

## 폐플라스틱 / 페타이어분말 복합체의 기계적 물성

홍 영 근

수원대학교 공과대학 신소재공학과

(2004년 10월 26일 접수, 2004년 12월 8일 수정 및 채택)

### Mechanical Properties of Plastic Waste / Ground Rubber Tire Composite

Young-Keun Hong

Department of Polymer Engineering, The University of Suwon

Suwon 445-743, Korea

(Received October 26, 2004, Revised & Accepted December 8, 2004)

**요 약 :** 혼합폐플라스틱과 페타이어분말을 혼합하여 복합체를 구성하고 그 기계적인 물성을 조사하였다. 수지-고무분말 사이의 계면접착력을 증대시키고자 두 요소와 친화성을 가질 것으로 예상되는 trans-octylene rubber(TOR)를 소량 첨가하였다. 고무분말의 투입량이 많아질수록 인장강도와 압축강도는 플라스틱자체보다 저하되었으며 파단신장률과 충격강도는 증가되었다. 상용 화제 TOR이 첨가되면 인장강도와 충격강도 및 압축강도는 크게 향상되었으나 신장률은 변화가 없었다. 이러한 물성의 변화는 TOR의 화학적인 이중성에 기인한다고 여겨진다.

**ABSTRACT :** Mechanical properties of the commingled waste plastics filled with ground rubber tire were studied. To improve adhesion at the interface, trans-octylene rubber(TOR) was added. With increasing the rubber level, first, due to their inherent incompatibility, the tensile and the compressive strength decreased but tensile strain and impact strength increased. Then, as TOR added, the samples showed still the same strain but the tensile, impact, and compressive strength as well increased markedly. Variation of the properties by addition of TOR seemed to be attributed to the dual character of TOR.

*Keywords :* composite, waste plastic, ground rubber tire, TOR

### I. 서 론

고분자 산업은 지난 30년간 비약적인 발전을 거듭하여 왔다. 미국의 통계를 보면 지난 1976년을 기점으로 고분자소재가 금속소재보다 그 사용량이 많은 것으로 되어있다. 국내에서도 이와 같이 고분자 소재의 주종인 플라스틱, 고무, 섬유가 금속 소재를 완전히 압도하고 있는 실정이다. 그러나 이 같은 고분자 산업의 고도성장은 그 만큼 많은 고

분자폐기물을 생산해내고 있다.<sup>1,2</sup>

플라스틱은 석유화학공업의 발전과 더불어 전세계적으로 그 생산량이 급증하고 있으며, 우리나라는 플라스틱 생산량이 세계4위국을 점유하고 있는 생산대국이다. 폐플라스틱의 발생량은 플라스틱의 사용량의 증가와 함께 현재 국민 1인당 연간 소비량은 약 70 kg에 달하는 것으로 추정되고 있다. 이와 같이 양산 및 소비되어지고 폐기되는 플라스틱의 양도 큰 폭으로 증가하고 있으며 매년 약 10% 이상씩 증가하고 있는 추세이어서 이의 재활용은 매우 중요한 과제이다.<sup>3</sup>

† 대표저자(e-mail : ykhong@suwon.ac.kr)

산업계에서 발생하는 폐플라스틱과 일반 가정에서 발생하는 폐플라스틱의 차이로서 산업계인 공장에서 발생하는 폐플라스틱은 대개 종류가 단일종이거나 또는 혼합되어 있더라도 수지의 종류가 확실하고 혼합 정도가 크지 않기 때문에 분리가 용이하여 재료로서의 재활용이 용이하다. 그러나 가정에서 발생하는 일반 폐플라스틱은 여러 가지 종류의 수지가 혼합된 채로 수거되므로 혼합된 폐플라스틱을 그대로 재활용하기 위해 용융시킨 후 재생 제품을 만들게 되면 서로 다른 플라스틱간의 비상용성에 의해 제품의 물성이 크게 저하되어 재활용이 어려워지게 된다. 그러므로 수거된 폐플라스틱을 분리 공정을 거쳐서 각각의 분리하여 재활용하여야 하는데 이는 선별단계를 거쳐야 하는 번거로움이 있기 때문에 장비를 필요로 하며 그만큼의 비용부담이 있다. 따라서 여러 가지 종류의 플라스틱이 섞여 있는 혼합 폐플라스틱을 분리 공정을 거치지 않고 적절한 상용화제를 이용한 직접적인 재료 재활용 제품의 제조가 필요하다.<sup>3</sup>

