

PP/EPDM 2성분 블렌드에 HDPE를 첨가함에 따른 실험 온도 및 조성 변화에 대한 탄성률과 내충격 강도에 관한 연구

김주용, 전병철
수원대학교 고분자공학과

1. 서 론

범용 수지로서 널리 사용되고 있는 폴리프로필렌(polypropylene, PP)은 결정성 열가소성 폴리올레핀으로 상업적으로는 1957년에 최초로 생산되어졌다. 한편, ethylene-propylene-diene terpolymer(EPDM)는 1963년에 시판된 이래 내구성, 절연성, 화학적 저항성 등 우수한 성질을 가지고 있는 재료로 알려져 있으며, 특히 PP의 저온 내충격성을 향상하기 위해서 주로 사용되었다. 지금까지는 PP/EPDM 블렌드에 대한 결정구조, 결정화도, 기계적 성질, 모폴로지의 관찰 등이 연구되어졌으나, EPDM의 함량이 증가함에 따라 내충격성은 향상되었지만 탄성률이 낮아지는 단점을 초래하였다. 이와 같이 탄성률이 저하되는 단점 및 비상용성인 PP/EPDM 2성분 블렌드의 계면 결합력을 향상시키기 위한 방법으로 PE를 첨가하는 연구가 최근 진행되어 왔으며, HDPE가 EPDM과의 계면 결합력이 우수할 뿐만 아니라 EPDM의 분산도(degree of dispersity) 및 블렌드의 강성도(stiffness)를 향상시킬 수 있다고 보고되고 있다.

따라서 본 연구는 PP와 EPDM을 블렌딩함으로써 저하되는 탄성률의 향상을 목적으로 하였으며, PP/EPDM 2성분 블렌드에 HDPE를 첨가한 후 EPDM의 함량과 시험 온도 변화에 따른 인장 및 충격 거동을 모폴로지와 연관지어 고찰하였다.

2. 실험

2.1 시편 제작

본 연구에서 사용된 PP와 HDPE는 (주) SK에서 시판하는 그레이드로서 각각 H730F와 JH910을 사용하였으며, EPDM은 (주)금호 E. P. 고무에서 제조한 KEP570P (Melt Index : 0.14g/10min, propylene(C₃) 함량: 28wt%) 그레이드를 사용하였다.

PP/EPDM 2성분 및 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드는 건조 블렌딩한 다음 twin screw extruder가 장치되어 있는 Plasti-corder PLE 651 (Brabender Co.)을 사용하여 용융 블렌드 하였다. 그리고 인장 및 충격 시편은 사출성형기(ENGEL, ES 240/75P)를 사용하여 ASTM 규격에 따라 제조하였으며, 기계적 성질 측정 전에 모든 시편의 잔류 응력

을 제거하기 위하여 50℃에서 24시간동안 상태조절 하였다. Table 1에는 본 연구에 사용된 각각의 PP/EPDM 2성분 및 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 조성을 나타내었다.

Table 1. PP/EPDM binary and PP/EPDM/HDPE ternary blends prepared in this study

Sample code		PP (wt%)	EPDM (wt%)	HDPE (phr)
PP/EPDM binary blends	EPDM 00	100	-	-
	EPDM 10	90	10	-
	EPDM 20	80	20	-
	EPDM 30	70	30	-
	EPDM 50	50	50	-
PP/EPDM/HDPE ternary blends	EPDM 02	100	-	20
	EPDM 12	90	10	20
	EPDM 22	80	20	20
	EPDM 32	70	30	20
	EPDM 52	50	50	20

2.2 인장 및 충격 강도 실험

인장 강도 실험은 Lloyd Instruments Co.(model:LR50K)를 사용하였다. 시편은 ASTM D-638에 의거하여 덤벨 형태(폭:12.9mm, 두께:3.25mm)로 하였으며, crosshead speed는 50mm/min, gauge length는 100mm로 하였다. 또한 충격 강도 실험은 Testing Machines Inc.(Model43-02, Pendulum:75Kgcm)를 이용하였다. ASTM D-256에 의거하여 시편의 두께는 6.35mm로 하였으며, 노트치드 아이조드 방법으로 하였다. 인장 및 충격 실험시 온도 설정은 각 그레이드의 T_g 이상인 23℃와 PP의 T_g 이하이며 HDPE, EPDM의 T_g 이상인 -30℃, 그리고 PP, EPDM의 T_g 이하이며 HDPE의 T_g 이상인 -60℃로 정하였다. 저온 실험은 각각의 인장 및 충격 시험기에 부착되어 있는 environmental chamber에 5시간 저장 후 실험하였다.

