

## 論文

## 유리섬유 강화 열가소성 복합재료 고상 성형품의 충격특성에 관한 연구

이중희\* · 정광진\* · 최창근\*

**A Study on the Impact Properties of Solid-phase Formed Glass Fiber Reinforced Thermoplastic Composite**

J.H. Lee\*, K.J. Chung\* and C.K. Choi\*

**ABSTRACT**

This research is focused on the investigation of impact strength and the microscopic observation of material behavior of glass fiber reinforced polypropylene in solid phase forming. The fiber weight percentage of the composite materials was 20%, 30% and 40%. The solid-phase formed specimens were pre-strained to 10%, 20%, and 30% strain levels. The forming temperatures of specimens were 100°C, 125°C, and 150°C. Izod impact test was performed with unnotched specimens. With increasing the glass fiber content, the impact strength was increased.

**초 록**

본 연구는 고상 성형된 유리섬유 강화 폴리프로필렌의 충격강도에 대한 연구와 성형동안의 재료거동에 대한 미시적 관찰을 행하고자 하였다. 재료의 충격강도 측정을 위해 노치가 없는 시편을 가지고 Izod 충격시험을 행하였다. 충격시험에 사용된 복합재료는 중량비로 20%, 30%와 40%의 유리섬유를 함유한 재료이다. 고상 성형품의 성형변형률에 따른 충격강도의 변화를 연구하기 위해 충격시편은 10%, 20% 및 30% 변형률까지 인장 성형 후 제작되었다. 성형온도에 따른 제품의 충격강도의 변화를 살펴보기 위하여 100°C, 125°C 및 150°C에서 성형을 행하였다. 성형된 시편의 충격강도는 유리섬유의 함유량이 증가함에 따라서 증가함을 보였다.

**1. 서 론**

최근 유리섬유 강화 열가소성 복합재료는 가볍고, 높은 강도와 강성을 가졌을 뿐만 아니라 재활용이 가능하며, 제조시 에너지 소비가 적은 장점들이 있어서 여러 가지 산업에서 금속성 재료의 대체 재료로서 사용이 증가하고 있다[1-5]. 이러한 섬유 강화 고분자 복합재료는 다양한 성형 방법에 의하여 제조되고 있다. 사

출성형에 의한 제품제조는 공정시간이 짧다는 장점이 있는 반면에 설치가 비싸고, 긴 섬유강화 복합재료의 경우에는 높은 점성으로 인해 사용이 어렵다는 단점을 지니고 있다. 고분자 복합재료의 성형에 가장 널리 사용되고 있는 압축성형은 장비가 단순하고 긴 섬유강화 복합재료의 성형에 적용이 가능하지만, 성형을 위해서는 재료를 용융 온도 이상으로 가열하여야 하기 때문에 긴 공정시간과 고가의 금형 제작비등을 단점으로

\* 전북대학교 고분자공학과 신소재개발연구소

들 수가 있다. 이러한 단점들을 극복하는 성형 기술들이 연구되어 왔으며, 이런 대체 성형 방법중의 하나는 금속성 판재 제품의 제조에 사용되는 기술을 응용한 기술로서, 판재 형태의 재료를 용융 온도와 유리 전이 온도 사이의 온도로 가열하여 성형하는 고상 성형(solid-phase forming)이다.

고상 성형은 공정시간이 비교적 짧고, 제조공정이 간단하며, 설치비가 적고, 성형품의 표면이 우수하며, 용융 온도까지 가열하지 않아도 되기 때문에 에너지 소비가 적다는 장점들을 가지고 있다[6,10]. 이러한 장점들로 인해 고상 성형에 대한 연구가 시작되었으며, 이런 연구들을 통하여 고상 성형의 가능성이 제시되었다[6-9]. 그러나 아직 실용화를 위해서는 고상 성형품의 기계적 특성 파악 등과 같은 많은 연구가 필요한 실정이다[7-8]. 따라서 이러한 고상 성형의 실용화를 위한 연구의 한 방편으로서 본 연구에서는 고상 성형을 통하여 제작된 제품의 충격강도를 파악하고 성형동안의 재료 거동의 이해를 위해 현미경을 통한 재료의 미세적 관찰을 행하였다.

