한국소성가공학회 2007년도 춘계학술대회 논문집 pp. 209~212

고무복합체의 모세관 압출에서 비선형 점탄성 모델의 적용

최성현[1] · 류민영[2] · 김학주[3] · 박동명[3] · 전재후[3]

Application to Non-linear Viscoelastic Model on Capillary Extrusion of Rubber Compounds

S. H. Choi, M.-Y. Lyu, H. J. Kim, D. M. Park, and J. H. Jun

Abstract

Rubber compounds have high viscoelastic property. One of the viscoelastic behaviors during profile extrusion is the swelling of extrudate. In this study, die swell of rubber compounds at the capillary die have been investigated through an experiment and computer simulation. They have been performed using fluidity tester in experiment and commercial CFD code, Polyflow in computer simulation. Die swell of rubber compounds for relaxation time at several modes under same conditions with the experiment were predicted using non-linear differential viscoelastic model, Phan-Thien-Tanner (PTT) model. The simulation was analyzed compared with the experiment. Viscoelastic behaviors for pressure, velocity and shear rate distribution were analyzed at the capillary die. It is concluded that the PTT model successfully represented the amount of the optimal die swell of rubber compounds for relaxation time at different modes.

Key Words: Rubber Compounds, Extrudate Swell, Relaxation Time, Phan-Thien-Tanner Model, Capillary Die, Non-linear Viscoelastic Model

1. 서론

타이어 고무의 압출은 Co-extrusion으로 Single Screw Extruder와 Pin Barrel Extruder를 통해 여러 고무소재가 이송되고 Extruder끝에 있는 Die를 통과함으로써 소정의 형상을 얻는다. 고무와 같이 점 탄성의 성질이 매우 큰 물질은 메모리현상을 보이기 때문에 Die를 빠져 나갈 때 소재가 어떠한 경로를 거쳐 왔는가에 따라 보이는 탄성의 정도, 즉 Swell의 정도가 다르다[1~3]. 타이어 압출 시 소재는 Die에서 점 탄성 특성 때문에 Die의 Profile대로 고무가 압출되지 않고 Swelling (Die Swell 또는 Extrudate Swell)을 하게 된다[4~7]. 이런 Swell 현상은 재료와 Die의 형상에 따라서 다르게 나타나지만 같은 소재라 할지라도 Shear rate, Relaxation time, Flow rate, L/D, 그리고 온도에 따라서 다르게 나타난다[8]. 본 논문에서는 Styrene Butadiene Rubber (SBR)와 Butadiene Rubber의 비율이 9:1인 고무복합체 (C3)를 사용하여 모세관 Die에서 고무 복합체의 거동에 대해 분석하였다. 실험에서는 Fluidity tester를 사용하여 모세관 Die에서 소재가 보이는 팽윤양을 측정하였고 해석에서는 실험과 동일한 조건으로 Fluent社의 상용 CFD (Computational Fluid Dynamics)프로그램인 Polyflow를 사용하여 Relaxation time을 설정하는 방법과 Relaxation mode에 따라 Relaxation time의 범위를 조절했을 때 소재가 보이는 팽윤양을 예측하였다[9~10].

1. 서울산업대학교 정밀기계공학과 대학원
2. 서울산업대학교 금형설계학과
3. 한국타이어 중앙연구소

2. 실험과 해석

2.1 재료의 물성을 구하기 위한 실험

Fig.1 은 Monsanto 사에 RPA 2000 (Rubber process analyzer)을 보여주고 있다. RPA 2000 는 재료에 전단변형을 주어 재료의 Frequency 나 Strain 에 따른 전단모듈러스 G' 와 G' ' 값과 Viscosity 을 측정하는 기계이다. 주로 미가류 고무 및 가류 고무의 물성을 측정하는데 사용되고 다양한 온도, Strain, 그리고 Frequency 에서 작동한다. Table 1 은 온도 110℃에서 고무복합체 C3 가 Shear rate 에 따라 보이는 Viscosity, Storage Modulus (G'), 그리고 Loss Modulus (G' ')를 나타내고 있다.