여기에, 최근 자동차 산업이 급속도로 발전하면서 페타이어 발생량이 급증하여 이에 대한 처리가 새로운 문제점으로 부상하였다. 페타이어를 그대로 방치하였을 경우 주변경관의 손상, 화재에 의한 피해 등의 환경문제를 더불어 적재공간의 확보의 어려움이 발생한다. 국내에서 페타이어를 재활용하고자 하는 연구<sup>4,6</sup> 와 실용 방법은 다양한 편이다. 현재 성행하고 있는 것은 가공이용중 재생타이어 제조용과 고무분말 가공용의 열이용의 시멘트 킬른과 건류소각용이며 원형이용은 매립장공사용과 수출용 등으로 이용되고 있다. 2001년도 페타이어 처리방법별 현황을 보면 가공이용이 15%, 열이용이 67%, 원형이용이 17%로 나타나고 있다.<sup>1</sup>

혼합폐플라스틱과 페타이어분말(ground tire rubber, GTR)을 기계적으로 동시에 재활용할 수 있다면, 그리고 그 물질(복합체)이 건축토목용 소재(예를 들어, 일반철도용 침목 또는 고속철도용 침목)로 쓰일 수 있다면 매우 유익할 것이다. 우리는 일찍이 페타이어분말을 이용하여 고속철도용 침목 재료를 제조하였다.<sup>7,8</sup> 그러나 페타이어분말만을 이용하면 압축과 열이 필요하다. 그러나 여기에 폐플라

스틱, 즉 열가소성 수지가 함께 사용된다면 압축과정과 압축시간이 배제되어 한결 빠른 제조가 가능할 것이다.

플라스틱과 고무와의 혼합에서, Roy<sup>9</sup>는 폴리에틸렌(high density polyethylene, HDPE) 과 GTR 블렌드에 탄소섬유를 혼입하여 복합체의 기계적 성질을 고찰하였는데 장축방향 물성은 크게 증가한 반면 단축방향 물성은 감소함을 보고하였다. HDPE와 GTR을 혼합함에 있어 두 성분간의 이질성을 극복하기 위해 고무분말의 표면에 결사슬을 달거나(grafting) corona 방전처리하거나<sup>10</sup> 또는 고분자물질을 상용화제로 사용하고 있다. Park<sup>11</sup>은 HDPE와 GTR을 혼합물에 EVA를 상용화제로 사용하여 계면접착을 향상시켰고, Lee<sup>12</sup>는 ethylene-acrylic acid 공중합체 등을 상용화제로 사용하고 있다.<sup>9</sup>

최근 Chang<sup>13,14</sup>은 가공소재로 이용되는 저분자량 고무의 일종인 trans-oxethylene rubber(TOR)을 NBR/EPDM, NR/iPP 블렌드에 첨가시킴으로써 고무의 혼화성을 증대시켜 미세모폴로지를 유도할 수 있으며, 첨가된 TOR은 가황반응에 참여함으로써 가교물의 기계적특성을 향상시킬 수 있다고 보고하였다.

본 연구는 페타이어를 재활용하여 부가가치를 높이고, 도시생활 폐플라스틱을 자원화한다는 목적으로 이 혼합폐플라스틱과 페타이어분말을 기계적으로 재가공하여 복합체를 만들어 고무의 성질과 플라스틱의 성질을 함께 갖는 열가소성 탄성체(thermoplastic elastomer)를 구현해 보고자 하는 첫 시도이다. 이에, 폐플라스틱과 고무분말간에 가교(linkage) 역할을 할 수 있을 것으로 기대되는 화합물(TOR)을 선택하여 이 화합물의 상용효과와 그에 따른 복합체의 물성변화를 알아보았다.

## II. 실험

### 1. 복합체 제조

폐플라스틱은 한국자원재생공사(사회공장)에서 선별되고 파쇄된 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리스티렌 및 장난감 등에 많이 쓰이는 ABS류를 구입하고(20만원/톤) 이들을 좀 더 작은 크기로 분쇄

(직경 1-2 mm)하였다. 이들을 재생공사에서 제시하는 혼합폐플라스틱의 원래 비율(수거될 때의 예상 혼합 비율)대로 무게비 6:2:1:1 되게 섞었다.