## 2. 실험

충격시험에 사용된 재료는 직경과 길이가 각각 11 $\mu$ m 와 12.8mm인 유리섬유를 임의의 방향으로 배열한 폴리프로필렌 판재로써, 유리섬유를 중량비가 20%, 30%, 그리고 40%를 함유하고 있는 Finland의 Alhstrom회사의 RTC-C-4000-20-B, RTC-C-3000-30-B, RTC-C-3000-40-B이다. 사용된 판재의 두께는 20%의 경우에는 3.81mm이고, 30%와 40%의 경우에는 2.54mm이다. 사용된 폴리프로필렌 수지의 유리 전이 온도와 용융 온도는 각각 -10 $^{\circ}$ C와 165 $^{\circ}$ C이다.

충격시험용 시편제작을 위하여 복합재료 판재를 밀링기계로 가공하여 길이와 폭이 각각 150mm와 25mm인 직사각형으로 제작하여 고상에서 인장 성형하였다. 성형을 위해 고온 chamber를 갖춘 UTM (United Tension Machine)을 사용하였으며, Fig. 1에 장비의 사진을 보인다. 성형 온도에 따라 재료의 성형성 및 재료 거동은 크게 다른 것으로 이미 보고되었으며[6-8], 본 연구에서도 성형 온도변화에 따른 제품의 충격강도의 변화를 살펴보기 위하여 100 $^{\circ}$ C, 125 $^{\circ}$ C 및 150 $^{\circ}$ C에서 성형을 행하였다. 시편이 원하는 온도에 도달하도록 chamber 안에서 30분간 유지한 후 일정한 성형변형

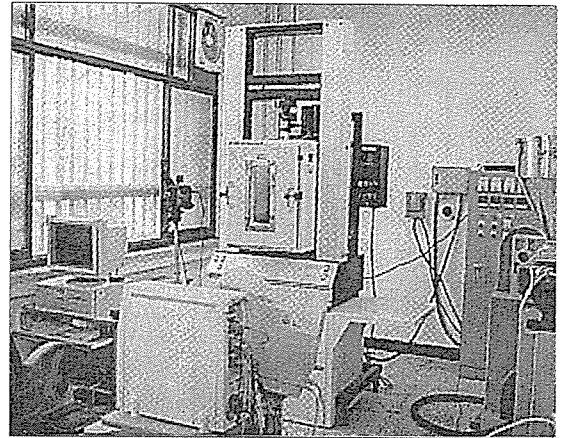


Fig. 1. A photograph of UTM used for solid-phase forming

률(prestrain)에 도달하도록 일정한 속도(5mm/sec)로 고상 성형을 하였다. 고상 성형된 판재로부터 균일한 성형변형을 분포를 가지는 충격강도 시편을 제작하기 위해 여러 번의 성형시험을 통하여 10% 오차 범위 이내의 변형률 정도(strain level)를 가지는 5개의 판재를 선정하였다. 성형된 판재의 변형률 측정을 위하여 판재의 한 면에 일정크기의 정사각형 모양의 눈금을 특수 잉크로 인쇄하여 성형 후 디지털식 버니어 캘리퍼스를 사용하여 성형변형률을 측정하였다. 성형된 판재는 충격시험용 시편 제작을 위해 길이와 폭이 각각 62mm와 10mm인 직사각형으로 밀링으로 기계 가공되었다.

