Elastomer
Vol. 35, No. 2, pp 115~121 (2000)

자동차용 Rear Door Fixed Glass Weather-strip 성형을 위한 EPDM과 Polypropylene의 Blend에 관한 연구 (I)

김 진 국† · 박 종 윤 · 황 성 혁
경상대학교 고분자공학과, 생산기술연구소
(2000년 5월 23일 접수)

Study on Rear Door Fixed Glass Weather-strip for Automobiles Using EPDM/Polypropylene Blend (I)

Jin Kuk Kim† · Jong Yun Park · Sung Hyuk Hwang
Department of Polymer Science and Engineering, Gyeongsang National University, Research Institute of Industrial Technology, Chin-ju, Gyeongnam 660-701, Korea
(Received May 23, 2000)

요 약: 일반적인 고무가공 공정에 비해 열가소성 고무 (Thermoplastic Elastomer: TPE)의 가공은 재료가공공정의 단축, 생산공정의 간소화, scrap의 재활용 등의 장점과 이에 따른 불량률 저하에 의한 폐기물감소, 제조원가 감소 및 부가가치성을 높일 수 있어 국제 경쟁력 확보에 유리하다. 본 연구에서는 Ethylene propylene diene monomer (EPDM)고무와 polypropylene을 사용하여 동적가교 (dynamic vulcanization)에 의해 블렌드를 제조한 후, glass insert molding법을 이용하여 fixed glass weather-strip을 성형하였다. 성형품의 기계적인 특성을 조사하기 위하여 인장강도, 신장율, 경도, 비중을 측정하였으며, mixing 상태는 SEM 사진을 통하여 관찰하였다. TPE molding 부분과 glass를 일체 성형하므로써 공정의 효율성에 대한 기여 및 생산 자동화에 유리할 것으로 기대한다.

ABSTRACT: In comparison with thermosetting rubber, thermoplastic elastomer (TPE) has various advantages such as simple processing, short cycle time and recycling of scrap. These advantages can lead to development of the high value-added rubber products due to reduction of the waste material, manufacturing cost and the defected product. This article involves a dynamic vulcanization method for EPDM/polypropylene blend, and the manufacturing of a fixed glass weather-strip by glass insert molding method using the blend. In order to investigate mechanical properties of the product, tensile strength, elongation, hardness and specific gravity were measured. Also morphological study was carried out using SEM. Developments of an efficient system of production and automatic process by molding of TPE and glass simultaneously are expected.

† 대표저자(*e-mail : rubber@nongae.gsnu.ac.kr*)

Keywords: thermoplastic elastomer, simple processing, dynamic vulcanization, fixed glass weather-strip, glass insert molding.

Ⅰ. 서 론

Thermoplastic elastomer (TPE)는 가공 시 열가소성 플라스틱과 동일하게 성형 가공이 가능하고, 상온에서 열경화성 고무의 탄성을 보이며, recycling 등의 양쪽 성질을 가지고 있고, 상 분리 조직에 의한 다양한 물성을 얻을 수 있다. TPE 공업은 1960년대 초부터 순조롭게 발전하여 현재는 환경문제가 대두됨에 따라 고분자 재료로서 중요한 위치를 차지하고 있으며 수요도 점점 증가하여 세계의 수요량이 년간 80만 톤에 달하게 되었다. 종래의 고무에 비해 가황 공정이 필요 없고, 가공 공정의 간소화가 가능하며 한 번 사용한 scrap은 재생 가공이 가능하다는 경제적인 장점으로 수요의 확대가 기대된다. 하지만 미국을 위시한 유럽의 선진국들은 다가오는 2002년부터 자동차용 고분자 제품들의 recycling 여부를 따져 고무 관련 부품의 수입을 감소시킬 전망이어서 한 차례의 무역 제재가 예상된다.

기존의 weather-strip은 PVC나 EPDM을 사용하여 환경 규제의 불만족 및 재활용이 어려웠으나, TPE 재료를 사용함으로써 scrap의 재사용 가능 및 비중이 낮아 weather-strip 뿐만 아니라 자동차의 부품에 응용하면 경량화에 도움을 줄 것으로 예상된다.

