

고분자압출필름의 연신에 관한 연구

최만성^{1*}

¹한국기술교육대학교 메카트로닉스공학부

A Study on the Elongation of Polymer Extrusion Film

Man-Sung Choi^{1*}

¹School of Mechatronics Engineering, Korea University of Technology & Education

요 약 다량의 무기물이 첨가된 고분자제품을 초박막의 두께로 고속생산 할 경우 가장 중요한 요소는 적절한 원재료의 선정도 중요하지만 대개의 경우 한정된 범위의 수치를 사용할 수밖에 없기 때문에, 가장 중요한 요소는 압출기 내에서 흘러나온 용융수지의 흐름을 균일하게 유지할 수 있도록 고분자의 용융 유동에 적합한 최적의 다이스 설계와 압출기의 공정 파라미터의 제어를 통해 균일한 두께 유지와 연신이 필요하다. 이와 관련하여 고분자 압출필름의 적절한 연신을 위하여 압출조건이 연신에 미치는 영향에 대한 연구가 필요하지만 관련된 연구는 아직 충분히 이루어지지 않고 있다. 따라서 본 연구는 통기성 필름의 압출필름에 주로 사용되는 LLDPE(Linear Low Density Polyethylene)에 대하여 압출기의 실린더 온도, 압출속도, 압출기의 다이스온도, 냉각롤의 온도, 연신비, 그리고 연신롤 온도 등의 압출 조건의 변화가 압출필름의 연신에 미치는 영향에 대하여 압출실험을 통하여 연구하였다. 연구결과에서 연신비가 2.0:1 일 때 고분자압출필름의 연신에 가장 큰 영향을 미침을 알 수 있었다.

Abstract Optimization of process parameters in polymer extrusion is an important task to reduce manufacturing cost. To determine the optimum values of the process parameters, it is essential to find their influence on the elongation of polymer breathable thin film. The significance of six important process parameters namely, extruder cylinder temperature, extruder speed, extruder dies temperature, cooling roll temperature, stretching ratio, stretching roll temperature on breathable film elongation of polymer extrusion was determined. Moreover, this paper presents the application of Taguchi method and analysis of variance(ANOVA) for maximization of the breathable film elongation influenced by extrusion parameters. The optimum parameter combination of extrusion process was obtained by using the analysis of signal-to-noise ratio. The conclusion revealed that stretching ratio were the most influential factor on the film elongation. The best results of film elongation were obtained at lower stretching ratio.

Key Words : Polymer extrusion Film, Elongation, Taguchi method, Process parameter, Optimization.

1. 서론

고분자가공에서의 압출공정은, 호퍼(hopper)를 통하여 펠릿(pellet) 또는 분말상의 고형수지가 가열된 배럴(barrel)과 그 내부의 회전스크루(screw)와의 상대 속도 차에 의해 연속적으로 이송, 압축, 용융되면서 일정 형태의 다이(die)를 통과한 후 냉각되어 필름(film), 시트

(sheet), 파이프(pipe), 이형 압출물(profile) 등으로 제조되는 공정으로 구성된다. 고분자 압출필름은 다이스구조에 따라 취입필름(blown film)과 압출주조 필름(casting film)으로 구분되며, 고분자압출 필름 층의 수에 따라 단층필름(mono layer)과 다층필름(multi layer)으로 구분되며, 다층압출공정은 제조 방법에 따라 다층취입압출과 압출주조로 분류되고, 다이형태에 따라 피드블록(feed block)과

*Corresponding Author : Man-Sung Choi(Korea Univ. of Technology & Education)

Tel: +82-41-560-1132 email: mschoi@koreatech.ac.kr

Received October 11, 2013

Revised (1st November 13, 2013, 2nd November 25, 2013 3rd December 3, 2013)

