

## 유도가열에 의한 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 열적 거동 및 접착특성 연구

전호균 · 박현주 · 이지은 · 이종환 · 오상택<sup>†</sup>

한국신발피혁연구원

(2018년 12월 10일 접수, 2018년 12월 17일 수정, 2018년 12월 20일 채택)

### Study on the Thermal Behavior and Adhesion Properties of Polyurethane Hot Melt Adhesive via Induction Heating

Ho Kyyon Jeon, Hyun Ju Park, Ji Eun, Lee, Jonh Hwan Lee, and Sang Taek Oh<sup>†</sup>

Korea Institute of Footwear & Leather Technology, Busan 47154,, Republic of Korea  
(Received December 10, 2018; Revised December 17, 2018; Accepted December 20, 2018)

**요약:** 본 연구에서는 폴리우레탄 핫멜트 접착제를 합성 후, 유도가열에 감응하는 금속 입자를 첨가하여 유도가열 melt형 접착제를 제조하고, 금속입자의 종류 및 크기, 유도가열 조건에 따른 열적 거동 및 접착특성을 연구하였다. 다양한 금속입자 중에서 iron 및 nickel 적용 시, 유도가열 효율이 가장 우수하였으며, 금속 입자의 크기가 작을수록 유도가열 효율이 향상되었다. 또한 접착제의 유도가열 출력 세기가 높고, 접착제 두께가 얇을수록 접착강도가 향상되었다.

**Abstract:** In this study, a polyurethane hot melt adhesive was synthesized and metal particles sensitive to induction heating were added to produce an induction heating melt adhesive. The thermal behavior and adhesion characteristics of metal particles were investigated according to the kind, size and induction heating conditions. Among the various metal particles, induction heating efficiency was the best when nickel and iron were applied. Induction heating efficiency increased with decreasing metal particle size. In addition, the strength of the induction heating power of the adhesive was high and the adhesive strength was improved as the adhesive thickness was thinner.

**Keywords:** Polyurethane hot melt adhesive, Induction heating, Susceptor, Metal particle.

### 1. 서론

과거에는 신발의 기능이 단순히 발을 보호하는 기능에 국한되어 있었으나, 최근에는 스포츠, 패션제품으로써 뿐만 아니라, 생활환경, 건강문화와 접목되어 웰빙, 건강, 헬스케어 등 인간에게 더욱 더 다양한 기능과 목적을 제공하는 전문제품으로 인식되고 있다[1]. 국내 신발산업은 부품·소재 분야의 기술적 우위와 신발제조 기술을 바탕으로 세계시장에서 경쟁력을 유지해 왔으나, 중국, 동남아시아 등 후발개도국의 약진으로 현재는 신발제조기술의 격차가 좁혀지고, 범용 부품·소재의 경우, 이미 기술이 평준화되어 새로운 성장동력을 발굴하기 위한 전략수립이 필요한 시점이다[2].

특히 대표적 노동집약형 산업인 신발산업은 1990년

대 이후, 높은 인건비 등으로 인해 생산시설이 해외로 이전되어 산업기반이 약화되고, 열악한 작업환경으로 인해 신규인력의 유입 또한 감소하고 있으며, 생산·제조 부분에서는 경쟁국에 비해 일부 우위를 보이지만, 공정자동화 및 부품·소재 분야에서는 핵심기술 미확보로 열세를 보이고 있어 이에 대한 개선이 시급한 실정이다. 최근 나이키, 아디다스 등 세계 메이저 신발기업은 접착공정의 혁신적인 변화를 통해 생산구조의 고도화를 달성하기 위한 노력을 진행 중이며, 그 주요 내용은 low-VOCs 실현 및 인건비 절감, 자동화 시스템 구축을 통한 공정 단축 등이다. 이에 반해, 국내의 신발 관련 업계는 대부분 규모가 영세하여, 자금문제, 연구인력의 한계 및 영업기반의 취약성 등으로 인하여 주요 부품·소재는 해외 의존도가 높고, 공정혁신 관련 연구는 비교적 전무하여 이에 대한 연구가 요구되고 있다[3-4].

