

# 사출성형 냉각조건이 열에 의한 복굴절에 미치는 영향

이호상<sup>#</sup> · A.I. Isayev<sup>1</sup>

## Influences of Cooling Conditions on the Thermally-Induced Birefringence in Injection Molding

H. S. Lee, A. I. Isayev

### Abstract

Simulations of the thermally-induced residual stresses and birefringence in freely quenched plates of polycarbonate were performed by using the linear viscoelastic and photoviscoelastic constitutive equations for the mechanical and optical properties, respectively, and the first order rate equation for volume relaxation. The predictions for the birefringence showed good agreement with experimental measurements. Based on the simulation, the influences of various cooling conditions on the residual stress and birefringence in plates were investigated. The residual stress and birefringence increased with increasing initial temperature, decreasing coolant temperature and increasing heat transfer coefficient of coolants.

**Key Words** : Injection Molding, Cooling, Residual Stress, Birefringence, Free Quenching, Polycarbonate

### 1. 서론

렌즈, CD 기관, LCD 백라이트 도광판 등 정밀 플라스틱 광학 부품의 수요가 크게 증가하면서 플라스틱 정밀성형 기술의 중요성이 더욱 커지고 있다. 광학부품의 품질에 크게 영향을 미치는 복굴절은 다음 두 가지 원인에 의하여 발생하는 것으로 알려져 있다. 하나는 충전과정에서 분자배향을 유발하는 전단과 법선응력의 결과인 유동에 의한 복굴절이며, 다른 하나는 유리전이 온도를 거치는 불균형 냉각공정에서 발생하는 밀도와 수축의 비평형 변화, 고분자의 점탄성 및 광 점탄성 거동 결과인 열에 의한 복굴절이다.

본 연구에서는 광학부품 성형에 주로 사용되는 폴리카보네이트 수지에 대하여 열에 의한 잔류응력과 복굴절을 해석하고, 다양한 냉각조건의 변화가 열에 의한 잔류응력 및 복굴절에 미치는 영향에 대하여

고찰하였다. 이때 전단계수 및 광 변형을 계수에 대한 마스터 곡선은 기존 연구의 측정결과를 사용하였다[1]. 기계적 및 광학적 물성의 시간과 온도에 따른 변화를 고려하기 위하여 점탄성과 광 점탄성 모델에 기초를 두었으며, 체적이완 현상을 고려하기 위하여 일차 비율식(first order rate equation)을 사용하였다[2]. 아울러 WLF 형태의 이동함수 대신 온도에 따른 전단계수와 광 변형을 계수를 측정한 실험 데이터를 보간한 값을 사용하였다.

### 2. 이론 및 수치해석

두께가 얇은 무한 평판에 대하여 초기온도는 균일하고, 냉각제 온도는 유리전이온도보다 낮은 것으로 가정할 때, 냉각공정을 통한 불균일한 열 수축과 점탄성 변화는 열 응력을 발생시키게 된다. 비등온 냉각공정에 대하여 점탄성 구성방정식은 다음과 같이 표현될 수 있다[3].

1. Institute of Polymer Engineering, University of Akron  
# 교신저자: 충주대학교 항공·기계설계학과, lhs@cjnu.ac.kr

$$\sigma_{ij} = \int_0^\xi \left[ 2G(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} \left[ \varepsilon_{ij} - \frac{1}{3} \delta_{ij} \varepsilon_{kk} \right] + \delta_{ij} K(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} [\varepsilon_{kk} - 3\varepsilon_T] \right] d\xi' \quad (1)$$

이때 감소시간(reduced time)  $\xi$  는 다음과 같이 정의된다.

$$\xi = \int_0^t \frac{d\tau}{a_T(T(\tau))} \quad (2)$$

여기서  $\sigma_{ij}$  는 응력텐서(stress tensor),  $\varepsilon_{ij}$  는 변형율 텐서(strain tensor),  $\delta_{ij}$  는 단위텐서(unit tensor),  $\varepsilon_T$  는 열변형율(thermal strain),  $G$  는 전단계수(shear modulus),  $K$  는 체적계수(bulk modulus), 그리고  $a_T$  는 이동함수(shift function) 이다.