Accepted February 5, 2014

매니폴드(manifold) 타입으로 나누어진다. 이는 원료의 고분자수지(polymer resin)의 열적특성에 따라 적합한 연신방법이 달라지기 때문이다. 예를 들면 나일론의 경우 길이방향의 연신이 일어나면서 수소결합이 발생하기 때문에 폭 방향의 연신이 어려워지므로 동시 연신이 가능한 취입필름 형태의 생산이 적합하다. 주조필름의 연신에 사용하는 방법을 텐터링(tentering)이라하는데 일반적으로 필름의 길이방향인MD (machine direction)연신과 필름의 폭 방향인 TD (transverse direction)연신을 함께 연신한 이축연신(biaxial stretching)필름을 많이 생산한다. 이 텐터링은 동시이축연신과 연속이축연신의 두 가지 방법이 가능하데, 원료 고분자의 물성과 용도에 따라 적합한 방법을 사용한다. 연속이축연신은 동시이축연신에 비해서 얇은 두께의 필름을 생산할 수 있고, 공정조건 변화에 유연하고 생산된 필름의 두께가 정확하다. 동시이축연신의 경우 중간정도의 두께를 가지는 필름을 생산할 수 있으며 두께가 정확하며, 생산된 필름의 물성이 등방성을 나타내고 사용 분야가 다양하다. 연속이축연신의 경우 일반적으로 MD연신이 일어난 후 TD연신을 하게 되는데 연신의 횟수와 순서 및 원료 고분자의 물성에 따라 다르다. 고분자 필름의 연신은 원료고분자에 따라서 구체적인 연신방법, 연신온도, 연신비 등이 달라지는 것으로 알려져 있고, 공기의 통기성, 강성, 내열성, 필름의 두께 및 균일성 등이 요구된다[1,2]. 고분자 필름의 연신에 관련된 연구는 연신의 점성과 연신속도의 관계를 전단유동으로 규명한 것과[3,4], Meissner[5]와 Bayer[6]등의 연구문헌이 대표적이다. 이러한 방법은 유변학(rheology)에 의한 고분자의 특성을 규명해야하므로 그 해석이 매우 까다롭고 복잡하다. 따라서 본 연구에서는 실험용 압출기에 의한 압출공정변수가 통기성 필름의 연신에 미치는 영향을 알아보고, 필름의 연신을 최적화하는 압출기의 최적공정조건을 구하였다.

2. 실험장치 및 방법

2.1 실험장비 및 실험재료

실험에 사용된 고분자 압출기의 모델명은 BNP PE-50 로 고속·통기성필름개발을 위해 Fig. 1과 같이 별도로 제작된 장비이다. 이 장비의 압출기 형식은 단축 스크루 식이며, 주요 규격으로는 스크루길이 1,280mm, 스크루의 직경이 50mm 이고, L/D=26이다. 본 실험에 사용된 통기성필름의 기저재료는 LLDPE(linear low density poly ethylene)이고, 여기에 상용화제, 첨가제, 충전제 등을 혼

련하여 MI(melting index), 밀도, 수분 등의 물성측정을 실시한 후 통기성필름에 적절한 컴파운드 원료를 개발하였다. LLDPE는 기계적 성질이 우수하여 산업체에서 많이 사용되나, 유동 성질이나 가공성은 분자질량 분포에 많은 영향을 받는 것으로 알려져 있다. Table 1에 LLDPE의 주요 재료물성 값을 나타내었다. 측정방법으로는 인장 시험기의 주 화면으로 이동하여, 시험하고자 하는 내용을 입력한 후 연신시험을 하였다.

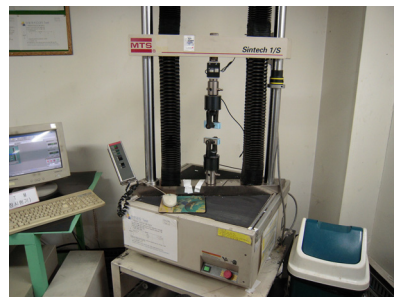


[Fig. 1] Photograph of polymer extruder.

[Table 1] Material properties of LLDPE

Properties	Unit	Value
Thermal conductivity	J/ms ² °C	0.24
Specific heat at constant. pressure	J/g °C	2.30
Density	g/cm ³	0.92
Transition temperature	°C	-120/-9
Crystalline melting point	°C	125
Power law index		0.6

압출된 필름의 인장강도를 측정하기 위해 사용된 계측 장비는 Fig. 2와 같으며, 주요 규격은 500 kg/max.이며, 제조사는 SINTECH이다.