<sup>†</sup> Corresponding author: Sang Taek Oh (stoh@kiflt.re.kr)

일반적으로 신발은 겔창(outsole), 중창(midsole), 안창(insole) 및 깔피 등의 부품으로 구성되며, 이들을 제조하는 부품제조 공정과 부품들을 접착제를 이용하여 조립하는 조립 공정으로 구분된다. 앞서 언급한 바와 같이, 신발산업은 접착제에 의한 조립 산업이며, 작업의 특성상 많은 노동력이 집중되기 때문에 노동환경이 접착제에 의해서 좌우되고, 제조원가에서 인건비가 차지하는 비중이 매우 높다. 본 연구의 목적은 신발생산 공정의 획기적인 단축을 위하여, 단시간에 접착제만 선택적으로 가열할 수 있는 신규 접착시스템을 개발하는 것으로, 기존 접착공정 대비 제조공정을 단순화 시킴으로서 생산성 향상, 재료비 절감, 인건비 감축 및 환경오염원 제거 등의 순기능을 창출하는 것이다[5-7].

이러한 측면에서 유도가열을 이용한 새로운 접착시스템은 매우 매력적인 방법이다. 일반적으로 유도가열은 전자기유도 원리를 이용하여 전기에너지를 열에너지로 변환시켜 가열하는 방법이다. 동과 같은 코일에 전류를 흘리게 되면 코일의 내부와 주위에 자속(magnetic flux; 변화하는 자기장)이 형성되며, 가열하고자 하는 소재를 자속 내부에 위치시키면 소재에 전압이 유도된다. 이로 인해 소재 내부에서 전자의 흐름이 발생함으로써, 와전류(eddy current; 맴돌이 전류)가 생성되고, 이러한 와전류가 전자의 흐름을 방해하려는 저항과 만나, 주울열(Joule's heat)이 발생하게 되어 소재를 가열하는 원리이다. 유도가열은 산업 전 분야에 걸쳐, 열처리, 경납땜, 용해, 용접, 가열 등의 목적으로 다양하게 응용되고 있으나, 현재까지는 금속 부품에 대한 직접적인 가열 및 성형 목적으로만 적용되고 있다[8-10].

본 연구는 기존 유도가열 기술이 금속 부품에 국한되어 있던 것과 달리, 고분자 소재인 접착제에 적용하여 유도가열 함으로써, 원하는 때, 원하는 특정 부위만을 가열, 용융시킬 수 있어 열 손상이 심한 소재로 구성된 신발 부품의 접착에 매우 적합한 가열기술이며 부품에 접착제를 처리한 상태로 적재가 가능하여 생산, 물류 시스템을 획기적으로 개선시킬 수 있다. 이를 위하여, 열가소성 폴리우레탄 핫멜트 접착제를 제조하고, 유도가열에 감응하는 금속 입자를 혼합하여 유도가열 melt형 접착제를 제조 후, 금속입자의 종류 및 크기에 따른 열적 거동을 확인하고자 한다. 또한 신발 부품 소재로 사용되고 겔창 고무 및 중창 스펀지와 접착을 통해 실제 유도가열 접착시스템으로의 적용 가능성을 검토하고자 하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 재료 및 시약

본 연구에서는 폴리우레탄 핫멜트 접착제 합성을 위

해 폴리올 성분으로 polyester polyol(Mw = 2000 g/mol, (주)대원포리머), 이소시아네이트로 4,4'-methylenbis(phenyl isocyanate)(Tokyo chemical industry Chem.), 쇠연장제로 1,4-butanediol(삼전순약공업)을 사용하였다. 금속입자로는 iron (70 um, 150 um, 200 um, 300 um, 신우베스틸), nickel(70 um, 그린리소스), aluminium(50 um, 그린리소스), copper (100 um, 그린리소스), ferrite(10 ~ 30 um)를 사용하였다.

