복합 개질제가 도입된 폴리프로필렌의 내충격성과 내마모성 및 결정화 거동에 관한 연구

이종인^{# ·} 배진우^{# ·} 김신라 · 홍준의 · 남병욱[†]◎

한국기술교육대학교 응용화학공학과 (2020년 3월 11일 접수, 2020년 4월 25일 수정, 2020년 5월 6일 채택)

Study on Impact Resistance, Wear Resistance and Crystallization Kinetics of Polypropylene Modified by Complex Crosslinkers

Jong In Lee[#], Jin Woo Bae[#], Sin La Kim, Jun Eui Hong, and Byeong Uk Nam^{†@}

Department of Applied Chemical Engineering, Korea University of Technology and Education, 1600 Chungjeol-ro, Byeongcheon-myeon, Dongnam-gu, Cheonan-si, Chungcheongnam-do 31253, Korea (Received March 11, 2020; Revised April 25, 2020; Accepted May 6, 2020)

초록: 환경 규제의 강화로 인하여 이산화탄소의 배출을 줄이기 위해 자동차 산업에서는 경량소재에 대한 연구가 활 발하게 이루어지고 있다. 이러한 경량화 소재들 중, 폴리프로필렌(PP)은 저렴한 생산 비용과 우수한 가공성으로 인 해 자동차 산업에서 많은 관심을 받고 있다. 그러나 PP는 다양한 자동차 부품 소재로 사용하기에는 낮은 내충격성 과 내마모성을 보인다. 본 연구에서는 이러한 PP의 문제점을 개선하기 위해 선형의 PP를 이축 압출기를 통해 개시 제 및 trimethylolpropane trimethacrylate(TMPTMA)와 divinylbenzene(DVB)의 개질제들을 복합적으로 도입하여 분 지화 및 가교 구조의 PP를 제작하였다. 개질된 PP는 선형의 PP와 비교하여 성형성은 비슷하게 유지하면서도 내충 격성과 내마모성이 개선되었다. 이렇게 향상된 특성들은 분지화 및 가교로 인한 PP의 결정화 거동에 영향을 받은 것으로 판단된다.

Abstract: As environmental regulations become strict, automobile industry has focused on the light material to reduce carbon dioxide emission. Among these light materials, polypropylene (PP) has received considerable attention in the automobile industry because of low cost and good processability. However, the PP has low impact resistance and wear resistance to be used in various automotive parts. To improve the impact resistance and wear resistance, in this study, linear PP was branched and/or crosslinked by the initiator with the crosslinkers of trimethylolpropane trimethacrylate (TMPTMA) and divinylbenzene (DVB) through the twin screw extruder. The modified PP improved the impact resistance and wear resistance than those of linear PP while keeping process flowability. It is considered that the crystallization kinetics of branched and/or crosslinked PP have an influence on the improved properties.

Keywords: polypropylene, complex crosslinkers, impact resistance, wear resistance, crystallization kinetics.

서 론

최근 환경 규제가 엄격해짐에 따라 자동차 산업에서는 이 산화탄소 배출량을 줄이기 위해 연비 향상과 관련된 연구를 활발하게 진행하고 있다.^{1,2} 특히 자동차의 연비를 향상시키는 방법으로 자동차 소재를 경량화하는 것이 가장 효율적인 방 법으로 알려져 있다.³ 그래서 기존 차량 부품의 무거운 금속 소재를 상대적으로 가벼운 소재의 플라스틱을 도입하여 소재 의 경량화를 이루고자 하였다.^{1,4} 다양한 플라스틱 중에서도

[#]These authors contributed equally to this work.
[†]To whom correspondence should be addressed.
bunam@koreatech.ac.kr, ORCID[®]0000-0001-5248-7349
©2020 The Polymer Society of Korea. All rights reserved.

폴리프로필렌(PP)은 자동차 산업에서 경량성, 낮은 생산 가 격, 우수한 가공성으로 인하여 자동차의 다양한 내외장재로 많이 사용되고 있다.²⁴⁶

하지만, PP는 bumper와 같은 부품으로 응용되기에는 깨지 기 쉬운 문제점이 있고, instrument panels, door panels 등의 부품에서는 잦은 사용으로 인해 마모가 쉽게 일어난다.^{4,6} 이 러한 문제들을 해결하기 위해 PP에 고무와 같은 충격보강제 를 함께 첨가하여 제조하였다. 하지만, 이러한 방법으로 충 격강도는 개선되었지만 가공성이 감소되는 문제가 야기되었 다.^{7,8} 또한 내마모성을 개선하기 위해 탄소나노튜브 또는 탄 산칼슘과 같은 무기 입자를 첨가하는 방법이 사용되었다.^{6,9-12} 그러나 이러한 무기 입자의 도입은 단가 상승 및 가공성의 감소를 초래하였다.