[Fig. 2] Photograph of tensile strength test M/C.

2.2 Taguchi 방법에 의한 실험계획

Taguchi 방법[7,8]은 직교배열표 상에 제어인자와 잡음인자를 동시에 고려하여 S/N비(signal to noise ratio)를 최대화하는 제어인자의 조건 즉, 잡음 하에서도 성능특성치의 분산이 적고 평균이 목표치에 근접하는 제어인자의 조건을 찾는 것이다. 평가특성 값은 신호와 잡음비로 나타내는데 고분자필름의 연신은 생산업체에서는 주로 규격 하한을 적용하므로 특성 값이 크면 클수록 좋은 망대특성(higher is the best)을 적용하였다. 실험에 적용된 압출공정의 제어인자(control factors)는 Table 2와 같다. 이 표에서 A는 압출기의 실린더온도, B는 압출속도, C는 압출기의 다이슨도, D는 냉각 롤의 온도, E는 연신비, 그리고 F는 연신 롤의 온도를 나타내며 L1, L2, 및 L3는 제어인자의 각 수준을 나타낸다.

[Table 2] Control parameters with levels

Process parameters	Unit	L1	L2	L3
A : Ex. cylinder temp.	℃	220	240	260
B : Ex. speed	rpm	200	250	300
C : Ex. dies temp.	℃	220	230	240
D : Cooling roll temp.	℃	16	18	20
E : Stretching ratio	-	2.0	3.0	4.0
F : Stretching roll temp.	℃	80	90	100

Table 3은 실험에 사용된 직교배열표 $L_{27}(3^6)$ 에 따른 MD연신율과 TD연신의 S/N비를 보여준다. 여기서 $L_{27}(3^6)$ 은 27번의 공정조건별 시행과 3수준 및 6개의 제어인자를 나타낸다.

[Table 3] Orthogonal array $L_{27}(3^6)$

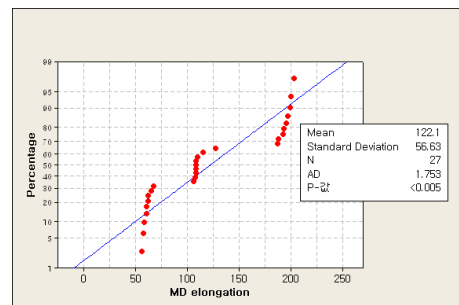
Run	A	B	C	D	E	F	MD Elo.
1	1	1	1	1	1	1	197
2	1	1	1	1	2	2	107
3	1	1	1	1	3	3	57
4	1	2	2	2	1	1	199
5	1	2	2	2	2	2	108
6	1	2	2	2	3	3	60
7	1	3	3	3	1	1	192
8	1	3	3	3	2	2	108
9	1	3	3	3	3	3	67
10	2	1	2	3	1	2	200
11	2	1	2	3	2	3	115
12	2	1	2	3	3	1	65

13	2	2	3	1	1	2	188
14	2	2	3	1	2	3	106
15	2	2	3	1	3	1	56
16	2	3	1	2	1	2	195
17	2	3	1	2	2	3	108
18	2	3	1	2	3	1	60
19	3	1	3	2	1	3	187
20	3	1	3	2	2	1	110
21	3	1	3	2	3	2	62
22	3	2	1	3	1	3	193
23	3	2	1	3	2	1	108
24	3	2	1	3	3	2	58
25	3	3	2	1	1	3	203
26	3	3	2	1	2	1	127
27	3	3	2	1	3	2	62

3. 실험결과 및 고찰

3.1 연신율의 정규성 검정

많은 통계적 절차는 데이터가 정규분포를 따른다고 가정한다. 이러한 가정을 확인하기 위하여 데이터에 대한 정규성 검정을 수행할 필요가 있다. 정규성을 확인하는 절차로 정규확률도를 작성하여 판정하는 방법이 있다. 정규확률도에서 점들이 대부분 직선에 떨어지면 정규성 가정이 만족한다고 판정한다. 아래의 Fig. 3은 MD연신의 실험 자료를 근거로 확률플롯을 나타낸 것이다.