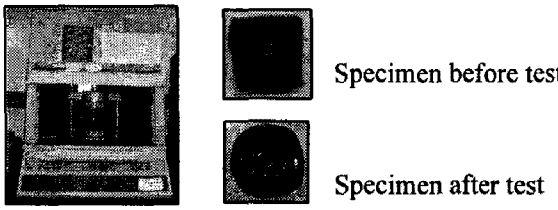


Fig.1 RPA 2000 (Rubber process analyzer)

Table 1 Material properties of C3 at temp. 110℃

	Frequency [Hz]	Shear Rate [1/sec]	Viscosity [Pa×sec]	G' [Pa]	G'' [Pa]
C3 (110℃)	0.5	0.31	64804	172560	108030
	1	0.63	38602	207380	125770
	5	3.15	11227	307300	173120
	10	6.3	6535.3	363050	191850
	20	12.59	3790.2	427490	210020

Fig.2 는 Fluidity tester 의 구조를 보여주고 있다. Fluidity tester 는 현장 압출온도와 같은 온도로 시험하여 고무의 토출량, Swell 량 측정 및 현장에서의 압출성을 테스트할 수 있다. Reservoir 의 폭과 길이가 각각 25㎜ 와 20㎜ 이고, Capillary Die 의 폭과 길이가 2.5㎜ 인 Reservoir 에 고무를 넣고 온도를 약 110℃로 유지시키면서 고무에 일정한 하중을 주어 Reservoir 에 있던 고무가 지름이 2.5㎜ 인 작은 Capillary Die 를 통과하면서 Swell 이 된다. 고무가 Swelling 되는 두께는 재료가 나오는 중간지점에서 레이저를 통하여 측정된다. 이 Fluidity Tester 를 사용하여 재료가 단위 초당 나오는 부피를 측정할 수 있고, Swell 되는 양을 측정할 수 있다.

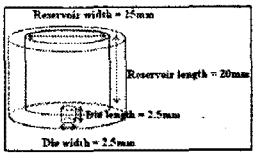


Fig.2 Structure of fluidity tester

2.3 Polyflow 를 이용한 Capillary Die Simulation

2.3.1 유한요소 해석모델링 및 경계조건

Fig.3 는 모세관 다이 해석의 경계조건을 나타낸 것으로 대칭이기 때문에 1/4 만 모델링 하였고 Evolution Problem 을 적용하여 Viscoelastic, Isothermal 로 해석하였다. 입구 부 (Boundary1)에는 Volume Flow Rate 에 evolution 를 적용하였고, 출구부 (Boundary 2) 에는 Outflow 조건을, Extrudate 윗면 (boundary3) 에는 Free Surface 조건을, 대칭면 (Boundary4)에는 Symmetry 조건을, 다이면 (Boundary5)에는 No-slip 조건을 사용하였다.