페타이어분말 역시 자원재생공사에서 구입하였으며(20만원/톤) 그 크기는 약 20 mesh이다. 상용화제로 쓰인 TOR은 국내 R사에서 구입하여 그대로 사용하였다.

폐플라스틱과 페타이어분말 모두 수분 제거를 위해 80℃ 오븐에서 24시간 건조 후 폐플라스틱과 페타이어의 조성을 95/5, 90/10, 85/15 80/20(폐플라스틱/페타이어분말, 무게비)으로 혼합(페타이어분말 비율이 20 이상이 되면 압출물의 표면이 좋지않았다)하고 이들을 twin-screw extruder(screw width = 50 mm, screw length = 955 mm)를 통하여 판상의 압출물을 얻었다. 이때 die 온도는 180℃, cylinder1,2,3 온도는 185℃, head 온도는 180℃이었으며 screw 회전속도는 220 rpm이었다.

2. 물성 측정

만들어진 압출물을 톱으로 썰어 박편(flakes)을 만들고 여기에 TOR을 폐플라스틱/페타이어분말 모든 조성에 0.5, 1, 2, 3, 5(wt%)씩 첨가하여 Mini-Max molder(BAUTECH)에 넣고 열(175℃)을 가하며 인장시험방법 ASTM D-638과 충격시험방법 D-256에 따라 인장시편과 충격시편을 제조하였다.

제조된 인장시편은 만능시험기(LLOYD)를 사용하여 인장속도 50 mm/min으로 인장하여 인장강도와 파단신장률을 열 번 측정하고 평균값을 구하여 물성값으로 취하였다.

제조된 충격시편은 충격강도시험기(Tinus Olsen Willow)를 사용하여 시편의 중간에 새김눈(notch)을 준 Izod 충격시험법으로 75 kg·cm의 추의 힘으로 충격하여 충격강도를 열 번 측정하고 평균값을 구하여 물성값으로 취하였다.

복합체 내부조직을 관찰하기 위하여, 충격실험이 끝난 시편의 파단면을 주사전자현미경(SEM, JEOL)을 사용하여 조사하였다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

혼합폐플라스틱과 페타이어분말로 구성된 복합체를 압출하고, 다시 이에 TOR을 첨가하여 시험시편을 제조하고 인장강도, 파단신장률, 충격강도를 측정하여 그 결과를 고찰하였다. 실험 결과를 아래 그림에 나타내었다. 혼합폐플라스틱에 페타이어분말만을 첨가한 모든 조성에서 고무분말의 함량에 따라 인장강도는 낮아졌으며(Figure 1) 신장률과 충격강도는 증가하였다(Figure 2, 3). 이는 페타이어분말이 폐플라스틱안에서 이물질로 작용하여 플라스틱 고분자사슬간의 끌어당기는 힘(attractive force)을 와해시킴과 동시에 페타이어분말의 고무적 탄성으로 인한 결과로 사료된다.

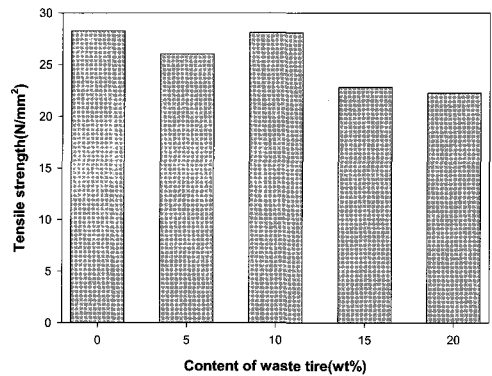


Figure 1. Tensile strength of waste plastic/waste tire composites.

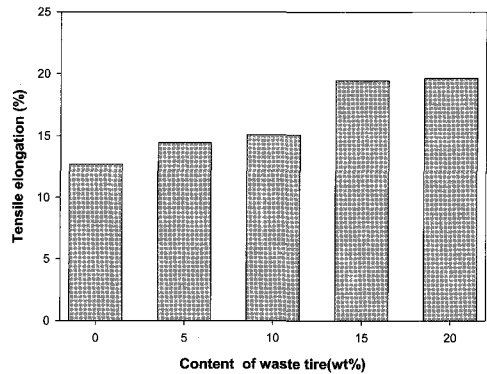


Figure 2. Tensile elongation of waste plastic/waste tire composites.

