[논문] 한국소성가공학회지, 제 16 권 제 4 호, 2007
Transactions of Materials Processing, Vol.16, No.4, 2007

고무복합체의 모세관 압출에서 비선형 점탄성 모델의 적용

최성현[1], 류민영[#]

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

S. H. Choi, M.-Y. Lyu

(Received May 10, 2007)

Abstract

Rubber compounds have high viscoelastic property. One of the viscoelastic behaviors during profile extrusion is the swelling of extrudate. In this study, die swells of rubber compounds at the capillary die have been investigated through experiment and computer simulation. Experiments and simulations have been performed using fluidity tester and commercial CFD code, Polyflow respectively. Die swells of rubber compounds in a capillary die were predicted using non-linear differential viscoelastic model, Phan-Thien-Tanner(PTT) model for various relaxation times and relaxation modes. The results of simulation were compared with the experiments. Pressure and velocity distribution, and circulation flows at the corner of capillary die have been investigated through computer simulation. It is concluded that the PTT model successfully represented the amount of the die swell of rubber compounds for various relaxation times 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 공압출로 단축 스크류 압출기와 핀 배럴 압출기를 통해 여러 고무소재가 이송되고 압출기 끝에 있는 다이를 통과함으로써 소정의 형상을 얻는다. 고무와 같이 점 탄성의 성질이 매우 큰 물질은 메모리현상을 보이기 때문에 다이를 빠져 나갈 때 소재가 어떠한 경로를 거쳐 왔는가에 따라 보이는 탄성의 정도, 즉 스웰의 정도가 다르다[1~3].

타이어 압출 시 소재는 다이에서 점 탄성 특성 때문에 다이의 형상대로 고무가 압출되지 않고 스웰(die Swell 또는 Extrudate Swell)하게 된다[4~7]. 이런 스웰 현상은 재료와 다이의 형상에 따라서 다르게 나타나지만 같은 소재라 할지라도 토출량(전단변형율속도), 이완시간, 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 다이에서 고무 복합체의 거동에 대해 분석하였다. 실험에서는 Fluidity Tester를 사용하여 모세관 다이에서 소재가 보이는 팽윤량을 측정하였다. 해석에서는 실험과 동일한 조건으로 Fluent社의 상용 CFD(Computational Fluid Dynamics)프로그램인 Polyflow를 사용하여 점 탄성 해석을 하였으며 이완시간을 설정하는 방법과 모드 수에 따라 소재가 보이는 팽윤량을 예측하였다[9~11].

1. 서울산업대학교 대학원
교신저자: 서울산업대학교 금형설계학과, mylyu@snut.ac.kr

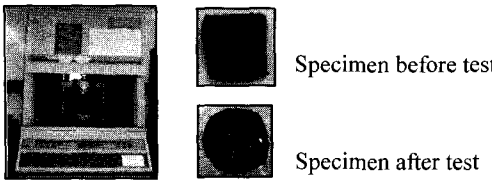

Fig. 1 RPA 2000 (Rubber process analyzer)