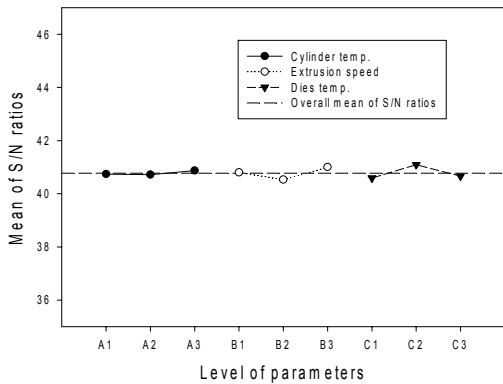


[Fig. 3] Probability plot of MD elongation

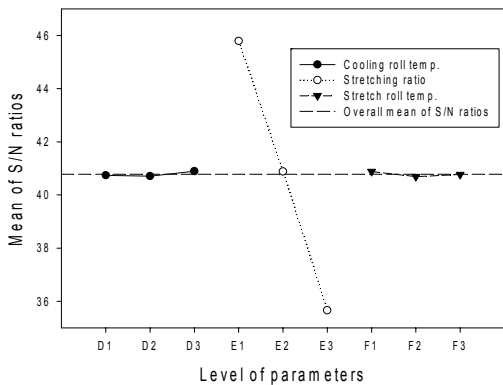
여기에서 사용된 검토 식은 Anderson-Darling식으로 이것은 누적분포함수를 이용하여 검정하는데 검출력이 높은 것이 장점이다. 이 검정에서는 p-값이 0.005보다 작으므로 실험데이터가 정규분포가 아니라는 가설을 강력하게 입증한다.

3.2 연신율의 주효과도

Fig. 4와 Fig. 5는 Table 3의 실험데이터에 따라 MD연신의 S/N비에 대한 주효과도를 나타낸 것으로, 압출공정 변수의 각 수준에 따라 S/N 비의 평균값을 나타내었다.

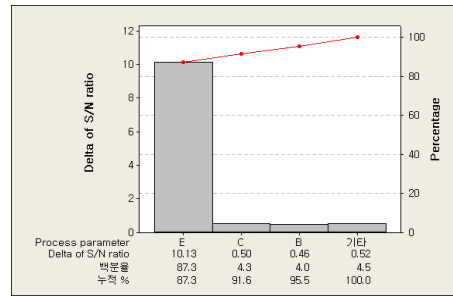


[Fig. 4] Main effects plot(data means) for S/N ratios of MD elongation.



[Fig. 5] Main effects plot(data means) for S/N ratios of MD elongation.

그림에서 S/N비의 경사가 급한 요인이 수준 간에 차이가 있는 즉, 유의한 요인임을 나타낸다. 여기서 MD연신율은 연신비가 가장 민감한 공정 변수임을 알 수 있다. 또한 Taguchi 방법에서는 S/N비가 크면 품질특성이 우수하므로 이에 대한 최적의 압출공정조건을 구할 수 있다. S/N비를 바탕으로 MD연신율을 최대화하는 공정조건은 연신비가 2.0 : 1일 때이다. 공정변수가 MD연신에 미치는 영향의 크기를 알아보기 위해 각 공정변수의 S/N비의 평균에 대한 각 수준의 범위 값을 Fig. 6에 Pareto 차트로 나타내었다.



[Fig. 6] Pareto chart of process parameters.

Pareto 차트는 문제가 되는 항목을 찾아낼 수 있고, 문제항목의 순위와 그 비율을 한 눈에 볼 수 있는 장점이 있다. 80 : 20의 법칙에 의하면, 대부분 80%의 문제는 대부분 20%의 항목에서 발생한다. 각 공정변수별의 수준차이에서 연신비가 87%를 차지하고 있으므로 연신비가 MD연신에 가장 민감하게 영향을 미치는 인자임을 알 수 있다.