이동함수는 평형상태에서 온도에 따라 변하는 자유체적에 의하여 결정된다. 체적이완 현상을 고려하여 비등온 공정에서의 열변형율  $\varepsilon_T$  는 일차 비율식을 사용하여 다음과 같이 표현될 수 있다 [2].

$$\frac{d\varepsilon_T}{dt} = \beta_g \frac{dT}{dt} - \frac{\varepsilon_T - \varepsilon_{Te}}{\tau_r a_T} \quad (3)$$

여기서  $\varepsilon_T$  와  $\varepsilon_{Te}$  는 각각 온도  $T$  에서 실제 열 변형율과 평형 열 변형율을 나타내며,  $\tau_r$  은 기준온도(reference temperature)  $T_r$  에서의 이완시간(relaxation time), 그리고  $\beta_g$  는 고체상태에서의 선형 열팽창계수이다. 또한 평형상태의 열 변형율은 다음과 같이 주어진다.

$$\varepsilon_{Te} = \beta_l(T - T_i) \quad \text{if } T \geq T_2 \quad (4)$$

$$= \beta_l(T_2 - T_i) + \beta_g(T - T_2) \quad \text{if } T < T_2 \quad (5)$$

여기서  $T_i$  는  $t=0$  에서 초기온도이며,  $T_2$  는 2차 유리전이온도, 그리고  $\beta_l$  은 용융상태에서의 선형 열팽창계수이다.

온도와 시간에 따른 전단계수 및 광 변형율계수의 변화를 고려하기 위하여 각각에 대하여 동일한 이동함수  $a_T$  를 사용하였으며, 이때 WLF 형태의 이동함수 대신 온도에 따른 전단계수와 광 변형율계수를 측정된 실험 데이터를 보간하여 사용하였다. 또한 비평형 상태에서의 자유체적을 고려하기 위하여 유효온도(effective temperature)  $T_{eff}$  를 사용하였으며, 실제온도와 다음과 같은 관계를 갖는다.

$$T_{eff} = T + \frac{\varepsilon_T - \varepsilon_{T_r}}{\beta_l - \beta_g} \quad \text{if } T \geq T_2 \quad (6)$$

$$= T_2 + \frac{\varepsilon_T - \varepsilon_{T_r}}{\beta_l - \beta_g} \quad \text{if } T < T_2 \quad (7)$$

무한히 큰 평판에 대하여 열전달은 두께방향으로만 발생하는 것으로 가정하면 온도변화는 1차원 열전도방정식에 의하여 지배된다.

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k_{th} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \quad (8)$$

초기조건 및 경계조건은 다음과 같다.

$$T|_{t=0} = T_i \quad (9)$$

$$\left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=0} = 0 \quad (10)$$

$$-k_{th} \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=\pm b} = h(T|_{z=\pm b} - T_\infty) \quad (11)$$

여기서  $\rho$  는 밀도,  $C_p$  는 비열,  $k_{th}$  는 열전도율,  $\alpha = k_{th}/(\rho C_p)$  는 열확산율,  $h$  는 열전달계수이다.

식(8)은 응력 및 변형율에 무관하므로 유한차분법에 의해 온도를 먼저 계산할 수 있다. 온도이력을 이용하여 일차비율식(3)은 식(4)-(7)과 함께 4차 Runge-Kutta 방법에 의해 풀 수 있고 열변형율  $\varepsilon_T$ , 유효온도  $T_{eff}$  그리고 이동함수  $a_T$  를 구할 수 있다. 그리고 감소시간은 식(2)로부터 결정될 수 있다. 식(1)로부터  $\sigma_{zz}$  와  $\sigma_{xx}$  는 각각 다음과 같이 표현된다.

$$\sigma_{zz} = \int_0^\xi \frac{4}{3} G(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} [\varepsilon_{zz}(\xi') - \varepsilon_{xx}(\xi')] d\xi' + \int_0^\xi K(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} [2\varepsilon_{xx}(\xi') + \varepsilon_{zz}(\xi') - 3\varepsilon_T(\xi')] d\xi' \quad (12)$$

$$\sigma_{xx} = \int_0^\xi 2G(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} [\varepsilon_{xx}(\xi') - \varepsilon_{zz}(\xi')] d\xi' \quad (13)$$