본 연구에서는 PP의 내충격성과 내마모성을 개선하기 위 하여 개질제인 trimethylolpropane trimethacrylate(TMPTMA) 와 divinylbenzene(DVB)를 복합적으로 도입하여 자유 라디 칼 개시제와 함께 이축 압출기를 통해 용융 블렌드하였다. 두 개질제를 단독으로 사용하였을 때 각각의 물성을 비교하였고 이를 통해 복합적으로 도입되는 두 개질제의 함량을 조절하 여 성형성을 적절히 유지하면서 내충격성과 내마모성이 우수 한 개질된 PP를 얻고자 하였다. 개질된 PP의 반응 여부를 확 인하기 위해 FTIR(Fourier transform infrared) 분석을 진행하 였다. 조성에 따른 고분자의 흐름성과 가교 정도를 확인하기 위해 용융흐름지수(melt flow index, MFI) 분석과 soxhlet 추 출법을 이용하여 가교도를 측정하였다. 충격강도와 내마모도 를 측정하기 위해 각각 Izod 충격시험과 테이버 마모시험을 실시하였다. 또한 DSC(differential scanning calorimetry) 분 석을 통해 개질된 PP의 결정화 거동과 내충격성 및 내마모 성과의 관계를 알아보았다.

실 험

재료. 본 연구에 사용된 PP는 Lotte Chemical사의 JM350 (MFI=10 g/10 min at 230 °C, 2.16 kg)을 사용하였다. 개질제 로 사용한 TMPTMA와 DVB는 각각 Aldrich사와 Samchun 사에서 구입하였다. 또한 자유 라디칼 개시제는 Akzonobel사 의 Perkadox 14(di(*tert*-butyl-peroxyisopropyl)benzene)를 사 용하였다. 개질제가 도입된 PP의 가교도 분석을 위한 xylene 용매는 Daejung사에서 구입하여 사용하였다.

샘플의 조성 및 제조. 반응 압출 이전에 PP와 개시제 및 개질제들을 Table 1의 조성대로 제작하였다. PP의 개질은 corotating 타입의 이축 압출기(Bautek, BA19, L/D=40, 19Φ)를 이용하여 용융 블렌드하였다. 공정 스크루의 속도는 150 rpm 으로 하였으며 피더부터 다이까지의 온도는 165~190 °C로 설 정하였다. 압출 공정은 conveying zone, kneading zone 그리 고 reverse zone을 거치면서 진행되고 냉각 수조에서 냉각을 거친 뒤 펠렛타이저(Bautek, BA-PLT)를 통해 펠렛 형태로 최 종 제조하였다. 제조된 펠렛은 60 °C 진공 건조기에서 24시 간 건조 후, 충격강도 분석을 위해 시출기(Heunghwa, HVM-25VS)를 이용하여 ASTM 표준시편을 제작하였다. 내마모도 시험을 위한 시편은 핫 프레스(Salt, ST-100) 장비를 이용하 여 지름 100 mm, 두께 2 mm의 원형 시편을 제작하였다.

샘플 분석. FTIR(Perkinelmer, spectrometer 100)은 1000~ 4000 cm⁻¹ 범위에서 스캔수 16으로 측정하였다. MFI는 melt indexer(Tinius Olsen, MP600) 장비를 이용하여 ASTM D 1238 규격에 따라 측정하였다. 조성에 따른 개질된 PP의 가 교도 분석은 soxhlet 추출법을 이용하여 끓는 xylene에 24시 간 용해시키고 잔류물을 건조 후 식 (1)에 의하여 가교도를 계산하였다.

