

## 초음파 처리와 분말 크기가 재생 폴리프로필렌/페타이어 분말 복합체의 기계적 특성에 미치는 영향

김동학 · 김성길 · 이민지 · 박종문\* · 오명훈\* · 김봉석\*\* · 김진국\*\*\* · †방대석

금오공과대학교 에너지융합소재공학부, \*금오공과대학교 신소재공학부,  
\*\*(주)씽크루트, \*\*\*경상대학교 나노신소재융합공학과

### Effects of Ultrasonic Treatment and Particle Size on Mechanical Properties of Waste Polypropylene/WGRT Composites

Donghak Kim, Seonggil Kim, Minji Lee, Jong-Moon Park\*, Myung-Hoon Oh\*\*,  
Bong-Suk Kim\*\*, Jinkuk Kim\*\*\* and Daesuk Bang†

School of Energy and Integrated Materials Engineering, Kumoh National Institute of Technology,  
61 Daehak-ro, Gumi, Gyeongbuk 730-701, Korea

\*School of Materials Science and Engineering, Kumoh National Institute of Technology, 61 Daehak-ro, Gumi,  
Gyeongbuk 730-701, Korea

\*\*Thinker route Co., LTD, Cheomda 1-ro, Gumi, Gyeongbuk 730-701, Korea

\*\*\*Department of Materials Engineering and Convergence Technology, Gyeongsang National University,  
501 Jinju-daero, Jinju, Gyeongnam 660-701, Korea

#### 요 약

본 연구에서는 초음파 처리가 die에 장착된 일축 스크류식 압출기를 이용하여 다양한 크기의 페타이어 분말을 탈황시켰고, 치합형 이축 스크류식 압출기를 이용하여 재생 폴리프로필렌/탈황된 페타이어 분말 복합체를 제조하였다. 40, 80, 140 mesh 크기의 탈황되지 않은 페타이어 분말과 탈황된 페타이어 분말의 가교밀도와 탈황도를 계산하였고 각각의 기계적 특성을 비교하였다. 또한, 재생 폴리프로필렌과 탈황 전과 탈황 후의 페타이어 분말 복합체에 대한 상용화제 SEBS-g-MA의 효과를 조사하였다. 가교밀도는 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 감소하였다. 반면에 탈황도는 작은 크기의 페타이어 분말이 첨가될수록 증가하였다. 탈황된 페타이어 분말이 첨가된 복합체의 인장강도, 충격강도, 신장률은 탈황되지 않은 페타이어 분말이 첨가된 복합체보다 크게 증가했으며 첨가된 페타이어 분말의 크기가 작을수록 복합체의 기계적 특성이 더욱 향상되었다. 재생 폴리프로필렌과 탈황 전과 탈황 후의 페타이어 분말 복합체에 SEBS-g-MA를 첨가하였을 때 충격강도와 신장률이 큰 폭으로 증가하는 것이 관찰되었다.

주제어 : 초음파 처리, 탈황, 재생 폴리프로필렌, 페타이어 분말, 상용화제

#### Abstract

In this study, various sizes of waste ground rubber tire (WGRT) were devulcanized by a single screw extruder equipped with a sonicator in front of the die, and waste PP and devulcanized waste ground rubber tire (DWGRT) composites were prepared

· Received : January 29, 2015 · 1st Revised : March 13, 2015 · Accepted : April 10, 2015

\*Corresponding Author : Daesuk Bang (E-mail : dsbang@kumoh.ac.kr)

School of Energy and Integrated Materials Engineering, Kumoh National Institute of Technology, 61 Daehak-ro, Gumi,  
Gyeongbuk 730-701, Korea

Tel : +82-54-478-7689 / Fax : +82-54-478-7710

©The Korean Institute of Resources Recycling. All rights reserved. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>), which permits unrestricted non-commercial use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

by an intermeshing co-rotating twin screw extruder. The crosslink density and percent devulcanization of WGRT and DWGRT for 40, 80 and 140 meshes were calculated. The mechanical properties of the composites were compared with each other. The effect of SEBS-g-MA as a compatibilizer was investigated on mechanical properties of both waste PP/WGRT and waste PP/DWGRT composites. The crosslink density was decreased with decreasing the WGRT size. On the other hand, the percent devulcanization was increased by adding the smaller size of WGRT. Also, tensile strength, impact strength and elongation at break of the composite with DWGRT were higher than those with WGRT. Especially, mechanical properties of the composites were significantly increased by adding the smaller size of WGRT and DWGRT. Addition of SEBS-g-MA into both waste PP/(D)WGRT composites exhibited better impact strength and elongation at break than the composites themselves.