### 2.2. 폴리우레탄 핫멜트 접착제 합성

폴리우레탄 핫멜트 접착제 합성은 -NCO기를 말단으로 가지는 프리폴리머를 1차로 제조하고, 80 °C 조건에서 후가공하여 -NCO기가 완전히 소멸되면 반응을 종료시키는 2-step으로 진행하였다. 먼저 폴리우레탄 프리폴리머 제조를 위해 교반기, 질소주입구 및 시료주입구가 장착된 분리형 4구 반응기에 80 °C 조건으로 예열된 폴리올 및 이소시아네이트를 주입하고 실온에서 교반속도 250 rpm으로 반응시킨다. 30분간 교반 후, 쇠연장제를 투입하고 추가로 10분간 교반 후, 반응을 종료시킨다. 계속해서 합성된 폴리우레탄 프리폴리머를 이형몰드에 pouring 시킨 후, 90 °C 조건에서 약 4시간 후반응을 진행하여 -NCO기가 완전히 소멸되면 반응을 종료시킨다.

### 2.3. 유도가열 melt형 폴리우레탄 핫멜트 접착제 제조

유도가열 melt형 폴리우레탄 핫멜트 접착제는 Haake rheocord(model. #9000)를 이용하여 100 °C에서 약 30분간 접착제를 용융시킨 후, 금속입자를 서서히 적가하여 약 20분간 추가 혼합하는 방식으로 제조하였다.

### 2.4. 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 유도가열 및 온도거동 평가

폴리우레탄 핫멜트 접착제의 유도가열은 3회선의 터널형 코일(60 mm × 40 mm × 250 mm)이 장착된 유도가열기(인성중전기(주))를 이용하여, 최대출력 40 kW, 정적주파수 430 kHz 조건에서 실시하였다. 유도가열에 따른 접착제의 온도 거동은 광섬유 온도센서(TMI-4, FISO Technologies Inc, Quebec, QC, Canada)를 사용하여, 접착제 도포면에 센서를 부착 후, 폴리이미드 필름을 이용하여 수회 감아서 고정시켜 평가하였다.

### 2.5. 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 유도가열 접착특성 평가

유도가열 접착시스템을 통한 신발 부품 소재의 접착특성을 확인하기 위하여, 겔창 부품으로 사용되고 있는 범용고무(model; BRS-1000, 아시안캠)와 중창 부품인 EVA foam(동일신소재)을 길이 10 mm, 폭 20 mm로 제작하여 접착하였다. 접착제 도포를 위해 롤러 형태의 핫멜트 접착제 도포기(model; KD-110, KDS Technology)를 사용하여, 두께 50 ~ 200 um 로 접착제를

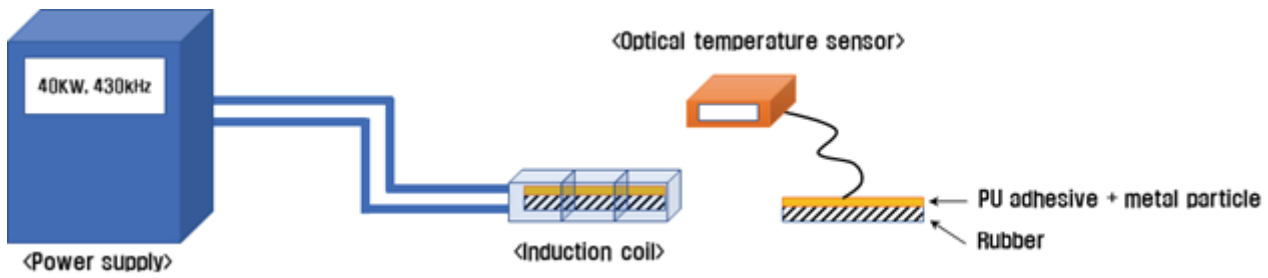


Figure 1. Schematic diagram of induction heating setup.