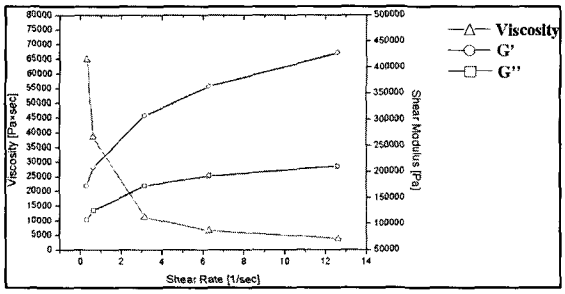

Fig. 2 Material properties of C3 for shear rate

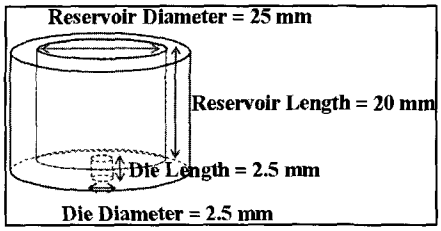

Fig. 3 Geometry of reservoir and capillary die

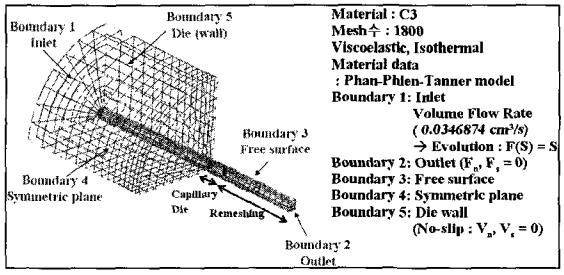

Fig. 4 Boundary conditions for simulation

2. 실험과 해석

2.1 재료의 물성 실험 및 압출 시험

Fig. 1 은 Monsanto 사에 RPA 2000(Rubber process analyzer)을 보여주고 있다. RPA 2000 는 재료에 전단변형을 주어 재료의 진동수나 전단변형율 속도에 따른 G'(저장탄성계수)와 G"(손실탄성계수), 그리고 점도를 측정하는 기계이다. 주로 미가류 고무 및 가류 고무의 물성을 측정하는데 사용되고 다양한 온도, 전단변형율속도, 그리고 진동수에서 작동한다. Fig. 2 는 온도가 110℃일 때 고무복합체 C3 가 전단변형율속도에 따라 보이는 점도, G', 그리고 G"을 나타내고 있다.

Fig. 3 는 Fluidity Tester 의 구조를 보여주고 있다. Fluidity Tester 는 Reservoir 와 모세관 다이로 구성되어 있다. Reservoir 에 고무를 넣고 플런저를 이용하여 일정 압력으로 누르면 고무는 모세관 다이를 빠져 나온다. Reservoir 의 직경과 길이는 각각 25mm 와 20mm 이고, 모세관 다이의 직경과 길이는 2.5mm 로 같다. 실험에서는 고무를 Reservoir 에 넣고 온도를 약 110℃로 유지시키면서 플런저에 일정한 하중을 주어 고무를 모세관 다이를 통해 압출하였다. 고무가 압출되면서 스웰 되는 양을 레이저를 이용하여 측정하였다.

2.2 압출의 컴퓨터 모사

2.2.1 유한요소 해석모델링 및 경계조건

Fig. 4 는 모세관 다이 해석의 경계조건을 나타낸 것으로 대칭이기 때문에 1/4 만 모델링 하였고 점탄성, 등온으로 해석하였다. 입구 부(Boundary1)에는 체적 토출량를 적용하였고, 출구 부(Boundary 2)에는 Outflow 조건을, 압출물 표면(boundary3)은 Free Surface 조건을, 대칭면(Boundary4)에는 Symmetry 조건을, 다이면(Boundary5)에는 No-slip 조건을 사용하였다. 또한 Remeshing 영역은 Polyflow 에서 제공하고 있는'Optimesh'기법을 사용하여 계산하였다.

2.2.2 점탄성 모델

모세관 다이에서 고무복합체의 거동을 해석하기 위해 비선형 미분 점탄성 모델인 Phan-Phien-Tanner(PTT)를 사용하였다. 식 (1)은 PTT 모델을 보여주고 있다.

$$T = T_1 + T_2 \tag{1a}$$

$$T_2 = 2\eta_2 D \tag{1b}$$

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

총 응력은 T_1과 T_2의 합으로 계산된다. T_1는 점탄성 부분 이고 T_2 는 점성 영역이다. η_1 는 점탄성

부분의 전단점도 인자, η_2 는 점성 부분의 전단점도 인자, ε 는 재료의 인장유동조절 파라미터, λ 는 이완시간, ξ 는 전단점도의 조절 파라미터이고, D 는 변형율이다. Table 1 은 실험으로 측정한 물성 Data 이다. 이 Data 를 Curve Fitting 하여 관련된 변수들을 계산하였다.