한편 등방성 선형 광점탄성(photoviscoelastic) 수지에 대한 광 변형율과 광 응력 거동은 다음과 같이 표현될 수 있다[2].

$$n_{ij} - \delta_{ij} n_{kk}/3 = \int_0^\xi C_\sigma(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} [\sigma_{ij} - \delta_{ij} \sigma_{kk}/3] d\xi' = \int_0^\xi C_\varepsilon(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} [\varepsilon_{ij} - \delta_{ij} \varepsilon_{kk}/3] d\xi' \quad (14)$$

여기서  $n_{ij}$  는 굴절율텐서(refraction tensor),  $C_\sigma$  는 광 응력계수(stress-optical coefficient), 그리고  $C_\varepsilon$  은 광 변형율계수(strain-optical coefficient)이다.

따라서 앞에서 계산된 변형율 이력을 이용하여

복굴절은 다음과 같이 계산된다.

$$\Delta n = n_{zz} - n_{xx} = \int_0^{\xi} C_{\varepsilon}(\xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \xi'} (\varepsilon_{zz} - \varepsilon_{xx}) d\xi'$$

$$= \sum_{k=2}^j \frac{\varepsilon_{xx}^k - \varepsilon_{xx}^{k-1} - \varepsilon_{zz}^{i,k} + \varepsilon_{zz}^{i,k-1}}{\xi^{i,k} - \xi^{i,k-1}} \int_{\xi^{i,k-1}}^{\xi^{i,k}} C_{\varepsilon}(\xi^{i,k} - \xi') d\xi \quad (15)$$

여기서  $i$ 는  $z$  방향으로의 층 번호,  $k$ 는 시간증분,  $\xi$ 는 감소시간을 나타낸다.

### 3. 해석결과

해석에 적용된 모델은 두께가 0.2cm 인 평판이다. 자유냉각에 사용된 냉각재는 물과 실리콘오일로서 열전달 계수는 각각 490과  $120 J/s \cdot m^2 \cdot K$ 이다. 고분자 수지는 폴리카보네이트(Lexan 141-111/GE)이다[2]. 기준온도  $147.5^{\circ}C$ 에서 시간에 따른 전단계수 및 광 변형률계수, 그리고 이동함수는 참고문헌[4]에 나타나있다.

체적이완 현상을 고려하기 위하여 0.3sec의 이완시간( $\tau_r$ )을 사용하여 해석을 수행하였다. 다양한 초기온도에서 각각  $25^{\circ}C$  및  $60^{\circ}C$ 인 물속으로 자유냉각된 경우에 대하여 복굴절 해석을 수행하였으며, 예측 결과는 각각 Fig. 4와 Fig. 5에서 실험결과[2]와 비교되었다. 복굴절 분포는 두께 중심부위에서 양의 값을 갖고, 표면에서는 음의 값을 갖고 있음을 알 수 있다. 초기온도가 높을수록 두께 중심에서의 복굴절이 크고, 0이 되는 위치가 표면에 가까워짐을 알 수 있다. 또한 냉각재 온도가  $25^{\circ}C$ 인 경우의 복굴절은  $60^{\circ}C$ 인 경우에 비하여 더 높은 것을 알 수 있다.

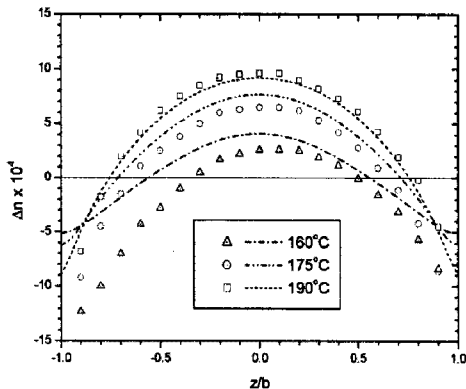


Fig. 4 Predicted(lines) and measured(symbols) residual birefringence distribution along the thickness direction of plates quenched into water from different initial temperatures to  $25^{\circ}C$