일반적으로 TPE의 Tm은 150~165 ℃, T_g는 -50~-60 ℃ 이고, 제조는 EPDM과 polypropylene을 동적가교에 의해 블렌드를 할 수 있는데,[1] 최근에는 NBR, Butyl rubber, 천연고무 등과도 블렌드를 하는 등 여러 가지 수요에 맞추어 다양한 TPE 복합재료가 개발되고 있다. 일반적으로 수지 성분은 polypropylene, 고무성분은 EPDM이 중심으로 되어 있으며, 처음에는 단순 블렌드 형태로 개발되었으나 1972년 미국의 Uniroyal사에서 부분가교 기술을 응용하여 열가소성 고무인 "TPR"이라는 상품명으로 시판을 하기 시작하였으며, 그 후 많은 EPDM이나 polypropylene 메이커들에 의해 다양한 종류의 olefin계 열가소성 고무가 앞다투어 개발되었다.[2] 1981년 Monsanto사에서 개발한 상품은 Santoprene® 으로써 동적으로 가교된 고무상이 반결정상인 플라스틱 연속상에 1~1.5 μm 크기로 미세하게 분산되어 있는 구조를 하고 있다.[3-5] 이 때 가교제 (phenolic resin)의 역할이 중요한데, 가교제는 EPDM 고무상에 가교를 집중시킬 수 있고, 혼합 중 polypropylene이 phenolic rein과 반응하여 측쇄에 관능기를 갖게 되며, 이들이 EPDM 고무와 반응함으로써 고무와 플라스틱간의 계면 접착력이 증가하게 된다. 가교제 또는 상용화제 (compatibilizer)의 첨가 없이 고무와 플라스틱간의 단순 블렌드 형태는 공정상의 간편함은 있으나 기계적인 물성이 본 실험의 연구 결과와 비교해서 저하됨을 알 수 있다.[6,7] 본 실험에서는 자동차용 rear door fixed glass weather-strip 성형을 위해 polyolefin계 plastic과 EPDM을 사용하여 glass insert molding법을 수행하였다.

Ⅱ. 실 험

1. 실험 재료 및 방법

실험 재료로는 EPDM (KEP 980, ENB content: 5.2 wt %), polypropylene (Korea Petrochemical Ind., T_m : 165 ℃, Mw: 240000)를 사용하여 internal mixer에 170~220 ℃, 30~50 rpm의 조건으로 맞춘 뒤 가동시켰다. 먼저 EPDM을 투

입하여 2~4분, 그 다음에 PP를 투입한 후 충진제를 투입하였다. 다음에 oil을 넣고, 경화제를 투입한 후 경화 촉진제를 투입하였다.[8] 여기서 경화제로 phenolic resin (alkylphenolic resin)을 선택하였는데, 그 이유는 EPDM의 terpolymer가 ENB (Ethylidene norbornene)이기 때문이다. 만약 terpolymer가 DCPD (Dicyclopentadiene)일 경우에는 경화제로 peroxide를 사용할 수 있는데, 블렌드 결과 ENB를 함유한 EPDM/polypropylene 컴파운드가 DCPD를 함유한 EPDM/polypropylene 컴파운드보다 oil resistance와 compression set이 향상되는 장점을 얻을 수 있다.[2]

올레핀계 고분자 블렌드에서 polypropylene을 주로 많이 사용하고, polyethylene을 사용하는 예는 극히 드문데, 그 이유는 polypropylene이 범용 수지 중에서 비교적 높은 융점을 갖는 결정성 수지이고 내약품성, 전기절연성, 기계적 강도, 내열성이 다른 범용 수지보다 우수하기 때문이다.[9,10] 또한 polypropylene의 MI (melt index: ASTM D 1238)는 20 g/10min이하의 재료를 사용하였는데, 그 이유는 너무 높은 MI를 가진 polypropylene을 사용하면 고무와 플라스틱간의 상 분리 (phase separation)가 일어날 수 있기 때문이다.[11] 다음 Table 1에 본 실험에 사용한 재료의 formulation을 나타내었다.