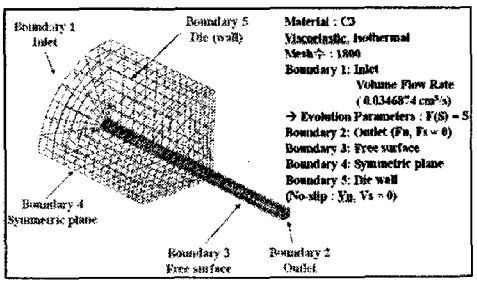


Fig.3 Boundary conditions for the die swell

2.3.2 Relaxation time 설정 방법

Relaxation time 을 설정하는 것에 따라 소재의 팽윤양이 다르게 나타나기 때문에 Viscoelastic 해석에서 Relaxation time 을 설정하는 것이 중요하다. Relaxation time 을 설정하는 방법은 Polyflow 에서 제공하는 Polymat 이란 프로그램을 사용하여 Curve fitting 한 후 Storage Modulus (G')와 Loss Modulus (G")에 교차점 부분에서의 Shear rate 를 구한 후 역수를 취해 Relaxation time 를 구하는 것이다. Fig.4 는 고무복합체 (C3)에 Phan-Phien-Tanner (PTT) 모델을 적용하여 Curve fitting 하였을 때 보이는 Shear rate 에 따른 Viscosity 와 Storage Modulus (G')와 Loss Modulus (G")를 보여주고 있다. 하지만 G' 과 G' ' 의 교차점 부분에 Shear rate 를 정확히 알 수 없기 때문에 두 번째 방법인 모

세관 Die 를 Newtonian isothermal 이나 Non-Newtonian isothermal 로 해석을 하여 Capillary Die 끝 단에서의 평균 Shear rate 를 구한 후 역수를 취해 Relaxation time 를 설정하였다. Fig.5 은 Newtonian isothermal 과 Non-Newtonian isothermal 해석에서의 Capillary die 단면에서의 평균 Shear rate 를 보여주고 있다. Newtonian 해석의 경우 Shear rate 가 가장 작은 0.31[1/s] 에서 점도 값 64804 [Pa×s]를 사용하였고 Non-Newtonian 해석의 경우 Power law 모델을 적용해서 점도 값을 적용하였다. Fig.6 는 Power law 모델을 적용하였을 때의 Shear rate 에 따른 점도를 보여주고 있고, Equation (1)은 Power law 모델을 보여주고 있다.

$$\eta = K(\lambda\gamma)^{n-1} \quad (1)$$

Consistency Factor (K) = 0.2676375E+6, Natural time (λ) = 1, Power-law index (n) = 0.2327767 이 적용되었다. 두 해석의 경우 Capillary Die 끝 단에서의 평균 Shear rate 가 비슷한 것을 알 수 있었다. 따라서, Relaxation time 은 0.0185[sec]로 설정하였다.

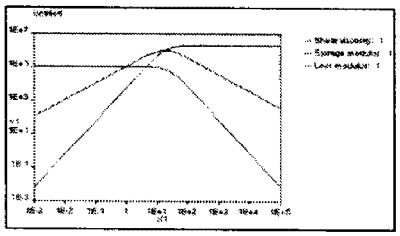


Fig.4 Curve fitting for compound C3 using PTT model

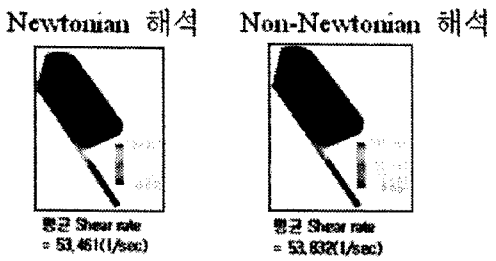


Fig.5 Shear rate distribution for simulation method

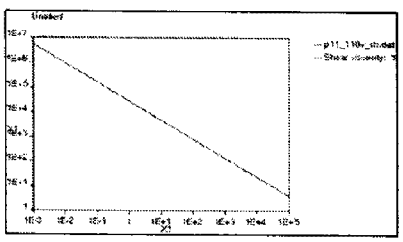


Fig.6 Curve fitting for compound C3 using Power law

2.3.3 Viscoelastic 해석

모세관 Die 에서 고무복합체의 거동을 해석하기 위해 비선형 미분 점 탄성 모델인 Phan-Phien-Tanner (PTT)를 사용하였다. Equation (2)는 PTT 모델을 보여주고 있다.

$$\exp\left[\frac{\in\lambda}{\eta_1}(T_1)\right]T_1 + \lambda\left[\left(1-\frac{\xi}{2}\right)\overset{\nabla}{T_1} + \frac{\xi}{2}\overset{\nabla}{T_1}\right] = 2\eta_1 D \quad (2)$$

T_1는 Viscoelastic component of extra stress 이고 ε 는 Control parameters for shear viscosity 이고 ξ 는 Control parameters for elongational behavior of material 이다. λ는 Relaxation time 이고 η_1 는 Shear viscosity factor for viscoelastic component 이다.

