

# 용융방사에 의한 생분해성 고강도 PLA 섬유 제조 공정 상 주요 공정 변수에 관한 연구

## Preparation and Physical Properties of Biodegradable High Performance PLA Fiber using Process Parameters

\*Corresponding author

Jaewoong Lee

(jaewlee@yu.ac.kr)

정우창<sup>1</sup>, 김삼수<sup>2</sup>, 이상오<sup>3</sup>, 이재웅<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>한국섬유개발연구원, <sup>2</sup>영남대학교 파이버시스템공학과, <sup>3</sup>영남대학교 의류패션학과

Woo Chang Jeung<sup>1</sup>, Sam Soo Kim<sup>2</sup>, Sang Oh Lee<sup>3</sup>, and Jaewoong Lee<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Industrial Information Education Team, Korea Textile Development Institute, Daegu, Korea

<sup>2</sup>Department of Fiber System Engineering, Yeungnam University, Gyeongsan, Korea

<sup>3</sup>Department of Clothing and Fashion, Yeungnam University, Gyeongsan, Korea

Received\_September 16, 2022

Revised\_September 23, 2022

Accepted\_September 23, 2022

**Abstract** The purpose of this study was to confirm the optimal spinning conditions for PLA (Polylactic acid) as a fiber forming polymer. According to the melt spinning test results of PLA, the optimal spinning temperature was 258°C. However, it needs to note that relatively high pack pressure was required for spinning at 258°C. At an elevated temperature, 262°C, mono filament was broken easily due to hydrolysis of PLA at a higher temperature. In case of fiber strength, it was confirmed that the draw ratios of 2.7 to 3.3 were optimal for maximum strength of melt spun PLA. Above the draw ratio, 3.3, the strength of the PLA fibers was lowered. It was presumed that cleavage of the PLA polymer chain over maximum elongation. The heat setting temperature of GR (Godet roller) showed that the maximum strength of the PLA fibers was revealed around 100°C. The degree of crystallinity and the strength of the PLA fibers were decreased above 100°C. The optimal take-up speed (Spinning speed) was around 4,000m/min. Thermal analysis of PLA showed 170°C and 57°C as T<sub>m</sub> (melting temperature) and T<sub>g</sub> (glass transition temperature), respectively.

**Keywords** polylactic acid, melt spinning, PLA fiber, spinning condition, spinning analysis

Textile Coloration and Finishing

TCF 34-3/2022-09/197-206

© 2022 The Korean Society of

Dyers and Finishers

### 1. 서 론

나일론을 발명한 Carothers가 1932년에 진공상태의 유산(Lactic acid)을 가열하여 합성한 것이 최초의 저분자량 PLA(Polylactic acid)이고 이렇게 개발된 저분자량 PLA는 낮은 기계적 물성을 가지고 있었다. 그 이후 1954년 듀폰사에서 고분자량의 PLA를 얻기 위한 연구가 진행되었다. 그러나 이 시기에 연구된 것은 완전한 지방족인 polyester를 가짐으로써 연구가 일시 중단되었다.

1972년에 Ethicon은 인체 내에서 분해되는 의료용 봉합사 이식부품 등을 개발하였지만, 높은 가격으로 일반 상업용으로 발전하지 못하였다. 실질적인 PLA의 상업적 시작은 1997년 11월에 Cargill사와 Dow Chemical사가 PLA를 제조·판매하는 벤처기업인 Cargill Dow polymer사를 설립한 것이 그 시작이라고 할 수 있으며, 그 후 친환경에 대한 지속적인 관심과 연구개발로 2002년 4월, 미국의 Cargill Dow LLC사는 연간 14만 톤의 PLA 수지의 대량 생산플랜트를 가동함으로 본격적인 PLA 생산 시점이라고 할 수 있다<sup>1-5)</sup>.

한편, 유산은 포유류 동물의 근육에서 글리코겐 분해 시 생성되고, pyruvic acid와 acetyl-CoA를 통한 크레브스 사이클에 포함되는 것으로, 당밀, 감자전분, 옥수수에서 얻는 포도당을 발효하면 높은 수율로 생성된다.

상업적으로 유산은 발효법이나 석유화학 공급 원료로부터 생산되며, 석유화학적 방법으로 합성한 유산은 광학불활성 라세미혼합물이다. 현재 가장 많이 이용되는 제법은 박테리아의 일종인 Lactobacillus를 이용한 옥수수 전분의 발효에 의해 옥수수 전분이 유산으로 전환하는 것으로, 이 방법의 유산은 오로지 L-유산 이성질체이다. PLA는 2개의 이성질체(Isomer)를 갖는데, 상업적으로 L-lactide PLA와 D, L-lactide PLA가 생산된다. L-형은 결정성이 매우 크며, 용융변이온도(Melt transition temperature)는 분자량이 낮아짐에 따라 감소한다. D, L-lactide의 고분자는 무정형(Amorphous)이면서 이에 상당하는 낮은 용융점을 갖는다. PLA는 주로 의료용으로 사용되는데, 약물전달이나 혈관이식, 인공피부, 정형외과용 이식 조직편(Implants), 흡수성 봉합사, 인공삽입장치 및 약물이나 기타 생리 활성물질의 전달 수단으로 이용되고 있다<sup>6-9)</sup>.

PLA 섬유는 종래의 범용합성섬유와 비교하면 강도, 탄성률 등의 기계적 특성이 아주 높지 않기 때문에 그 용도가 제한적일 수밖에 없다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 고분자량의 폴리머를 사용하여 고배율 연신 또는 용액방사를 하는 방법, 소량의 폴리에틸렌글리콜을 공중합한 PLA의 연속중합 방사방법 및 열수로 2단 이상의 연신하는 방법 등이 제안되었다<sup>10-12)</sup>.

그러나 PLA 섬유는 고배율로 연신하면 섬유의 백화나 단사의 파단(breakage)에 의하여 공업적으로 안정된 고품위사를 얻을 수가 없다. 이것은 PLA 섬유를 고강도화하기 위해서는 과도한 장력을 섬유에 가할 경우 섬유내부구조에 보이드(Void)가 생성되거나 결정질 및 비결정질 구조계면의 박리 또는 피브릴상의 구조가 형성되기 때문이다.