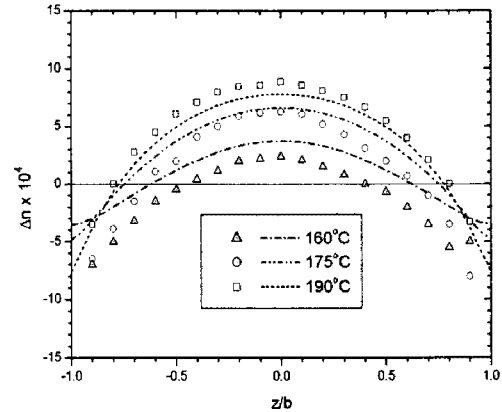


Fig. 5 Predicted(lines) and measured(symbols) residual birefringence distribution along the thickness direction of plates quenched into water from different initial temperatures to  $60^{\circ}C$

Fig. 6은  $25^{\circ}C$ 인 실리콘오일 속으로 자유냉각된 경우에 대한 결과를 나타낸 것으로 물에 비하여 열전달 계수가 낮아 물속에 냉각시킨 경우에 비하여 복굴절이 작은 것을 볼 수 있다. Fig. 4~Fig. 6의 예측 결과는 실험결과[2]와 잘 일치하고 있으나, 초기온도가 유리전이온도에 가까운 경우인  $160^{\circ}C$ 에서는 실험결과와 차이가 있으며, 특히 표면에서는 그 차이가 크게 발생함을 볼 수 있다.

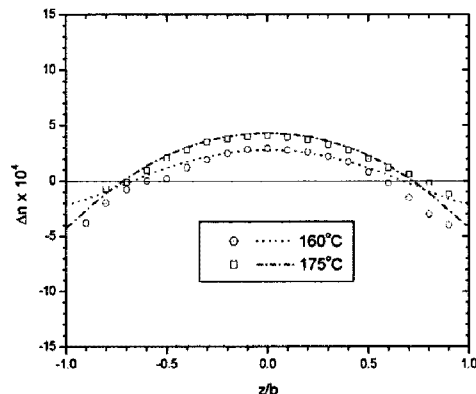


Fig. 6 Predicted(lines) and measured(symbols) residual birefringence distribution along the thickness direction of plates quenched into silicone oil from different initial temperatures to  $25^{\circ}C$

Fig. 7은 다양한 초기온도에서 물속으로 자유냉각된 경우에 대한 잔류응력 해석 결과를 나타낸다. 두께 중심에서는 인장응력, 그리고 표면에서는 압축응력이 발생하고 있음을 볼 수 있다. 초기온도가  $160^{\circ}C$ 에서  $175^{\circ}C$  증가할 때 잔류응력은 커지지만,  $175^{\circ}C$ 에서  $190^{\circ}C$ 로 증가할 경우 잔류응력은 초기온도의 변화에 거의 영향이 없는 것을 볼 수 있다. 또한 냉각재의 온도가 낮을수록

두께 중심과 표면에서의 잔류응력이 증가함을 알 수 있다.

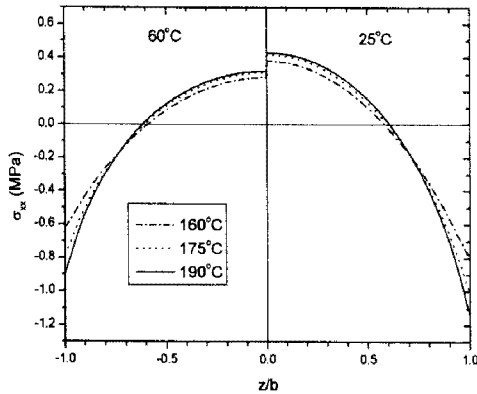


Fig. 7 Predicted residual stress distribution of plates quenched into water from different initial temperatures to 25 °C and 60 °C

Fig. 8 은 물속에서 냉각된 경우와 실리콘오일속에서 냉각된 경우의 잔류응력을 비교한 것으로, 열전달 계수가 높은 물속에서 냉각된 경우의 잔류응력이 높게 형성되고 있음을 볼 수 있다.