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

2.2.3 이완시간 설정 방법

Curve fitting 을 할 때 이완시간을 입력해야 하는데 이완시간을 어떻게 설정하는 것에 따라 소재의 팽윤양이 다르게 나타난다. 따라서 점탄성 해석에서 이완시간을 설정하는 것이 중요하다. 이완시간을 설정하는 방법은 2가지가 있다. 첫번째 방법은 Polyflow 에서 제공하는 Polymat 이란 프로그램을 사용하여 이완시간을 임의로 설정하고 Curve fitting 한 후 G'과 G"에 교차점 부분에서의 Shear rate 를 구한다. 그리고 그의 역수를 이완시간으로 한다. Fig. 5는 고무복합체 (C3)에 Phan-Phien-Tanner (PTT) 모델을 적용하여 Curve fitting 하였을 때 보이는 전단변형율속도에 따른 점도와 G'와 G"를 보여주고 있다. 하지만 G'과 G"의 교차점 부분에 전단변형율속도를 정확히 알 수 없을 뿐만 아니라 실제 모세관 다이에서 적용되는 전단변형율속도에 해당하는 이완시간값이 아닐 수 있다. 두 번째 방법은 모세관 다이를 비뉴튼 등온 조건으로 해석을 하여 모세관 다이내에서 평균 전단변형율속도를 구하는 방법이다. Fig.6는 비뉴튼 등온 해석에서의 모세관 다이내에서 평균 전단변형율속도를 보여주고 있다. 비뉴튼 해석의 경우 RPA 2000을 통해 측정된 전단변형율속도에 따른 점도 값을 Power Law 모델을 적용하여 Curve Fitting 하였다. 식 (2)은 Power law 모델을 보여주고 있다.

$$\eta = K(\lambda\gamma)^{n-1} \qquad (2)$$

상수 (K)=0.2676375E+6, 시간 λ=1, Power-law Index(n)=0.2327767 가 적용되었다. 비뉴튼 해석결과인 모세관 다이내에서 평균 전단변형율속도를 가지고 역수를 취해 이완시간을 0.0185[sec]로 설정하였다. 따라서, 두 번째 방법이 첫 번째 방법보다는 모세관 다이 내에서 적용되는 전단변형율속도에서 이완시간을 구할 수 있기 때문에 이 방법을 사용하여 해석을 하였다.

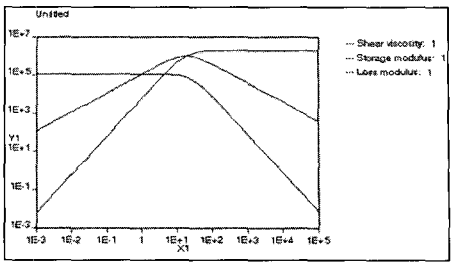

Fig. 5 Curve fitting for compound C3 using PTT model

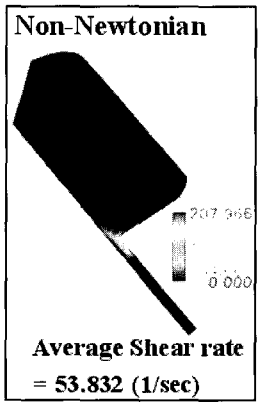

Fig. 6 Shear rate distribution in capillary die

2.2.4 다양한 모드에서 이완시간에 따른 해석

한 모드에서 이완시간을 앞 절에서 구한 0.0185 [s]을 기준으로 설정하고 기준조건에서 2배, 3배로 이완시간을 증가 시켜가며 해석하였다. 두 모드에서는 기준 이완시간을 0.0185[s]에서 하나는 2배, 1/2배로 하고 다른 하나는 3배, 1/3배로 해서 각각 최대 이완시간과 최소 이완시간을 설정하여 해석하였다. 세 모드에서는 기준 이완시간 0.0185[s]를 중간 이완시간으로 설정하고 각각 2배, 1/2배와 3배, 1/3배로 해서 각각 최대 이완시간과 최소 이완시간을 설정하여 해석하였다. Table 2에 각 모드에서 이완시간과 Curve Fitting 을 하여 구한 PTT 모델의 파라미터가 나타나있다.