따라서 일본 Toray사에서는 PLA 섬유의 고강도화를 위하여 PET(Polyethylene terephthalate)나 나일론의 고강도 섬유화 제사기술을 구사하고 있다<sup>13-17)</sup>.

PLA 섬유는 실온이나 고온에서 가수분해 속도가 빠르고, 공기 중의 수분에 의하여 장시간에 걸쳐 분해되는 성질을 가지고

있다. 이와 같은 특성으로 인하여 PLA 섬유는 고온에서 염색을 하면 포의 인열강도가 저하되기 때문에 저온에서 염색을 하며, 이로 인해 진한 색상의 염색이 불가능하다. 또한 어망 등 수중에서 사용하는 수산자재용의 경우는 그 사용기간이 단기간에 한정되며, 자동차용과 같은 고온다습한 환경에서 사용되는 경우는 성능유지가 어렵다는 점 등의 문제점이 있다. 이것은 PLA의 카르복실 말단을 봉쇄하는 신규 약제를 방사 시에 첨가하여 가수분해속도가 낮은 PLA 섬유를 얻으므로 많은 부분이 개선되었다<sup>18-22)</sup>.

본 연구에서는 생분해성 소재로 활용되는 PLA의 응용범위 확대와 섬유로서의 적용을 위해 용융방사를 진행하였고, 타 범용고분자에 비해 상대적으로 낮은 PLA의 낮은 열적특성에 적합한 용융방사 조건을 확립하고자 다양한 공정변수를 도입하여 최종 방사된 PLA 필라멘트의 특성을 검증하였다.

## 2. 실험

### 2.1 핵심변수 선정 기준

고강도 PLA를 제조하기 위해 PLA Chip을 준비하여 공정수분 0.005% 이하로 낮추기 위한 건조조건을 설정하고 이상적인 원사를 제조하기 위하여 적절한 방사온도, 방사속도를 실험을 통해 최상의 조건을 찾고자 하였다. 방사의 핵심변수의 설정함에 있어 공정 주요 Parameter 인 3T(Temperature, Tension, Time)를 기준으로 설정하였다.

### 2.2 PLA 방사테스트 조건표

사전 테스트(1차 테스트)를 통해 핵심변수를 설정하였다. 방사성 민감 변수와 방사성 비민감 변수로 나누었다(Table 1). 방사성 민감 변수에는 Godet Roller 2(GR2) 온도와 연신비가 있고, GR2 온도는 최적 95-100 사이이며 연신비는 최적 2.0에서 4.0사이(2.4-3.6)이다. 방사성 비민감 변수는 방사온도와 방사속도가 있고, 방사온도는 254-262 사이이며 방사속도

Table 1. Spinning condition of PLA melt-spinning

Condition		Setting value
Chip drying condition		0.005 wt%
Beam temp.(Pack temp.)	°C	254, 256, 258, 260, 262
Draw ratio	GR2 speed/GR1 speed	1.2 ~ 4.0 (3.0 ~ 3.4)
Coagulation temp.(GR2 temp.)	°C	95, 100, 105
Spinning speed(F/R Winder)	rpm	4,000 ~ 4,400

**Table 2.** List of the tools for data analysis

Classification	Content	Use	Package	Applications
Data statistics	Avarage, Minimum, Maximum, Dispersion, Deviation, Distribution		Dplyr, Readxl	
Data analysis	Association analysis, Correlation analysis	R	Corrplot, Arules(Viz)	Google Colaboratory, Ubuntu 18.04
Data visualization	Histogram, Scatterplot, Box plot		Gplot2	

는 4000 mpm이상이 가능하다. 본 연구에 적용된 2차 테스트 중점에서 둘 변수는 연신비, 방사온도, 방사속도이다. 고정변수를 Godet Roller 1(GR1) 90°C, GR2 100°C로 설정하고 변동변수를 스피드(4000, 4200, 4300 및 4400 mpm), 연신비(2.8, 3.0, 3.2, 3.4 및 3.6), 방사온도(254, 256, 258, 260 및 262 °C)로 설정했다.

**2.3 데이터 분석을 통한 핵심변수 상관관계 분석 및 검증**

공정에서의 원료, 배합, 공정, 물성 정보에 해당하는 데이터들의 상관관계 분석을 실시하였다. 섬유 원료 데이터의 경우 PLA 데이터이다. 소재의 물성 데이터는 사 인장 강도, 신도 및 생산성으로 하였다. 방사공정 데이터 분석 및 분석 결과를 바탕으로 소재 물성 관련된 핵심 인자를 도출하였다.

**2.3.1 데이터 분석을 위한 활용 도구**

연구용 데스크톱과 구글 Colaboratory 개발 도구(Ubuntu 18.04 기반)를 사용하였으며, 데이터 통계·분석·시각화에 R을 활용하였다. 데이터별 적합한 분석 및 시각화 기법 적용하여 분석 데이터의 시각화를 통해 분석 결과를 직관적으로 확인하

였다.

본 연구의 데이터 분석에 활용된 도구를 Table 2에 나타내었다. 많은 방사공정 변수들 중 실제 방사공정에서 방사 결과 소재의 물성에 변화를 주기 위해 활용하는 변수는 일부이다. 방사설비 마다 차이가 있기 때문에 공통적으로 적용 가능한 주요 변수들의 활용이 요구되어 진다.

물성에 영향을 주며 공통적으로 적용 가능한 주요 변수를 Table 3에 나타내었다. 매니폴드 온도의 경우 스펀빔 온도와 비슷하게 설정하며 시뮬레이션 및 방사 테스트를 통해 얻은 데이터셋에서 동일한 온도이기 때문에 데이터 분석은 스펀빔 온도만을 대상으로 수행하였다. 하지만 GR 1의 온도도 시뮬레이션 및 방사 테스트를 통해 얻은 데이터셋에서 고정 값이기 때문에 분석이 불가능하여 제외하였다.