Internal mixer에서 mixing을 한 후 단축 압출기 (Dongjin Machinery Co., Ltd., 스크루 직경: 30 ϕ, L/D: 25)를 사용하여 실린더 온도 (190~210 ℃)에서 30, 50, 70, 90 rpm으로 스크루 속도를 변화시키면서 압출 시험을 실시하였으며, 냉각 후 펠렛으로 만들었다. 제조되어진 펠렛을 사출기에 투입하여 유리와 함께 encapsulation (glass insert molding)시험을 실시 하였다. 본 실험에서 encapsulation이라 함은 자동차의 rear door fixed glass 부분에 장착되는 glass와 TPE molding을 일체 성형하는 가공 기술이다.

Table 1. The Formulation of Thermoplastic Elastomer

Materials	phr	Remarks
EPDM	100	Kumho polychem co., Ltd.
Polypropylene	50	Korea petrochemical Ind.
Curing agent	< 10	phenolic resin
Cure activator	< 10	$SnCl_2 \cdot 2H_2O$
Fillers	40~80	carbon black, $CaCO_3$ etc.
Process oil	40	Michang Ind. Co., Ltd.

2. 시편제조

압출된 소재를 사출기 (Wonil press co., Ltd.)를 사용하여, 노즐 및 히터 1, 2 zone의 온도를 각각 200 ℃, 195 ℃, 190 ℃로 하고, 압력은 144 bar로 하였다. 시편제작 방법은 ASTM D 1708 규격으로 제작된 금형으로 시편을 사출로 제작하여 48시간 동안 항온 항습실에서 방치한 후 사용하였다.

3. 시험방법

기본적인 물성의 측정에서 인장시험은 Universal Test Machine (Lloyd Instruments, LR10K)을 이용하여 500 mm/min의 인장속도와 10 kN의 load cell을 사용하여 네 번의 시험을 하여 평균값으로 인장강도와 파단신율을 구하였고, KSM 6518의 가황 고무 물리 시험법에 의해 경도는 스프링식 (Shore A)을 사용하였고, EPDM/polypropylene의 모폴로지는 압출물의 cryogenic fracture를 실시한 후 주사전자현미경 (JEOL 6400)을 이용하여 관찰하였다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

1. 기계적인 특성

먼저 제조한 시편의 기계적인 특성을 알아보기 위해 인장시험, 신장율, 경도 및 비중 테스

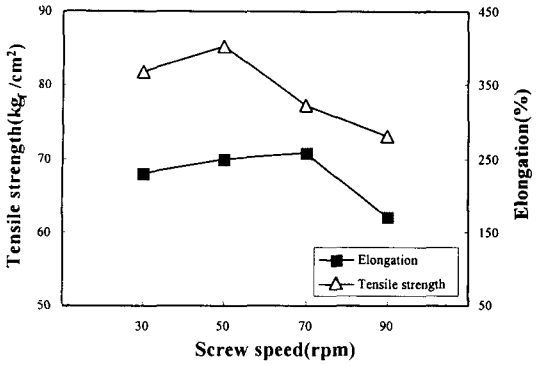

Fig. 1. Tensile strength and elongation of samples prepared at different screw speed.

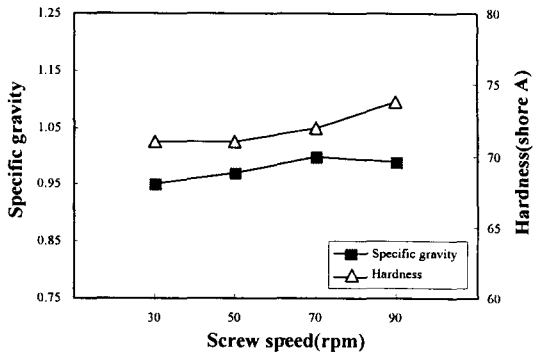

Fig. 2. Specific gravity and hardness of samples prepared at different screw speed.