3. 실험결과 및 해석결과

3.1 고무복합체의 팽윤양

Table 3는 Fluidity Tester 를 사용하여 팽윤양을 측정한 결과를 보여주고 있다. 평균 토출량이 0.01cm^3/sec 일 때 평균 스웰량은 1.287로 약 29% 정도 스웰 되었다.

Table 2 Parameters in the PTT model after curve fitting for compound C3 for 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 = 0.5774643E-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

Table 3 Die swells using fluidity tester

Comp'd	TEMP [℃]	K_{pi}	FD(Vol) [mm^3]	SEC	D (Final Die Diameter) [mm]	d_j (Swelling Diameter) [mm]	Flow Rate (cm^3/sec)	d_j/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	1119.159375	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 모델에서 스웰양 예측

Fig. 7 은 다양한 모드에서 토출량에 따른 스웰량을 이완시간에 따라 보여주고 있다. 모든 모드에서 이완시간이 증가 할수록 스웰량이 증가 함을 알 수 있다. 한 모드에서 이완시간이 1 배, 2 배로 증가될 때는 토출량이 증가할수록 스웰양도 증가하다가 어느 시점의 토출량를 지나서는 완만한 스웰량을 보인다. 그러나 이완시간이 세배로 증가될 때는 토출량이 증가할수록 스웰량도 계속 증가함을 알 수 있다. 이는 이완시간이 세배로 커질 때 탄성의 성질이 커지기 때문에 스웰량도 계속 증가한다고 판단

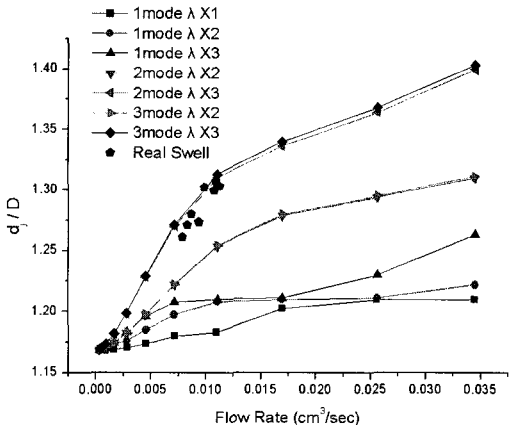

Fig. 7 Die swells for flow rate at several modes

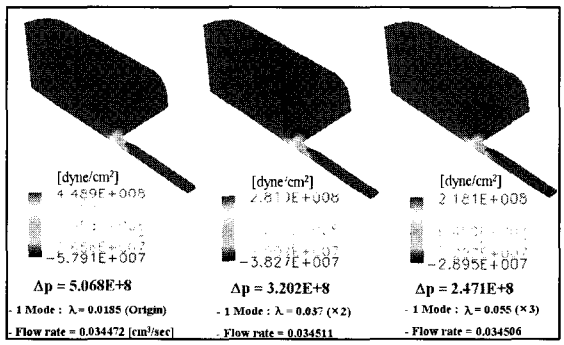

Fig. 8 Pressure distribution for relaxation time at one mode

된다. 두 모드와 세 모드 에서는 최대와 최소 이완시간의 범위가 같았기 때문에 유사한 스웰량을 나타내었다. 두 모드와 세 모드에서 이완시간을 3 배, 1/3 배로 설정한 조건이 Fluidity tester 실험에서 측정한 스웰량과 가장 비슷하였다.