따라서 본 연구에서 실제 적용하여 데이터 분석을 수행한 방사공정 변수는 Table 4와 같다. 고강도의 생분해성 섬유 물성 예측이 목적이므로 주 예측 물성을 사 인장강도와 신도를 분석 대상 물성 데이터로 지정하였다. 사 인장강도와 신도 외에도 방사의 결과로 고강도의 소재가 얻어지더라도 생산성이 나쁘면 의미가 없기 때문에 생산성도 함께 고려할 수 있도록 분석 대상에 생산성을 포함시켰다. 생산성의 경우 우수(95%), 보통(90%), 저하, 실패로 구분하여 보통 이상의 생산성을 고려한 방향으로 진행하였다. 표를 통해 강도, 신도, 생산성을 확인할

**Table 3.** Major variable for mechanical properties of PLA filaments

Classification	HM Boiler		Godet R/O			DR	Winder	
Variable	Spin beam Temp.	Manifold Temp.	GR 1 Speed	GR 1 Temp.	GR 2 Speed	GR 2 Temp.	Draw ratio	F/R Speed
Unit	°C	°C	m/min	°C	m/min	°C	Real No.	m/min

**Table 4.** Real variable for mechanical properties of PLA filaments

Classification	HM Boiler	Godet R/O			DR	Winder
Variable	Spin beam Temp.	GR 1 Speed	GR 2 Speed	GR 2 Temp.	Draw ratio	F/R Speed
Unit	°C	m/min	m/min	°C	Real No.	m/min

수 있다. 방사 실패의 경우 강도와 신도 데이터가 없기 때문에 0으로 처리하였고, 생산성의 경우 4개 범주로 나뉘기 때문에 A, B, C, D로 구분 처리하였다.

## 2.4 분석

### 2.4.1 열중량분석기(Thermogravimetric Analysis, TG-DTA)

PLA 섬유의 열분해온도를 측정하기 위해 TG-DTA(SDT Q600, TA Instruments, USA)를 사용하여 질소 분위기에서 속도 10°C/min로 600°C까지 설정하였다. 섬유 시험편을 1cm 이하로 커팅(약 10mg)하고, 질소(N<sub>2</sub>)를 사용해 10°C/min 속도로 0°C에서 최대 800°C까지 설정하여 시험을 진행하였다.

### 2.4.2 DSC 열적 특성 측정

KS M ISO11358-2 플라스틱-고분자의 열중량분석(TGA) 방법을 참조하여 PLA 섬유의 열분해온도 측정 시험을 진행하였다. 시험편을 1cm 이하로 커팅(약 10mg)하고, 질소(N<sub>2</sub>)를 사용해 10°C/min 속도로 0°C에서 최대 800°C까지 설정하여 시험을 진행하였다.

### 2.4.3 XRD 물리적, 기계적 특성 측정

PLA는 입체화학에 따라 무정형 또는 반결정형 상태, 기계적 연신으로 변형결정화가 발생한다. 따라서 PLA 섬유의 물리적, 기계적 특성은 결정화도에 영향을 받으며, 이러한 결정화도는

연신율, 연신속도, 온도, 열처리조건 등에 의존한다. PLA의 결정화도를 분석하기 위해 X-선 회절분석기(XRD)를 이용하여 PLA 섬유의 결정화도 측정 시험을 진행하였다. X-선 회절분석의 경우, X-선이 들어오는 방향과 일치하게 준비된 시료를 홀더에 감아 측정하였다. 광원은 준비된 시료에 15cm x 15cm 만큼 조사되었으며, 범위는 2-theta = 0 ~ 60도까지 측정되었다. 즉, 전기적으로 발생된 X-선이 시료에 조사 후 반사되어 나오는 X-선의 회절을 이용하여 준비된 시료의 결정화도를 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

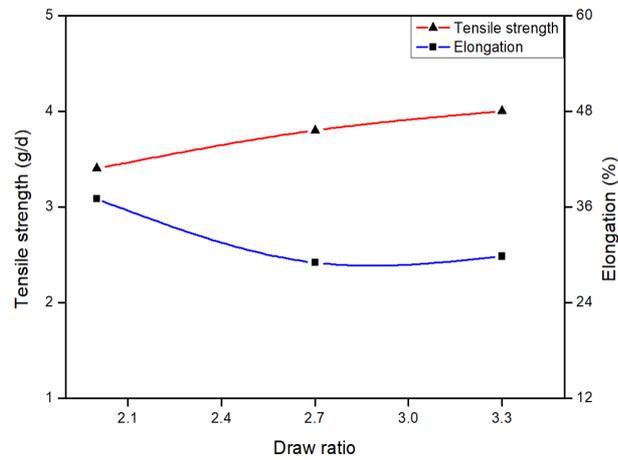
### 3.1 방사온도 따른 방사성과 물성 변화

방사온도 260°C, 고화온도 95°C, 방사속도 4,000mpm으로 고정하고 연신비 조건을 바꾸면서 테스트를 진행하여 그 결과를 Figure 1에 나타내었다. Figure 1에서 알 수 있듯이, 방사온도가 260°C 인 경우 연신비가 2 이하에서는 유의미한 방사성을 보이지 않았으며, 연신비가 2 이상에서 실질적인 방사성이 나타났다. 연신비가 2.7~3.3 인 경우 그 강도는 3.8~4g/d로 나타났다. 즉, 연신비가 2.0 이상에서 그 연신비의 증가에 따라 PLA 필라멘트의 강도가 증가하는 경향을 확인할 수 있었다.

하지만 방사온도를 260°C 초과하여 상향한 경우 단사절이 일부 발생하였으며, 특히 점도저하로 균일방사가 불가능함을 확인하였다. 이러한 현상은 특정온도 이상의 높은 방사온도에서 야기되는 PLA의 가수분해 현상에 따른 것으로 추정된다.