2.3 파단 모폴로지 관찰

PP/EPDM 2성분 블렌드 및 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 충격 실험으로 얻은 시편의 파단면은 주사전자현미경(JEOL, model:JSM-5200)을 이용하여 관찰하였으며, PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 경우 EPDM과 HDPE의 분산 상태를 관찰하기 위하여 초음파 세척기를 이용하여 EPDM을 Xylene으로 에칭하였다.

3. 결론

3.1 PP/EPDM 2성분 및 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 탄성률 변화

Figure 1은 PP/EPDM 2성분 블렌드와 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 EPDM 함량 및 실험 온도에 따른 탄성률의 변화를 나타낸 것이다. 23℃에서의 탄성률은 HDPE의 첨가와 관계없이 2성분 및 3성분 블렌드 모두 유사하였으며, EPDM의 함량이 증가함에 따라서 탄성률은 선형적으로 감소하였다. 또한, PP의 T_g 이하인 -30, -60℃에서도 EPDM

함량이 증가함에 따라서 탄성률은 선형적으로 감소하였으나, PP/EPDM 2성분 블렌드에 비해 HDPE를 첨가한 3성분 블렌드의 탄성률이 크게 향상된 결과를 얻었다.

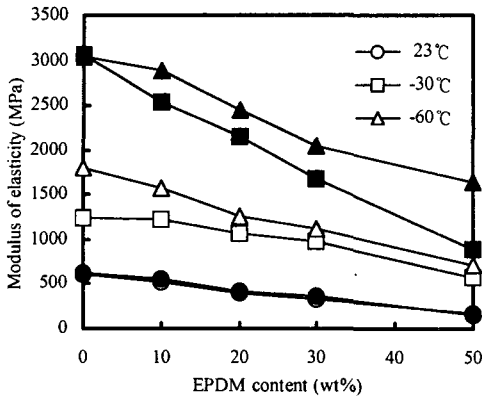


Fig. 1 Modulus of elasticity vs. EPDM content of PP/EPDM binary (empty symbol) and PP/EPDM/HDPE ternary (filled symbol) blends at various testing temperatures.

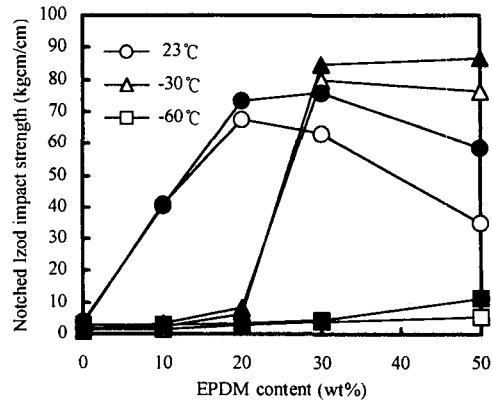


Fig. 2 Notched Izod impact strength vs. EPDM content of PP/EPDM binary (empty symbol) and PP/EPDM/HDPE ternary (filled symbol) blends at various testing temperatures.