Gel content =
$$W_2/W_1 \times 100$$
 (1)

W₁과 W₂는 각각 초기 질량과 끓는 xylene에 용해되지 않 고 남은 질량으로 gel content의 값이 클수록 가교도가 높은 것을 의미한다. 충격강도는 ASTM D 256 규격에 따라 제조 된 시편을 노칭 성형 후 Izod 충격시험기(Qmesys, QM700A) 를 이용하여 측정하였다. 내마모도 측정은 테이버 마모시험 기(Kipae E&T)를 이용하여 ISO 9352 규격에 따라 60 rpm 1000 cycle로 측정 후, 시험 전 질량과 시험 후 질량의 차이 로 내마모도를 계산하였다. DSC(Perkinelmer, DSC 4000) 분 석은 알루미늄 셀에 5~10 mg 샘플을 밀봉하고 10 °C/min으 로 상온에서 200 °C까지 온도 변화를 주면서 질소 분위기에 서 측정하였다.

결과 및 토론

개질된 PP의 성형성. Table 1의 조성대로 제작한 개질된 PP의 MFI를 Figure 1에 나타냈다. 미반응된 MPP0과 개시제

Table 1. Formulation of the Modified PPs

Sample	PP (wt%)	Perkadox 14 (phr)	TMPTMA (phr)	DVB (phr)
MPP0	100	-	-	-
MPP1	100	0.05	-	-
MPP2	100	0.05	3	-
MPP3	100	0.05	5	-
MPP4	100	0.05	-	1
MPP5	100	0.05	-	3
MPP6	100	0.05	-	5
MPP7	100	0.05	2	1
MPP8	100	0.05	4	1



Figure 1. MFI results of the modified PPs.

만 첨가된 MPP1을 비교하였을 때 MPP1의 MFI 값이 약 2 배 높은데 이는 β-scission 반응으로 인해 PP의 사슬이 절단 되고 분자량이 감소하여 흐름성이 증가하였기 때문이다. 이 와 반대로 동일한 개시제의 함량에서 개질제가 들어간 모든 조성의 개질된 PP는 MPP1에 비하여 MFI가 감소한 것을 확 인하였다. 이는 B-scission 반응이 억제되고 분지화 및 가교 반응으로 인해 흐름성이 저하되었기 때문이다.¹³⁻¹⁵ 또한 개질 제로 TMPTMA만 들어간 MPP2와 MPP3의 경우에 비해 DVB만 들어간 MPP4, MPP5, MPP6의 MFI가 상대적으로 매우 낮은 것을 확인할 수 있었다. 이는 개질제와 PP의 반응 에서 TMPTMA는 비교적 자유 부피가 큰 구조를 형성하는 반면, DVB는 짧고 stiff한 가교가 형성되기 때문으로 판단된 다.¹⁶ TMPTMA와 DVB를 복합 개질제로 함께 사용한 MPP7 과 MPP8의 경우에는 TMPTMA를 단독 개질제로 사용한 MPP2와 MPP3에 비해서 MFI가 떨어졌다. 하지만, DVB를 단독 개질제로 사용한 MPP4, MPP5, MPP6보다 높은 MFI 를 보였으며, 개질되지 않은 선형의 PP와도 유사한 MFI를 보 였다. 이러한 결과를 통해, 선형 PP에 복합 개질제의 첨가는 PP에 분지화 및 가교 구조를 선택적으로 도입시키면서도, 선 형의 PP만큼 성형성을 유지시킬 수 있는 효과적인 방법인 것 을 알 수 있었다.

PP와 개질제의 반응 및 결합 확인. PP와 각 개질제의 반 응 메커니즘을 Scheme 1에 나타냈다. PP에 라디칼 개시제가 첨가되면 PP 라디칼과 짧은 시슬이 생성된다. 이는 β-scission 반응으로 인한 것이며 분자량의 감소를 초래한다. 하지만, PP 에 라디칼 개시제와 함께 TMPTMA 또는 DVB를 개질제로 첨가하였을 경우에는 분지화 및 가교 반응이 일어나게 되고 이로 인해 β-scission 반응이 억제되어 분자량의 감소를 극복 한다. 따라서 PP와 개질제의 반응은 분자량의 변화를 주었고 이러한 메커니즘을 통해 Figure 1의 MFI 결과에 영향을 미 친 것으로 판단된다.

