통기성필름의 투습도에 관한 실험적 연구

최 만 성†

†한국기술교육대학교 메카트로닉스공학부

Experimental Study of Moisture Vapor Transmission Rate(MVTR) for Breathable Film

Man Sung Choi†

†School of Mechatronics Engineering, Korea University of Technology and Education School

ABSTRACT

Moisture vapor transmission rate (MVTR) is an important item for many applications of polymer breathable thin film. To determine the optimum values of the process parameters, it is essential to find their influence on The significance of six important process parameters namely, extruder cylinder temperature, extruder speed, extruder dies temperature, cooling roll temperature, stretching ratio, stretching roll temperature on breathable film strength of polymer extrusion was determined. Moreover, this paper presents the application of Taguchi method and analysis of variance (ANOVA) for maximization of the breathable film MVTR influenced by extrusion parameters. The optimum parameter combination of extrusion process was obtained by using the analysis of signal-to-noise ratio. The conclusion revealed that extruder speed and stretching ratio were the most influential factor on the film strength, respectively. The best results of film MVTR were obtained at higher extruder speed and stretching ratio.

Key Words: Breathable film, MVTR, Taguchi method, Process parameter, Optimization

1. 서 론

통기성 필름(breathable film)은 기체 또는 수증기 등은 투과할 수 있지만 액체는 투과할 수 없는 플라스틱 필름을 말하며 필름 전체에 미세한 기공이 다수 존재하는 다공성 재질로 이루어져 있다[1-2]. 이 필름은 공기 통풍성과 강성, 내열성, 특히 필름의 두께 균일성등이 요구되며, 공기의 통풍성을 유지하기 위해 폴리에틸렌에 다량의 무기물(CaCO₃)을 혼합하여 T-다이(die)형 압출기를 통해 20~30 μm의 필름을 제조하고 있다.이 때 균일한 두께 유지와 강성이 필수적이므로 고속에서의 고분자의 용용 유동이 일정하게 유지되어야 하는 어려움이 있다.

고분자필름의 투습도는 연신율을 증가시킬 때 감소하는 것으로 알려져 있고, 재질이 균일(homo -geneous)한

필름을 습기가 투과할 때 투습도는 확산과 용해도의 곱으로 나타낼 수 있다[3-4]. 또한 투습도에 영향을 미 치는 인자는 필름의 밀도, 결정도, 고분자의 배열, 가교 도 및 첨가제 등의 증가에 따라 투습도는 감소하며 고 분자의 증가와는 무관한 것으로 알려져 있다. 투습도 에 관한 이러한 연구방법은 고분자 용융체(melt)의 특 성을 규명해야 하므로 그 분석이 매우 까다롭고 번잡 하다[5-7]. 따라서 압출공정변수의 실험으로 특성치인 필름 투습도의 품질 요구조건을 찾아내는 것이 합리적 인 방법으로 여겨진다. 따라서 본 연구에서는 실험을 통하여 통기성 필름의 투습도를 만족할 수 있는 압출 기의 최적공정조건을 구하였다. 고분자압출(polymer extrusion) 성형은 가열에 의해 용융된 플라스틱을 연속 적으로 성형하는 방법이며, 일반적인 설비로서는 압출 기, 다이 및 연신장치의 세 부분으로 구성되어있다. 압 출기는 성형재료를 가열하여 균일한 용융체 상태로 만 들면서 이것을 가압하여 연속적으로 송출하는 펌프의 역할을 하며, 다이는 소정의 형태를 만들고, 연신장치

†E-mail: mschoi@koreatech.ac.kr

82 최 만 성

는 다이로부터 압출된 성형품의 형상이나 치수를 규제하면서 냉각하여 연신하는 작용을 한다.

2. 실험장치 및 방법

2.1. 실험장비

실험에 사용된 고분자압출기의 모델명은 BNP PE-50로 고속·통기성필름개발을 위해 Fig. 1과 같이 별도로 제작된 장비이다. 이 장비의 압출기 형식은 단축 스크루식이며, 주요 규격으로는 스크루길이가 1,280 mm, 스크루 직경이 50 mm로 L/D=26이다.

