

高分子 複合材料의 接着強度에 關한 研究(Ⅰ)  
Fiberglass Reinforced Low Density Polyethylene의 強度向上效果

金 源 澤 · 金 商 郁

漢陽大學校 工業化學科

(1977년 9월 8일 접수)

Studies on Adhesive Strength of Polymer Composites(Ⅱ)  
The Effect of Strength Improvement of Fiberglass  
Reinforced Low Density Polyethylene

Won Taik Kim and Sang Wook Kim

*Department of Industrial Chemistry, College of Engineering, Hanyang University,  
Seoul 133, Korea*

(Received September 8, 1977)

**要 約** : Polymer matrix 는 Low Density polyethylene 을 사용하고 fiberglass 를 一方向으로 配列하여 複合시켰다.

그 結果 fiberglass 의 複合素材가 continuous fiber 일때는 Hollister 의 二相理論値와 거의 一致했고 discontinuous fiber 일때는 理論値의 大略 1/2 程度인데 이는 High Density polyethylene 의 경우보다 좋은 값을 보여준다. 또한 N- $\beta$ -aminoethyl- $\gamma$ -aminopropyl trimethoxy silane 으로 fiberglass 를 處理했을때 10%까지의 容積範圍에서는 理論値보다 다소 상회하는 結果를 얻었다.

**Abstract** : Low density polyethylene composites filled with fiberglass of two forms were used for the studies. The role of continuous fiber and discontinuous fiber in reinforced plastics composite was experimentally investigated.

The results indicated that the tensile strength of low density polyethylene composite filled with continuous fiberglass was in good agreement with Hollister's theory, and those filled with discontinuous fiberglass showed about one half of the theoretically predicated strength values.

When the surface of fiberglass was pretreated by N- $\beta$ -amino ethyl- $\gamma$ -amino propyl trimethoxy silane, in the plotted range of volume fraction up to 10%, the strength was higher than the theoretical value.

### 1. 緒論

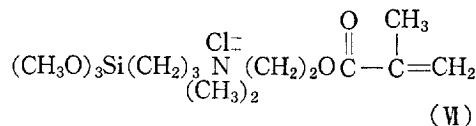
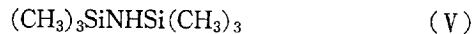
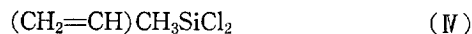
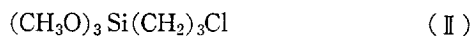
Low density polyethylene (LDPE)은 High density polyethylene (HDPE)과는 物性面에서 差異點이 있기때문에 複合材料의 素材로써도 많은 차이가 있다. PE는 加工性이 좋고 가볍고 彈性, 耐藥品性等이 優秀하다. 그러나 強度는 LDPE가 HDPE의 반정도밖에 되지 않는다<sup>1~3</sup>. 이런 理由에서 LDPE는 複合材料로 試圖되지 않고있는 實情이며 別로 報告된 바도 없다<sup>4,5</sup>.

著者は 이러한 LDPE의 強度向上을 위해 우선 LDPE를 여러形態의 纖維狀으로 複合시켜 어느程度의 強度를 나타낼 수 있는가를 알아보았으며 Hollister<sup>6</sup>가 提案한 式을 計算하여 實驗하여 얻은 값들과 比較, 考察했다. 또한 이를 토대로 하여 여러가지 coupling agent를 fiberglass에 處理하여 複合시킨 fiberglass reinforced LDPE를 製造하고<sup>7~12</sup> 強度向上에 對해 考察한다음 理論值, 그리고 HDPE<sup>14</sup>와 比較했다.

### 2. 實 驗

#### 2.1 試料 및 試藥

LDPE는 日本 Showa Yuka K.K 製品(Grade 2250, density 0.922, Melt Index 5.0)을 사용하고 fiberglass는 직경이 10 $\mu$ 인 것으로 前報<sup>13</sup>의 sample B를 使用했다. coupling agent는 Dow corning 製品으로써 아래의 6種을 使用했다.