PP와 개질제의 반응 여부를 확인하기 위해 FTIR 분석을 진행하였으며 그 결과를 Figure 2에 나타냈다. 3100 cm⁻¹ 부 근의 ① 피크는 DVB에 존재하는 방향족 C-H 신축 진동, 1720 cm⁻¹ 부근의 ② 피크는 TMPTMA에 존재하는 C=O 신 축 진동, 1630 cm⁻¹ 부근의 ③ 피크는 TMPTMA와 DVB에 존 재하는 C=C 신축 진동을 나타낸다. 또한 1170 cm⁻¹ 부근의 ④ 피크는 -CH, 신축 진동과 방향족 C-H 굽힘 진동, 1155 cm-1 부근의 ⑤ 피크는 TMPTMA에 존재하는 C-O 신축 진동이 다.^{14,17-21} 분지화 및 가교 반응이 일어난 MPP3, MPP6, MPP8 의 그래프를 보면 ④, ⑤ 피크는 PP의 개질 반응에 영향을 받지 않아 반응 전후로 변화가 없는 것으로 확인되었다. 하 지만, 반응 이후 TMPTMA 또는 DVB에 존재하였던 ③의 피 크가 줄어든 것을 확인할 수 있었다. 이는 PP와 개질제의 반 응으로 개질제의 이중결합이 점차 사라지게 되어 나타난 것 으로 해석된다.¹⁸ 또한 MPP3과 MPP8의 그래프를 보면 반응 이후 ② 피크가 기존의 1720에서 1730 cm⁻¹으로 이동하였다. 이는 TMPTMA가 PP와 반응을 하면서 C=C 작용기에 존재



Scheme 1. Main mechanism of the radical-initiated reactions for (a) TMPTMA with PP; (b) DVB with PP.



Figure 2. FTIR spectra of the crosslinkers and modified PPs.



Figure 3. Gel contents of the modified PPs.

하였던 π결합이 사라지고 C=O 작용기와의 상호작용이 줄어 들게 되어 blue shift가 일어난 것으로 판단된다.^{14,22} 이렇게 PP와 TMPTMA에서는 FTIR 분석으로 C=C 피크와 C=O 피 크의 변화로 반응 여부를 확인할 수 있었다. 하지만, MPP6, MPP8의 그래프에서 PP와 DVB의 반응 이후 영향을 받지 않 는 DVB의 ① 피크는 확인하기 어려웠는데 피크의 세기가 약 하여 보이지 않는 것으로 판단된다. 그래서 PP와 DVB에서 는 FTIR로만 반응 여부를 확인하기 어려워 soxhlet 추출법을 이용한 가교도 분석을 통해 추가적으로 확인하였다.

Figure 3에는 개질제의 조성에 따른 가교도의 측정 결과를 나타냈다. MPPO과 MPP1은 soxhlet 추출 과정에서 PP가 모 두 용해되었는데 이는 개질제가 없는 조성으로 가교가 일어 나지 않았음을 의미한다. 하지만, 개질제가 들어간 모든 조성 에서는 soxhlet 추출과정 이후 용해되지 않고 남아있는 PP를 통해 가교가 일어났음을 확인하였다. 또한 TMPTMA에 비해 DVB가 들어간 조성에서 용해되지 않은 PP의 질량이 더 많



Figure 4. Izod impact strength results of the modified PPs.

았다. 이는 TMPTMA보다 DVB에서 더 많은 가교가 형성된 것을 의미한다. 그리고 복합 개질제가 도입된 MPP7과 MPP8 의 가교도는 TMPTMA만 들어간 MPP2, MPP3보다는 높고 DVB만 들어간 MPP4, MPP5, MPP6보다는 낮은 값을 보였 다. 이는 PP가 TMPTMA보다 DVB와의 반응성이 더 우수하 여 나타난 것으로 판단된다. 또한 MPP7과 MPP8은 MPP4의 조성에서 TMPTMA가 추가로 도입되었음에도 불구하고 MPP4 보다 낮은 가교도를 보였다. 이는 상대적으로 반응성이 낮은 TMPTMA가 DVB의 가교를 방해하였기 때문으로 해석된다. Figure 3의 결과를 통해 가교도가 높은 조성일수록 Figure 1 의 MFI 값이 더 낮은 것을 확인할 수 있었다. 이를 통해 PP 와 개질제의 반응으로 생기는 가교가 MFI 결과에 상당한 영 향을 미쳤음을 알 수 있었다. 따라서 FTIR 분석과 함께 가교 도 분석을 진행하여 PP와 개질제들의 반응이 일어났음을 간 접적으로 확인할 수 있었다.