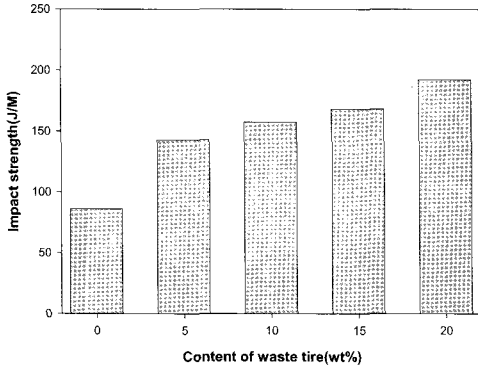


Figure 3. Impact strength of waste plastic/waste tire composites.

TOR의 첨가는 인장강도에 매우 유효한 것으로 나타났다(Figure 4). TOR의 첨가에 따라 모든 조성에서 인장강도는 향상되었다. 특히 페타이어분말 10%, TOR이 3% 첨가되었을 경우 시험범위내에서 최고 34.74 N/mm<sup>2</sup>를 나타내어 TOR이 첨가되어 있지 않은 경우(28.10 N/mm<sup>2</sup>)에 비하여 24%의 증가를 나타내었다.

충격강도는 그 물질의 단성 또는 유연성의 크기를 나타낸다. Figure 6에서 보면 폐플라스틱과 페타이어분말간의 상용성(계면접착성)은 그리 좋아 보이지 않는다. 그러나 페타이어분말이 20% 포함되었을 때 TOR이 조금(0.5%) 첨가되어도 충격강도는 큰 폭(100%)으로 증가되었다. 특히 TOR이 3 wt%가 첨가되었을 때 가장 큰 충격강도(555.5 J/m)를 나타내고 있음을 알 수 있다. 이는 비상용성이던 폐플라스틱과 페타이어분말 성분간의 계면이 TOR 첨가로 인해 강화되었음을 뜻하고 있다.

혼합폐플라스틱에서 화학구조상의 차이에 근거를 둔 성분간의 비상용성으로 인하여 계면접착력이 약할 경우 기계적 물성 중 내충격성이 가장 큰 영향을 받는다. 즉, 혼합폐플라스틱에 외부의 충격이 가해지면 성분간의 약한 계면을 따라 재료가 파괴되어 나가기 때문에 내충격성이 낮아지게 된다. 따라서 충격강도의 크기는 혼합폐플라스틱 응용에서 주요한 지표가 되며, 충격강도가 향상되었다는 것은 성분간의 계면이 강화되었음을 뜻하게 되므로 바로 물성의 향상을 뜻한다.

혼합고분자 물질에 있어서 혼합된 2종 이상의 수지 성분들이 서로 약간의 혼합이 일어나는 정도의 친화성을 갖고 있어 여러 상(相)이 존재하며 상의 계면에서 상호 결합이 있을 때에 단일 수지에 비해서 충격강도가 크게 향상된다고 알려지고 있다.<sup>15</sup>

페타이어분말과 TOR이 소량 첨가되었을 때 큰

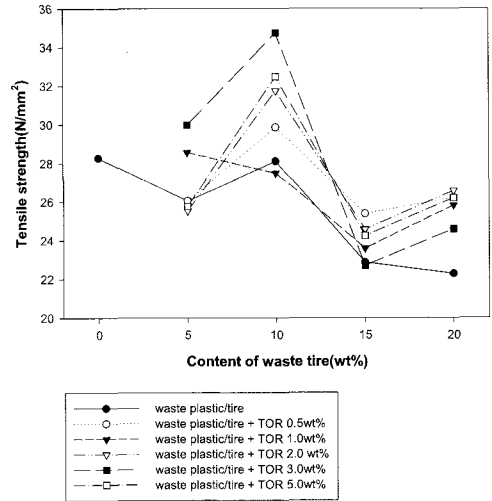


Figure 4. Tensile strength of waste plastic/waste tire/TOR.

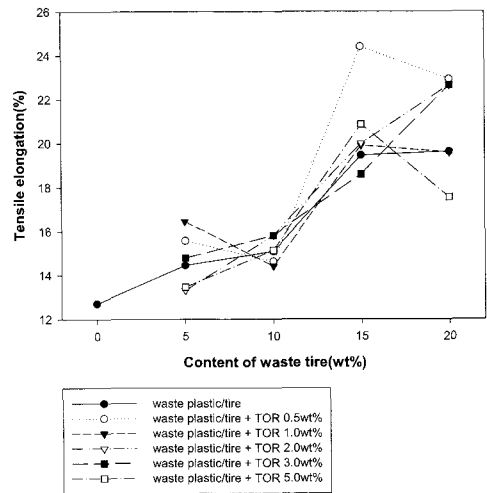


Figure 5. Tensile elongation of waste plastic/waste tire/TOR.

