

폴리프로필렌-폴리(에틸렌 테레프탈레이트)/케나프 펠트 복합체의 물리적 특성에 미치는 펠트 제조방향의 영향

김유신 · 구선교 · 김동원* · 김기성* · 김연철[†]

공주대학교 신소재공학부 고분자공학전공(IT융합기술연구소), *서연이화(주)
(2018년 3월 21일 접수, 2018년 4월 11일 수정, 2018년 4월 25일 채택)

Effect of the Felt Fabrication Direction on the Physical Properties of Polypropylene-Poly(ethylene terephthalate)/Kenaf Felt Composites

Yu Shin Kim, Sun Gyo Ku, Dong Won Kim*, Ki Sung Kim*, and Youn Cheol Kim[†]

Major in Polymer Science and Engineering(Institute of IT Convergence Technology), Kongju National University,
1223-34 Cheonan way, Cheonan 31080, Korea

*SEOYON E-HWA, 41-22 Burim 170 way, Dongan-gu, Anyang 14055, Korea

(Received March 21, 2018; Revised April 11, 2018; Accepted April 25, 2018)

초록: 본 연구에서는 펠트의 제조방향과 폴리(에틸렌 테레프탈레이트)(PET)/케나프 섬유(KF) 펠트 적용이 폴리프로필렌(PP)/KF 복합체 물성에 미치는 영향을 고찰하였다. PP/KF와 PP/KF-PET/KF 2-layer 복합체의 제조 시 바인더로 폴리우레탄(polyurethane, PU)을 사용하였으며 150 °C, 10 MPa의 조건에서 half-folding 방법으로 가열프레스를 이용하여 제조하였다. 인장, 3점 굽힘시험 및 아이조드 테스트가 복합체의 기계적 물성을 평가하기 위해 수행되었고, 시험결과를 이용하여 니들 편침 제조방향과 기계적 물성과의 상관관계를 규명하였다.

Abstract: In this study, the effect of felt fabrication direction and addition of poly(ethylene terephthalate) (PET)/kenaf fiber (KF) felt on the properties of polypropylene (PP)/KF composites were investigated. Polyurethane (PU) was used as a binder in the preparation of the PP/KF and PP/KF-PET/KF 2-layer composites, and the composites were manufactured by half-folding method using by hot press at 150 °C and 10 MPa. The tensile, three-point bending, and Izod impact tests were performed to evaluate the composite's mechanical properties, and then the correlation between mechanical properties and needle-punching direction was also verified by the test results.

Keywords: polypropylene, poly(ethylene terephthalate), kenaf, felt composite, needle-punching direction.

서 론

최근 환경규제가 강화됨에 따라 모든 산업에서 친환경화에 대한 필요성이 대두되고 있다. 자동차 산업 또한 이에 포함되는 산업이고, 매우 큰 규모를 가진 산업이다. 자동차의 친환경화 방향으로는 몇 가지 방법이 제시되었다. 첫 번째 방법은 경량화를 통한 자동차의 연비를 향상시키는 방법이다. 두 번째는 부품에 사용되는 원료 소재를 생산과 폐기 단계에서 이산화탄소의 발생이 상대적으로 적은 천연소재를 이용하는 방법이다. 자동차용 부품에 천연소재를 적용하는 방법은 위 두 가지의 친환경화를 모두 만족하기 때문에 자동차 부품

산업에 적용 확대가 예상된다. 일반적으로 자동차 내장부품에 적용되는 고분자 소재기술은 열가소성수지 복합체, 섬유강화플라스틱(fiber reinforced plastic, FRP), 고분자 발포체 등이 사용되고 있다.¹⁻⁴ 현재 자동차용 부품 소재로 가장 많이 사용되는 열가소성 플라스틱은 비중이 낮은 폴리프로필렌(polypropylene, PP)이다.⁵⁻⁸ 상대적으로 굴곡강도 등이 낮은 PP의 기계적 물성을 보강하기 위한 방법으로 친환경화가 가능한 천연섬유(natural fiber, NF) 적용이 시도되고 있다. 천연섬유 중 케나프는 다른 천연섬유들과 비교하여 생장속도가 빠르고, 재배과정에서 이산화탄소의 저감효과가 매우 크기 때문에 많은 관심을 받고 있다.⁹⁻¹³ 일반적으로 천연섬유 강화복합체(natural fiber reinforced plastic, NFRP)는 압출공정을 이용하여 고분자 수지에 천연섬유를 첨가하여 제조하는데, 이 경우 고분자 수지에 비해 천연섬유의 부피가 상대적으로 크기 때문에 천연섬유의 함량을 20-40 wt% 이상 첨가하기가 어

*To whom correspondence should be addressed.
younkim@kongju.ac.kr, ORCID ID 0000-0003-1094-7460
©2018 The Polymer Society of Korea. All rights reserved.