#### 2.2 器具

本實驗에 使用한 器具는 4 ton press (Shimadzu Seisakusho Co., 가열판부착)와 同社의 製品인 Cutter (No. 51539)와 CM-10 Type의 Thickness Tester, 그리고 Universal testing Instrument

Model TM-SM을 使用하였다.

#### 2.3 Fiberglass의 表面處理

Coupling agent (II)와 (IV)는 benzene을 (III)과 (V)는 acetone, 그리고 (I)과 (VI)은 증류수를 溶媒로 하여 1% 溶液으로 各各 만든다음 安定性을 고려하여 즉시 fiberglass를 各各의 coupling agent 溶液에 一時間침지시켰다가 꺼내어 105°C에서 15分間 건조시킨다음에 使用했다.

#### 2.4 LDPE의 複合

Pellet 狀態의 LDPE를 135°C에서 100 kg/cm<sup>2</sup>로 3分間 加壓하여 두께 1.9~2.1 mm되게 成形을 하여 LDPE plate를 우선 만들었다. 그리고 나서 virgin fiberglass와 6種의 coupling agent로 表面處理한 5 mm, 10mm, 20mm, 30mm, 그리고 continuous fiber를 容積含有量에 따라 LDPE plate 사이에 積層시켜 155°C에서 10分間 100 kg/cm<sup>2</sup>로 加壓하여 成形했다. 이때 加壓하기전에 polymer matrix인 LDPE가 응용되어 fiberglass 사이로 고루 분산, 침투하게끔 5分間 충분히 豫熱을 해주었다. 接着이 끝난후에는 금방을 시켜 얻었다.

#### 2.5 強度測定

fiberglass 軸方向으로 引張되도록 製造된 試驗片을 各各 5個씩 만들어 1週間 恒溫室에 放置시킨 後에 使用했고 引張 strain 速度를 50 mm/min로 하여 測定했다.

### 3. 結果 및 考察

#### 3.1 Continuous fiberglass.

複合素材로써 continuous fiber를 使用하게 되는 경우 그에 대한 Hollister의 複合法則<sup>6,14</sup>에 Table I의 값을 代入하면

$$\sigma_c = 110V_f + 1.2(1 - V_f) \text{ 이다}$$

Table I. Properties of LDPE and Fiberglass

Property \ Material	LDPE	Fiberglass
Tensile strength	1.2 kg/mm <sup>2</sup>	110 kg/mm <sup>2</sup>
Density	0.922	2.53

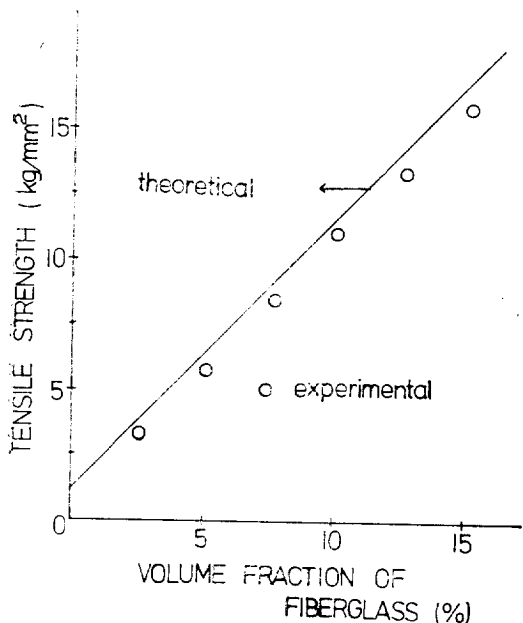


Figure 1. Theoretical and experimental data for the tensile strength of continuous fiberglass reinforced LDPE.

(여기서  $\sigma_c$ 는 composite의 引張強度이고  $V_f$ 는 fiberglass의 容積含有量)

이것에 의하여 계산된 값과 實驗에서 얻어진 값은 거의 一致하고 있다(Figure 1).