개질된 PP의 충격강도 및 내마모도 분석. 개질된 PP의 충 격강도를 Figure 4에 나타냈다. MPPO과 비교하여 MPP1의 결과를 보면 개시제의 첨가로 인해 충격강도가 낮아진 것을 확인할 수 있다. 이는 개시제의 첨가로 인한 βscission 반응 이 분자량을 감소시킨 결과이다.¹³ 반면, 동일 개시제의 함량 에서 개질제가 들어간 모든 조성은 충격강도가 증가하였는 데, 이는 개질제가 βscission 반응을 억제시키고 분지화 및 가교 반응으로 인해 나타나는 것으로 해석된다.^{13-15,23} 또한 복 합 개질제를 사용한 MPP7과 MPP8은 DVB를 단독 개질제 로 사용한 MPP4, MPP5, MPP6 만큼의 충격강도는 얻지 못 하였지만, TMPTMA를 단독 개질제로 사용한 MPP2와 MPP3 보다는 더 우수한 충격강도를 보였다. 특히, 이러한 충격강도 의 거동은 Figure 3의 가교도의 경향과 매우 유사하였다. 이 를 통하여 분지화 및 가교 구조로 개질된 PP의 충격강도는 가교도에 의존하는 것을 알 수 있었다.

Figure 5는 개질된 PP의 테이버 마모시험으로 손실된 질량 을 나타낸 그래프이다. MPP0과 MPP1을 비교하였을 때



Figure 5. Taber abrasion test results of the modified PPs.

MPP1은 마모에 의한 질량손실이 크게 일어난 것을 알 수 있 다. 이는 βscission 반응이 PP의 분자량을 감소시켰기 때문 이다.²⁴ 반면, 개질된 PP는 모두 MPP0 그리고 MPP1과 비교 하여 마모에 의한 질량 손실이 적었다. 이것은 PP의 분지화 및 가교로 인해 내마모성이 개선된 결과로 해석된다.^{25,26} 내 마모도에 대한 복합 개질제의 효과는 개질제의 총량을 5 phr 로 도입한 MPP3, MPP6 그리고 MPP8의 마모에 의한 질량 손실로 확인하였다. 복합 개질제를 사용한 MPP8은 DVB를 단독 개질제로 사용한 MPP6만큼의 내마모성은 얻지 못하였 지만, TMPTMA를 단독 개질제로 사용한 MPP3보다 내마모 성이 우수하였다. 특히, 이러한 내마모성의 거동은 충격강도 의 결과처럼 가교도의 경향과 유사하였다. 이를 통해서 선형 의 PP에 분지화 및 가교 구조의 도입은 충격강도와 더불어 내마모성에도 많은 영향을 주는 것을 알 수 있었다.

개질된 PP의 결정화 거동 분석. 개질된 PP의 결정화 거 동과 물성과의 관계를 확인해 보기 위하여 DSC 분석을 진행 하였고 승온 그래프와 냉각 그래프를 각각 Figure 6과 Figure 7에 나타냈다. Figure 6의 MPP0은 165.1 ℃의 용융 온도를 보였다. 개시제만 첨가된 MPP1의 경우 용융 온도는 162.8 ℃ 로 낮아졌는데 이는 β-scission 반응으로 인해 PP 사슬의 절 단이 일어나 분자량이 감소하여 나타나는 것으로 해석된다.²⁷ 반면, 개질제가 첨가된 MPP3, MPP6, MPP8은 MPP1에 비 하여 용융 온도가 소폭 증가하였는데 이는 개질제의 첨가가 분지화 및 가교 반응으로 인해 β-scission 반응을 억제함에 따 라 분자량의 감소가 억제되었기 때문이다. MPP3과 MPP8의 경우에는 MPP0보다 낮은 용융 온도를 보였는데 이는 분지 화 및 가교 반응은 일어나지만 개시제에 의한 β-scission 반 응이 우세하여 저분자량의 PP가 많아짐에 따라 나타난 것으 로 판단된다.

Figure 7의 냉각 그래프를 보면 MPP0은 117.2 ℃의 결정 화 온도를 보이고 개질된 PP는 모두 결정화 온도가 상승하



Figure 6. DSC heating thermograms of the modified PPs.



Figure 7. DSC cooling thermograms of the modified PPs.