**Key words :** ultrasonic treatment, devulcanization, waste PP, waste ground rubber tire (WGRT), compatibilizer

## 1. 서 론

자동차 산업이 발전하면서 국내에서는 매년 2,000만 개 이상의 페타이어가 발생하고 있다. 수명이 다한 페타이어는 분자들이 서로 가교결합을 이루고 있어 열에 의해 다시 녹지 않기 때문에 재활용하기 어려운 재료이다. 이전에는 페타이어를 소각 및 매립하여 처리하였지만 유해가스, 침출수 등 환경적 문제가 발생하여 페타이어를 친환경적으로 재활용 할 수 있는 방법들이 많이 연구되고 있다.<sup>1-4)</sup>

페타이어를 효율적으로 재활용하기 위한 방법으로 페타이어를 1 mm 이하의 크기로 미분쇄하는 방법이 있다. 페타이어 미분쇄법은 타이어 제조 시 지지체가 되는 비드와이어를 제거한 후 파쇄공정을 거쳐 분말로 제조하는 방법이며<sup>5)</sup>, 이 때 섬유, 철심 등의 불순물은 집진기 또는 마그네틱 매트를 이용하여 제거된다. 이러한 공정을 통해 얻어진 페타이어 분말을 열가소성 플라스틱에 첨가하여 복합체를 만드는 것이 연구자들의 이목을 끌고 있는데, 이는 페타이어 분말이 플라스틱에 첨가됨에 따라 사회적인 환경문제를 해결할 수 있을 뿐만 아니라 재료의 원가 절감에도 크게 기여할 수 있기 때문이다. 또한 다른 이점으로는 공정상의 장점을 들 수 있는데, 페타이어 분말이 고분자 매트릭스에 다량 첨가되어도 압출, 사출이 가능하다는 장점이 있다. 그러나 PP 또는 PE와 같은 열가소성 플라스틱과 페타이어 분말 간 계면결합력이 좋지 못하기 때문에 복합체의 기계적 특성은 페타이어 분말의 함량, 분산성에 크게 의존한다.<sup>4-7)</sup> 일반적으로, 고분자 매트릭스와 페타이어 분말 사이의 계면결합력을 향상시키는 것이 복합체의 기계적 특성을 결정하는 주요 요소이며 많은 연구자들에 의해 보고되고 있다.<sup>8-9)</sup>

고분자 매트릭스와 페타이어 분말 간 계면결합력을 향상시키는 다양한 방법 중 하나로 Maleic anhydride

group을 복합체의 매트릭스로 사용되는 재료에 그래프트 시키는 방법이 있다. 이는 그래프트된 MA group이 압출기 내에서 열에 의해 개환반응을 거치게 되고 말단기가 페타이어 분말의 -OH기와 결합하여 계면결합력을 향상 시켜준다. 천연고무 또한 상용화제로 사용할 수 있는데 천연고무의 점착성에 의해 고분자 매트릭스와 페타이어 분말의 상용성을 증가시킬 수 있다.<sup>10-11)</sup>

또한, 기계적, 열적, 화학적, 초음파, 마이크로웨이브 등 다양한 방법으로 페타이어 분말을 탈황 시키는 방법이 있다. 이 중, 이상적인 탈황방법으로 초음파 처리가 많이 사용되며, 일정한 열과 압력 하에서 진동에 의해 생성된 초음파 에너지를 페타이어 분말에 조사하게 되면 황에 의해 가교된 고무의 3차원적 구조를 깨뜨릴 수 있다. 이렇게 탈황된 고무는 재성형이 가능하며 고무를 가교시킬 때와 같은 방법으로 재가황이 가능한 장점이 있다.<sup>12-13)</sup>