충격시험은 ASTM D4812-93에 따라서 시험을 행하였다. 섬유 강화 복합재료의 경우 충격강도는 노치(notch)의 크기보다는 섬유의 분포나 위치에 따라서 영향을 많이 받게되며, 이로 인해 일반적으로 노치가 없는 시편을 사용한다[11]. 본 연구에서도 노치가 없는 시편의 충격시험 방법에 따라 Izod 충격시험을 행하였다. 본 충격시험을 위하여 Zwick회사의 충격시험기를 사용하였다. 사용된 충격시험기 추의 낙각각도는 124.4 $^{\circ}$ 이고, 에너지가 11J인 추를 사용하였다. 시편을 일정한 힘으로 고정하기 위하여 클램핑 조절기(clamping adjuster)를 이용하여 50N로 유지하면서 실험을 행하였다. Fig. 2는 본 연구에 사용된 Izod 충격시험법 및 시편 위치를 나타낸 것이다. 긴 유리섬유 강화 열가소성 복합재료는 재료 자체가 가지는 불 균일성 때문에 어느 정도 데이터의 편차가 발생할 것으로 여겨지며, 이러한 복합재료의 충격강도에 있어서의 분산 정도

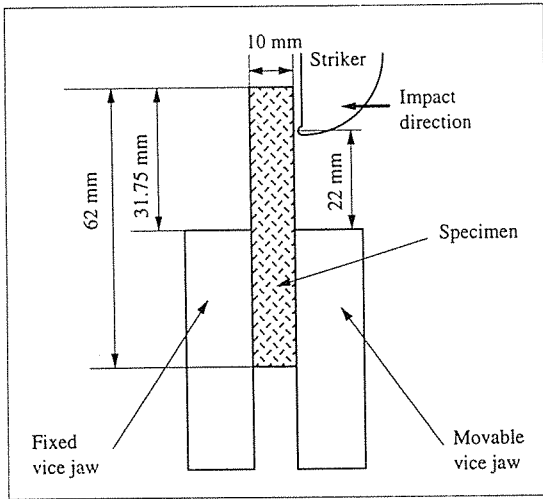


Fig. 2. A schematic of Izod impact test and positioning of a specimen

를 살펴보기 위해서 고상 성형을 하지 않은 유리 섬유  
의 중량비가 20%, 30% 및 40%인 시편을 10개씩 반  
복시험을 통하여 이를 고찰하였다.

Fig. 3은 유리 섬유 함유량이 20%와 40%인 경우  
에 10번의 반복시험을 통하여 얻어진 복합재료의 충격  
강도와 그 평균치를 나타낸 것이다. 본 결과에서 알 수  
있듯이 복합재료의 측정된 충격강도 값들은 큰 오차를  
보이지 않기 때문에, 성형된 시편에서는 5번의 반복실  
험을 통해 재료의 충격강도를 측정하였다. 충격실험을  
하기 전에 고상 성형된 시편의 두께를 digital vernier  
calipers를 이용하여 측정된 후에 시편을 충격 시험기  
의 클램프 조절기 위로 31.75mm가 되도록 위치시켰다.  
추가 상단위치에서 놓아질 때 추가 낙하하면서 시편에  
충격을 가해 얻어진 충격흡수에너지는 컴퓨터를 이용  
하여 기록하였으며, 이때 충격흡수에너지(W)는 아래와  
같은 방법으로 계산되었다[12].

$$W = \left(1 - \frac{1 + \sin \beta}{1 + \sin \alpha}\right) W_0 \quad (1)$$

여기에서  $\alpha$ 는 수평으로부터 편향된 각( $+70^\circ$ )이고,  
 $\beta$ 는 수평으로부터 충격 후에 최대 편향된 각( $-90^\circ \dots +$   
 $70^\circ$ )이며,  $W_0$ 는 추의 보유 에너지(J)를 나타낸다. 이로  
부터 충격강도(I)는 다음과 같다[12].