2.2. 통기성 필름의 투습도 측정

현재 일반적으로 사용되고 있는 통기성 필름은 앞서 기술한 바와 같이 20~30 µm 두께의 필름을 100 m/min 수준의 속도로 생산되어지고 있는데, 이러한 가장 큰 이유는 통기성을 부여하기 하여 50%이상의 많은 탄산 칼슘 무기필러를 충진시켜 컴파운딩(compounding)해야 하기 때문이다. 본 실험에 사용된 고속·통기성필름의 기저재료는 LLDPE (linear low density polyethylene)로서 여기에 상용화제, 첨가제, 충진제 등을 혼련하여 MI (melting index), 밀도, 수분 등의 물성측정을 실시한 후 통기성필름에 적절한 컴파운드 원료를 사용하였다. LLDPE는 기계적 성질이 우수하여 산업체에서 많이 사용되나, 유동성질이나 가공성은 분자질량분포에 많은 영향을 받는 것으로 알려져 있다[8-9]. Table 1에 LLDPE의 주요 재료물성 값을 나타내었다.

투습도(MVTR, moisture vapor transmission, 혹은 WVTR, water vapor transmission)는 Fig. 2와 같은 투습도 측정기를 KS K 0594의 워터법으로 측정하였다.

투습도 시험방법의 원리는 컵 속에 흡습제(염화칼슘) 를 넣어 시료를 통하여 컵 속으로 침입하는 투과수증



Fig. 1. Breathable film equipment.

기의 양을 흡습제의 중량으로써 측정한다.

본 측정에서는 투습컵에 염화칼슘(CaCl₂) 15 g 또는 물 15 g을 넣고 시편을 컵 내경에 붙인다. 단, 시편에 염화칼슘(물)이 닿지 않게 하고 염화 칼슘은 1급품을 사용하며 물은 증류수를 시용한 다. 또한 투습도는 항 온항습기 실내온도를 사용 하고, 증류수를 사용한다. 염화칼슘으로 시험할 경우 온도는 40±2°C, 습도는 60±5% R.H.를 사용한다. 염화칼슘으로 시험할 경우 온도는 40±2°C, 습도는 75±5% R.H.를 유지하며 증류수는 20°C의 항온 증류수를 사용한다. 시험순서로는 O-Ring을 얹은 다음 후렌지를 밀봉되게 조이고, 시험 전의 컵 중량을 측정한다. 다음에 항온 항습기에 준비된 시편 컵(sample cup)을 투입한다. 측정시간은 24시간을 원칙으로 하되, 실제 시험은 2시간 단위로 측정 한다. 24 Hrs (2 hrs)후컵을 항온 항습기에서 꺼낸 후 10분간 상온에서 방치후컵 중량을 체크한다.

여기서 투습도의 계산식은 식(1)과 같다.

$$P = 10 \times (a_2 - a_1)/S$$
 (1)

여기서 P: 투습도 [kg/m²h]

 a_2-a_1 : 1시간 처리 후 시험편의 무게변화 [mg/h]

S: 투습면적 [cm²]이다.

Table 1. Material properties of LLDPE

Properties	Value
Thermal conductivity	0.24 J/ms°C
Specific heat at constant pressure	2.30 J/g°C
Density	0.92 g/cm ³
Transition temperature	-120/-9°C
Crystalline melting point	125°C



Fig. 2. Moisture vapor transmission tester.