본 연구는 초음파 처리 장치가 장착된 일축 압출기를 통해 40, 80, 140 mesh 크기의 페타이어 분말을 탈황시켜 가교밀도와 탈황도 변화를 비교하고, FE-SEM을 이용하여 초음파 처리에 의한 페타이어 분말의 표면 변화를 확인하였다. 페타이어 분말을 70 wt% 포함한 재생 PP/페타이어 분말 복합체를 제조하여 페타이어 분말 탈황 전과 탈황 후의 복합체의 물성 차이를 확인하였으며 페타이어 분말과 재생 PP 간 계면결합력을 증가시키기 위하여 SEBS-g-MA를 첨가하여 기계적 물성을 측정하였다.

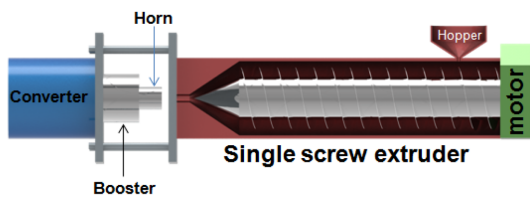
## 2. 실험방법

### 2.1. 재료

본 실험에서 복합체 제조를 위해 사용된 고분자 매트릭스는 유화실업에서 생산중인 재생 PP (melt flow index = 3.9g/10 min at 230°C, Tg = -20°C, Tm = 151.1°C)

**Table 1.** Formulation of PP(D)WGRT composites

Ingredients	Untreated WGRT			Devulcanized WGRT		
	40 mesh	80 mesh	140 mesh	40 mesh	80 mesh	140 mesh
Waste PP	30	30	30	30	30	30
WGRT	70	70	70	0	0	0
DWGRT	0	0	0	70	70	70
SEBS-g-MA(phr)	15	15	15	15	15	15

**Fig. 1.** Schematic of single screw extruder equipped with an ultrasonic device.**Fig. 2.** 3-kneading block screw configuration used in this study.

를 사용하였다. 트래드 부분의 페타이어 분말은 40, 80, 140 mesh의 크기로 선정하여 미국의 Lehigh Technologies에서 구매하였으며, 상용화제로 사용된 SEBS-g-MA는 Kraton사의 FG-1901 grade의 제품을 사용하였다.

## 2.2. 샘플 제조

### 2.2.1 페타이어 초음파 처리 및 복합체 제조

일축 압출기 die에 sonicator가 부착된 모식도를 Fig. 1에 나타내었다. 페타이어 분말이 압출기의 die를 빠져나오는 동안 초음파에 노출시켜 페타이어 분말을 탈황시켰으며, 복합체 제조를 위한 재생 PP와 페타이어 분말의 함량은 상용화에 경제적이며, 페타이어의 재활용 효율을 높이기 위해 본 연구진의 선행연구에 따라 30 : 70 wt%로 고정시켰다.<sup>14)</sup> 상용화제의 효과를 알아보기 위하여 Table 1과 같이 SEBS-g-MA를 15 phr로 첨가하여 복합체를 제조하였다. 복합체 제조에 사용된 모든 재료는 80°C 오븐에서 24시간 동안 건조되었다. 복합체는 intermeshing co-rotating twin screw extruder(Φ30, L/D = 42)를 이용하여 제조하였고, 매트릭스 상에 페타이어와 상용화제의 분산을 향상시키기 위하여 Fig. 2에 나타난 것처럼 3-kneading block screw configuration을 채택하였다. 압출조건은 Table 2에 나타낸 것과 같