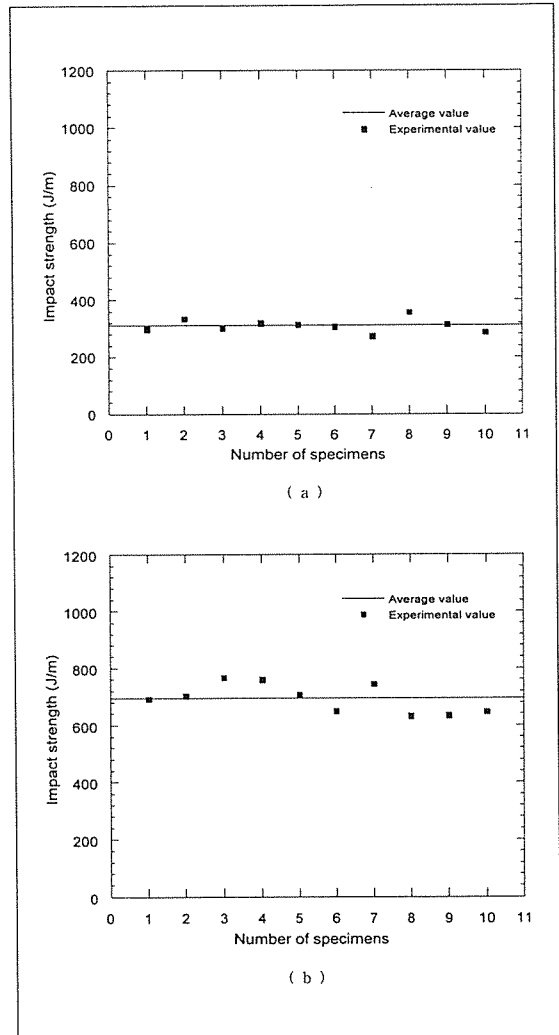


Fig. 3. Measured impact strength and average value for (a) 20% and (b) 40% glass contents

$$I = \frac{W}{B} \quad (2)$$

여기에서 B는 충격 시편의 두께(m)를 나타낸다.

유리섬유 강화 폴리프로필렌 복합재료를 고상 성형  
하였을 때 일부 유리섬유와 수지 사이의 분리현상, 유  
리섬유의 파괴, 수지의 소성 변형 및 찢어짐 등으로 인  
한 기공이 형성될 것으로 예측된다. 본 연구에서는 이  
러한 재료의 미시적 거동이 충격특성에 미치는 영향을  
살펴보기 위하여 여러 조건하에서 성형된 재료로부터

시편을 채취하여 CCD 카메라가 설치된 현미경을 통해 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

단순 인장 모드에서 고상 성형된 부품의 기계적 특성을 파악하기 위하여 Izod 충격시험이 행해졌다. Fig. 4는 중량비로 20% 유리섬유 강화 폴리프로필렌을 여러 변형률 정도까지 고상 성형을 한 시편을 가지고 5 번의 반복실험을 통하여 측정된 충격강도와 그 평균치를 error bar로 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 고상 성형시 변형률이 증가함에 따라 충격강도는 증가하였으며, 변형률이 약 30%로 인장된 경우에는 인장 전 복합재료에 비해 충격강도가 약 65% 정도 증가하였다. 이것은 고상 성형시 수지의 국부적인 소성변형과 찢어짐, 유리섬유와 수지사이의 분리현상(debonding), 그리고 유리섬유의 파괴 등으로 인하여 생성되는 기공(void)이 충격 시에 완충역할을 하였기 때문인 것으로 여겨진다.

Fig. 5는 유리섬유 함유율이 30%인 복합재료의 성형변형률 정도에 따른 측정된 충격강도를 그의 평균치와 함께 나타낸 것이다. 유리섬유 함유율이 30%인 복합재료의 경우에는 함유율 20% 재료와 마찬가지로 성형변형률이 증가함에 따라 충격강도가 증가함을 보이나, 그 증가폭은 20%인 재료에 비해 완만하다. 섬유 함유율이 30%인 경우에는 20%인 재료와 마찬가지로