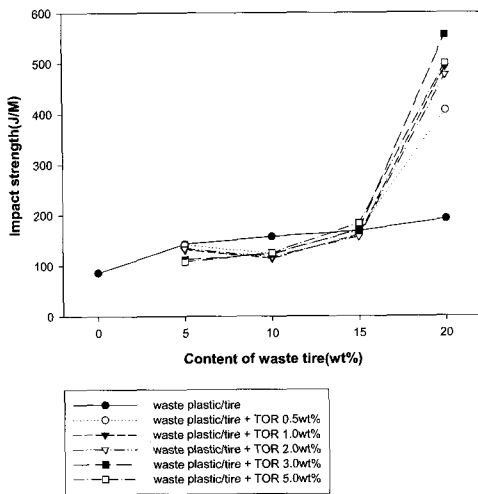


Figure 6. Impact strength of waste plastic/waste tire/TOR.

충격강도를 나타내었다는 것은 TOR의 한쪽인 알킬기는 비극성의 여러 수지성분들을 반데르발스 힘으로 붙잡고, 다른 한쪽인 C=C 이중결합은 페타이어분말 표면의 고무고분자(예를 들면, 폴리이소프렌 또는 스티렌-부타디엔 공중합체)에 매달려 있는 황과 결합하여 결사슬로 작용하여 페타이어분말의 분산성을 높이고 복합체에 유연성을 부여한 것으로 여겨진다.

그러나 TOR은 복합체의 파단신장률에는 별 영향을 주지 못하였다(Figure 5). TOR은 복합체의 연속상을 이루는 플라스틱 고분자들과는 상호작용(interaction)이 없어 플라스틱 고분자들끼리의 잡아당김에는 별 작용을 못하고 있는 것으로 여겨진다. 따라서, 현 조성에서 열가소성 탄성체의 신장성을 구현하기 위해서는 다른 수단이 필요해 보인다. 다른 연구에서, 페타이어분말표면을 가소화시키거나<sup>16</sup> 또는 EPDM 등의 고무류를 첨가하여<sup>17</sup> 신장률을 크게 높혔다는(150%이상 증가)는 보고가 있다.

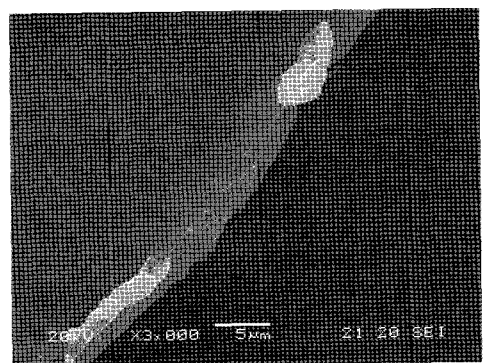
결과적으로, 페타이어분말이 20%이고 TOR이 소량 첨가되었을 때 신장률에는 별 효과가 없었고 그 대신 인장강도와 충격강도는 크게 상승하였다. 이는 고무분말이 20%이상 포함되어야 외부 압력(stress 또는 impact)을 어느 정도 흡수할 수 있음을 가리킨다. 다른 연구<sup>12</sup>에서도 페타이어분말이 20%

이상 포함되었을 때 급격한 충격강도 상승을 보였다. 일반적으로, 플라스틱의 경우 인장강도가 높으면 충격강도가 낮고, 반대로 인장강도가 낮으면 충격강도가 높아지는 특성을 갖는다.<sup>18</sup> 따라서, 인장강도와 충격강도를 동시에 끌어 올릴 수 있는 TOR은 혼합페플라스틱체제에서 매우 유효한 상용화제로 여겨진다.

Figure 7(a)는 페플라스틱과 페타이어분말만의 복합체 충격시편 파단면 사진으로서, 페플라스틱과 페타이어분말 두 상간의 상호작용이 약하여 두 상이 분리되어 있음을 볼 수 있다. 반면에, TOR이 첨가된 시편(Figure 7(b))에서는 두 상간의 계면접착이 충분히 이루어졌음을 보여주고 있다. 이는 비상용성이던 두 성분간의 계면이 TOR에 의해 강화



(a)



(b)

Figure 7. SEM fractographs of impact fracture surface of : (a) waste plastic/waste tire(80/20) (b) waste plastic/waste tire/TOR 3wt%(x3000)

되었음을 뜻하며, 이는 또한 바로 충격강도 등의 기계적 성질의 향상을 나타낸다.