반도체디스플레이기술학회지 제15권 제2호, 2016

2.3. Taguchi법에 의한 실험계획

Taguchi 방법은 직교배열표 상에 제어인자와 잡음인 자를 동시에 고려하여 S/N비(signal to noise ratio)를 최대화하는 제어인자의 조건 즉, 잡음 하에서도 성능특성치의 분산이 작고 평균이 목표치에 근접하는 제어인 자의 조건을 찾는 것이다. 평가특성치는 신호와 잡음비로 나타내는데 통기성필름의 투습도는 업체에서 주로 규격하한을 적용하므로 특성치가 크면 클수록 좋은 망대특성(higher is the best)을 적용하였다. 망대특성의 S/N비는 식(2)로 구할 수 있다[10-11].

$$S/N = -10\log_{n} \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{y_{i}^{2}}$$
 (2)

여기서 y;: 실험에서 얻어진 데이터, n: 실험횟수이다. Table 2에서 압출공정변수 A는 압출기의 실린더 온도 (extruder cylinder temperature), B는 압출속도(extruder speed), C는 압출기의 다이스의 온도(extruder dies temperature), D는 냉각롤의 온도(cooling roll temperature), E는 연신비(stretching ratio), 그리고 F는 연신롤의 온도(stretching roll temperature)를 나타낸다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1. 투습도의 정규성 검정

많은 통계적 절차는 데이터가 정규분포를 따른다고 가정한다. 이러한 가정을 확인하기 위하여 데이터에 대한 정규성 검정을 수행할 필요가 있다. 정규성을 확인하는 절차로 정규확률도(normal probability plot)를 작성하여 판정하는 방법이 있다.

정규확률도에서 점들이 대부분 직선에 떨어지면 정 규성 가정이 만족한다고 판정한다. Fig. 3은 투습도의 실험자료를 근거로 확률플롯을 나타낸 것이다.

여기서 사용된 Anderson-Darling식은 누적분포함수 를 이용하여 검정하는데 검출력이 높은 것이 장점이다.

Table 2. Process parameters with levels

Process parameters	Unit	L_1	L_2	L_3
A : Ex. cylinder temper.	°C	220	240	260
B : Ex. speed	rpm	200	250	300
C : Ex. dies temp.	°C	220	230	240
D : Cooling roll temp.	°C	16	18	20
E : Stretching ratio	-	2.0	3.0	4.0
F : Stretching roll temp.	°C	80	90	100

^{*} EX, : Extruder, Temp. : Temperature의 약자.

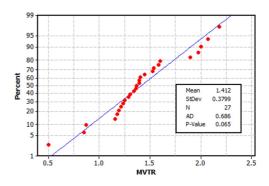


Fig. 3. Probability Plot of MVTR.

이 검정에서는 p-값이 0.065으로 유의수준 5%보다 크 므로 실험데이터가 정규분포라는 귀무가설을 입증한다. Table 3은 직교배열표 L27(3⁶) 실험에서 얻어진 투습도

Table 3. Orthogonal array $L_{27}(3^6)$

Table 3. Ofthogonal array 127(3)								
Run	A	В	С	D	Е	F	Exp. data	S/N (CD)
1	1	1	1	1	1	1	1.975	5.911
2	1	1	1	1	2	2	2.184	6.785
3	1	1	1	1	3	3	2.069	6.315
4	1	2	2	2	1	1	1.394	2.885
5	1	2	2	2	2	2	1.448	3.215
6	1	2	2	2	3	3	1.537	3.733
7	1	3	3	3	1	1	0.849	-1.422
8	1	3	3	3	2	2	1.254	1.966
9	1	3	3	3	3	3	1.343	2.562
10	2	1	2	3	1	2	1.368	2.722
11	2	1	2	3	2	3	1.598	4.072
12	2	1	2	3	3	1	2.003	6.034
13	2	2	3	1	1	2	1.235	1.833
14	2	2	3	1	2	3	1.394	2.885
15	2	2	3	1	3	1	1.527	3.677
16	2	3	1	2	1	2	0.503	-5.969
17	2	3	1	2	2	3	0.873	-1.180
18	2	3	1	2	3	1	1.287	2.192
19	3	1	3	2	1	3	1.361	2.677
20	3	1	3	2	2	1	1.583	3.990
21	3	1	3	2	3	2	1.894	5.548
22	3	2	1	3	1	3	1.304	2.306
23	3	2	1	3	2	1	1.405	2.954
24	3	2	1	3	3	2	1.607	1.699
25	3	3	2	1	1	3	0.450	1.555
26	3	3	2	1	2	1	0.734	1.416
27	3	3	2	1	3	2	1.109	1.267