렵다. 따라서 친환경적인 측면에서 보다 높은 천연섬유의 함량을 가지는 NFRP 제조의 필요성이 부각되고 있고, NF의 함량을 높이려는 연구가 진행 중이다. 높은 NF 함량을 가지는 NFRP의 제조 방법에는 PP와 폴리(에틸렌 테레프탈레이트)(poly(ethylene terephthalate), PET)와 같은 고분자를 섬유로 방사하여 만든 합성섬유와 NF를 카딩(carding)과 니들펀칭(needle punching) 과정을 거쳐 펠트를 만든 후 압축성형하여 강화보드를 만드는 방법이 있으며 섬유를 투입할 때 비율을 조절함으로써 원하는 섬유의 함량을 쉽게 만들 수 있다. 그러나 이러한 강화보드는 사출소재보다 강도와 성형성이 부족한 단점이 있어 자동차 부품 적용에 한계가 있다. 이 문제를 해결하기 위해 폴리우레탄(polyurethane, PU), 에폭시 수지(epoxy resin), 아크릴 수지(acryl resin) 등과 같은 고분자 수지를 바인더(binder)로 사용하여 복합체를 제조하는 연구가 많이 진행되었다.¹⁴ 고분자 바인더를 이용한 NFRP 제조 방법에는 천연섬유와 합성섬유를 펠트로 제조 후, 펠트 위 아래로 바인더를 도포하여 압축성형을 통해 NFRP를 제조한다. 그 후 표면에 PP 계열의 브라켓을 접착하고, 폴리올레핀 계열의 스킨커버링 공정을 거친 후 최종 제품으로 완성된다. 그러나 이러한 제조방법은 NFRP의 표면에 PU 등의 바인더 층이 형성되어 브라켓 접착 및 커버링 공정 시 분리 또는 탈착 등의 문제가 발생하기 때문에 표면에 추가적인 처리공정이 필요하고, 그에 따라 제조단가가 상승하는 단점이 존재한다.¹⁵⁻²¹ 따라서 추가적인 처리공정이 필요없는 새로운 형태의 NFRP 제조방법에 대한 연구가 필요하며, 본 연구실에서는 half-folding 공정을 이용하였다. 이러한 방법으로 제조한 복합체의 경우 압축성형 시 PP 섬유가 융착되어 섬유 보강효과가 극대화되지 못하는 것으로 판단되며 이는 자동차용 부품소재에서 중요한 물성인 굴곡강도의 개선이 미흡한 것으로 확인되었다. 본 연구에서는 외부층은 PP/KF 펠트를 사용하여 올레핀 계열의 브라켓 접착이 용이하고 중심부는 PET/KF 펠트를 사용하여 섬유상을 유지하여 굴곡강도가 개선되는 효과를 얻고자 하였다. 또한 펠트 층을 접을(half folding) 때 니들펀칭의 진행방향(machine direction, MD)이 굴곡강도 등 기계적 물성에 미치는 영향을 고찰하고자 하였다.

실험

재료. PP/KF와 PET/KF 펠트 제작에 사용된 PP 그리고 PET는 폴리미래의 HP600R, 전백의 SA6X51을 각각 사용하였다. KF는 방글라데시에서 재배된 케나프를 섬유화하여 수입한 것을 사용하였다. PP/KF 펠트와 PP/KF-PET/KF로 구성된 2-layer 펠트의 총 중량은 700 g/m²을 기준으로 하였다. PP/KF 펠트는 PP와 KF가 각각 50 wt%의 조성으로 제작되었고, 2-layer 펠트는 PP/KF 펠트와 PET 10 wt%, KF 90 wt%의 조성을 가지는 PET/KF 층으로 제조된 제품을 금하공업(주)에