이러한 複合材料에 引張應力을 서서히 가해서 점차 應力을 증가시키면 처음엔 fiberglass와 LDPE가 다같이 탄성변형하다가 fiberglass는 탄성변형을 LDPE는 소성변형을 하고 그다음 fiberglass는 LDPE와 함께 소성변형을 하다가 破斷이 일어난다고 생각되는데 fiberglass가 brittle할 때는 다같이 소성변형하는 단계를 거치지 않고 破斷이 일어나기때문에 좋은 強度를 얻을 수 없다고 생각된다.

### 3.2 Discontinuous fiberglass.

Discontinuous fiber를 複合시켰을때 강도는

$$\sigma_c = \sigma_f \left(1 - \frac{l_c}{2l}\right) V_f + \sigma_m' (1 - V_f) \text{ 이다}$$

(여기서  $l_c$ 는 critical length이고  $\sigma_m'$ 은 纖維 破斷 strain때 matrix의 stress)

$\sigma_m'$ 은 yield strength인  $1.1 \text{ kg/mm}^2$ 으로 했고 fiberglass의 引張強度와 直徑은  $\sigma_f = 110 \text{ kg/mm}^2$ ,

$d_f = 10 \mu$ 이고 이것과 LDPE와의 接着剪斷強度<sup>15</sup>는  $\tau_f = 0.2 \text{ kg/mm}^2$ 로 測定되었다. 그러므로 critical length  $l_c = \frac{\sigma_f}{2\tau_f} d_f$ 에 의해 fiberglass를 有效하게 作用하게 하기위해 必要한 critical length  $l_c = 2.75 \text{ mm}$ 가 된다. fiberglass를 충분히 引張強度까지 作用시킬 수 있게 하기위해 本實驗은 이  $l_c$ 보다 크게 fiberglass를 5 mm, 10 mm, 20 mm, 30 mm로 切斷하여 一方向으로 配列하여 各各 成形했다. discontinuous fiber로 複合시키는 경우 이 composite를 fiberglass軸方向으로 引張하면 fiberglass와 matrix의 彈性率의 差에 의해서 fiberglass軸方向으로 fiberglass表面에 剪斷力이 發生하며 이 剪斷力에 의해서 fiberglass중에서 引張應力이 생기며 따라서 fiberglass는 應力 부담의 機能을 발휘하게 되는 것이다. 그리고 composite의 fiberglass는 어떤斷面에도 分布되어 있기때문에 fiberglass의 應力부담은 fiberglass의 平均應力  $\bar{\sigma}_f$ 와 容積含有率  $V_f$ 의 積과 같다. 平均應力  $\bar{\sigma}_f$ 는 Hollister가 提案한 Model에서 fiberglass의 兩端에 있어서의 引張應力을 線形이라고 생각해서 上記式中  $\bar{\sigma}_f = \sigma_f \left(1 - \frac{l_c}{2l}\right)$ 가 되어 이 平均應力이 discontinuous fiberglass를 複

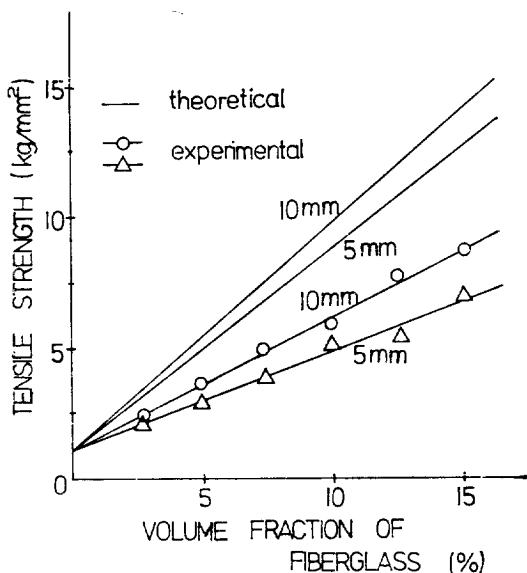


Figure 2. Theoretical and experimental data for the tensile strength of discontinuous fiberglass (5mm, 10mm) reinforced LDPE.