폐플라스틱에 페타이어분말만을 첨가한 혼합물의 압축강도는 페타이어의 함량이 높아질수록 저하되었다(Figure 8). 인장강도 감소와 같은 경향을 나타내는 현상은 폐플라스틱과 페타이어분말간의 완벽한 비친화성으로 풀이될 수 있겠다.

그러나 TOR을 첨가하였을 경우 전체적인 압축강도의 증진을 보였다(Figure 9). 특히 TOR의 첨가량이 3%이상일 때 압축강도는 더욱 크게 증가(최고 140.14 N/mm<sup>2</sup>)하였다. 이는 TOR 첨가로 인해 폐플라스틱과 페타이어분말 상간의 계면접착력의 증가에 기인함을 가리키고 있다. 보통, 철도용 침목(rail-tie)으로 요구되는 물성은 압축강도로서 일반철도용 침목으로는 35 N/mm<sup>2</sup>가 요구되고 고속

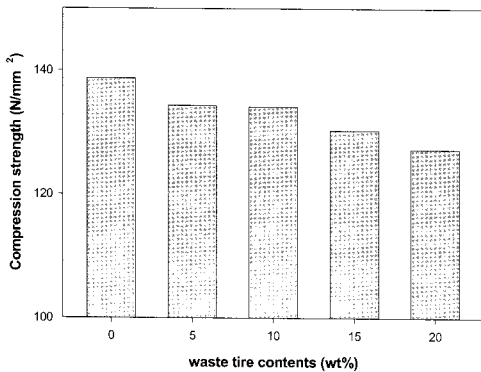


Figure 8. Compressive strength of waste plastic/waste tire composites.

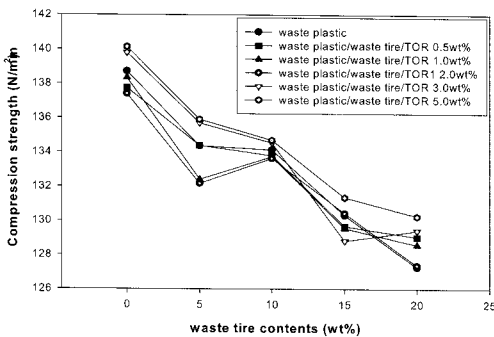


Figure 9. Compressive strength of waste plastic/waste tire/TOR.

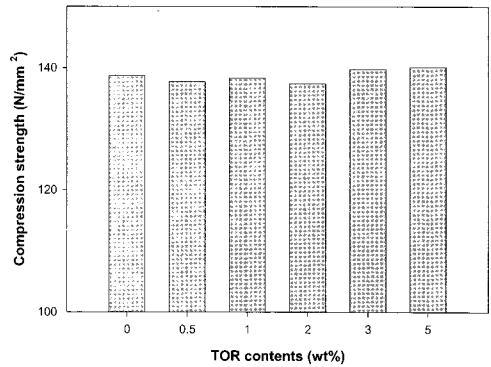


Figure 10. Compressive strength of waste plastic (without waste tire).

철도용 침목으로는 65 N/mm<sup>2</sup>가 요구되고 있다. 본 복합체는 이 요구치를 크게 상회하고 있다.

그러나, Figure 10에서와 같이 폐플라스틱만에 TOR을 첨가된 시료에서는 TOR의 유무, 또는 함량에 상관없이 압축강도가 거의 일정한 것으로 보아 TOR은 플라스틱과 고무사이에서 유효한 상용화제로 작용함을 알 수 있으며 또한 이는 TOR의 화학적인 구조와 크게 연관되어 있음을 알 수 있다.

#### IV. 결 론

점차 증대되고 있는 플라스틱 폐기물을 자원화하기 위하여 기계적인 방법을 동원하여 가정한 혼합폐플라스틱에 페타이어분말을 혼입하고 TOR을 상용화제로 첨가하여 복합체를 형성하고 이의 기계적 성질을 알아보았다. 본 연구를 통하여 다음과 같은 결론을 내릴 수 있었다.