3.3 압력분포 모사

Fig. 8 은 한 모드에서 이완시간이 각각 한배(기준), 두배, 세배인 경우에 모세관 다이에서의 압력분포를 보여주고 있다. 압력강하는 Reservoir 에서는 관찰되지 않고, 모세관 다이 입구를 지나면서 일어나기 시작한다. 또한 이완시간이 한배에서 세배로 커질수록 압력강하가 5.068E+8 에서 2.471E+8 으로 줄어드는 것을 알 수 있었다. 이런 현상은 재료의 탄성의 성질이 커져서 즉 점성의 성질이 작아져 재료가 흐를 때 전단의 양이 적어져서 압력손실이 줄었기 때문이라고 사료된다. 두 모드와 세 모드에서도 같은 경향을 보였다.

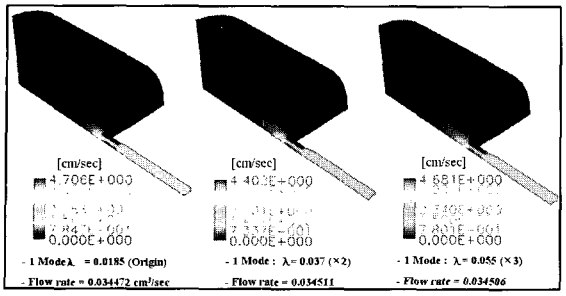

Fig. 9 Velocity distribution for relaxation time at one mode

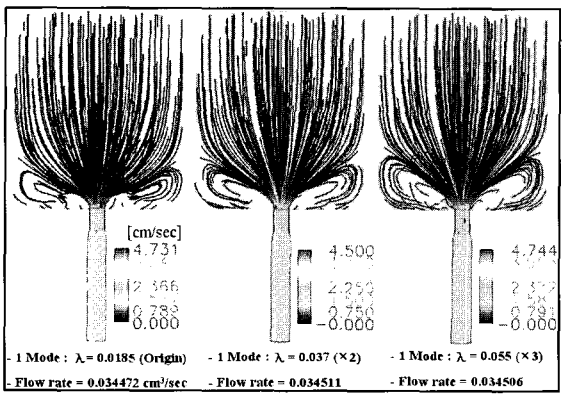

Fig.10 Circulation flow for relaxation time at one mode

3.4 속도분포 모사

Fig. 9는 한 모드에서 이완시간에 따른 모세관 다이에서의 속도분포를 보여주고 있다. Reservoir입구에서 적용된 유량에 비해 Reservoir의 단면적이 매우 커서 속도는 느리지만, 모세관 다이 입구로 접근할수록 다이의 단면적이 작아 속도가 증가함을 알 수 있다. 최고 속도는 모세관 다이 중앙에서 나타난다. 재료가 다이를 나와 스웰 되면서 균일한 속도를 보인다. 두 모드와 세 모드에서도 같은 경향을 보였다. 또한 이완시간이 0.0185(기준)일 때 토출량은 가장 작지만 모세관 다이에서 최고 속도를 보이고 있다. 그러므로 이완시간에 따라서 속도 분포가 달라지고 있음을 알 수 있다.

3.5 Reservior에서 Circulation Flow의 모사

Fig. 10 는 한 모드에서 이완시간에 따른 Reservoir 모서리에서의 Circulation Flow 를 보여주고 있다. Circulation Flow 는 점탄성 현상을 나타내는 거동 중의 하나이다. 이완시간이 커질수록 재료의 점탄성 특성 중에 탄성의 성질이 증가하여 Reservoir