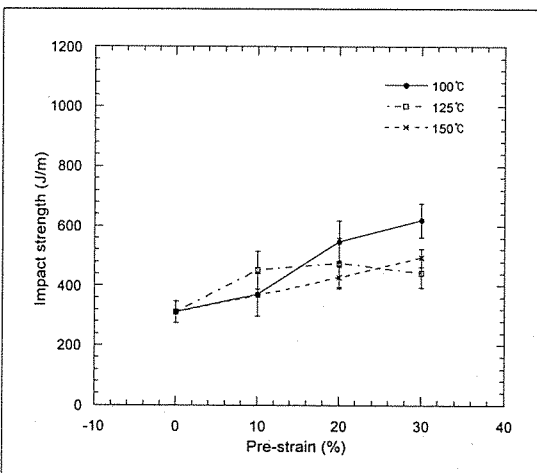


Fig. 4. Impact strength for 20% glass reinforced polypropylene as a function of pre-strain

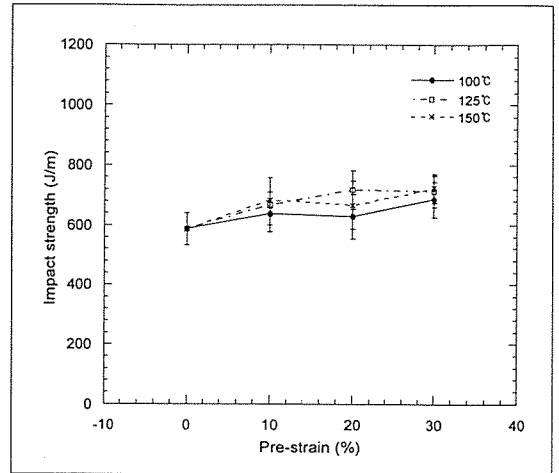


Fig. 5. Impact strength for 30% glass reinforced polypropylene as a function of pre-strain

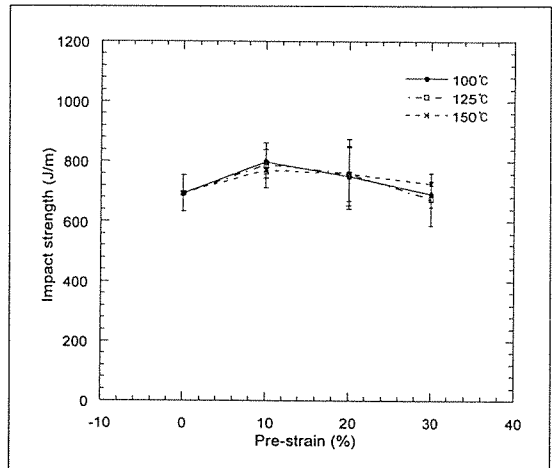


Fig. 6. Impact strength for 40% glass reinforced polypropylene as a function of pre-strain

수지의 소성변형, 분리현상과 수지의 찢어짐으로 야기 되는 기공 등의 충격흡수효과에 의해 충격강도가 증가함을 보였으나, 20% 재료와는 다르게 충격강도의 증가율이 떨어지는 것은 복합재료내의 섬유에 비해 수지의 양이 상대적으로 적어서 고상 성형으로 기인되는 재료의 변형이 충격흡수효과 보다는 재료의 물성 저하효과가 더욱 커지게 하기 때문인 것으로 여겨진다. Fig. 6은 유리섬유 함유율이 40%인 재료의 측정된 충격강도를 보인다. 함유율이 40%인 재료의 경우 초기에는, 즉 성형변형률이 약 10%까지는 충격강도가 증가함을 보였으나, 그 이상에서는 점차 감소함을 보였다. 이러한