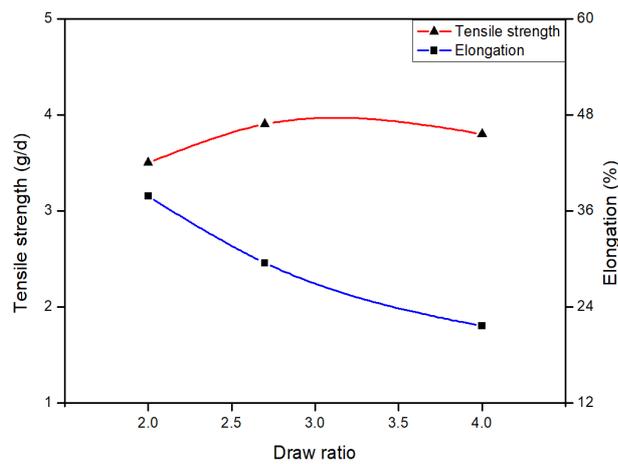
**Table 5.** Prediction of tenacity, elongation and productivity of PLA filaments

Classification	Tenacity	Elongation	Productivity			
Unit	Spinning success : Real No.	Spinning success : Real No.	Excellent	Average	Mediocre	Fail
	Spinning fail : 0	Spinning fail : 0	A	B	C	D



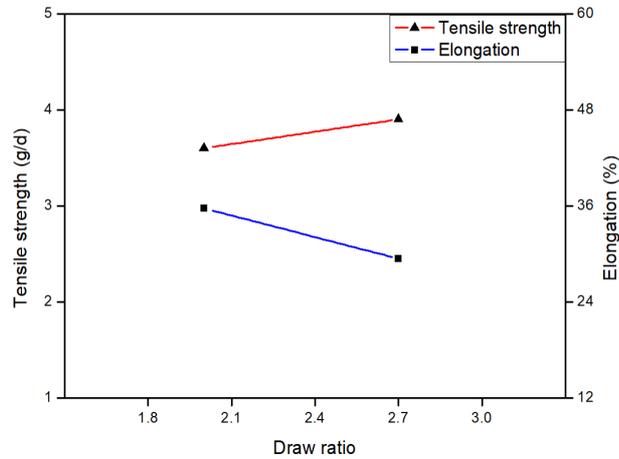
Draw ratio	Solidification temp (°C)	Spinning speed (mpm)	Spun possibility	Denier (D)	Tenacity (g/d)	Strain (%)
1.2	95	4,000	X	-	-	-
1.3	95	4,000	X	-	-	-
1.6	95	4,000	X	-	-	-
2.0	95	4,000	○	35.1	3.4	37
2.7	95	4,000	○	35.1	3.8	29
3.3	95	4,000	○	35	4	29.8

Figure 1. Test results of PLA filaments spun at 260°C.



Draw ratio	Solidification temp (°C)	Spinning speed (mpm)	Spun possibility	Denier (D)	Tenacity (g/d)	Strain (%)
1.2	95	4,000	X	-	-	-
1.3	95	4,000	X	-	-	-
1.6	95	4,000	X	-	-	-
2.0	95	4,000	○	35.1	3.5	37.8
2.7	95	4,000	○	35.2	3.9	29.5
4.0	95	4,000	○	35.4	3.8	21.6

Figure 2. Test results of PLA filaments spun at 258°C.



Draw ratio	Solidification temp (°C)	Spinning speed (mpm)	Spun possibility	Denier (D)	Tenacity (g/d)	Strain (%)
1.2	95	4,000	○	36.1	2.6	57.6
1.3	95	4,000	○	36	3.0	47.2
1.6	95	4,000	○	36	3.3	37.8
2.0	95	4,000	○	35.1	3.6	35.7
2.7	95	4,000	○	35.2	3.9	29.4

Figure 3. Test results of PLA filaments spun at 256°C.

앞선 조건보다 방사온도를 소폭 낮추어 방사온도 258°C, 고화 온도 95°C, 방사속도 4,000mpm 고정하고 연신비 조건을 바꾸면서 테스트 진행하였으며, 그 결과를 Figure 2에 나타내었다. 방사온도가 258°C 인 경우 연신비가 2 미만에서는 방사성을 보이지 않았으며, 연신비가 2 이상일 때 방사성이 확인되었다. 연신비가 2.7인 경우 강도가 3.9g/d로 상대적으로 가장 높은 강도를 나타냈으며, 연신비가 4 이상인 경우 방사성은 확인이 되었으나, 그 강도는 3.8g/d로 연신비 2.7인 경우에 비하여 오히려 소폭 감소함을 알 수 있었다. 이는 비결정구조의 최대 연신에 의한 고분자 사슬 절단에 의해 강도저하가 발생한 것으로 여겨진다.

추가적으로 방사온도를 낮추어 방사온도 256°C, 고화온도 95°C, 방사속도 4,000mpm 고정하고 연신비 조건에 변화를 주면서 테스트를 진행하였으며, 그 결과를 Figure 3에 나타내었다. 방사온도 256°C 인 경우 연신비가 2 이하에서도 방사성을 보이고 있으나, 연신비가 낮은 경우 강도가 떨어지고, 변수 또한 35denier(D) 목표지만 이보다 굵게 나타났다. 256°C 미만의 방사온도에서는 정상 토출이 불가한데, 이는 상대적으로 높은 점도에 따른 상승된 팩 압력과 이로 인한 불균일한 토출에 기인한 것으로 여겨진다.

### 3.2 고화온도 따른 방사성과 물성 변화

고화온도를 95°C로 고정하고 방사온도, 방사속도 및 연신비 조건을 바꾸면서 테스트를 진행하였으며, 그 결과를 Table 6에

나타내었다. 특이한 것은 고화온도가 95°C인 경우 연신비 2 이하에서도 방사는 이루어지나 연신비 1.6일 때 그 강도가 3g/d로 상대적으로 낮게 나타났다. 고화온도가 95°C 이상 인 경우 연신비는 최소 2.7 이상 되어야 강도가 3.9g/d 이상으로 안정화 됨을 알 수 있었다. 동일한 연신비 2.7을 유지하더라도 방사온도가 260°C 이상으로 상승하면 오히려 강도가 낮아졌다.