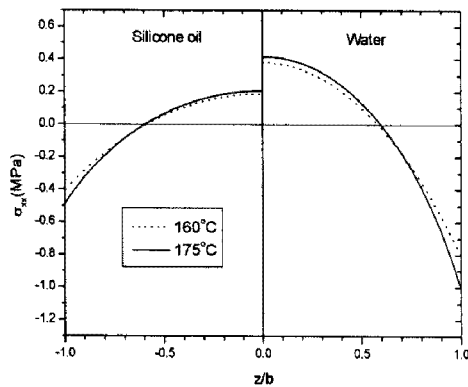


Fig. 8 Predicted residual stress distribution of plates quenched into silicone oil and water at quenching temperature of 25 °C

시간에 따른 복굴절의 진전거동은 Fig. 9 에 나타나있다. 초기에 복굴절은 잔류응력과 마찬가지로 중심부위에서 음의 값을 갖고, 표면에서는 양의 값을 갖고 있으나, 최종적으로는 중심부위에서 양의 값, 그리고 표면에서 음의 값을 갖게 된다. 그러나 그림에서 표시되지 않았지만  $2.5 \times 10^5$  초 (2.9 일)과  $2.5 \times 10^6$  (29 일) 사이에서 두께 중심부위의 잔류응력은 14% 이완된 것에 비하여 복굴절은 1.4% 감소하였으며, 장시간 경과에 따른 복굴절 변화량은 잔류응력에 비하여 크지 않음을 알 수 있다.

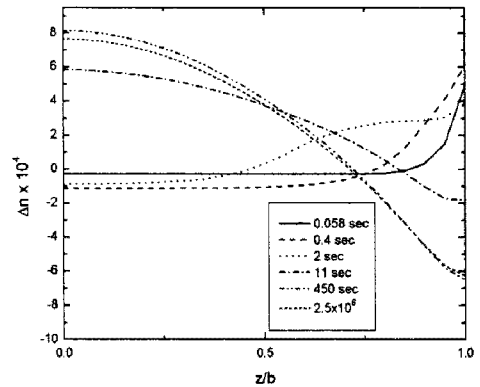


Fig. 9 Predicted transient birefringence profiles in plates quenched from 175 °C to 25 °C water

#### 4. 결론

광학부품 성형에 주로 사용되는 폴리카보네이트 수지에 대하여 열에 의한 잔류응력과 복굴절을 해석하고, 냉각조건이 잔류응력 및 복굴절에 미치는 영향을 고찰하였다. 체적이완 현상이 고려된 점탄성 모델에 기초한 복굴절 해석결과는 측정결과와 잘 일치하였으나, 초기온도가 유리전이 온도 근처에서 낮은 경우에는 두께 표면에서 차이가 발생하였다. 복굴절 분포는 두께 중심부위에서 양의 값을 갖고, 표면에서는 음의 값을 갖고 있었다. 특히, 용융 초기온도가 높을수록, 냉각재 온도가 낮을수록, 그리고 열전달 계수가 높은 냉각재를 사용할수록 자유냉각된 성형품의 복굴절은 더욱 크게 발생함을 알 수 있었다.

#### 참고 문헌

1. G.D. Shyu, A.I. Isayev, and C.T. Li, 2001, Photoviscoelastic Behavior of Amorphous Polymers during Transition from the Glassy to Rubbery State, J. Polym Sci, Vol.39, pp.2252~2262.
2. G.D. Shyu, 1993, Birefringence and Residual Stresses in Molded Articles of Amorphous Polymers, Ph.D. Thesis, The University of Akron.
3. L.W. Morland and E.H. Lee, 1960, Stress analysis for linear viscoelastic materials with temperature variation, Trans. Soc. Rheol. Vo.4, pp.233~263.
4. 이호상 and A. I. Isayev, 2007, 자유냉각된 평판에서의 열에 의한 복굴절, 한국소성가공학회지, 제 16 권, 제 3 호, pp.193~200.