서 제공받아 사용하였다. KF는 10 cm의 길이로 잘랐을 때 무게가 0.6-1.2 mg의 분포를 나타내었고, 이때 최대허중(gf) 값은 150-350의 분포를 나타내었다. 바인더로 사용된 폴리우레탄은 (주)피유시스의 4,4'-methlyene diphenyl diisocyanate(MDI)가 41% 함유된 4,4'-methylene diphenyl polyisocyanate(PMDI)와 polyether polyol이 85% 함유된 polyol을 사용하였다. 상용화제인 PP-g-MAH는 롯데케미칼의 PH200(grafiting degree(GD)=4.02)을 사용하였다. 2-layer 펠트의 PP를 추출하는데 사용된 용매는 삼전순약의 자일렌(xylene, 99.0%)을 사용하였다.

복합체 제조. PP/KF/PU와 2-layer/PU 펠트 복합체 제조는 80 °C 오븐에 건조된 12 cm×24 cm의 시편에 Figure 1의 half-folding 방법을 사용하여 펠트의 한 쪽 면에 PU를 도포시킨 후, PU가 도포된 면끼리 마주 보도록 12 cm×12 cm로 반으로 접어 10 MPa의 압력으로, 150 °C의 온도로, 60초 동안 가열프레스(Qmesys, QM900M)로 압축하여 복합체를 제조하였다.²²

펠트의 방향을 서로 다르게 겹쳐놓은 펠트 복합체의 제조는 펠트를 12 cm×12 cm로 자른 후, 80 °C 오븐에 건조시킨 후, 두 개의 펠트를 한 쪽 면에 PU를 도포한 후 서로 엇갈리게 겹쳐 동일한 방법으로 압축하여 제조하였다. Figure 2는 펠트의 PP 부분을 용융시킨 후 편광현미경을 이용하여 KF의 방향성을 관찰한 것으로 펠트의 제조방향으로 KF의 배향이

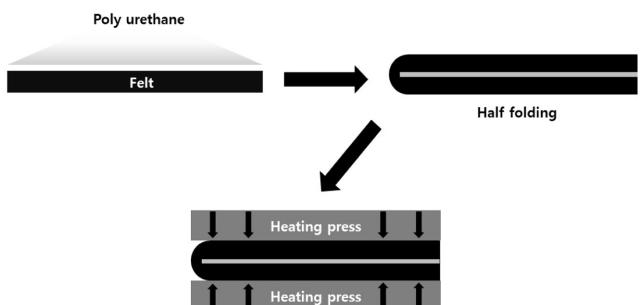


Figure 1. Fabrication method of half-folding specimens.

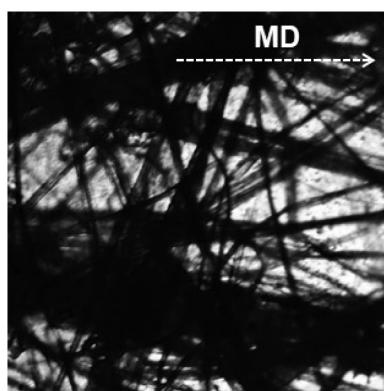


Figure 2. Polarized optical microscope of PP/KF felt.

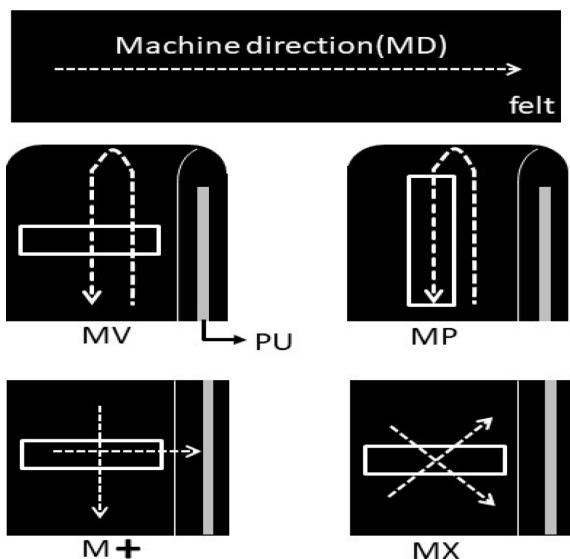


Figure 3. Summaries for testing specimens fabrication method and naming of felt composite.