고화온도를 100°C로 고정하고 방사온도, 방사속도 및 연신비 조건을 바꾸면서 테스트를 진행하여 그 결과를 Table 7에 나타내었다. 고화온도가 100°C인 경우 연신비 2.0~3.3의 범위에서 연신비가 높아질수록 강도가 증가하는 것을 확인 할 수 있었고, 상대적으로 우수한 방사성을 보이고 있으며, 강도 또한 매우 높게 나타났다. 다만 고화온도가 100°C 인 경우에 연신비가 3.3을 초과하면 결정화도가 낮아져 오히려 강도가 감소하는 경향을 보였다.

고화온도를 105°C로 고정하고 방사온도, 방사속도 및 연신비 조건을 바꾸면서 테스트를 진행하였으며, 그 결과를 Table 8에 나타내었다. 고화온도가 105°C 조건에서는 연신비 2.7에서만 방사성을 보였으며, 연신비 2.7 초과 및 미만에서는 사절 현상이 심하게 나타났다.

이러한 현상은 고화온도가 100°C 이상인 경우 PLA의 결정형성에 지장을 초래하여 특정조건(연신비(2.7))에서만 결정이 효과적으로 형성되는 것으로 보이며, 그 연신비 초과 및 미만의 조건에서는 결과적으로 결정 형성이 미흡하여 강도저하가 발생한 것으로 추측된다.

**Table 6.** Test results of PLA filaments solidified at 95°C

Draw ratio	Solidification temp (°C)	Spinning speed (mpm)	Spun possibility	Denier (D)	Tenacity (g/d)	Strain (%)
1.2	256	4,000	○	36.1	2.6	57.6
1.6	256	4,000	○	36.0	3.0	47.2
2.7	256	4,000	○	35.1	3.9	29.4
2.7	258	4,000	○	35.2	3.9	29.5
2.7	258	4,000	○	35.2	3.9	28.1
2.7	258	4,000	○	35.2	4	27.5
2.7	260	4,000	○	35.1	3.8	29

**Table 7.** Test results of PLA filaments solidified at 100°C

Draw ratio	Solidification temp (°C)	Spinning speed (mpm)	Spun possibility	Denier (D)	Tenacity (g/d)	Strain (%)
1.3	258	4,000	X	-	-	-
1.6	258	4,000	X	-	-	-
2.0	258	4,000	○	35.1	3.7	86.1
2.7	258	4,000	○	35.1	4.0	86.2
3.0	258	4,000	○	35.3	4.0	84.3
3.3	258	4,000	○	35.2	4.1	82.7
4.0	258	4,000	○	35.1	3.7	75.1

**Table 8.** Test results of PLA filaments solidified at 105°C

Draw ratio	Solidification temp (°C)	Spinning speed (mpm)	Spun possibility	Denier (D)	Tenacity (g/d)	Strain (%)
1.2	258	4,000	X	-	-	-
1.3	258	4,000	X	-	-	-
1.6	258	4,000	X	-	-	-
2.0	258	4,000	X	-	-	-
2.7	258	4,000	○	35.1	4.1	31.8
4.0	258	4,000	X	-	-	-

### 3.3 데이터 분석을 통한 핵심변수 상관관계 분석

PLA 용융방사의 신도와 강도의 상관관계에 관한 산점도를 Figure 4에 표현하였다.

Figure 4에 따르면 강도와 신도는 반비례 관계를 보인다는 것을 알 수 있었다. 즉, 신도가 낮을수록 강도가 높게 나타났다. 구체적으로 강도가 4 이상을 때는 신도가 가장 낮은 20%

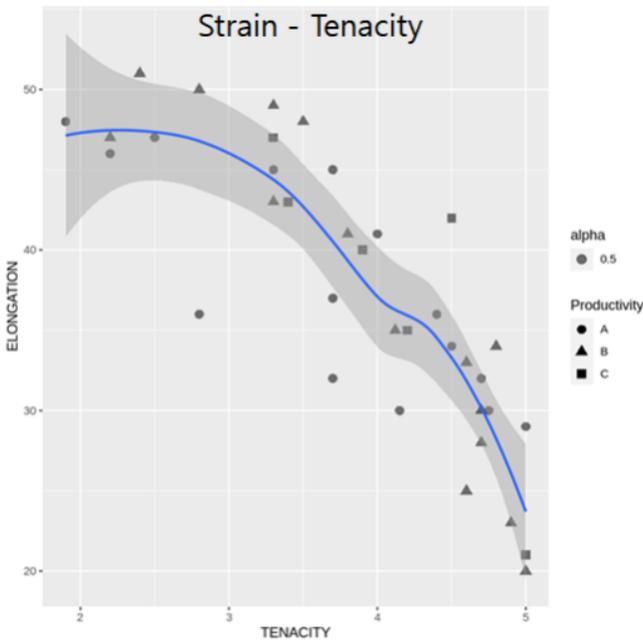


Figure 4. Scatterplot of Strain-Tenacity for PLA melt spinning.

부근이 아닌 30% 근처에서 생산성이 가장 좋은 A(실패 데이터 제외)로 나타났다. 따라서 생산성을 고려할 때에는 신도가 일정 기준 이상 내려가지 않도록 방사공정을 설계하는 것이 필요하다고 판단된다.

PLA 방사공정에서 강도와 다른 변수들의 관계를 정리하여 그 산점도를 Figure 5에 나타내었다.

Figure 5를 살펴보면, 스펀빔 온도 258°C에서 분포가 가장 넓지만 높은 강도가 나타나며, 생산성이 상대적으로 좋았다. GR1 속도와 강도의 관계는 강도와 반비례하며 GR1 속도 1500mpm 전후에서 강도 및 그 생산성이 좋게 나타났으며, GR2 속도와 강도의 관계는 그 분포가 넓게 나타났으며, GR2 속도 4050mpm일 때 높은 강도와 우수한 생산성이 나타났다. 또한 GR2 온도와 강도의 관계에서는 그 분포가 넓게 나타났으며 온도가 높을 때 높은 강도와 우수한 생산성을 보였다.

