakada, 42nd Ann. Conf. Reinforced Plastics/Composites Institute, SPI, Inc., February 2-6, 1987.
- (13) E. P. Plueddemann and G. L. Stark, 35th Ann, Conf. Reinforced Plastics/Composites Institute, SPI, Inc., February, 1980.