우세하게 나타나는 것을 확인할 수 있다. 펠트 제조방향에 따른 물성을 고찰하기 위해 복합체를 펠트 제조방향에 대해 여러 방향으로 제조하여 Figure 3에 나타내었다. Figure 3에서 점선은 니들펀칭 방향(MD)을 나타내며, 시료명은 기계적 물성 측정용 시편의 절단 방향에 따라 나타내었다. MV는 MD와 시편 절단 방향이 수직, MP는 MD와 시편 절단 방향이 수평, M+는 시편 절단 방향에 두 충이 수직과 수평으로 교차, MX는 시편 절단 방향에 두 충이 크로스로 교차하는 것을 나타낸다. Figure 3에서 흰색 직사각형은 시편의 절단 방향을 나타낸 것이다.

측정. 기계적 강도 측정은 만능시험기(universal testing machine, UTM, Qmesys QM100T)와 아이조드 충격시험기(Qmesys, QM700)를 이용하였다. 인장강도는 3 mm의 두께의 dog-bone 형태의 시편을 속도 5 mm/min으로 측정하였고, 굴곡강도는 ASTM D790 규격을 준용하여 3 mm의 두께의 시편을 속도 1 m/min으로 측정하였다. 충격강도는 ASTM D256 규격을 준용하여 3 mm 두께의 시편에 노치를 준 다음 측정하였다. 모든 측정은 5회 측정 후 평균을 내어 사용하였다. 펠트의 섬유 방향성을 관찰하기 위해 편광현미경(polarizing microscope, POM, OLYMPUS BX41TF)을 이용하였다. POM 촬영을 위하여 PP/KF 펠트를 180 °C, 5 MPa 60초 동안 압축하여 펠트 내부의 방향성을 관찰하였다. 열적 특성은 시차주사열량분석기(differential scanning calorimetry, DSC, TA instrument DSC Q20)와 열중량분석기(thermogravimetric analyzer, TGA, Perkin Elmer Pyris 1 TGA)로 측정하였다. DSC는 승온속도 10 °C/min으로 0 °C에서 300 °C까지 heat/cool/heat 사이클로 측정하였고, TGA는 승온속도 10 °C/min

으로 상온에서 500 °C까지 측정하였다. 복합체의 단면 형상을 관찰하기 위하여 주사전자현미경(scanning electron microscope, SEM, TESCAN VEGA3)을 이용하였다. SEM 시편의 절단면을 금박코팅(gold sputter coating)하여 가속전압 20 kV로 관찰하였다. 펠트에 첨가된 상용화제의 화학적 구조를 확인하기 위하여 2-layer 펠트를 자일렌에 넣고 가열하여 PP만 추출한 후 적외선분광기(FTIR Spectrometer, Perkin Elmer, Spectrum two)를 이용하여 측정하였다. 밀도측정은 전자고체비중계(Alfa Mirage, SD-200L)를 이용하여 70 mm×12.7 mm ×3 mm 크기의 시편을 측정하였다. 펠트의 밀도는 ASTM D792에 의해 측정하였다. (1)과 (2)의 식에 의해 계산하였다.

$$spgr_{23/23}^{\circ}\text{C} = \frac{a}{a+w-b} \quad (1)$$

$$D^{23\text{C}}, \text{ kg/m}^3 = spgr_{23/23}^{\circ}\text{C} \times 997.5 \quad (2)$$

$spgr$ = specific gravity.

a = apparent mass of specimen, without wire or sinker, in air.

b = apparent mass of specimen (and of sinker, if used) completely immersed and of the wire partially immersed in liquid.

w = apparent mass of totally immersed sinker (if used) and of partially immersed wire.