였다. MPP1은 MPP0과 비교하여 결정화 온도가 3.7 ℃ 상승 하였는데 β-scission 반응으로 인해 사슬의 길이가 짧아짐에 따라 핵을 생성하는 것이 쉬워졌기 때문이다.²⁸ 또한 개질제 의 도입으로 개질된 PP의 결정화 온도는 MPP6, MPP8, MPP3 순으로 높게 나타났다. 이는 분지화 및 가교로 인한 불 균일한 핵의 생성과 밀도 증가가 결정화 온도를 증가시켰기 때문이다.²⁹⁻³¹ 결과적으로 Figure 7에서 개질제가 도입된 PP 의 결정화 온도 경향은 개질된 PP의 가교도, 충격강도 그리 고 내마모도 결과와 경향이 일치함을 확인하였다.

추가적으로 개질된 PP의 상대 결정화도를 확인하기 위해 Figure 7의 DSC 분석 데이터를 바탕으로 Avrami 식 (2)를 이 용하여 Figure 8에 나타냈다.^{30,32}

$$\log[-\ln(1-X(t))] = n \, \log(t) + \log(k)$$
(2)
$$t = (T_0 - T)/\Phi$$

X(t)는 결정화 시간 t에서의 상대 결정화도를 나타내며 n은



Figure 8. Relative crystallinities of the modified PPs.

Avrami 지수를, k는 결정화 상수를 나타낸다. 또한 *T*₀는 결정 화 시작온도, *T*는 현재온도, Φ는 냉각속도를 나타낸다. MPP1, MPP3과 MPP8은 MPP0에 비하여 결정화가 완전히 이루어 지는데 걸리는 시간이 빠른 것으로 나타났다. 이는 β-scission 반응으로 사슬이 짧아짐에 따라 분자 운동이 활발해졌기 때 문이다. 반면, MPP6의 경우에는 MPP0보다 결정화가 완벽하 게 이루어지는데 걸리는 시간이 오래 걸렸다. 이는 높은 가 교도로 인해 PP의 분자 운동을 제약하여 결정화되는 시간이 증가되었기 때문이다.³⁰ 이렇게 DSC의 거동 분석을 통해 개 질제의 도입으로 인한 PP의 용융 온도, 결정화 온도 그리고 상대 결정화도는 PP의 분지화 및 가교에 의해 영향을 받았 으며 이러한 특성으로 인해 PP의 내충격성과 내마모성이 개 선된 것으로 확인되었다.

결 론

본 연구에서는 선형 PP의 내충격성과 내마모성을 개선하 기 위하여 TMPTMA와 DVB를 복합 개질제로 사용하여 용 융 블렌드하였다. 개질된 PP의 반응 여부는 MFI, FTIR, 가 교도 분석을 통해 확인하였다. TMPTMA를 단독 개질제로 사용하였을 때 성형성은 우수하였으나 물성의 개선이 미비 하였다. 하지만, DVB를 단독 개질제로 사용하였을 때 물성 은 크게 개선되었으나 성형성이 떨어지는 문제가 있었다. 이 러한 문제를 해결하기 위해 PP에 개질제를 복합적으로 사용 하였다. 이를 통해 개질된 PP는 분지화 및 가교 구조를 선 택적으로 도입시킬 수 있으며 선형의 PP와 비교하여 동등 이상의 성형성을 보였다. 또한 복합 개질제의 사용으로 개 질된 PP는 선형의 PP보다 내충격성과 내마모성이 모두 개 선되었다. 이러한 물성의 개선은 DSC 분석을 통해 분지화 및 가교가 PP의 결정화 거동에 영향을 끼쳤기 때문으로 확 인되었다. 감사의 글: 본 연구는 2019년도 중소벤처기업부의 기술개 발사업[S2705171]과 한국기술교육대학교 산학협력단 공용장 비센터의 지원에 의한 연구임.