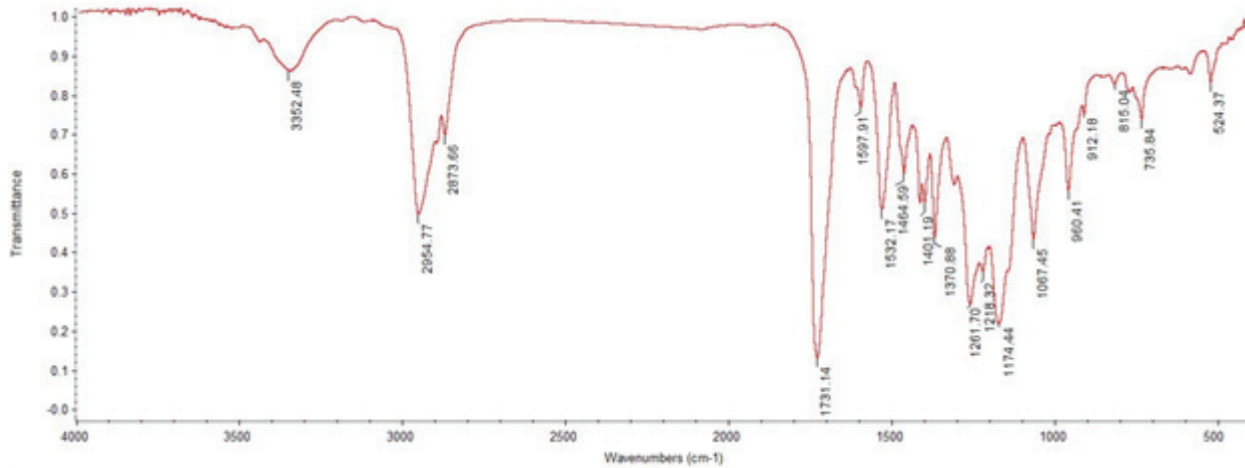


Figure 2. FT-IR spectrum of polyurethane hot melt adhesive.

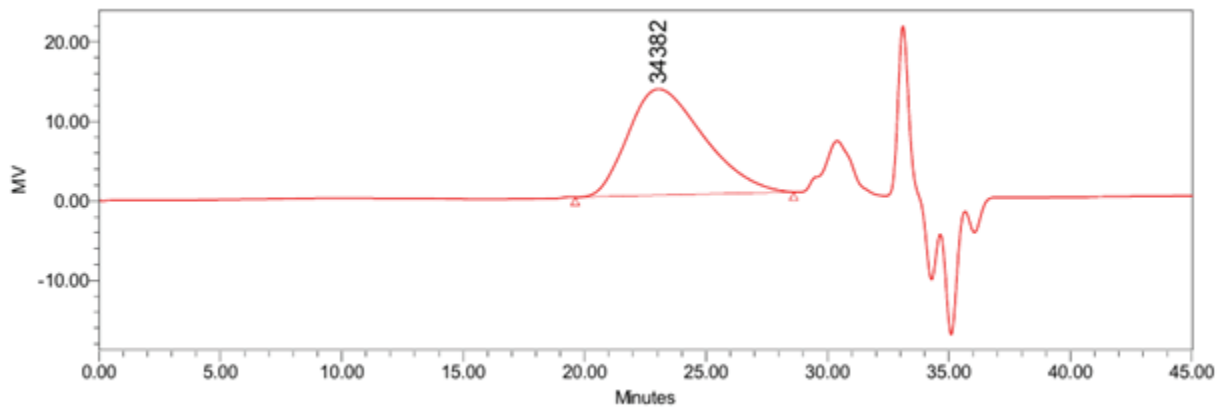


Figure 3. GPC chromatogram of polyurethane hot melt adhesive.

도포하고, 유도가열기 코일 내에 시편을 위치시킨 후 유도가열 한다. 유도가열 종료 후 시편을 꺼내서 압착 후, 24시간 방치한 다음, 만능인장시험기 (UTM, Zwick-1435, Zwick)를 이용하여 KS M 3725(접착제의 박리강도 시험방법)에 준하여 cross head speed 200 mm/min로 3개의 시편을 측정하고 평균값을 결과치로 사용하였다.

