

## Synthesis and Crystallization Behavior of Poly(alkylene terephthalate-co-alkylene succinate)

정재호, 신경무, 박상순, 임대우\*, 임승순  
 한양대학교 섬유공학과, \*제일합섬 기술연구소

지방족 폴리에스테르는 생분해성을 가지고 있으나, 용점이 낮고, 상대적으로 물성과 가공성이 떨어져 용도가 크게 제한되어 왔으며[1], 이를 보완하기 위한 방법의 하나로 polycaprolactone/polyamide 공중합체와 polyethylene과의 blend 등이 시도되어져 왔다. 이러한 공중합체나 blend에 의한 방법은 생분해성을 저하시키는 문제점이 있지만, 궁극적으로 비용절감과 물성의 향상을 가져오는 장점을 제공한다. 따라서 Diol과 Diacid만으로 합성된 Poly(alkylene succinate)(alkylene : ethylene 또는 butylene)에 Poly(alkylene terephthalate)를 공중합시키면 조성에 따라 다양한 물성의 고분자를 얻을 수 있으며, 열안정성 및 기계적 성질이 향상되게 된다. 이러한 공중합체를 제조하기 위하여 succinic acid, dimethyl terephthalate(DMT), 그리고 ethylene glycol 및 1,4-butane diol을 사용하였다. 합성방법으로는 일반적인 폴리에스테르의 제조 방법과 동일하게 하되, succinic acid와 glycol을 사용하여 제조된 올리고머 일정량과, DMT와 glycol을 사용하여 만든 올리고머 일정량을 반응관에 동시에 투입하여 온도 250°C에서 축중합을 하였다. 축중합하여 만들어진 공중합물의 결정화 거동을 연구하기 위하여 n.m.r을 이용한 sequence 길이 측정 및 X-ray를 이용하여 측정된 회절 패턴을 분석하였다. 공중합물의 결정형성능력은 결정을 형성할 수 있는 sequence의 분포, 분자들의 응집 에너지, 분자의 유동성, 그리고 결정의 표면 자유에너지등에 의해 달라지게 되며[2], 이러한 요소들은 공중합물의 조성과 밀접한 관련을 이루고 있다. 따라서 공중합물의 결정화 거동은 공중합물 조성에 따라 크게 변화 된다고 볼 수 있다. 한편, 공중합물의 Sequence 분포 분석을 통하여, 본 공중합물이 통계학적으로 random 분포를 이루고 있음을 알 수 있었으며, 이러한 random 공중합물의 결정화 거동은 결정을 형성할 수 있는 sequence들이 서로 분리된후 어느 한쪽에 의해서만 결정화가 이루어 지게 된다고 보았다. 이러한 생각은 Fig. 1의 X-ray 회절패턴 결과에서 보여주는 바와 같이 조성에 따라 결정이 어느 한쪽에 의해 지배되는 결과, 즉 결정의 전이현상점을 기준으로 결정패턴이 뚜렷하게 구분된다는 점에서 사실로 분명해진다. 또한, 결정화 할 수 있는 sequence의 길이가 짧으면 결정

에 참여할 수 없고, sequence의 길이가 일정길이 이상이 되어야 결정을 형성할 수 있으므로 각 공중합물들의 comonomer를 반복단위로 하는 각각의 평균 sequence길이 또한 결정화 거동에 상당한 영향을 미친다고 보았으며 조성에 따라 sequence길이 변화를 측정하였다.

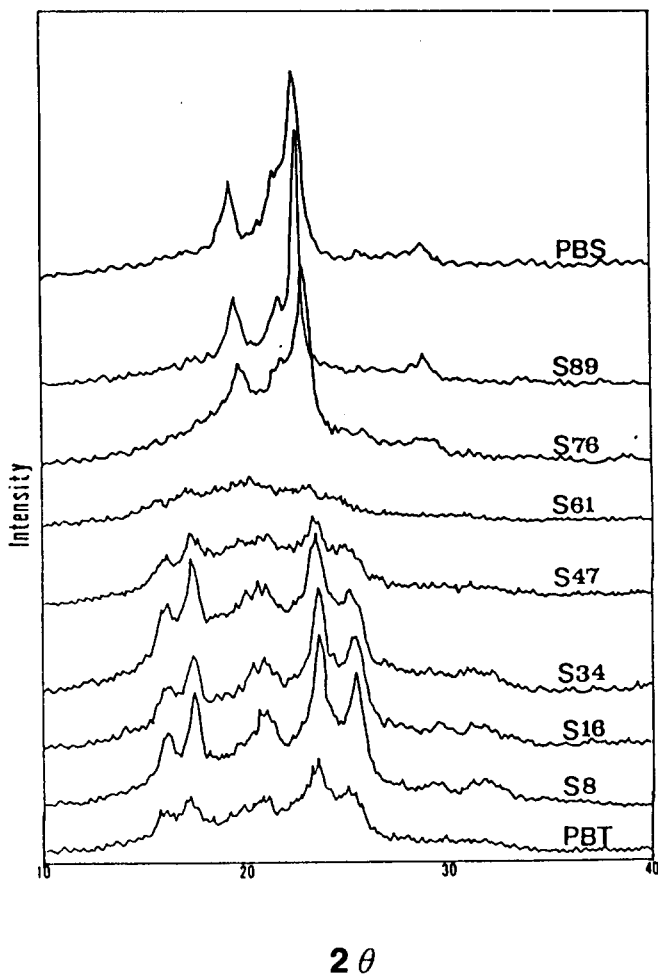


Fig. 1 X-Ray diffraction patterns of poly(butylene terephthalate-co-butylene succinate) annealed at 20°C lower than melting points.

#### REFERENCES

1. R&D Evaluation Report No. 47 Chart 3.
2. H. Y. Yoo, S. Umemoto, POLYMER, 1994, Vol. 35, No.1, 117