참 고 문 헌

- B. H. Lee, D. S. Jeong, C. W. Kim, S. H. Park, and Y. C. Kim, *Appl. Chem. Eng.*, **29**, 168 (2018).
- 2. D. Kang, S. Oh, and H. I. Kim, Polym. Korea, 43, 589 (2019).
- Y. J. Ju, Y. C. Kwon, and H. S. Choi, *Compos. Res.*, **32**, 284 (2019).
- M. A. Ali, A. Abdullah, S. Dahaman, A. Amin, and S. Mansor, *Eng. Appl. Sci.*, **12**, 4209 (2017).
- Y. S. Kim, S. G. Ku, D. W. Kim, K. S. Kim, and Y. C. Kim, *Polym. Korea*, 42, 695 (2018).
- K. Palanikumar, R. AshokGandhi, B. K. Raghunath, and V. Jayaseelan, *Materials Today: Proceedings*, 16, 1363 (2019).
- A. K. Jain, A. K. Nagpal, R. Singhal, and N. K. Gupta, *Appl. Polym. Sci.*, **78**, 2089 (2000).
- 8. W. M. Speri and G. R. Patrick, Polym. Eng. Sci., 15, 668 (1975).
- A. S. Dike, F. Mindivan, and H. Mindivan, *Surface Sci. Eng.*, 8, 292 (2014).
- M. H. Al-Saleh, H. K. Al-Anid, Y. A. Husain, H. M. El-Ghanem, and S. A. Jawad, *Physics D: Appl. Phys.*, 46, 0 (2013).
- 11. S. R. Katti, B. K. Sridhara, L. Krishnamurthy, and G. L. Shekar, *Adv. Chem. Sci.*, **2**, 6 (2014).
- 12. H. Q. Hong, H. He, D. M. Jia, C. Ding, F. Xue, and Y. P. Huang, *Polym. Plast. Technol. Eng.*, **45**, 379 (2006).
- 13. B. U. Nam and Y. Son, Appl. Polym. Sci., 137, 49011 (2020).
- S. A. Mousavi-Saghandikolaei, M. Frounchi, S. Dadbin, S. Augier, E. Passaglia, and F. Ciardelli, *Appl. Polym. Sci.*, **104**, 950 (2007).
- S. Yi, S. Xu, Y. Fang, H. Wang, and Q. Wang, *Polymers*, 9, 712 (2017).
- 16. C. A. Price, Dental Res., 65, 987 (1986).
- X. Wu, J. Zhang, C. Wu, G. Wang, and P. Jiang, *Wear*, **297**, 742 (2013).
- X. Wu, C. Wu, G. Wang, P. Jiang, and J. Zhang, *Appl. Polym. Sci.*, **127**, 111 (2013).
- C. Zhang, L. Yang, L. He, W. Gong, Z. Luo, and W. Liu, *Polym. Adv. Technol.*, **29**, 551 (2018).
- M. Trchová, I. Šeděnková, E. Tobolková, and J. Stejskal, *Polym. Degrad. Stabil.*, 86, 179 (2004).
- M. Sobiesiak and B. Podkoscielna, *Appl. Surface Sci.*, 257, 1222 (2010).
- M. A. Blatchford, P. Raveendran, and S. L. Wallen, *Phys. Chem.*, 107, 10311 (2003).
- Q. L. Ni, J. Q. Fan, H. Niu, and J. Y. Dong, *Appl. Polym. Sci.*, 121, 2512 (2011).
- H. Fouad, R. Elleithy, and O. Y. Alothman, *Mater. Sci. Technol.*, 29, 573 (2013).
- 25. S. H. Kim, D. G. Lee, J. W. Lee, D. G. Oh, and I. Son, Polym.

Korea, 44, 38 (2020).

- S. Bhuyan, L. S. Holden, S. Sundararajan, D. Andjelkovic, and R. Larock, *Wear*, 263, 965 (2007).
- D. J. Kang, S. H. Lee, K. Pal, C. Y. Park, Z. X. Zhang, D. S. Bang, and J. K. Kim, *Polym. Korea*, 33, 358 (2009).
- 28. H. Azizi and I. Ghasemi, Polym. Test., 23, 137 (2004).
- 29. Z. Zhang, D. Wan, H. Xing, Z. Zhang, H. Tan, L. Wang, J.

Zheng, Y. An, and T. Tang, Polymer, 53, 121 (2012).

- K. H. Yoon, D. Y. Shin, and Y. C. Kim, *Polym. Korea*, 36, 245 (2012).
- F. Kamleitner, B. Duscher, T. Koch, S. Knaus, K. Schmid, and V. M. Archodoulaki, *Polymers*, 9, 442 (2017).
- 32. S. H. Tabatabaei, P. J. Carreau, and A. Ajji, *Chem. Eng. Sci.*, **64**, 4719 (2009).