결과 및 토론

Figure 4는 PP/KF/PU 복합체의 기계적 물성을 나타낸 것으로, 동일한 PP/KF/PU 복합체에 대해 시편 절단 방법에 따라 기계적 물성이 변화하는 것을 관찰할 수 있었다. 섬유의 배향방향으로 시편이 절단된 MP의 기계적 물성이 수직방향으로 절단된 MV에 비해 큰 폭으로 상승한 것을 확인할 수 있다. 인장강도와 굴곡강도의 경우 MP의 경우가 최대의 물

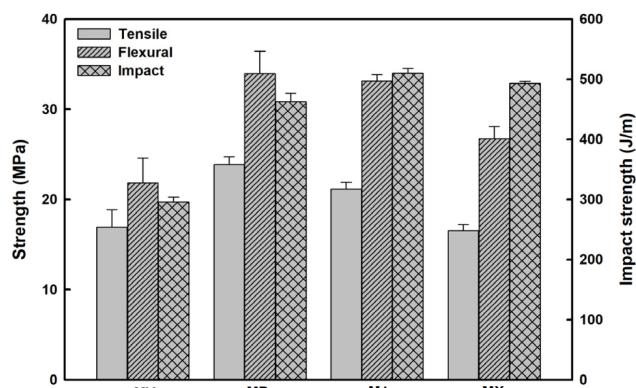


Figure 4. Mechanical properties of PP/KF/PU felt composites.

성을 나타내지만 충격특성의 경우는 펠트의 두 층이 교차된 형태인 M+와 MX의 경우에 MP보다 다소 증가하는 값을 보여주고 있다. 인장, 굴곡 및 충격특성을 종합적으로 판단할 때 M+의 경우가 최적의 시편 형태로 확인되었고, 이는 시편의 형태가 MD 방향으로만 제작된 경우보다 교차형태로 제작될 경우 이방성이 최소화되기 때문으로 해석되며, 기존의 연구결과에서도 유사한 특성을 나타내었다.²³

다음은 스키н 층에 올레핀계 브라켓 접착이 용이한 PP/KF 펠트 층과 코어 층에 기계적 물성 보강을 위해 PET/KF 펠트 층이 적용된 2-layer 복합체의 기계적 물성을 Figure 5에 나타내었다. PP/KF 펠트 층에 극성이 다른 PP와 KF의 상용성 개선을 위해 PP-g-MAH를 5 wt%와 7 wt%를 PP에 혼합하여

방사한 후 PP/KF 펠트를 제조하여 추가 적용하였고, 각각 2-layer(5)/PU 그리고 2-layer(7)/PU로 표시하였다. PET가 보강된 2-layer 펠트 복합체의 경우 인장, 굴곡, 충격특성 모두에서 시편의 절단방향이 MD 방향과 평행한 시편인 MP의 경우에 가장 우수한 물성을 나타내었고, PP-g-MAH가 상용화제로 5 wt% 적용된 시료에서 기계적 물성이 다소 증가하는 결과를 나타내었다. PP/KF 복합체와 비교할 때 2-layer 펠트 복합체의 경우 MP 시편에서 인장강도와 굴곡강도가 증가하는 경향을 보여주지만 충격강도의 경우 오히려 감소하는 경향을 보여주는데 이는 PP대비 PET의 충격 특성이 낮은 수지의 특성에 기인하는 것으로 판단된다. 도어 트림과 같은 대형 평판형의 자동차 부품소재에 대해서는 굴곡강도의 개선이 주요한 목표로 브라켓 접착 공정과 굴곡특성 측면을 고려할 때 2-layer 펠트에 대해 MP 방향의 제조공정이 최적으로 평가된다. 또한 PP에 PP-g-MAH가 첨가될 때 약간의 굴곡특성 개선을 보여주는데, 이는 수지간 상용성 개선에 기인한 것으로 판단되며, 인장시험 후 시편에 대한 SEM 사진을 Figure 6에 나타내었다. 상용화제가 첨가되지 않은 Figure 6(a)와 비교할 때 상용화제가 첨가된 Figure 6(b)의 경우 매트릭스와 섬유간의 계면접착 정도가 다소 개선되는 것을 확인할 수 있었다.