**Table 2.** Conditions of extrusion and injection molding processes

Extrusion			
Temperature (°C)		Screw speed	150 rpm
Cy1	50		
Cy2	140		
Cy3	150	Screw configuration	3-kneading block
Cy4	160		
Cy5	170		
Cy6	170	Vacuum vent	
Cy7	180		
Head	180		
Die	190		
Injection molding			
Temperature (°C)		Injection pressure	70 kg <sub>f</sub> /cm <sup>2</sup>
Cy1	170		
Cy2	180	Holding pressure	30 kg <sub>f</sub> /cm <sup>2</sup>
Cy3	190	Cooling time	25 s
Cy4	200		

이 온도구간은 50 - 190°C로 설정했으며 스크류 속도는 150 rpm으로 고정하였다. Die를 통해 빠져나온 압출물은 냉각 수조에 의해 급냉 된 후 펠렛타이저를 거쳐 pellet으로 제조되었다.

### 2.2.2 시편제조

기계적 물성을 측정하기 위해 사출성형기(Pro-WD80, Dongshin Hydraulics Co., Korea)를 이용하여 시편을 제조하였다. 성형온도는 호퍼에서 노즐까지 170-200°C로 설정하였고, 금형의 온도는 상온, 냉각시간은 25초로 설정하였다.

2.3. 특성분석

2.3.1 팽윤 특성

초음파에 의해 탈황된 페타이어 분말의 탈황도를 분석하기 위해 ASTM D 6814-02 규격에 따라 팽윤실험을 진행하였다. 팽윤실험은 용매로 cyclohexane (interaction parameter : 0.436)을 사용했으며 가교밀도는 식 (1)에 나타낸 것과 같이 Flory-Rehner 식에 따라 계산되었다.<sup>15)</sup>

$$\text{Crosslink density } (\nu) = \frac{V_r + \chi V_r^2 + \ln(1 - V_r)}{V_s(V_r^{1/3} - 0.5V_r)} \quad (1)$$

고무의 부피분율  $V_r$ 은 식 (2)로 계산할 수 있으며 cyclohexane의 몰부피는 제조사에서 얻을 수 있었다.

$$V_r = \frac{M_r}{M_r + M_s(\rho_r/\rho_s)} \quad (2)$$

식 (1)에서 사용한 인자  $V_r$ ,  $V_s$ ,  $\chi$ 는 각각 고무의 부피분율, 용매의 몰부피, 고무-용매 interaction parameter를 나타내며 식 (2)에서 사용한 인자  $M_r$ ,  $M_s$ ,  $\rho_r$ ,  $\rho_s$ 는 각각 고무의 질량, 팽윤 후 고무 내에 존재하는 용매의 질량, 고무의 밀도, 용매의 밀도를 나타낸다. 인자들의 정의는 Table 3에 나타내었고, 탈황도는 식 (3)에 의해 계산되었다.  $\nu_1$ ,  $\nu_2$ 는 각각 탈황 전 후 샘플의 가교밀도를 나타내며, 40, 80, 140 mesh 크기의 페타이어 분말을 초음파 처리 후 가교밀도를 구하고, 초음파 처리되지 않은 페타이어 분말들의 가교밀도를 구하여 크기별로 식 (3)에 대입하면 탈황도를 구할 수 있다.

$$\% \text{ Devulcanization} = \frac{(\nu_1 - \nu_2) \times 100\%}{\nu_1} \quad (3)$$

또한 초음파 처리에 의한 페타이어 분말의 가교밀도와 탈황도의 변화를 증명하기 위한 페타이어 분말의 Sol-Gel fraction은 식 (4), (5)에 의해 계산되었다.

$$\text{Sol fraction } (\%) = \frac{(W_0 - W_1)}{W_0} \times 100\% \quad (4)$$

$$\text{Gel fraction } (\%) = 100 - \text{Sol fraction} \quad (5)$$

$W_0$ ,  $W_1$ 은 각각 팽윤 전 후 페타이어 분말의 무게를 나타낸다.

2.3.2 형상학적 특성

초음파 처리가 다양한 크기(40, 80, 140 mesh)의 페타이어 분말 표면에 미치는 영향을 조사하기 위하여 주사전자현미경(FE-SEM, JEOL, JSM-6500F)을 이용하여 페타이어 분말 표면을 관찰하였다.