연신비와 강도의 관계를 살펴보면, 연신비는 강도와 비례하며 연신비 3 이후로는 강도 변화가 적었으며, 생산성 측면에서는 연신비 3 전후에서 생산성이 좋았다. F/R 속도와 강도의 경우, 그 분포가 넓게 나타나며 F/R의 속도가 4010mpm 일 때 높은 강도와 생산성을 보였다.

PLA 방사공정상의 신도와 다양한 변수간의 관계를 정리하여 Figure 6에 나타내었다. 우선 스펀빔 온도와 신도의 관계를 살

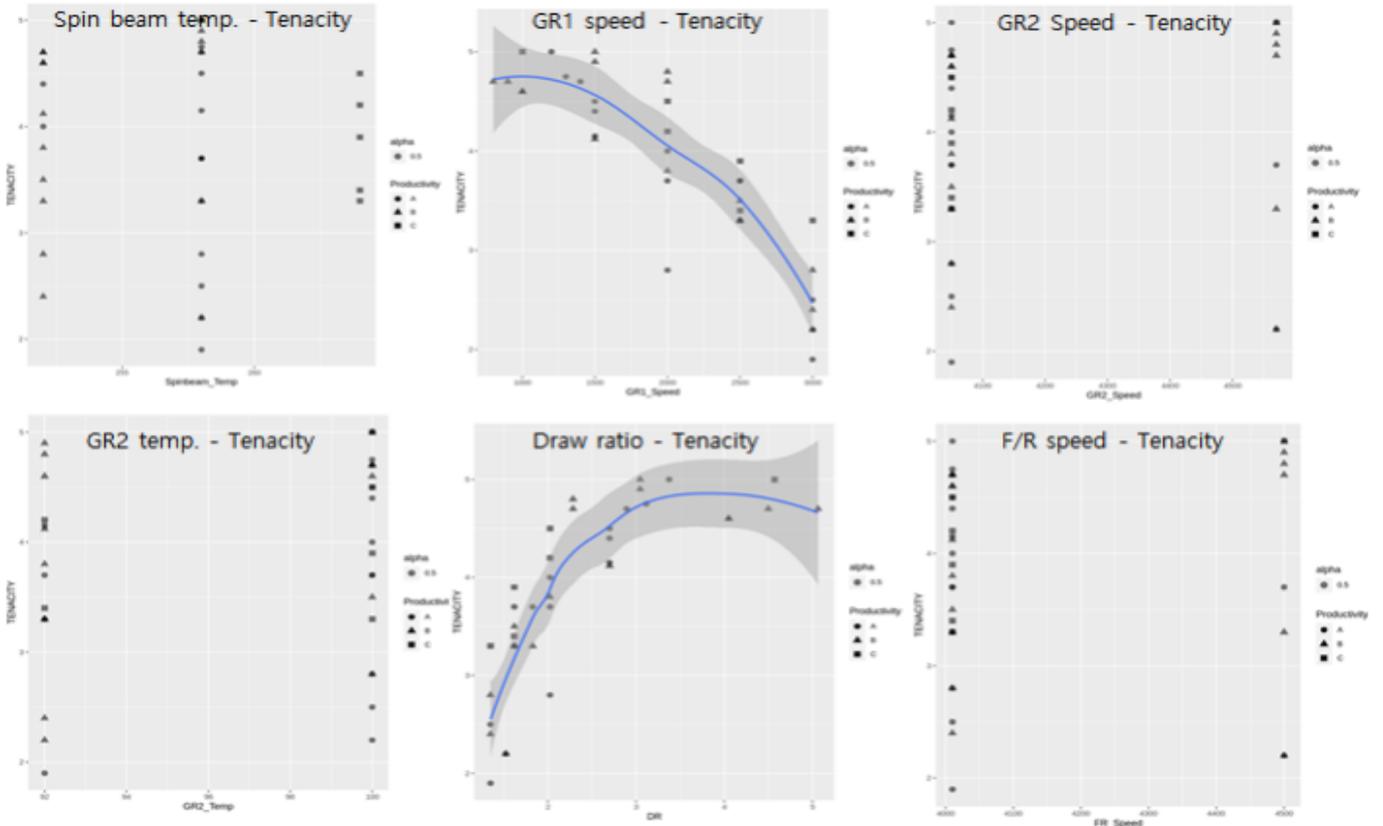
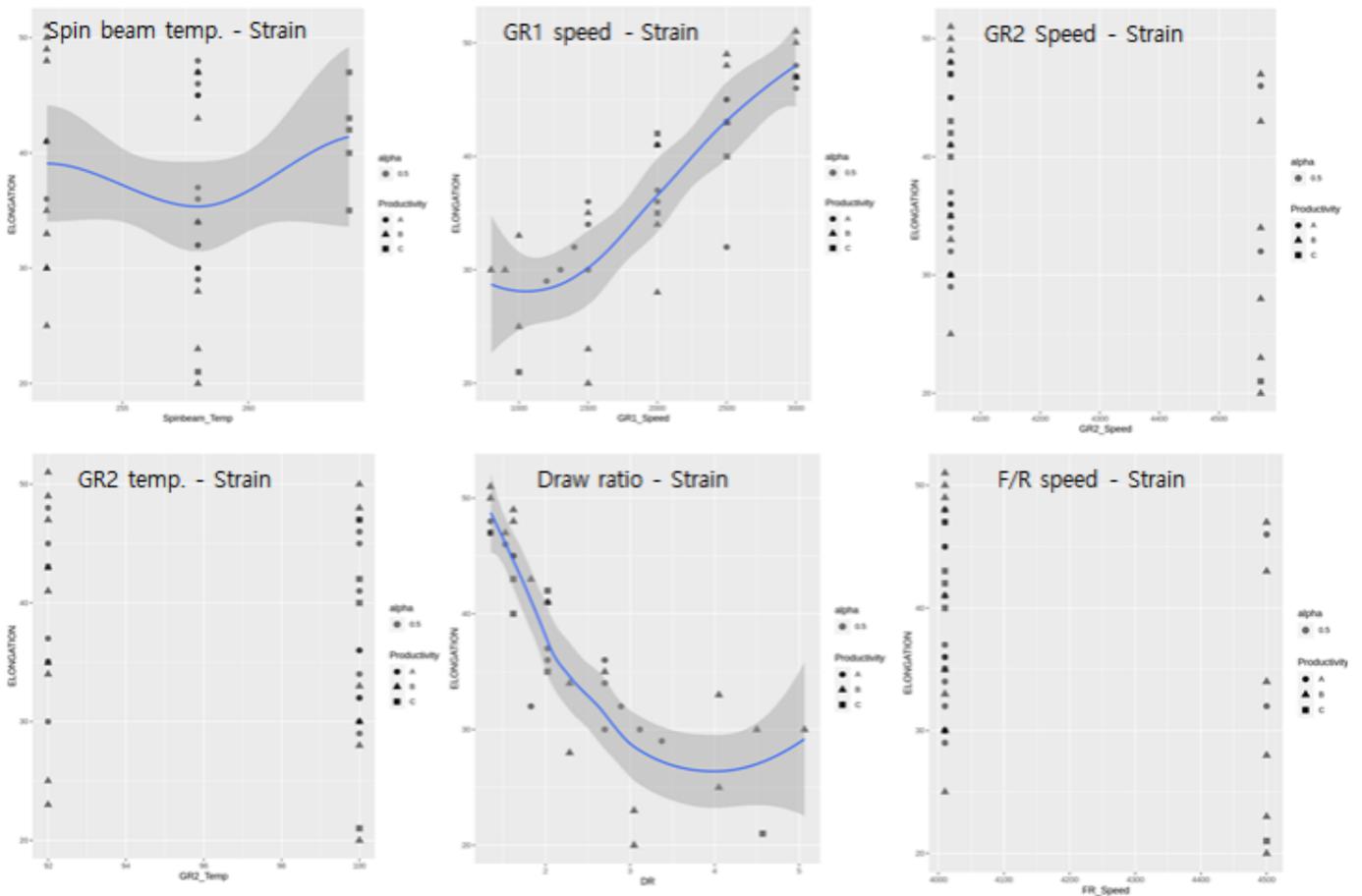