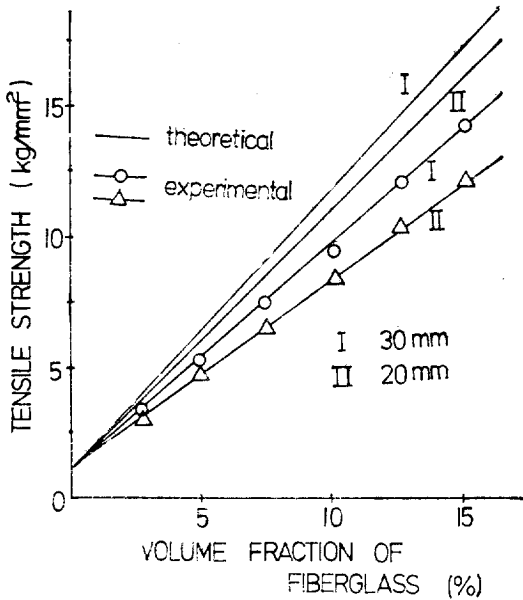


Figure 3. Theoretical and experimental data for the tensile strength of discontinuous fiberglass (20mm, 30mm) reinforced LDPE.

합시켰을때 가장 중요한 因子가 된다고 생각할 수 있다. 그러므로 이 discontinuous fiber의 길이와 容積分率에 따른 強度는 길이에 따라 各各의 理論值에는 못미치고 있지만 길이가 커감에 따라 強度는 일정하게 증가하고 있음을 알 수가

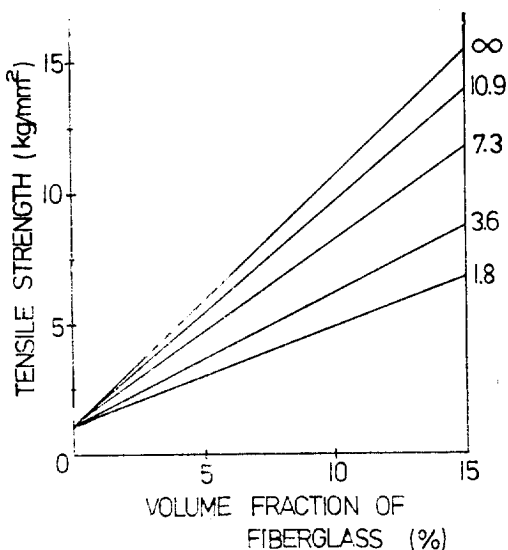


Figure 4. Comparison of tensile strength according to the  $\alpha$  value ( $l/l_c$ )

있다 (Figure 2~Figure 3).

다시말해서 強度를 支配하는, 즉 平均應力값을 左右하는  $\alpha$  값( $l/l_c$ )에 따라 強度의 차이가 있음을 분명히 알 수 있다 (Figure 4).

### 3.3 Coupling agent 處理效果

두 材料를 複合시키는 경우 各各 두 材料와 結合할 수 있는 構造를 가진 coupling agent를 使用하는데 이는 보다 強한 結合으로 因해 좋은 強度를 얻을 수 있다<sup>7-15</sup>. 그러나 LDPE에 關한 coupling agent는 별로 알려져있지 못한편이다. 本實驗에서는 유사한 構造를 가진 coupling agent 여러가지중에서 上記의 6種에 對해서만 理論値와 比較할 수 있는 값을 얻었는데 (Figure 5~Figure 8) 이는 HDPE를 複合시켰을 때와 대체로 一致하고 있음을 알 수 있었다. 그러나 용적 畧위 10%이하에서만 理論値를 능가하는 값을 얻었다. 한편 5mm (Figure 5)와 10mm (Figure 6)의 경우는 coupling agent를 使用해도 좋은 값을 얻을 수 없었다. 그러나 이때도 역시 virgin fiberglass 때와 마찬가지로  $\alpha$  값에 따라 좋은 값을 나타내고 있다. 그리고 20mm (Figure 7)와 30mm (Figure 8) 때는 좋은 값을 나타내고 있는