2.3.3 기계적 특성

제조된 복합체의 sample code를 Table 4에 나타내었다. 인장강도와 신장률을 측정하기 위한 시편은 ASTM D 638 규격에 따라 만들었으며 50kN의 load cell을 사용하여 상온에서 만능재료시험기(JP/AG-50KNx, Shimadzu)를 이용하여 측정하였다. 충격시험기(Tinius Olsen, Model 892)를 이용하여 ASTM D 256규격에 따라 시편 중앙부위의 두께가  $10.16 \pm 0.5$  mm가 되도록 notch를 제작한 후에 notched Izod impact test를 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 페타이어 분말의 가교밀도와 Gel fraction, 탈황도

초음파 처리에 의해 탈황된 페타이어 분말의 가교밀도와 Gel fraction, 탈황도의 변화를 Table 5와 Fig. 3

Table 3. Factors for calculating crosslink density

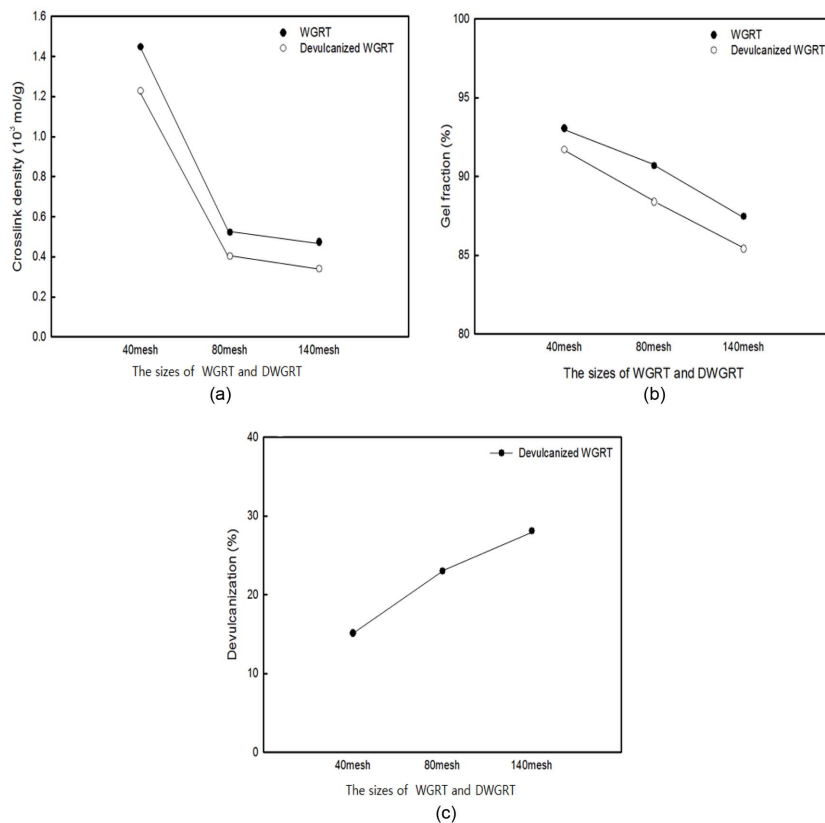
Symbol	Definition
$V_r$	Rubber volume fraction in the swollen sample
$V_s$	Molar volume of the solvent
$\chi$	Rubber-solvent interaction parameter
$M_r$	Mass of the rubber network
$M_s$	Mass of solvent in the sample
$\rho_r$	Density of the rubber
$\rho_s$	Density of the solvent

Table 4. Sample code

Code	Definition
PP/WGRT	Polypropylene/waste ground rubber tire composite
PP/DWGRT	Polypropylene/devulcanized waste ground rubber tire composite
PP(D)WGRT	Polypropylene/waste ground rubber tire and Polypropylene/devulcanized waste ground rubber tire composites