3.3 MD연신의 분산분석

압출공정변수의 유의성 검정을 위해 S/N비에 대한 분산분석을 하였다. Table 4는 반응 변수로 S/N비를 지정하고, 모형에 포함될 인자를 지정한 다음 관련 데이터를 작성한 것이다. Table 4의 분산분석표에서는 모형의 각 항에 대한 자유도(DF), 순차제곱 합(Seq. SS), 수정평균제곱(Adj. MS)을 사용하여 얻은 F-통계량, p-값이 나타나 있다. 순차제곱 합은 이전에 포함된 항에 하나의 새로운 항이 추가된 모형에서의 제곱 합이며, 이 값은 모형 차수에 따라 달라진다. 순차 제곱 합을 선택한 경우에는 평균 제곱 및 F-검정에 이 값이 사용된다. Table 4의 결과를 사용하여 요인과 반응 데이터의 상관관계가 높는지 여부와 모형에서 각 요인의 상대적 중요도를 확인할 수 있다. 압출기의 실린더온도, 냉각 롤 온도, 연신 롤의 온도는 유의하지 않으므로 이들의 순차제곱 합을 오차 항에 합하면 (pooling) Table 4와 같이 된다. 이 표에서 알 수 있듯이 압출기의 연신비, 다이스온도, 압출속도의 순으로 MD연신에 크게 영향을 미친다. 따라서 이 변수들은 압출공정의 설계변수로서 매우 중요하다는 것을 알 수 있다.

[Table 4] ANOVA table for S/N ratio of MD elongation after pooling

Source	DF	Seq. SS	Adj. MS	F	P
B	2	0.97	0.97	4.27	0.028
C	2	1.32	1.32	5.83	0.010
E	2	462.05	462.05	2046	0.000
Error	20	2.26	2.26		
Total	26	466.59			

3.4 MD연신의 다중회귀분석

다중회귀분석(multiple regression analysis)은 2개 이상의 예측변수와 1개의 반응변수와의 관계를 선형, 즉 직선으로 가정하는 회귀분석을 말한다. 회귀함수가 얼마나 유효한가는 분산분석표를 작성하여 t-검정을 실시하거나, 실험에서 얻어지는 총 편차의 제곱 합과 회귀제곱의 합으로부터 구해지는 결정계수(coefficient of determination, R^2)를 이용하여 평가한다. 각 인자들로부터 MD와 TD연신을 예측하기 위한 방법으로 Table 2와 Table 4의 자료를 이용하여 아래의 식(1)과 같은 다중회귀식(multiple regression equation)을 얻었다. 여기서 \hat{y}_{MD} 는 MD연신의 추정식이다.

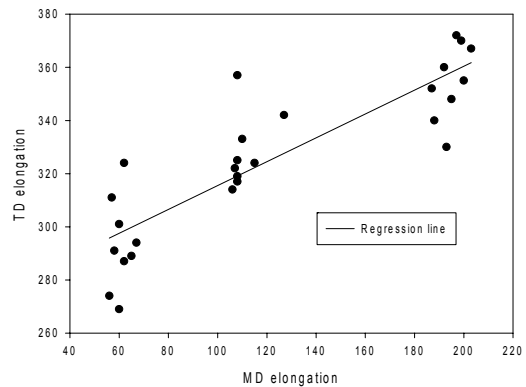
$$\hat{y}_{MD} = 50.64 + 0.09B + 0.04C - 5.06E \quad (1)$$

식(1)에서 알 수 있듯이 MD연신은 연신비 E와 음의 상관관계가 있고, MD연신을 최대화하기 위해서는 낮은 연신비를 선택하면 된다. 그리고 회귀분석결과 MD연신의 결정계수 R^2 (수정)의 값은 98.9%로 나타나 전체변동 중 회귀식에 의해 설명되는 변동이 매우 높은 편이다. Table 5는 압출공정변수에 대한 회귀식의 t-검정 값을 나타낸 것으로 회귀식의 t-검정 값이 큰 변수일수록 추정식을 설명하는데 기여도가 크다. 다중회귀분석을 한 결과 연신비 E의 p-값이 0.000으로 나타나 이 공정 변수는 매우 유의함을 알 수 있다. 압출공정변수 사이에 선형결합 관계를 알아보기 위해 분산팽창인수(variance inflation factor, VIF)를 구하였다. Table 5에서 상수와 모든 독립 변수들의 VIF가 1이므로 독립변수들의 상호 간에 상관관계가 없음을 알 수 있었다.