84 최 만 성

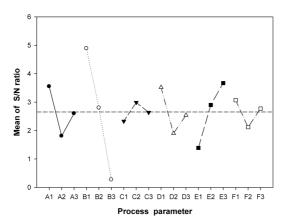


Fig. 4. Main effects plot(data means) for S/N ratios of

의 데이터이다.

여기서 $L_{27}(3^6)$ 은 27번의 공정조건별 시행, 3수준 및 6개의 제어인자를 나타낸다. 이 직교배열은 각 열의 결과가 다른 열에 영향을 주지 않고 각 인자의 주 효과를 가장 잘 나타낸다.

3.2. 투습도의 주효과

Table 3은 실험에 사용된 직교배열표 L27(3°)에 따른 투습도의 S/N비를 보여준다. Fig. 4는 Table 3의 실험 데이터에 따라 S/N비에 대한 주효과도를 그림으로 나타낸 것으로, 압출공정변수의 각 수준에 따라 S/N비의 평균값이 도시되어있다. 그림에서 S/N비의 경사가 급한 요인이 수준 간에 차이가 있는 즉, 유의한 요인임을 나타낸다. 여기에서 압출속도, 연신비, 압출기 실린더온도 순으로 유의한 공정변수임을 알 수 있다. 또한 Taguchi 법에서는 S/N비가 크면 품질특성이 우수하므로 이에 대한 최적의 압출공정조건을 구할 수 있다. S/N비를 바탕으로 투습도가 우수한 공정조건은 실린더의온도가 220°C, 압출속도 200 rpm, 연신 비 4.0:1인 A₁B₁E₂이다.

Fig. 5는 압출속도, 냉각롤의 온도, 연신 비의 교호작용을 나타낸 것이다. 이 그림에서 볼 때 압출속도, 냉각롤의 온도, 연신 비 간에 서로 교차하는 부분이 거의 없으므로 미미한 교호작용이 작용하나 무시할 만 하다는 것을 보여준다.

3.3. S/N비의 분산분석

압출공정변수의 유의성 검정을 위해 식 (2)를 이용하여 S/N비를 구하였다. Table 4는 반응변수로 S/N비를 지정하고, 모형에 포함될 인자를 지정한 다음 분산

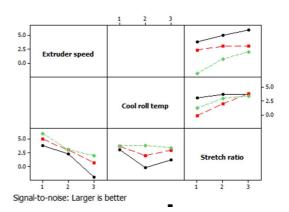


Fig. 5. Interaction plot for S/N ratios of MVTR.

Table 4. ANOVA table for S/N ratio of MVTR

Source	DF	Adj. SS	Adj. MS	F	P		
A	2	13.71	6.85	3.51	0.058		
В	2	96.74	48.37	24.78	0.000		
С	2	1.93	0.96	0.49	0.620		
D	2	11.93	5.96	3.05	0.079		
Е	2	24.23	12.12	6.21	0.012		
F	2	4.26	2.13	1.09	0.362		
Error	14	27.33	1.95				
Total	26	180.13					