## 2.6. 기타 특성 분석

JASCO사의 fourier transform infrared photo spectrometer (FT-IR 430)를 사용하여 측정된 스펙트럼 으로부터 폴리우레탄 핫멜트 접착제가 합성되었음을 확인하였으며, 분자량 측정을 위해 GPC(Alliance e2695, Waters)를 이용하였고 칼럼은 Waters Styragel HR3, HR4, HR5E를 연결하였으며 분자량 표준물질로 polystyrene standard를

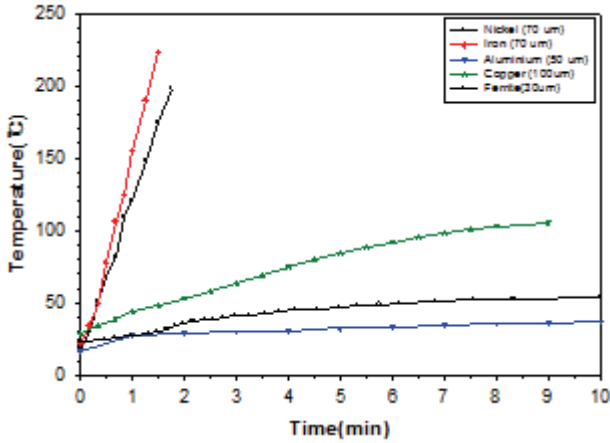


Figure 4. Heating behavior in terms of metal particle kinds via induction heating.

이용하여 calibration 하였다. 폴리우레탄 접착제 tetrahydrofuran (THF)에 0.1 wt%로 용해시키고 마이크로 필터(0.45  $\mu\text{m}$ )로 여과 후 1 ml/min의 속도로 주입하여 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 폴리우레탄 핫멜트 접착제 합성 및 물성

폴리우레탄 핫멜트 접착제의 FT-IR spectrum을 fig 2. 에 나타내었다. 3350  $\text{cm}^{-1}$ 에서 우레탄의 -N-H기(stretching vibration peak), 1731  $\text{cm}^{-1}$ 에서 우레탄의 C=O기(stretching peak), 1464  $\text{cm}^{-1}$ 에서 -우레탄의 CH<sub>2</sub>기(stretching peak)에서 나타나는 특성 피크 들을 확인할 수 있었다. 또한 2270  $\text{cm}^{-1}$ 에서 -NCO 피크가 완전히 소멸되어 반응이 종료됨을 확인할 수 있었다. 합성된 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 용융거동을 확인하기 위하여, melt flow index(용융흐름지수측정기, Hanatek)를 측정한 결과, 250 g / 10 min(150 °C, 2.16 kgf)을 나타내었으며, 수평균분자량은 21700 g/mol 이었다.

#### 3.2. 금속입자 종류에 따른 유도가열 온도거동

금속입자의 종류에 따른 유도가열 온도거동을 확인한 결과, 온도상승률은 iron  $\approx$  nickel  $\gg$  copper > ferrite > aluminium 순으로 나타났다. 특히 iron 및 nickel은 유도가열 1분 이후에 접착제의 완전 용융이 가능한 150 °C 이상의 온도에 도달하는 것으로 보아 유도가열 접착시스템에 적용 가능할 것으로 판단되었다. 반면, copper, ferrite, aluminium은 약 10분간 유도가열 시에도 접착제의 용융온도에 도달하지 못하여 향후 적용이 어려울 것으로 판단된다. 금속입자 종류에 따

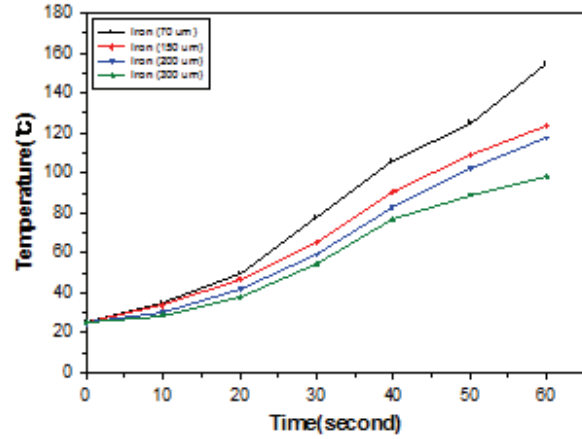


Figure 5. Heating behavior in terms of metal particle size via induction heating.

른 유도 가열 온도거동을 fig 4. 에 나타내었다.