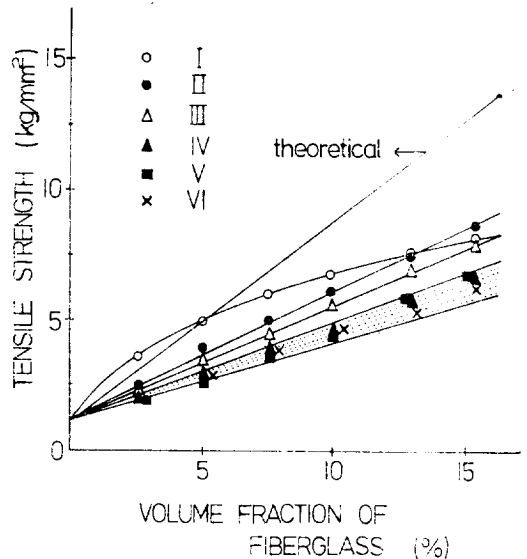


Figure 5. Theoretical and experimental data for the tensile strength with treated discontinuous fiberglass (5mm) reinforced LDPE.

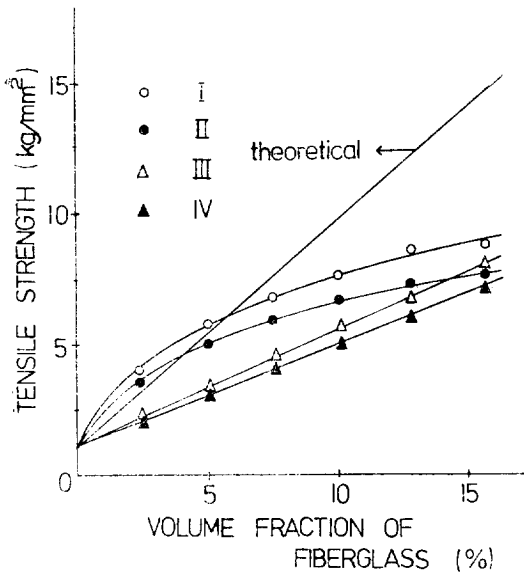


Figure 6. Theoretical and experimental data for the tensile strength with treated discontinuous fiberglass (10mm) reinforced LDPE.

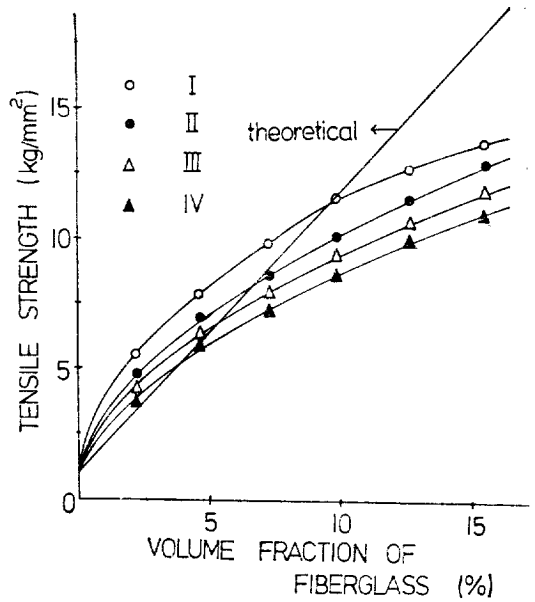


Figure 8. Theoretical and experimental data for the tensile strength with treated discontinuous fiberglass (30mm) reinforced LDPE.

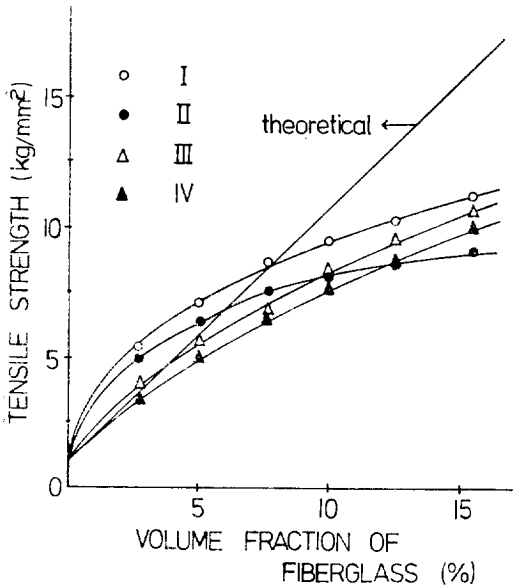


Figure 7. Theoretical and experimental data for the tensile strength with treated discontinuous fiberglass (20mm) reinforced LDPE.