2.3.4 다양한 모드에서 Relaxation time 에 따른 해석

1 mode 에서 Relaxation time 을 0.0185 [s]을 기준으로 설정하고 기준조건에 2 배, 3 배로 증가 시켜 해석하였다. 2 modes 에서 기준 Relaxation time 0.0185 [s]에서 하나는 2 배, 1/2 배로 하고 다른 하나는 3 배, 1/3 배로 해서 각각 Max. Relaxation time 과 Min. Relaxation time 을 설정하여 해석하였다. 3 modes 에서 기준 Relaxation time 0.0185 [s]를 Mid. Relaxation time 로 설정하고 각각 2 배, 1/2 배와 3 배, 1/3 배로 해서 각각 Max. Relaxation time 과 Min. Relaxation time 을 설정하여 해석하였다.

Table 4 Parameters in the PPT model after curve fitting for compound C3 at different modes

Mode number	Relaxation Time λ	Parameter ε, ξ
1 mode	λ = 0.0185 (Origin)	ε = 0.5774643E-03
		ξ = 0.9921486E+00
	λ = 0.037 (×2)	ε = 0.1011817E-02
		ξ = 0.1011051E+01
	λ = 0.055 (×3)	ε = 0.4578574E-03
		ξ = 0.1003347E+01
2 modes	Max. λ = 0.037 (×2) Min. λ = 0.00925 (×1/2)	ε = 0.5774643E-03
		ξ = 0.9921486E+00
	Max λ = 0.0555 (×3) Min λ = 0.0062 (×1/3)	ε = 0.1011817E-02
		ξ = 0.1011051E+01
3 modes	Max. λ = 0.037 (×2) Mid. λ = 0.0185 (Origin) Min. λ = 0.00925 (×1/2)	ε = 0.5774843E-03
		ξ = 0.9921486E+00
	Max. λ = 0.0555 (×3) Mid. λ = 0.0185 (Origin) Min. λ = 0.0062 (×1/3)	ε = 0.1011817E-02
		ξ = 0.1011051E+01

3. 실험결과 및 해석결과

3.1 Fluidity tester 를 이용한 P11 의 팽윤양

Table 5 는 Fluidity tester 를 사용하여 팽윤양을 측정한 결과를 보여주고 있다.

Comp'd	TEMP [℃]	Kg_f	FD(Vol) [mm³]	SEC	D (Final Die Diameter) [mm]	d_i (Swelling Diameter) [mm]	Flow Rate (cm³/sec)	d_i/D
C3	111.7	220	1040.621875	30	2.5	3.2	0.0086725	1.28
	112.1	220	996.4445313	30	2.5	3.178	0.008305	1.2712
	112	220	1119.158375	30	2.5	3.184	0.0093275	1.2736
	111.8	220	942.45	30	2.5	3.153	0.007855	1.2612
	111	220	1310.594531	30	2.5	3.267	0.0109225	1.3068
	112	220	1344.954688	30	2.5	3.258	0.0112075	1.3032
	112.7	220	1286.051563	30	2.5	3.2485	0.0107175	1.2994
	111.8	220	1178.0625	30	2.5	3.255	0.0098175	1.3020

3.2 PTT 모델 적용 시 다양한 모드에서 Relaxation time 에 따른 팽윤양

Fig.7 는 다양한 모드에서 Flow Rate 에 따른 팽윤양을 Relaxation time [λ] 설정에 따라 보여주고 있다. 모든 모드에서 λ값이 증가 할수록 팽윤양이 증가 함을 알 수 있고, Relaxation time [λ]값이 1, 2 배 일 때는 Flow rate 가 증가할수록 팽윤양도 증가하다가 어느 Flow rate 를 지나서 완만한 팽윤양을 보이지만, Relaxation time [λ]값이 3 배 일 때는 Flow rate 가 증가할수록 팽윤양도 계속 증가함을 알 수 있다. 이는 Relaxation time [λ]값이 3 배 일 때에는 탄성의 성질이 커지기 때문에 팽윤양도 계속 증가함을 알 수 있다.