** DF, : Degree of freedom, Seq. SS, : Sequential sum of squares, Adj. MS, ; Adjusted mean of squares

분석(ANOVA)울 한 것이다. 이 표에서는 모형의 각 항 에 대한 자유도(DF), 수정 평균제곱합(Adjustable mean of square)을 사용하여 얻은 F-통계량, p-값이 나타나있 다. 수정 평균제곱합은 수정된 제곱합을 자유도로 나눈 값이다. 수정된 제곱합은 요인들을 모형에 입력하는 순 서에 의존하지 않고 입력한 순서에 관계없이 다른 모 든 요인들이 주어진 경우, 제곱합 회귀분석에서 한 요 인만으로 설명되는 부분이다. 수정 평균제곱합을 선택 한 경우에는 평균 제곱 및 F-검정에 이 값이 사용된다. Table 4의 결과를 사용하여 요인과 반응 데이터의 상관 관계가 높은지 여부와 모형에서 각 요인의 상대적 중 요도를 확인할 수 있다. 분석결과 얻어진 결정계수 (coefficient of determination) R²은 84.83%로 회귀모형 의 유용성이 높다고 할 수 있다. Table 4의 p-값을 유 의수준 α=10%와 비교하여 판단할 때 압출기의 다이 스의 온도와 연신롤의 온도를 제외한 모든 공정변수기 유의한 요인으로 나타났다. 따라서 압출기의 다이스의

Table 5. ANOVA table for S/N ratio of MVTR

Source	DF	Adj. SS	Adj. MS	F	P
A	2	13.71	6.85	3.68	0.046
В	2	96.74	48.37	25.97	0.000
D	2	11.93	5.96	3.2	0.065
Е	2	24.23	12.12	6.51	0.007
Error	18	33.52	1.86		
Total	26	180.13			

Table 6. t-Test of MVTR.

Predictor	Coef.	T	p	VIF
Constant.	2.177	12.51	0.000	1.0
A	-0.098	-2.29	0.032	1.0
В	-0.355	-8.33	0.000	1.0
D	-0.087	-2.05	0.052	1.0
Е	0.158	3.71	0.001	1.0

온도와 연신롤의 온도는 유의성이 떨어지므로 오차 항에 더하여 풀링(pooling)하면 Table 6과 같은 분산분석 표가 얻어진다. 이 표에서 알 수 있듯이 압출속도, 연신비, 압출기의 실린더 온도, 냉각롤의 온도 순으로 유의하다. 따라서 이 변수들은 압출공정 설계변수로서 매우 중요하다는 것을 의미한다.

3.4. 투습도의 다중회귀분석

다중회귀분석(multiple regression analysis)이란 2개이상의 예측변수와 1개의 반응변수와의 관계를 선형, 즉 직선으로 가정하는 회귀분석을 말한다. 회귀함수가얼마나 유효한가는 분산분석표를 작성하여 t-검정을 실시하거나, 실험에서 얻어지는 총 편차의 제곱 합과 회귀제곱 합으로부터 구해지는 결정계수(coefficient of determination, R²)를 이용하여 평가한다. 각 인자들로부터 투습도를 예측하기 위한 방법으로 Table 4와 Table 5의 자료 중 압출속도, 연신비, 압출기의 실린더온도, 냉각롤의 온도에 대하여 다중회귀분석(multiple regression analysis)한 결과 다음 식 (3)을 구하였다.

$$\hat{y} = 2.18 - 0.10A - 0.36B - 0.09D + 0.12E$$
 (3)

식 (3)에서 알 수 있듯이 투습도에 대해서 연신비 E는 양의관계이고, 압출기의 실린더 온도 A, 압출속도 B와 냉각롤의 온도 D는 음의 상관관계를 가진다. 여기서 압출속도가 가장 큰 영향인자이므로 압출속도를 낮

출수록 투습도가 우수해지는 것을 알 수 있다. 이것은 Fig. 4에서 나타난 결과와 같다. 또한 회귀분석결과 투습도의 결정계수 R^2 의 값은 80.8%로 나타났는데 전체 변동 중 회귀식에 의해 설명되는 변동이 높은 편이다. Table 6은 모든 압출공정변수에 대한 회귀식의 t-검정 값을 나타낸 것으로 회귀식의 t-검정 값이 높은 변수일 수록 추정식 \hat{y} 를 설명하는데 공헌도가 크다. 다중회귀 분석을 한 결과 중어진 공정변수 모두가 유의수준 $\alpha=10\%$ 와 비교해서 낮으므로 이들 공정변수들은 매우 유의함을 알 수 있다. Table 8에서 상수와 모든 독립변수들의 분산팽창인수(vari -ance inflation factor, VIF)가 1이므로 독립변수 상호간의 상관관계가 없음을 알 수 있다.