[Table 5] t-test of MD elongation.

Predictor	Coefficient	T	p	VIF
Constant.	50.47	93.65	0.000	1.0
A	0.07	0.60	0.554	1.0
B	0.10	0.90	0.378	1.0
C	0.04	0.33	0.744	1.0
D	0.08	0.70	0.489	1.0
E	-5.07	-46.68	0.000	1.0
F	-0.06	-0.51	0.614	1.0

Fig. 7은 95% 신뢰구간에서 MD연신과 TD연신의 산점도를 나타낸 것으로 MD연신과 TD연신은 양의 선형관계가 있음을 보여준다. 즉, MD연신이 증가하면 TD연신도 증가됨을 의미한다. 여기서 MD연신과 TD연신의 Pearson 상관계수 r은 0.862로 나타났다. 따라서 두 변수의 관계는 선형성이 높다.



[Fig. 7] Scatter plot of MD elongation vs. TD elongation

4. 결론

본 연구는 고분자압출가공에 있어서 압출공정 변수가 고분자압출 필름의 MD연신과 TD연신에 미치는 영향을 Taguchi 방법에 의한 실험을 통하여 연구한 것으로 다음과 같은 결론을 얻었다. 실험에서 얻어진 MD연신은 정규분포를 따르지 않는다, MD연신과 TD연신에 가장 큰 영향을 미치는 압출공정변수는 연신비이다, 또한 MD연신과 TD연신에 영향을 미치는 압출공정변수 간의 관계는 상호독립적이다. 또한 MD 연신과 TD연신은 강한 양의 상관관계가 있다. 아울러 향후 본 연구에 관련된 생산 현장의 검정과 공정능력에 대한 추가적인 연구가 필요하다.

References

- [1] Rauwendaal, C., "Polymer Extrusion", 4th Edition, Hanser Publishers, 2001.
- [2] Wang, Y., "The flow distribution of molten polymers in Slit Dies and Coat Hanger Die through Three-Dimensional Finite Element Analysis," In Polymer Engineering and Science, pp. 204-212, 1991. DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pen.760310308>
- [3] Picot, J.J.C., Santerre, J.P. and Wilson, D.R., "Effects of Extensional and Shearing Strains on Molecular Orientation of a Polymer Melt," Polym. Eng. Sci., Vol. 29, PP.984-987, 1989.
- [4] Au-Yeung, Macosko and Raju, "Extensional Flow of Linear and Star-Branched Hydrogenated Polybutadiene with Narrow Molecular Weight Distribution," J. Rheology, Vol. 25, pp. 445-452, 1981.

- DOI: <http://dx.doi.org/10.1122/1.549649>
- [5] Meissner, J., "Polymer Melt Elongation Method, Results, and Recent Developments," *Polymer. Eng. Sci.*, Vol. 27, pp. 537-546, 1987.
- [6] Bayer, R.K., Schreiner, H. and Ruland, W., "Tensile Properties of an Extruded Polyethylene Melt," *Rheol. Acta*, Vol. 17, pp. 28-32, 1978.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1007/BF01567861>
- [7] H. S. Byun, G. Y. Kim, "Optimization Design of Clinch Stud using the Finite Element Analysis and the Taguchi Method," *Journal of the KAIS*, Vol. 14, No. 7, pp. 3135-3141, 2013.
DOI: <http://dx.doi.org/10.5762/KAIS.2013.14.7.3135>
- [8] J. E. Chung and J. K. Ahn. "A Study of Robust Design of FCM Gasket Using Taguchi Method," *Journal of the KAIS*, Vol. 14, No. 7, pp. 3177-3183, 2013.
DOI: <http://dx.doi.org/10.5762/KAIS.2013.14.7.3177>

최 만 성(Man-Sung Choi)

[정회원]



- 1983년 2월 : 부산대학교 기계공학과 (공학석사)
- 1989년 2월 : 부산대학교 기계공학과 (공학박사)
- 1991년 3월 ~ 현재 : 한국기술교육대학교 메카트로닉스공학부 교수

<관심분야>

생산제조, 기계가공, 6시그마