충격강도의 감소는 유리섬유의 함유량이 20%와 30%인 재료보다 섬유의 함유량이 더욱 증가하게 되어 적은 성형변형률에서도 수지가 쉽게 찢어지거나 분리현상이 일어나게 되어 충격흡수효과 보다는 재료의 물성 저하효과가 더욱 크게 작용한 것으로 여겨진다. 이러한 재료의 물성 저하효과는 성형변형률이 20%에서 보다 성형변형률이 30%에서 더욱 증가하여 충격강도의 감소율이 증가했던 것으로 여겨진다. 또한 이상의 실험결과에서 알 수 있듯이 성형온도가 충격강도에 미치는 일관된 경향을 나타내지 않았으며, 이것은 온도 효과가 각 시편에서 발생할 수 있는 재료 자체의 불균일성이나 시편의 성형동안에 발생하는 변형률의 불균일성에 기인된 편차보다 작기 때문인 것으로 생각된다.

Fig. 7은 유리섬유의 성형변형률 정도에 따른 충격강도의 변화를 정량적으로 파악하기 위해 측정된 충격강도의 평균치를 2차 함수를 이용하여 근접시킨 곡선을 보인다. 얻어진 곡선은 다음 함수와 같다.

20% 재료 :

$$Y = -0.1275(x-42.75)^2 + 541.65 \quad (3.1)$$

30% 재료 :

$$Y = -0.0943(x-34.46)^2 + 704.02 \quad (3.2)$$

40% 재료 :

$$Y = -0.3772(x-14.78)^2 + 780.66 \quad (3.3)$$

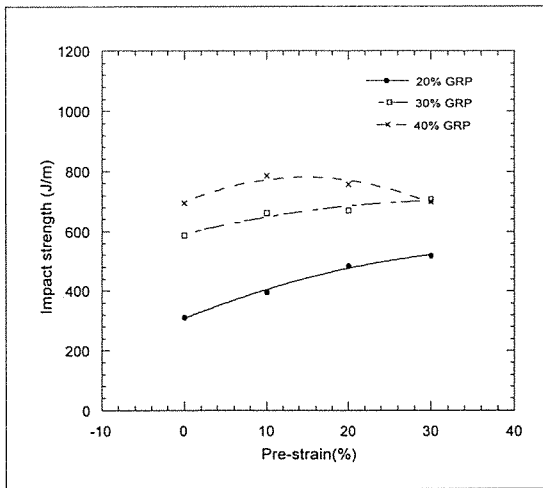


Fig. 7. Average impact strength and fitted lines for 20%, 30%, and 40% glass content

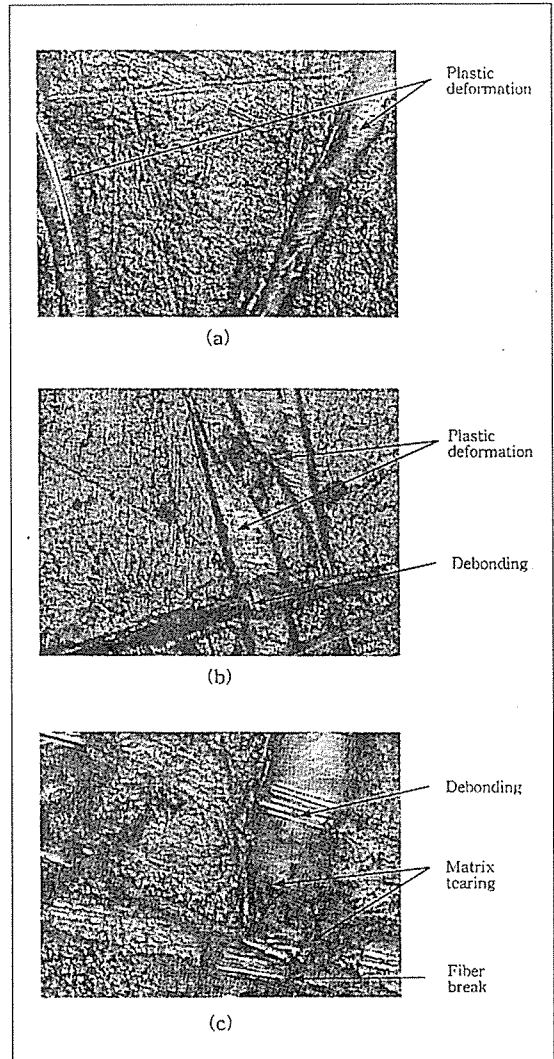


Fig. 8. Micrograph of (a) 10%, (b) 20%, and (c) 30% pre-stained specimen formed at 125°C with 20% glass content