#### 3.3. 금속입자 크기에 따른 유도가열 온도거동

금속입자 종류에 따른 유도가열 온도거동 평가에서 가장 특성이 우수하였던 iron에 대해서, 입자 크기 별 유도가열 온도거동을 확인하였다. 70  $\mu\text{m}$ , 150  $\mu\text{m}$ , 200  $\mu\text{m}$ , 300  $\mu\text{m}$ 의 직경을 가지는 iron에 대해서 유도가열한 결과, fig 5. 에 나타낸 바와 같이, 입자 크기가 작아질수록 유도가열 효율이 증가하는 것으로 나타났다. 이러한 현상은 금속입자의 히스테리시스 손실률과 깊은 연관이 있는 것으로 보고되고 있는데, 일반적으로 금속입자의 유도가열에서는 히스테리시스 손실이 클수록 발열량이 크게 나타나는 것으로 알려져 있다 [11-12]. Iron 입자의 경우에서도 입자의 크기가 작아질수록 히스테리시스 손실률이 증가하게 되고, 이로 인해 유도가열 온도 증가률이 향상된 것으로 판단된다.

#### 3.4. 유도가열 출력에 따른 유도가열 melt형 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 접착특성

유도가열 출력세기에 따른 접착강도를 평가하였다. 합성된 폴리우레탄 접착제에 iron 입자를 접착제 고형분 대비 20 pt 첨가 후, rheocord를 이용하여 균일하게 혼합시킨 다음, 고무 피착재에 핫멜트 롤러를 이용하여 50  $\mu\text{m}$  두께로 도포하였다. 계속해서 유도가열기 출력세기를 10 kW, 20 kW, 30 kW 조건으로 가변 후 이에 따른 유도가열 접착강도를 확인하였다. 30 kW 조건에서 60초간 유도가열한 경우, 피착재의 표면온도는 접착제가 완전 용융되기에 충분한 165°C를 나타내었으며, 이 때의 접착강도는 2.5 kgf/cm이었다. 20 kW 조건에서는 1.8 kgf/cm, 10 kW 조건에서 접착강도는 1.3kgf/cm를 나타내었다. 이를 통해 출력세기가 증가

**Table 1.** Composition and property of Polyurethane hot melt adhesive

Property	Composition (Equivalent)		
	Polyester polyol	MDI	1,4-BD
M.F.I. (g/10min), 2.16 kgf, 150 °C	0.85	0.96	0.15
MW.	250		
	Mn.	21700	
	Mw.	34600	
	Mp	34380	
	PDI	1.59	

**Table 2.** Heating behavior in terms of metal particle kinds via induction heating

Composition		Initial heating rate (°C/s)
PU Hot melt adhesive	100	
Metal particle	Iron	2.26
	Nickel	1.71
	Copper	0.14
	Aluminium	0.03
	Ferrite	0.05

**Table 3.** Heating behavior in terms of metal particle size via induction heating

Particle size of iron (um)	Initial heating rate (°C/s)	Maximum temperature (°C)
70	2.16	155
150	1.65	124
200	1.54	118
300	1.22	98

**Table 4.** Adhesive property by induction heating power

Output power (kW)	10	20	30
Maxium temp. of substrate (°C)	120	138	165
Adhesive property (kgf/cm)	1.3	1.8	2.5

**Table 5.** Adhesive property according to adhesive thickness

Adhesive thickness (um)	50	100	150	200
Adhesive property (kgf/cm)	2.5	2.6	2.2	1.9

할수록 접착강도가 우수해짐을 알 수 있었다. 즉, 10 kW 조건에서는 피착재 전면적에 걸쳐 접착제가 균일하게 용융되지 못하여 접착강도가 미흡하게 나타났으며, 30 kW 조건에서는 접착제가 충분히 용융되고 피착재에 완벽히 습윤됨으로 인해, 접착강도가 우수하게 나타난 것으로 판단된다.