3.2 PP/EPDM 2성분 및 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 충격 거동

Figure 2는 EPDM의 함량 및 실험 온도에 따른 충격 강도의 변화를 나타낸 것이다. 23, -30 및 -60°C에서 실험한 결과 EPDM 함량 20wt%까지는 HDPE의 첨가와 관계없이 PP/EPDM 2성분과 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 충격 강도값은 유사하게 나타났다. 그러나 EPDM 함량 30wt% 이상에서 HDPE를 첨가함으로 인하여 충격 강도가 2성분에 비해서 향상된 것을 관찰하였다. Stehling 등[3]에 의하면, PP/EPDM 2성분 블렌드에 HDPE를 첨가함으로서 고무 입자의 분산이 향상된다고 하였으며, HDPE와 EPDM은 핵-겹질 구조를 이루어 응력의 전달 및 흡수를 용이하게 한다고 보고한바 있다. 본 실험 결과 최적의 핵-겹질 구조(Figure 3)는 EPDM 함량 30wt%에 HDPE를 첨가함에 의해서 형성되었으며, EPDM이 충격 강화제의 역할로 인하여 충격 에너지를 효과적으로 흡수하여 2성분 블렌드보다 높은 충격 강도를 나타냈다고 생각된다. -30°C에서의 실험 결과 EPDM 함량 20과 30wt%에서 급격한 취성-연성 전이를 관찰하였는데, Wu[4]는 매트릭스가 취성이고 분산상이 연성일 경우 입자가 임계 크기 보다 클 때 충격 강도가 더 크게 증가한다고 보고하였다. 본 연구 결과 EPDM 함량 20wt%에서는 약 0.8 μ m, 30wt%에서는 약 1.4 μ m 정도의 평균 입자 크기를 나타냈고, 따라서 0.8~1.4 μ m 사이에서 임계 입자 크기가 형성되었기 때문에 충격 강도의 큰 증가를 보인 것으로 사료된다.

3.3 PP/EPDM/HDPE 3성분 블렌드의 충격에 의한 파단 모폴로지 관찰

Figure 3은 PP/EPDM 2성분 블렌드에 HDPE를 첨가함으로 인하여 HDPE가 EPDM에 의해서 둘러 싸여있는 핵-겹질 구조를 보여주고 있다. 특히, 매트릭스와 분산상 사이는

섬유소(fibril)에 의해서 연결되어 있는 것을 관찰할 수 있다.



Fig. 3 SEM photomicrograph of core(HDPE)-shell(EPDM) structure in EPDM 32.

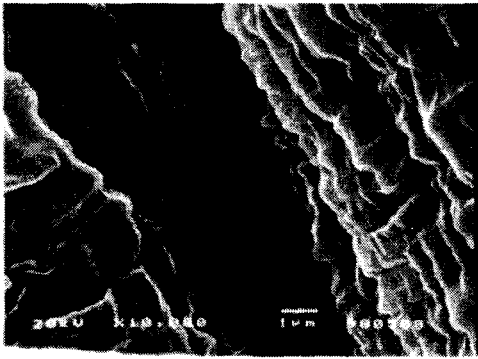


Fig. 4 SEM photomicrograph of notched Izod impact fractured surface of EPDM 32 tested at 23°C (fractured surface was treated with Xylene at 25°C for 10min).

Fig. 5 SEM photomicrograph of notched Izod impact fractured surface of EPDM 32 tested at -30°C (fractured surface was treated with Xylene at 25°C for 10min).

Figure 4는 23°C에서 충격 실험한 EPDM 32를 에칭하여 EPDM을 추출한 후의 파단 모폴로지를 나타낸 것이다. 파단면 사이에 HDPE가 연신된 것을 관찰할 수 있다.

Figure 5는 -30°C에서 충격 실험한 EPDM 32를 에칭하여 EPDM을 추출한 후의 파단 모폴로지를 나타낸 것이다. 매트릭스에 부분적으로 함침되어 돌출되어 있는 HDPE 입자와 연신된 HDPE를 관찰할 수 있다. 결과적으로 충격에 의한 외부 응력을 매트릭스인 PP에 분산된 HDPE와 EPDM의 구조적인 특성에 의한 HDPE의 연신과 EPDM의 충격 강화제로서의 역할이 복합적으로 발생하여 매우 높은 충격 강도값을 나타냈다고 생각된다.

4. 참고 문헌

1. B. Z. Jang, *Polym. Eng. Sci.*, **25**, 643(1985).
2. N. Holz, G. S. Goizueta and N. J. Capiati, *Polym. Eng. Sci.*, **36**, 2765(1996).
3. F. C. Stehling, T. Huff, C. S. Speed and G. Wisslers, *J. Appl. Polym. Sci.*, **26**, 2693(1981).
4. S. Wu, *Polym. Eng. Sci.*, **30**, 753(1990).