여기서 Y는 충격강도 값을 나타내고, x는 성형변형률(%)을 나타낸다. 결과는 각 재료의 충격강도는 임계 성형변형률정도(critical strain level)까지는 충격흡수효과가 우수하여 증가하나 그 이상의 성형변형률에서는 재료의 물성 저하효과가 더욱 크게 되어 충격강도 값이 감소하는 것을 전제로 하였다. 즉 섬유의 함유율이 20%인 재료는 성형변형률이 약 42.8%에서 최고의 충격강도 값을 나타내고, 함유율이 30%인 재료는 성형변형률이 약 34.5%에서, 함유율이 40%인 재료는

약 14.8%에서 최고의 충격강도를 나타낸다고 추정된다.

단순인장 모드에서 복합재료를 고상 성형했을 때 충격강도 변화의 원인을 이해하기 위해, 유리섬유가 20% 보강된 재료를 성형변형률 정도에 따라 관찰한 미소 국부 조직의 현미경 사진을 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8의 (a)에 보인 것처럼 유리섬유의 함유율이 20%인 경우에는 성형변형률이 10%에서 약간의 국부적인 수지의 소성변형이 시작됨을 알 수 있으며, 성형변형률이 20%일 경우를 나타내는 (b)에서는 소성변형의 발생 빈도가 점점 높아지고, 소성 변형역이 확산되어 가는 것을 알 수 있다. (c)는 성형변형률이 30%인 경우로서 소성 변형역이 확산되어 감과 동시에 미소 국부적으로 수지의 찢어짐과 섬유의 분리현상, 그리고 기공의 형성이 더욱 진전되었음을 보여 주고 있다.

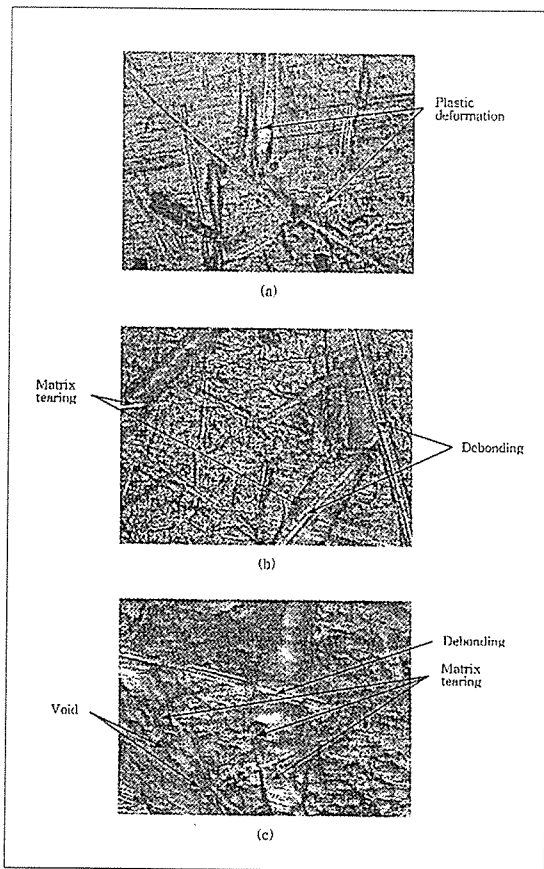


Fig. 9. Micrographs of (a) 10%, (b) 20%, and (c) 30% pre-stained specimens formed at 125 °C with 40% glass content

Fig. 9는 섬유 함유율이 40%인 재료의 현미경사진을 보이는 것으로 초기에는 함유율이 20%인 재료와 거의 비슷한 현상을 보이거나 성형변형률이 증가함에 따라 함유율이 20% 재료보다는 더욱 빠르게 소성 변형역이 넓은 영역으로 전파되고 국부적인 수지의 찢어짐과 섬유의 분리현상도 빠르게 진전됨을 보인다. 이로 인해 충격강도도 초기의 변형상태 즉, 성형변형률이 약 14.8%에서 최고를 나타낸 후 점차 감소하는 것으로 여겨진다.