트를 실시한 결과를 Fig. 1과 Fig. 2에 나타내었다.

일반적으로 자동차용 weather-strip에 요구되어지는 기계적인 물성은 Fig.1, Fig. 2에 나타난 바와 같이 스크류 회전 속도를 50 rpm으로 하여 시험을 한 경우가 다른 조건으로 실험을 실시한 경우보다 더욱 우수한 물성을 나타내었다. 또한 TPE 재료의 비중이 EPDM (비중:

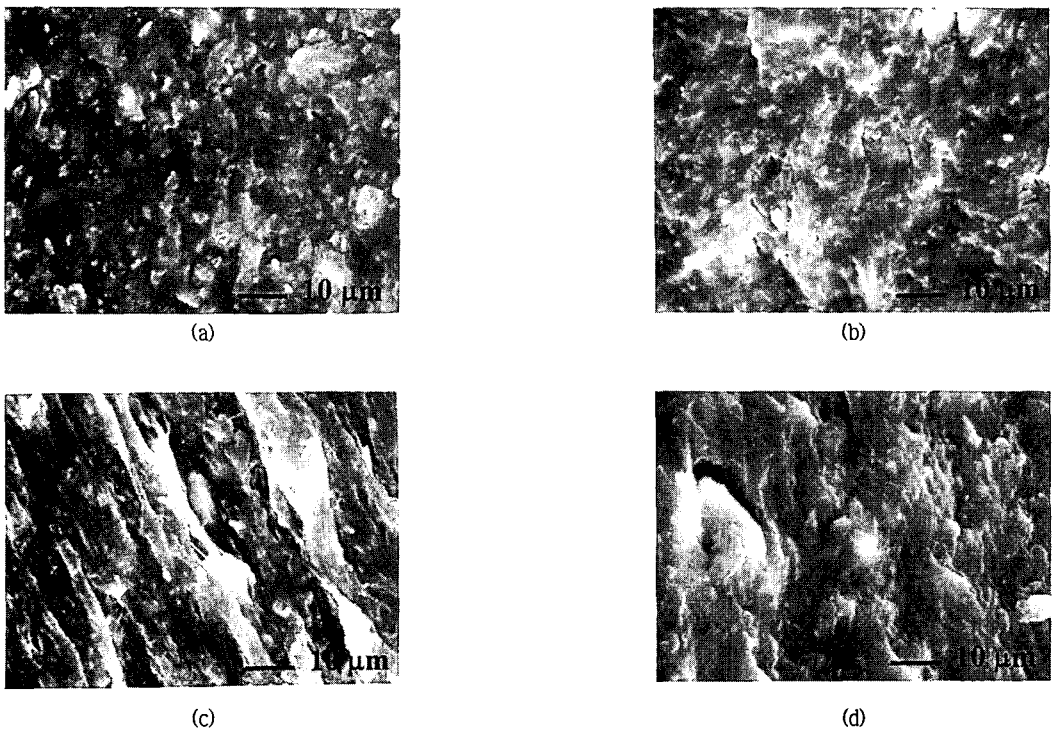

Fig. 3. SEM photographs of the composite samples after dynamic vulcanization at different screw speed: (A) 30rpm; (B) 50rpm; (C) 70rpm; (D) 90rpm.

1.42)이나 연질 PVC (비중: 1.3)보다 낮아 응용 부품의 경량화에 도움을 줄 것으로 기대할 수 있다.

2. TPE의 모폴로지

압출 시험은 펠렛의 제조와 internal mixer를 이용한 mixing 작업 후 다시 한 번 mixing을 수행하므로써 더 우수한 모폴로지를 얻기 위해 실시하였다.

Fig. 3에 나타난 바와 같이 sample (b)의 모폴로지가 polypropylene matrix 상에 EPDM 고무 입자가 phenol resin에 의해 가교 되어 분산이 고루 잘 되어 있는 것으로 나타났다. 이러한 형태학적 구조의 해석은 Fig. 1에 나타난 기계적 물성의 향상과 연관지어 설명할 수 있다. 즉 70, 90 rpm의 조건에 의해 얻어진 모폴로지에 비해 50 rpm 조건에서 우수한 기계적 물성을 보임은 (b)와 같은 모폴로지의 특징에 기인하는 것을 알 수 있었다.