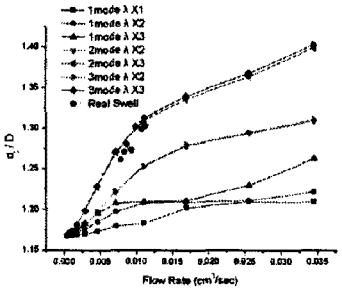
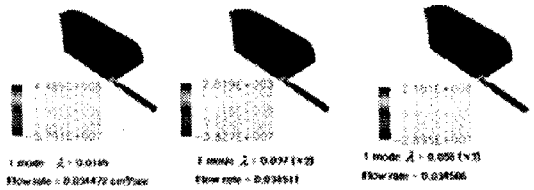


Fig.7 Die swells for flow rate at several modes

3.3 Pressure distribution

Fig.8 은 다양한 모드에서 Relaxation time 에 따른 Capillary die 에서의 압력분포를 보여주고 있다. 압력강하는 Reservoir 에서는 관찰되지 않고, Capillary die 를 지나면서 일어나기 시작한다. 모든 모드에서 Relaxation time 이 커질수록 압력강하가 줄어드는 것을 알 수 있다.



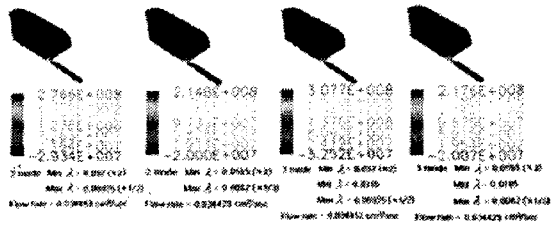


Fig.8 Pressure distribution for relaxation time at several modes

4. 결론

모든 Mode 에서 Relaxation time 이 클수록 고무의 팽윤양도 증가하였고 2modes 와 3modes 의 Min Relaxation time 과 Max Relaxation time 값이 같기 때문에 팽윤양도 거의 일치함을 알 수 있었다. 또한 PTT 모델에서 Multi modes 를 적용하여 해석한 결과 실제 실험에서 보이는 팽윤양과 비슷한 결과를 얻을 수 있었다. 본 연구를 통해서 PTT 모델은 Multi Modes 에서 Relaxation time 에 따라서 고무복합체에 대한 최적의 다이 팽윤양을 예측할 수 있음을 확인할 수 있었다.

참 고 문 헌

[1] 류민영, 2004.1, 스크류 압출기내에서 고무의 유동해석 및 Tire Tread 의 압출해석, 한국타이어 중앙연구소 연구보고서.

[2] R.B. Bird, R.C. Armstrong and O. Hassager, 1987, Dynamics of Polymeric Liquids, John Wiley & Sons, NY.

[3] A.S. Lodge, 1964, Elastic Liquids, Academic Press, NY.

[4] N. Sombatsompop, R. Dangtangee, 2001, Flow Visualization and Extrudeta Swell of Natural Rubber in a Capillary Rheometer: Effect of Eid/Barrel System, Journal of Applied Polymer Science, 82, 2525.

[5] C.D. Han, 1976, Rheology in Poymer Processing, Academic Press, NY.

[6] C.D. Han, 1971, J. Applied Polymer Science, 15, 1091.

[7] C.D. Han, 1971, AIChE J., 17, 1418

[8] C. D. Han, 1976, Rheology in Polymer Processing, Academic Press, NY.

[9] 2003, Polyflow V. 3.10, Polymat manual, Fluent Co.

[10] 2003, Polyflow V. 3.10, User's manual, Fluent Co.