Figure 5. Scatterplot of Tenacity versus Spin beam temperature, GR1 speed, GR2 speed, GR2 temperature, Draw ratio and F/R speed for PLA melt spinning.



**Figure 6.** Scatterplot of Strain versus Spin beam temperature, GR1 speed, GR2 speed, GR2 temperature, Draw ratio and F/R speed for PLA melt spinning.

해보면, 스핀빔 온도 258°C에서 신도가 더 낮은 분포를 보이며 생산성도 좋게 나타났다. GR1 속도의 경우 신도와 비례하며 GR1 속도 1500mpm 전후에서 신도가 낮게 나타났으며, 생산성은 좋게 나타났다. GR2 속도가 4570mpm에서 신도가 더 낮게 분포하였으며, GR2 속도 4050mpm일 때 생산성이 좋았다. GR2 온도의 경우 그 조건은 92°C와 100°C였으며, 두 조건의 온도에서 분포나 생산성은 유사하였으나, 100°C일 때 신도가 조금 더 낮게 나타났다. 연신비와 신도의 관계는 반비례하며, 연신비 3 이상에서는 신도의 변화가 크게 나타나지 않았다. 또한 연신비 3 전후에서 생산성이 좋게 나타났다. 아울러 F/R 속도가 4500mpm일 때 신도가 더 낮게 나타나지만 4010mpm에서 생산성이 더 좋게 나오는 결과를 확인하였다.

#### 4. 결 론

본 연구의 목적은 고분자를 가열, 용융시킨 용액을 압축하는 방식으로 단면이 균일하고, 빠른 속도로 방사하는 용융방사를 대신할 기존 Polyester 대비 낮고, stiff한 성질을 가지는 PLA

의 특성을 고려한 최적 방사공정을 확보하는 것이다.

본 연구를 통해 방사온도에 의한 최적조건을 테스트한 결과 최적의 방사온도는 258°C인 것을 확인하였다. 258°C 미만에서는 높은 펍압력과 불균일 토출로 인해 정상 토출이 불가하였으며, 방사온도 262°C에서는 단사철이 일부 발생하였다. 이러한 높은 방사온도에서는 PLA 방사액(Dope)의 점도저하로 인해 균일방사가 불가능함을 확인하였다.

연신비는 2.7~3.3 사이에서 최대 강도가 확보되는 것을 확인하였다. 연신비 3.3 이상에서는 오히려 강도가 낮아지는 현상이 나타났다. 열처리에 의한 영향을 확인하기 위해 GR2 온도에 대한 테스트를 진행하였으며, 열고정 온도는 100°C 정도에서 최대 강도가 나타났다. 열처리를 위한 GR2 온도의 경우 100°C 초과 또는 미만에서는 강도가 다소 낮아지는 경향을 나타내었다.

데이터 분석으로 핵심변수의 상관관계를 분석한 결과, 방사 속도는 4,000mpm 정도가 적정한 것으로 확인되었다. 4,400mpm까지 방사속도를 증가하였을 때 방사성은 보이나 강도저하가 발생하였다.

이러한 결과들을 근거로 볼 때 본 연구는 PLA 용융방사와 관련된 생산현장에서 PLA 섬유의 생산공정 변수를 설정하는데 긍정적으로 활용되리라 여겨진다.