#### 4. 결 론

고상 성형시 재료의 충격강도의 변화를 살피기 위한 본 연구를 통하여 다음과 같은 연구 결과를 얻었다.

1. 고상 성형시 성형변형률이 증가함에 따라 충격강도가 증가하였으나, 임계 성형변형률 이상에서는 성형변형률이 증가함에 따라 충격강도가 감소하는 것으로 추정 된다.

2. 유리섬유의 함유량이 증가함에 따라 충격강도는 증가하였으며, 반면 임계 성형변형률은 감소하였다.

3. 고상 성형시 성형온도의 충격강도에 미치는 영향은 크게 나타나지 않았으며, 실험된 조건 내에서는 일관된 경향을 보이지 않았다.

4. 여러 성형변형률까지 고상 성형한 시편의 현미경 관찰을 통하여 성형 동안의 재료의 미세 거동을 파악하였으며, 성형변형률이 증가함에 따라 유리섬유에 인접한 수지의 소성 변형이나 찢어짐, 유리섬유의 파괴, 또는 수지와 유리섬유 계면에서의 분리현상 등과 같은 현상이 심화되어 재료의 충격강도의 변화가 일어남을 보인다.

#### 후 기

본 연구는 1997년도 교육부 학술연구조성비(신소재 분야)에 의하여 연구되었습니다.

#### 참고문헌

1. Bigg, D. M. and Preston, J. R., "Stamping of Thermoplastic Matrix Composites", Polymer

Composite, Vol. 10, No. 4, 1989, pp. 261-268.

2. Crosby, Jane M., "Recent Advances in Thermoplastic Composites", *Advanced Material and Processes*, 1968, pp. 225-230.

3. Fallon, Michael R., "Thermoplastic Sheet Stamping : Ready for the Big Time", *Plastic Technology*, 1989, pp. 95-103.

4. Maass, D. and Bertolet, J., "Forming Thermoplastic Composites", Technical Reprt EM86-714, S.M.E. Technical Paper, 1986.

5. Muzzy, J .D., Wu, X. and Colton, J. S., "Thermoforming of High Performance Thermoplastic Composites". ANTEC, 1989, pp. 1465-1470.

6. Lee, J. H. and Vogel, J. H., "An Investigation of the Formability of Long Fiber Thermoplastic Composite Sheet", *Journal of Engineering Materials and Technology, Transactions of ASME*, 1995, 117:127-132.

7. Lee, J. H. and Vogel, J. H., "An Investigation of the Necking Instability in Fiber Reinforced

Polypropylene", *Journal of Engineering Materials and Technology, Transactions of ASME*, Jan. 1996, 118:80-87.

8. Lee, J. H. and Vogel, J. H., "Biaxial Stretch Forming of Thermoplastic Composite Sheets", 27th International SAMPE Technical Conference, Diversity into the Next Century, Oct., 1995, 27:750-759.

9. Lee, J. H., A Study of the Long Fiber Reinforced Thermoplastic Composite Sheet Forming, Ph. D. Thesis, University of Minnesota, June 1995.

10. Bigg, D. M., Histock, D. F., Preston, J. R., and Bradbury, E. J., "Thermoplastic Matrix Sheet Composites", *Polymer Composites*, Vol. 9, No. 3, 1998, 222-228.

11. ASTM D4812-93, "Standard Test Method for Unnotched Cantilever Beam Impact Strength of Plastics".