- 혼합폐플라스틱에 페타이어분말만을 첨가하였을 경우, 고무분말은 복합체의 충격 강도와 파단신장률은 증가시켰으나 인장강도와 압축강도는 저하하였다. 이는 플라스틱과 가황된 고무간의 비친화성을 가리킨다.
- 혼합폐플라스틱/페타이어분말에 TOR을 첨가하였을 경우, TOR은 신장률에는 별 영향을 주지 못했지만, 압축강도는 약간 증가시킨 반면, 인장강도와 충격강도는 크게 향상시켰다. 인장강도는 페타이어분말이 10%, TOR이 3% 첨가되었을 때

가장 높은 수치(34.74 N/mm<sup>2</sup>)를 나타냈고, 충격 강도는 페타이어분말이 20%, TOR이 3% 포함되었을 때 가장 높은 수치(555.5 J/m)를 나타내었으며, 압축강도는 TOR이 3% 첨가되었을 때 가장 높은 수치(140.14 N/mm<sup>2</sup>)를 나타내었다. 이는 페플라스틱 활용에서 가장 중요한 물성인자인 내충격성을, 페플라스틱자체만(86.0 J/m)으로 비교해 보았을 때 546.0% 향상되었음을 의미한다. 강도의 향상에서 TOR은 페플라스틱과 페타이어 분말간의 유효한 상용화제로 작용하였음을 가리킨다.

- TOR에 의한 강도증가는 TOR의 구조가 탄소 7개로 구성된 알킬기와 C=C 이중 결합으로 구성된 데에 기인한 것으로 여겨진다.

### 감사의 글

본 연구는 수원대학교 환경청정기술연구센터의 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

### 참고 문헌

1. 페타이어를 재활용한 건설재료 및 신공법 기술개발에 관한 연구, 한국자원재생공사, 2001.
2. 전국 폐기물 발생 및 처리 현황, 환경부, 2000.
3. 페플라스틱 재활용 문제점과 개선방안, 산업자원부 기술표준원 자원재활용 기술개발센터, 1999.
4. J-K Kim, S.-H. Hwang, J.-H. Jung and S.-Y. Park, "A Study on Recycling Technology of Waste Tire Powder", *Elastomer*, **38**, 128 (2003).
5. K-H Chung and Y-K Hong, "Study on Elastic and Permeable Pavement using Scrap Tire", *Elastomer*, **33**, 290 (1998).
6. K-H Chung and Y-K Hong, "Friction and Wear of Friction Material from Scrap Tire" *Elastomer*, **36**, 3 (2001).
7. K-H Chung and Y-K Hong, "Behavior of Rubber Concrete", *J. Appl. Polym. Sci.*, **72**, 35 (1999).
8. K-H Chung and Y-K Hong, US Patent, 5621037, 1997.
9. 페타이어 재활용을 통한 건설 신소재 개발에 관한 연구, 한국자원재생공사, 1998.
10. C-K Hong and A. I. Isayev, "Application of High-Power Ultrasound to Rubber Recycling", *Elastomer*, **38**, 103 (2003).
11. J-L Park, J-K Kim, and S-K Lee, "Study on HDPE/GTR Composite for Waste Tire Recycling", *J. Korea Solid Wastes Engineering Society*, **15**, 1 (1998).
12. S-J Lee, "Mechanical Properties of Composites of HDPE and Recycled Tire Crumb", *Elastomer*, **36**, 22 (2001).
13. Y-W Chang, and Y. Shin "Effect of TOR on the Properties of NBR/EPDM Blends", *Elastomer*, **35**, 149 (2000).
14. Y-W Chang, Y. Yang and C. Nah "Effect of TOR on the Properties of NR/iPP Blends", *Elastomer*, **36**, 188 (2001).
15. A. V. Tobolsky, "Properties and Structure of Polymers", John Wiley and Sons, New York, 1962.
16. A. K. Naskar and A. k. Bhowmick, "Thermoplastic Elastomers from Reclaimed Rubber", *J. Appl. Polym. Sci.*, **83**, 2035 (2002).
17. Y. Li, Y. zhang, and Y. Zhang, "Mechanical Properties of High-Density Polyethylene/Scrap Rubber Powder Composites modified with ethylene-propylene-diene terpolymer, dicumyl peroxide, and silicone oil", *J. Appl. Polym. Sci.*, **88**, 2020 (2003).
18. D.W. Van Krevelen, "Properties of Polymer", p.423, Elsevier, New York, 1990.