데 대체로 coupling agent (I)만 용적함유율이 10% 까지 理論値를 상회하고 있고 그 이상에서는 理論値보다 低하하는 線型을 나타내고 있음을 알았다(Figure 7~Figure 8). 이는 virgin fiberglass를 使用했을 때도 같은 結果지만 Thermoplastic matrix의 加工으로 因한 點과 fiberglass의 용적함유율이 증가하던 필연적으로 fiberglass 상호간의 接觸이 많게 되어 이런 fiberglass間的 接觸부분에는 外部應力下에서 crack이 發生하기 쉬워 composite의 強度가 현저하게 低하하기 때문이라고 생각된다. 그리고 coupling agent에 의한 強度効果는  $I > II > III > IV$ , V, VI의 順으로 強度를 높여주고 있음을 알 수가 있는데 HDPE의 경우와는 달리 (I)만이 比較的 좋은 값을 나타내고 있어 약간의 대체를 이루고 있음을 알 수 있다.

#### 4. 結 論

LDPE-fiberglass의 二成分系 composite 強度에 對해 本研究結果를 要約하면 다음과 같다.

(1) continuous fiber를 복합시켰을때 그 強度는 Hollister의 理論値에 거의 一致하고 있다.

(2) 5 mm~30 mm의 discontinuous fiber를 복합시켰을 때는 5 mm의 경우, 즉  $\alpha \approx 2$ 일때는 理論値의  $\frac{1}{2}$ 쯤을 나타냈으며 10mm, 20mm, 30mm로 길어질수록 強度는 더욱 증가하였다. 30mm 때의 強度, 즉  $\alpha \approx 11$ 일 때는 continuous fiber 때의 強度와 比較하여 約 95%를 나타내고 있다.

(3) coupling agent를 處理했을 때는  $\alpha$  값에 따라 역시 좋은 값을 나타내는데 이것은 virgin fiberglass 때와 잘 부합된다.

(4) coupling agent로써는 I > II > III의 順으로 좋은 값을 나타내고 있고 IV, V, VI은 거의 비슷한 값을 나타내고 있는데 fiberglass가 5 mm와 10 mm일때는 理論値를 능가하지 못하고 20 mm, 30mm일때는 fiberglass의 容積範圍가 10% 이하에서는 理論値를 능가함을 보여준다.

#### 引用 文 獻

1. L. E. Cessna et al, *SPE J.*, **25**, 35(1969)
2. 荒木邦夫, 工業材料, **21**, 23(1973)

3. 渡邊武美, *ibid.*, **21**, 48(1973)
4. G. J. Fallick et al, *Modern Plastics*, **45**, 143(1968)
5. J. G. Marsden, *SPE J.*, **26**, 46(1970)
6. G. S. Hollister, "Fibre Seiaforced Materials", Elsevier, 14~116(1966)
7. 瀬山淨一郎, 強化プラスチック, **13**, 3(1967)
8. 井上凱夫, 工業材料, **23**, 49(1975)
9. Y. L. Fan and R. G. Shaw, *Modern Plastics*, **47**, 104(1970)
10. L. A. Roth, *I & EC. Prod. Res. Develop.*, **11**, 23-156(1972)
11. E. P. Plueddemann, *27th Annual Technical conference*, sec 11-B, 1(1972)
12. E. P. plueddemann and G. L. Stark, *Modern Plastics*, **51**, 2(1974)
13. W. T. Kim and S. W. Kim, *J. of KICHE*, **14**, 77(1976)
14. W. T. Kim and S. W. Kim, *Polymer (Korea)*, **1**, 37(1977)
15. 山口章三郎, 天野晋武, "高分子討論會要旨集", **1-385**, 1973-11