## References

1. K. Hamad, M. Kaseem, H. W. Yang, F. Deri, and Y. G. Ko, Properties and Medical Applications of Polylactic Acid: A Review, *EXPRESS Polymer Letters*, **9**(5), 435(2015).
2. G. Li, M. Zhao, F. Xu, B. Yang, X. Li, X. Meng, L. Teng, F. Sun, and Y. Li, Synthesis and Biological Application of Polylactic Acid, *Molecules*, **25**(21), 5023(2020).
3. B. Gupta, N. Revagade, and J. Hilborn, Poly(lactic acid) Fiber: An Overview, *Progress in Polymer Science*, **32**(4), 455(2007).
4. M. S. Singhvi, S. S. Zinjarde, and D. V. Gokhale, Polylactic Acid: Synthesis and Biomedical Applications, *Journal of Applied Microbiology*, **127**(6), 1612(2019).
5. X. Pang, X. Zhuang, Z. Tang, and X. Chen, Polylactic Acid (PLA): Research, Development and Industrialization, *Biotechnology Journal*, **5**(11), 1125(2010).
6. M. J. John, R. Anandjiwala, K. Oksman, and A. P. Mathew, Melt-spun Polylactic Acid Fibers: Effect of Cellulose Nano whiskers on Processing and Properties, *Journal of Applied Polymer Science*, **127**(1), 274(2013).
7. A. M. Ali, The Impact of the Thermal Annealing Conditions on the Structural Properties of Polylactic Acid Fibers, *Microscopy Research and Technique*, **85**(3), 875(2022).
8. L. Ranakoti, B. Gangil, S. K. Mishra, T. Singh, S. Sharma, R. A. Ilyas, and S. El-Khatib, Critical Review on Polylactic Acid: Properties, Structure, Processing, Biocomposites, and Nanocomposites, *Materials*, **15**(12), 4312(2022).
9. Y. Yang, M. Zhang, Z. Ju, P. Y. Tam, T. Hua, M. W. Younas, H. Kamrul, and H. Hu, Poly(lactic acid) Fibers, Yarns and Fabrics: Manufacturing, Properties and Applications, *Textile Research Journal*, **91**(13-14), 1641(2021).
10. H. S. Ko, S. W. Lee, D. Y. Lee, and J. Y. Jho, Mechanical Properties and Bioactivity of Poly(Lactic Acid) Composites Containing Poly(Glycolic Acid) Fiber and Hydroxyapatite Particles, *Nanomaterials*, **11**(1), 249(2021).
11. Z. Hong, P. Zhang, C. He, X. Qiu, A. Liu, L. Chen, X. Chen, and X. Jing, Nano-composite of Poly(l-lactide) and Surface Grafted Hydroxyapatite: Mechanical Properties and Biocompatibility, *Biomaterials*, **26**(32), 6296(2005).
12. H. Ku, H. Wang, N. Pattarachaiyakoop, and M. Trada, A Review on the Tensile Properties of Natural Fiber Reinforced Polymer Composites, *Composites : Part B*, **42**(4), 856(2011).
13. Y. J. Pan, Z. I. Lin, C. W. Lou, C. L. Huang, M. C. Lee, J. M. Liao, and J. H. Lin, Polylactic Acid/Carbon Fiber Composites: Effects of Polylactic Acid-g-maleic Anhydride on Mechanical Properties, Thermal Behavior, Surface Compatibility, and Electrical Characteristics, *Journal of Composite Materials*, **52**(3), 405(2018).
14. C. F. Kuan, H. C. Kuan, C. C. M. Ma, and C. H. Chen, Mechanical and Electrical Properties of Multi-wall Carbon Nanotube/poly(lactic acid) Composites, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **69**(5-6), 1395(2008).
15. Y. Du, T. Wu, N. Yan, M. T. Kortschot, and R. Farnood, Fabrication and Characterization of Fully Biodegradable Natural Fiber-reinforced Poly(lactic acid) Composites, *Composites : Part B*, **56**, 717(2014).
16. K. Somord, O. Suwantong, N. Tawichai, T. Peijs, and N. Soykeabkaew, Self-reinforced Poly(lactic acid) Nanocomposites of High Toughness, *Polymer*, **103**, 347(2016).
17. T. Takayama, Y. Daigaku, H. Ito, and H. Takamori, Mechanical Properties of Bio-absorbable PLA/PGA Fiber-reinforced Composites, *Journal of Mechanical Science and Technology*, **28**(10), 4151(2014).
18. Y. Jung, S. S. Kim, Y. H. Kim, S. H. Kim, B. S. Kim, S. Kim, C. Y. Choi, and S. H. Kim, A Poly(lactic acid)/calcium Metaphosphate Composite for Bone Tissue Engineering, *Biomaterials*, **26**(32), 6314(2005).
19. C. B. Danoux, D. Barbieri, H. Yuan, J. D. de Bruijn, C. A. van Blitterswijk, and P. Habibovic, In vitro and In vivo Bioactivity Assessment of a Polylactic Acid/hydroxyapatite Composite for Bone Regeneration, *Biomatter*, **4**, e27664 (2014).
20. X. Xu, X. Chen, A. Liu, Z. Hong, and X. Jing, Electrospun Poly(L-lactide)-grafted Hydroxyapatite/ Poly(L-lactide) Nanocomposite Fiber, *European Polymer Journal*, **43**(8), 3187(2007).
21. M. Šupová, Problem of Hydroxyapatite Dispersion in Polymer Matrices: A Review, *Journal of Materials Science Materials in Medicine*, **20**(6), 1201(2009).
22. S. Petisco-Ferrero, L. P. Álvarez, L. Ruiz-Rubio, J. L. V. Vilela, and J. R. Sarasua, Plasma Poly(acrylic acid) Compatibilized Hydroxyapatite-poly(lactide) Biocomposites for Their Use as Body-absorbable Osteosynthesis Devices, *Composites Science and Technology*, **161**, 66(2018).

## Authors

- 정우창** 한국섬유개발연구원 선임연구원  
**김삼수** 영남대학교 파이버시스템공학과 교수  
**이상오** 영남대학교 의류패션학과 교수  
**이재웅** 영남대학교 파이버시스템공학과 교수