PP 방사 시 혼합된 PP-g-MAH의 존재 여부 확인을 위해 PP/KF 펠트 중 PP를 자일렌에 녹여 PP를 분리한 후 FTIR을 이용하여 화학구조를 확인하였고 Figure 7에 나타내었다. PP-g-MAH가 첨가되지 않은 2-layer 펠트와 비교할 때 5 wt%, 7 wt%가 첨가된 2-layer(5)와 2-layer(7)의 FTIR 스펙트럼에서 약 1700 cm⁻¹ 부근에서 피크가 나타나는데 이는 PP-g-MAH의 C=O 신축진동 피크에 의한 것으로 확인되며, 5 wt%보다는 7 wt% 펠트의 신축진동 피크가 크게 나타나는 결과

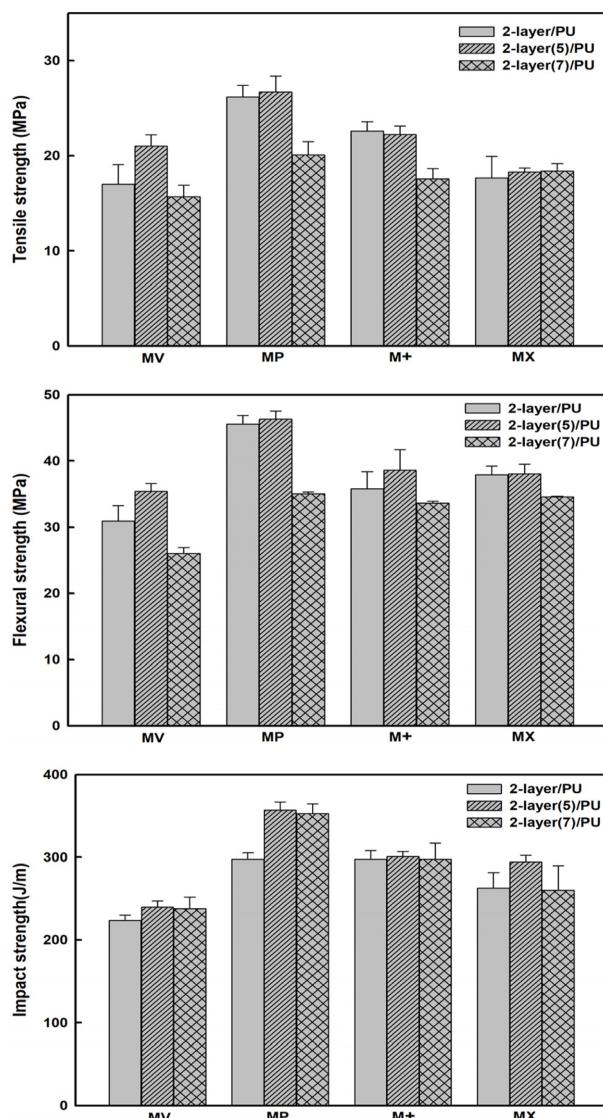


Figure 5. Mechanical properties of 2-layer/PU felt composites with addition of compatibilizers.

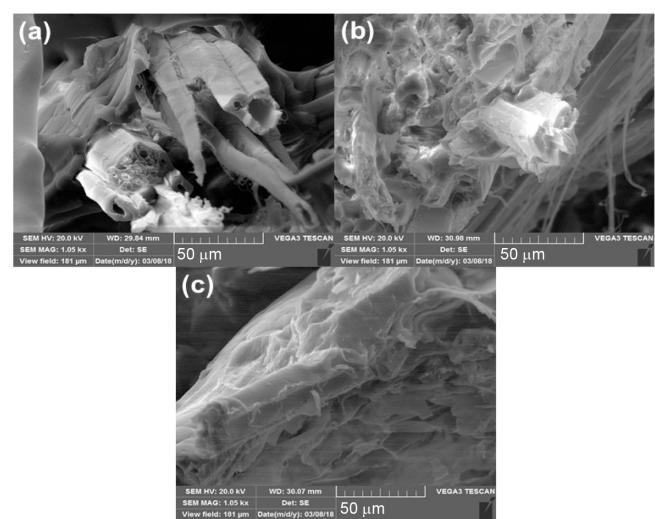
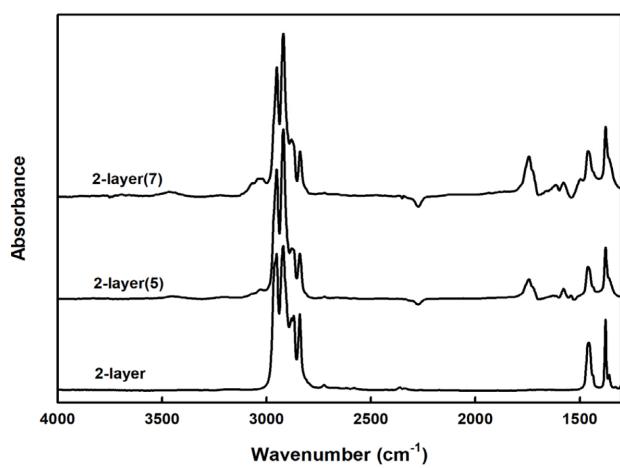


Figure 6. SEM images of 2-layer (a); 2-layer(5) (b); 2-layer(7) (c).