3. Fixed glass weather-strip의 성형

Fig. 3에서 sample (b)의 기계적인 물성이 자동차 weather-strip용으로 적합하였으므로 이를 재료로 선정하여 80 ℃의 온도에 4시간 정도를 오븐에서 건조를 시킨 후 Fig. 4의 구조를 가진 사출 성형기에 투입하였다. TPE 재료를 hopper에 투입하기 전에 전처리의 과정으로 TPE를 건조함으로써 성형품의 기계적인 특성과 표면 물성에 끼치는 수분을 최대한 제거하려 했는데, 이는 TPE 재료가 일반 가황 고무와는 달리 대기중의 수분을 빠르게 흡수하므로써 최종 성형품의 표면에 기공을 형성시키거나, 표면을 거칠게 만드는 등의 부작용을 일으킨다.[12] 따라서 weather-strip은 눈에 띄는 외장 제품이므로 이런 점들을 방지하기 위해 가공 공정에 적용하기 전에 충분히 건조를 실시하였다.

유리를 사출기 금형에 장착하기 전에 TPE와

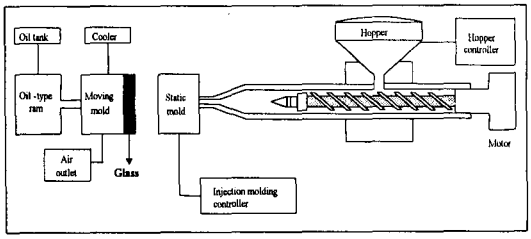

Fig. 4. The schematic equipment of glass insert molding method.

유리 계면 부분의 접착력을 증가시키기 위해서 유리의 가장자리에 primer 처리를 하여 70~90 ℃ 조건하에, 3시간 동안 오븐에서 건조를 시킨다. 건조시킨 유리는 금형에 끼워 사출성형을 실시하는데 금형에서 냉각수에 의한 cooling 공정까지 40~60초 정도 소요되었다.

Fig. 5에 나타난 바와 같이 glass insert molding법의 사출 속도는 한 공정에서 10 단계의 속도로 조절이 가능한데, 이 때 첫 단계부터 빠른 사출 속도보다는 느리게 시작하여 중간 영역에서 사출 속도를 빠르게 함으로써 금형 내부에서 용융 재료의 충진율 향상 및 성형 후 weather-strip의 표면 상태가 우수해지는 것으로 나타났다. 또한 사출 속도의 10 단계 조절로 인해 전력의 손실을 줄일 수 있었다.

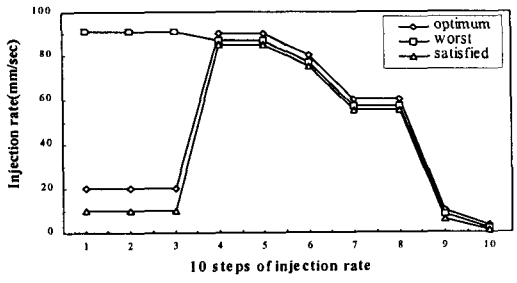

Fig. 5. Ten steps of injection rate for glass insert molding method.

그리고 사출 압력, 노즐부 온도 및 금형 온도 등의 적정가공조건은 Table 2와 같다.

Table 2. Optimum Conditions of Glass Insert Molding Method

Positions	Condition
Injection pressure (bar)	80~90
Nozzle temperature (℃)	200~220
Mold temperature (℃)	80~90
Injection time (sec.)	10~20
Cooling time (sec.)	15~20
Screw speed (rpm)	50

TPE 재료의 흐름성을 사출기 내부에서 증가시키기 위해서 노즐부 온도는 200~220 ℃로 조절했고, 급격한 온도차로 인한 유리의 파손 방지를 위하여 금형 온도를 80~90 ℃로 하였다. 또한 1개의 fixed glass weather-strip을 성형하기 위해 걸리는 시간은 40~50초 정도이므로 기존의 수작업으로 행해지는 공정보다 훨씬 공정의 시간이 절약되고, 공정이 간편해지므로 이로 인한 생산성의 향상을 기대할 수 있다.