5. 결 론

본 연구는 고분자압출가공에 있어서 압출공정변수가 통기성필름의 투습도에 미치는 영향을 Taguchi 방법에 의한 실험을 통하여 연구한 것으로 실험에서 얻어진 투습도는 정규성 검정을 통해 정규분포를 따랐으며, 압출기의 공정변수는 교호작용이 거의 나타나지 않았다. 또한 압출공정변수 사이에 선형결합관계가 존재하는가를 알아보기 위해 분산팽창인수를 계산한 결과 다중공 선성이 존재하였다. 투습도에 큰 영향을 미치는 압출공정변수는 압출속도, 연신비, 압출기의 실린더온도 순으로 나타났고, 이외의 압출공정변수인 다이온도, 냉각를 온도, 연신 를 온도 등은 각 투습도에 미치는 영향이 적었다.

참고문헌

- Bernardo, L. Hes, C. A., Queiros, M. A., "A New Method for the Determination of Water Vapor Permeability of Polymer Films Based on the Evaluation of the Heat of Evaporation," Polymer. Testing Vol. 15, pp. 189-201, 1996.
- Basset, D., Germain , Y., Glotin , M., Leibler , L., "Measurement of Water Permeability of Breathable Films," Institute of Materials, London, pp. 23-24, 1994.
- 3. Alexander Stroeks," Modelling the Moisture Vapour Transmission Rate through Segmented Block Co-Poly(ether-ester) Based Breathable Films, "Journal of Polymer, Vol. 42, pp. 117-127, 2001.
- 4. Alexander Stroeks, Krijn Dijkstra,"The Moisture Vapour Transmission Rate of Block Co-Poly(ether-

86 최 만 성

ester) Based Breathable Films, 2.Influence of the Thickness of the Air Layer Adjacent to the Film," Journal of Polymer, Vol. 42, pp. 9903-9908, 2001.

- Takahashi ,Y., Kitade , S., Kurashima , N., and Noda, I., "Viscoelastic Properties of Immiscible Polymer Blends under Steady and Transient Shear Flows," Polymer. Journal. Vol. 26, pp.1 206-1212, 1994.
- Rao , I. J., and Rajagopal , K. R., "A Study of Strain Induced Crystallization of Polymers," Int. Journal. Solids Structures Vol. 38, pp. 1149-1167, 2001.
- 7. Alaie, S. M., and Papanastasiou, T. C., "Film Casting of Viscoelastic Liquid," Polym. Eng. Sci. Vol. 31(2), pp.67-75. 1991.
- Muller, A. J., Balsamo, V., F. Da Silva, Rosales, C. M., and Saez, A. E., "Shear and Elongational Behaviour of Linear Low-Density and Low-Density Polyethy -lene Blends from Capillary Rheometry."

- Polymer. Eng. Sci. Vol. 34, pp. 1455-1463. 1994.
- Verbeek , C.J.R., "Effect of Preparation Variables on the Mechanical Properties of Compression-Moulded Phlogopite/LLDPE Composites." Materials Letters Vol. 56, pp. 226-231, 2002.
- Lee S. H., "Optimization of cutting parameters for burr minimization in face-milling operations", Int. J. Prod. Res. Vol. 41, No. 3, pp. 497-511, 2003.
- Lin T. R., "Optimization technique for face milling stainless steel with multiple performance characteristics", Int. J. Adv. Manuf. Technol. Vol. No. 19, pp. 330-335, 2002.

접수일: 2016년 6월 7일, 심사일: 2016년 6월 17일, 게재확정일: 2016년 6월 22일