**3.5. 접착제 도포두께에 따른 유도가열 melt형 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 접착특성**

폴리우레탄 핫멜트 접착제의 도포두께에 따른 유도가열 접착강도를 평가하였다. 이전과 동일한 방법으로 접착제를 도포하되, 두께를 50 um, 100 um, 150 um,

200 um로 조절한 다음, 출력 세기 30 kW 조건으로 유도가열한 결과, 접착제 두께가 얇을수록 오히려 접착강도가 우수하게 나타났다. 접착제 도포두께에 따른 유도가열 melt형 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 접착특성을 table 5. 에 나타내었다. 접착제 도포두께 100 um 에서는 2.6 kgf/cm의 양호한 접착강도를 나타낸 반면, 200 um 에서는 접착제가 균일하게 용융되지 못하여 접착강도 1.9 kgf/cm로 감소함을 확인하였다.

#### 4. 결론

금속입자의 종류에 따른 유도가열 온도거동을 확인한 결과, 온도상승률은 iron 및 nickel이 가장 우수하였으며, copper, ferrite, aluminium은 상대적으로 유도가열 효율이 미흡하였다. Iron 입자 크기 별 유도가열 온도 거동을 확인한 결과, 입자의 크기가 작아질수록 히스테리시스 손실률이 증가하게 되고, 이로 인해 유도가열 온도 증가률이 높게 나타났다.

합성된 폴리우레탄 접착제에 iron 입자를 첨가하여 제조된 유도가열 melt형 폴리우레탄 핫멜트 접착제의 접착특성을 평가한 결과, 유도가열기 출력세기가 증가할수록 접착제의 용융이 균일하게 발생함에 따라 접착강도가 증가하였다. 또한 접착제의 도포두께에 따른 유도가열 접착강도를 평가한 결과, 도포두께 100 um까지는 접착강도가 양호한 반면, 150 um 이상에서는 접착제가 균일하게 용융되지 못하여 접착강도가 충분히 발현되지 못한 것으로 판단된다.

본 연구에서는 고분자 소재인 접착제에 유도가열기 기술을 접목함으로써, 국부적인 가열이 가능하고 피착재 등의 손실을 최소화 할 수 있고, 재료비와 가공비가 절감될 뿐만 아니라, 공해발생이 적다는 장점을 가진 새로운 접착시스템을 제시하였으며, 그 적용 가능성을 확인할 수 있었다.

#### 감사의 글

본 연구는 2018년도 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국산업기술평가관리원의 지원을 받아 수행된 산업소재핵심기술개발사업(과제번호; 10048308)의 결과물로 이에 감사드립니다.

#### References

1. Ine kim, Ji Soo Ha, *J. Korean Society of Fashion Design*, **12**, 1, 93,(2012).
2. Ji Hoo Kim, Gue Hyun Kim, *J. Elastomers and Composites*, **48**, 3, 195,(2013).
3. D. H. Park, D. H. Moon, C. U. Lee, *J. Asssoc. Korean Ind.* **1**, 200,(1991).
4. J. S. Shin, J. M. Park, Y. H. Lee, H. D. Kim, *J. Clean Tech.* **20**, 232,(2014).
5. D. H. Shao, J. J. Huang, G. N. Chen, K. N. Chen, *Polym. Degrad. Stab.*, **65**, 359,(1999).
6. B. K. Kim, D. S. Lee, C. H. Do, H. M. Jeong, *Polyurethanes*, **1**, 329,(2006)
7. K. J. Ryu, C. Y. Park, *J. Environmental Science International*, **23**, 1909,(2011).
8. Bayerl, T., Duhovic, M., Mitschang, P., Bhattacharyya,

- D., *Compos: Part A.* **57**, 27,(2014).
9. Buckley, J. D., Fox, R. L., and Tyeryar, J. R., *Mater. Res. Soc. Symp.* **124**, 317,(1988).
10. D. H. Bae, M. J. Moon, M. Y. Shon, S. T. Oh, G. N. Kim, D. W. Yun, *J. Adhesion*, (2016)
11. Suwanwatana. W, Yarlagaadda. S, Gillespie. J. *Compos Sci Technol.* **66**, 282, (2006)
12. Babincova, M.; Leszczynska, D.; Sourivong, P. J. *Magn. Mater.* **109**, 225, (2001)