Rear door fixed glass weather-strip의 최종 제품의 형상은 Fig. 6과 같다.

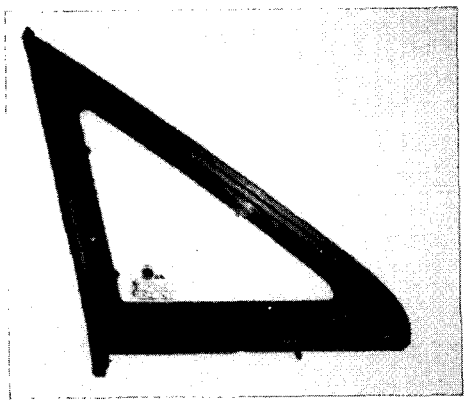

Fig. 6. The example of the fixed glass weather-strip.

Ⅳ. 결 론

TPE 재료를 사용하여 얻을 수 있는 가장 큰 장점은 성형시 생기는 불량 scrap의 재사용과 충진제의 투입없이 간편하게 성형기에서 성형 작업을 할 수 있다는 점인데, EPDM과 polypropylene의 블렌드에 의하여 이러한 장점을 유도할 수 있고, 기존의 weather-strip용 재료보다 비중이 낮기 때문에 응용 부품의 경량화에 기여할 수 있었다.

사출 속도, 사출 압력, 금형의 온도 등의 조절에 의해 금형 내부에서 성형 도중 생기는 유리의 파손량을 줄일 수 있었다.

TPE 재료의 기계적 성질은 실린더 온도 190~210 ℃ 부근에서 50 rpm으로 압출 작업을 수행할 때, 자동차용 weather-strip의 요구 물성을 만족하였다.

TPE molding 부분과 유리를 사출기 금형 내부에서 일체성형을 수행함으로써 공정상의 cycle time이 줄어 공정의 효율성을 창출할 수 있었다. 이런 결과로부터 EPDM/poly- opylene blend 재료를 glass insert molding법을 이용하여 자동차용 fixed glass weather-strip에 응용할 수 있다는 결론을 얻었다.

감사의 글

본 연구는 중소기업청의 지원에 의해 연구되었으며, 이에 감사를 드립니다.

참 고 문 헌

1. G. E. O'Connor and M. A. Fath, *Rubber World*, **185**(4), 26, (1982).
2. E. N. Kresge, "Thermoplastic Elastomer", ed. by G. Holden, 2nd ed., p. 102, Hanser publishers, New York, (1996).
3. J. S. Lee, *Lucky Polymer Technology*, No. 25, 12, (1993).

4. J. S. Ryu, *Journal of The Korean Institute of Rubber Industry*, **27**(2), 131, (1992).
5. H. Endo, *Plastic Science*, **7**(13), 94, (1999).
6. A. Y. Coran and R.P. Patel, U.S. Patent, 4,104,210 (1978).
7. S. Abdou-Sabet and M.A. Fath, U.S. Patent, 4,311,628 (1982).
8. T. Marinovic, Z. Susteric, I. Dimitrievski, Kranj and Z. Veksli, Zagreb, *Kautschuk Gummi Kunststoffe*, **51**(3), 189, (1998).
9. S. H. Myung, *Polymer Science and Technology*, **4**(2), 104, (1993).
10. W. J. Gauthier, "Polypropylene", ed. by J. Karger-Kocsis, p.178, Kluwer publishers, (1999).
11. D. J. Synnott, D. F. Sheridan and E. G. Kontos, "Thermoplastic Elastomer from Rubber-Plastic Blends", ed. by S. K. De and Anil K. Bhowmick, p.130, (1990).
12. Y. W. Chang, *Polymer Science and Technology*, **8**(6), 730, (1997).