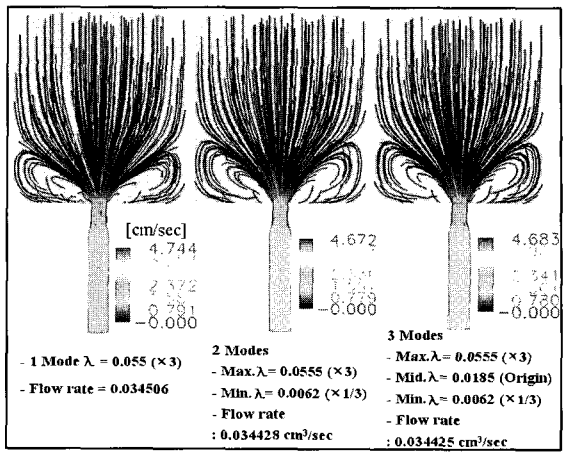

Fig.11 Circulation flow for several modes at same relaxation time

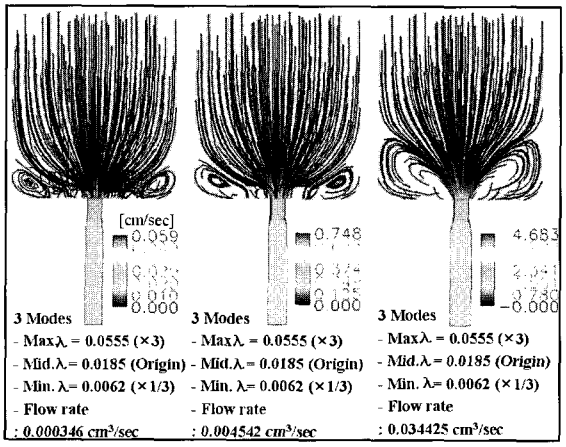

Fig.12 Circulation flow at the corner of reservoir

코너에서의 Circulation Flow 가 증가하는 것을 볼 수 있다.

Fig. 11는 최대 이완시간이 같을 때 다양한 모드에 따른 Reservoir 코너에서의 Circulation Flow를 보여주고 있다. 한 모드 보다 두 모드 와 세 모드일 때 Reservoir 모서리에서의 Circulation Flow가 증가하는 것을 볼 수 있다.

Fig. 12는 세 모드에서 이완시간이 같을 때 토출량에 따른 Circulation Flow 를 보여주고 있다. 토출량이 증가 할수록 재료의 점탄성 특성 중에 탄성의 성질이 증가하여 모서리에서의 Circulation Flow 는 증가한다. 다시 말하면, 탄성의 성질은 전단변형율 속도에 크게 의존하기 때문에 전단변형율속도가 증가하면 Circulation Flow 도 증가함을 알 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 고무 복합체의 점탄성 거동을 PTT 모델을 이용하여 수치 모사를 하였으며 계산된 스웰량을 실험값과 비교하였다.

PTT 모델에서 두 모드와 세 모드에 이완시간을 기준보다 3배 적용하여 해석한 결과와 실제 실험에서 측정된 스웰양은 비슷한 결과를 보였다. 토출량에 따른 영향을 보면 토출량이 증가할수록 스웰량과 Circulation Flow는 증가하였고, 이완시간에 따른 영향을 보면 이완시간이 증가할수록 스웰량과 Circulation Flow는 증가하였으나, 압력강하는 줄어들었다. 그리고 이완시간에 따라서 속도 Profile이 달라짐을 알 수 있었다. 또한 모드 수에 따른 영향에서는 모드 수가 증가할수록 팽윤량과 Circulation Flow가 증가함을 알 수 있었다.

본 연구에서 올바른 팽윤량을 예측하기 위해서는 적절한 이완시간과 모드 수의 선정이 필요함을 알 수 있었고, PTT 모델에서 두 모드와 세 모드에서 이완시간에 따라서 고무복합체에 대한 최적의 다이 스웰양을 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, 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] 류민영, 2006, Computer Simulation of Viscoelastic Flow in a Capillary 다이 for Rubber Compounds, Elastomer Vol. 41, No. 4, pp. 223~230.

[10] 2003, Polyflow V. 3.10, Polymat manual, Fluent Co.

[11] 2003, Polyflow V. 3.10, User's manual, Fluent Co.