Table 1. Mechanical Properties of PP/KF/PU and 2-layer/PU Felt Composites

	Tensile strength (MPa)			Flexural strength (MPa)			Impact strength (J/m)		
	PP/KF	2-layer		PP/KF	2-layer		PP/KF	2-layer	
		-	(5)		-	(5)		-	(5)
MV	16.97	17.00	21.04	15.72	21.86	30.91	35.42	26.05	295.69
MP	17.00	26.17	26.69	20.09	30.91	45.55	46.33	35.09	462.54
M+	23.87	22.62	22.23	17.55	33.96	35.81	38.63	33.67	510.27
MX	26.17	17.65	18.29	18.38	46.67	37.91	38.02	34.60	492.95
									223.71 239.85 238.18
									297.39 356.45 352.97
									297.53 300.71 297.30
									262.68 294.49 260.28

**Figure 7.** FTIR spectra of PP inside 2-layer felts.**Table 2.** Summaries of Thermal Properties of PP/KF and 2-layer Felt

Sample	T _m (°C)	ΔH _m (J/g)	T _c (°C)	ΔH _c (J/g)	T _d (°C)
PP	160.2	79.1	116.8	94.8	351.0
KF	-	-	-	-	215.7
PP/KF	160.3	39.6	116.1	43.6	297.8
2-layer	158.6	25.3	116.9	31.3	290.4
2-layer(5)	162.6	24.6	121.6	30.3	289.6
2-layer(7)	162.6	25.3	121.6	28.5	290.3

로부터 상용화제 존재를 확인할 수 있었다.

PP/KF 펠트 복합체와 PET/KF가 적용된 2-layer/PU 펠트 복합체의 기계적 물성을 Table 1에 비교하여 나타내었다. 2-layer/PU 펠트 복합체가 PP/KF/PU 펠트 복합체에 비하여 인장강도 29% 및 굴곡강도 27% 정도의 증가를 보여주는데, 이는 PP에 비해 PET의 인장 및 굴곡특성이 우수하여 보강효과가 양호한 것으로 판단된다. 밀도가 PP(0.9 g/cm^3) 대비 큰 PET(1.2 g/cm^3)의 적용에 따른 복합체의 밀도 변화(경량화 측면)를 살펴보기 위해 PP/KF/PU와 2-layer/PU 복합체의 밀도를 측정한 결과 0.728 과 0.732 g/cm^3 로 나타났다. PET가 적

용된 2-layer 복합체의 밀도가 다소 증가하기는 하지만 기존 PP/talc 박막 소재(0.96 g/cm^3) 대비 경량화에 큰 문제가 없는 것으로 판단된다. 2-layer/PU 복합체 제조 후 브라켓 접착공정이 추가되는데, 이때 결정화 온도를 기준으로 작업이 이루어지기 때문에 2-layer/PU 복합체의 결정화 온도가 중요하다. DSC를 이용하여 PP/KF 펠트와 2-layer 펠트의 용융온도와 결정화 온도를 측정하여 Table 2에 정리하였다. PP와 비교할 때 PP/KF 그리고 2-layer/PU 복합체의 결정화 온도는 큰 차이를 나타내지 않지만 PP-g-MAH가 적용된 2-layer 복합체의 결정화 온도는 다소 증가하는 경향을 나타내었고, 이는 브라켓 제조공정에 기초 자료로 반영되어야 할 것으로 판단된다.

결론

PP/KF와 PET/KF 펠트를 이용하여 PP/KF/PU 복합체 그리고 2-layer/PU 복합체를 제조하였고, 니들 편팅 시 기계 방향(MD)과 수직 방향, 크로스 방향으로 시편을 제조하여 기계적 물성을 비교하였다. MD 방향과 수평으로 시편을 제조한 경우 인장강도와 굴곡강도가 가장 우수한 결과를 보여주었다. 또한 PP 방사 시 PP-g-MAH가 적용된 복합체의 기계적 물성이 개선되는 것을 확인할 수 있었고, 인장시험 후 파단면의 SEM 사진을 통해 매트릭스와 섬유간의 계면접착이 향상됨을 관찰하였다. 특히 PET/KF 펠트가 적용된 2-layer/PU 복합체의 굴곡특성이 크게 개선됨을 확인하였으며, PET의 적용에 따른 밀도 증가는 크지 않음을 알 수 있었다. 비록 PET가 적용될 때 충격특성은 감소하였으나 도어트립과 같은 대형 판상 부품소재의 경우 굴곡강도가 중요한 인자로 2-layer/PU 복합체의 자동차 부품 소재로 적용에 큰 문제가 없는 수준으로 판단된다.

감사의 글: 본 연구는 산업통상자원부와 한국산업기술진흥원이 지원하는 경제협력권산업 육성사업(No. R003917)과 2017년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다(No.20154030 200940).

참 고 문 헌

1. K. S. Kim, K. M. Bae, S. Y. Oh, M. K. Seo, C. G. Kang, and S. J. Park, *Elast. Compos.*, **47**, 65 (2012).
2. S. E. Yoo and S. K. Jeoung, *Auto J.*, **31**, 35 (2009).
3. A. K. Mohanty, M. Misra, and G. Hinrichsen, *Macromol. Mater. Eng.*, **276**, 1 (2000).
4. S. K. Jeoung, P. C. Lee, Y. K. Ko, and J. U. Ha, *Korean Ind. Chem. News*, **16**, 37 (2013).
5. Y. H. Lee, B. U. Nam, J. G. Lim, and C. H. Choi, *Elast. Compos.*, **44**, 156 (2009).
6. R. Stewart, V. Goodship, F. Gulid, M. Green, and J. Farrow, *Inter. J. Adhes. Adhes.*, **25**, 93 (2005).
7. S. H. Ahn and D. S. Kim, *Polym. Korea*, **37**, 204 (2013).
8. G. T. Lim, M. H. Ju, D. H. Kim, K. C. Song, and S. K. Kim, *Elast. Compos.*, **36**, 177 (2001).
9. S. Y. Jang and D. S. Kim, *Polym. Korea*, **39**, 130 (2014).
10. J. H. Shim, J. S. Yoon, and D. H. Cho, *Polym. Sci. Technol.*, **19**, 299 (2008).
11. H. J. Kim, B. H. Lee, D. H. Cho, S. E. Yoo, and J. H. Yun, *Auto J.*, **33**, 26 (2011).
12. M. K. Lee and S. L. Yoon, *J. Korea TAPPI*, **39**, 45 (2007).
13. D. H. Cho and H. J. Kim, *Elast. Compos.*, **44**, 13 (2009).
14. J. Holbery and D. Houston, *J. Miner.*, **58**, 80 (2006).
15. F. Md. Salleh, A. Hassan, R. Yahay, and A. D. Azzahari, *Composites Part B*, **58**, 259 (2014).
16. J. S. Oh, S. H. Lee, S. H. Bumm, and K. J. Kim, *Polym. Korea*, **37**, 613 (2013).
17. A. Hao, H. Zhao, W. Jiang, L. Yuan, and J. Y. Chen, *J. Polym. Environ.*, **20**, 959 (2012).
18. Y. Wang, *Appl. Compos. Mater.*, **6**, 19 (1999).
19. N. S. Suharty, I. P. Almanar, Sudirman, K. Dihardjo, and N. Astasari, *Procedia Chem.*, **4**, 282 (2012).
20. K. D. Lee and W. K. Lee, *Auto J.*, **31**, 44 (2009).
21. M. J. John, C. Bellmann, and R. D. Anandjiwala, *J. Carbohydr. Chem.*, **82**, 549 (2010).
22. S. G. Ku, Y. S. Kim, D. W. Kim, K. S. Kim, and Y. C. Kim, *Appl. Chem. Eng.*, **29**, 37 (2018).
23. Y. Karaduman, M. M. A. Sayeed, L. Onal, and A. Rawal, *Composites Part B*, **67**, 111 (2014).