**Table 5.** Results of the swelling test

	40 mesh		80 mesh		140 mesh	
	WGRT	DWGRT	WGRT	DWGRT	WGRT	DWGRT
Crosslink density (mol/g)	$1.44 \times 10^{-3}$	$1.22 \times 10^{-3}$	$5.22 \times 10^{-4}$	$4.02 \times 10^{-4}$	$4.72 \times 10^{-4}$	$3.39 \times 10^{-4}$
Gel fraction (%)	93.04	91.68	90.68	88.38	87.46	85.39
% devulcanization	-	15.1	-	23.0	-	28.1

**Fig. 3.** The (a) crosslink density, (b) gel fraction and (c) percent devulcanization of WGRT and DWGRT.

에 나타내었다. 식 (1)에 의해 계산된 초음파 처리되지 않은 페타이어 분말은 파쇄공정 시 물리적으로 가교결합이 끊어지기 때문에 가교밀도는 분말의 크기가 작아질수록 감소하였으며 초음파 처리에 의해 탈황된 페타이어 분말의 경우 40, 80, 140 mesh 크기별로 C-S, S-S bond의 사슬절단에 의해 가교밀도가 더욱 감소했다고 사료된다. 팽윤실험을 통해 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 Gel fraction이 감소하였으며, 가교밀도를 통해 크기별 페타이어 분말의 탈황도를 계산했을 때 각각 15.1%, 23.0%, 28.1%의 탈황도가 얻어졌다. 또

한 탈황도는 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 증가하는 경향을 보였다. 이러한 결과는 페타이어 분말의 표면적이 넓어짐에 따라 초음파에 노출되는 부분이 커져 페타이어 분말의 가교결합이 끊어짐과 동시에 Gel fraction이 감소했기 때문이라고 판단된다.

### 3.2. Morphology

초음파 처리에 의한 40, 80, 140 mesh 크기별 페타이어 분말의 표면 변화를 관찰하기 위해 초음파 처리 전후 페타이어 분말의 표면을 관찰한 SEM 이미지를

Fig. 4에 나타내었다. 페타이어 분말은 압출기 내에서 열과 압력을 받은 후 die를 통해 빠져나오면서 초음파에 조사되었다. 초음파 처리 전후 페타이어 분말의 표면을 크기별로 비교할 때, 초음파 처리된 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 표면이 더욱 거칠어졌는데 이는 초음파 처리에 의한 페타이어 분말의 가교결합이 감소함에 따라 압출기 내에서 열과 압력에 의해 미가교 영역이 녹았기 때문이다. 이러한 결과는 고분자 수지가 페타이어 분말 표면에 더욱 깊숙이 함침 되어 계면결합력이 높아지고 이로 인하여 복합체의 인장강도, 신장률, 충격강도가 증가하는 근거가 된다.

3.3. 기계적 물성

Fig. 5는 초음파 탈황 전과 후의 40, 80, 140 mesh 페타이어 분말을 첨가하여 제조한 재생 PP/(D)WGRT(30:70 wt%) 복합체의 인장강도를 나타낸 그래프이다. 초음파 처리를 하지 않은 페타이어 분말을 이용한 복합체의 경우 40, 80, 140 mesh 크기별로 각각

7.4, 7.2, 8.3 MPa의 인장강도를 나타냈으며 초음파 처리된 페타이어 분말을 이용한 복합체의 인장강도는 7.6, 7.9, 9.3 MPa로 초음파 처리되지 않은 페타이어 분말이 첨가된 복합체보다 전체적으로 인장강도가 증가하였다. 또한 초음파 처리된 재생 PP/DWGRT 복합체는 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 인장강도가 증가하는 경향을 보였다.

재생 PP/(D)WGRT 복합체의 신장률(Elongation at break)은 Fig. 6에 나타내었다. 신장률의 경우 초음파 처리되지 않은 페타이어 분말이 첨가된 복합체는 80 mesh가 첨가되었을 때 39.4%로 가장 낮은 신장률을 보였고 140 mesh가 첨가되었을 때 130.9%로 가장 높은 신장률을 보였다.<sup>4)</sup> 40, 80, 140 mesh 크기의 초음파 처리된 페타이어 분말이 첨가된 경우 신장률은 각각 51.2, 62.1, 143.5%로 페타이어 분말의 크기가 작아질

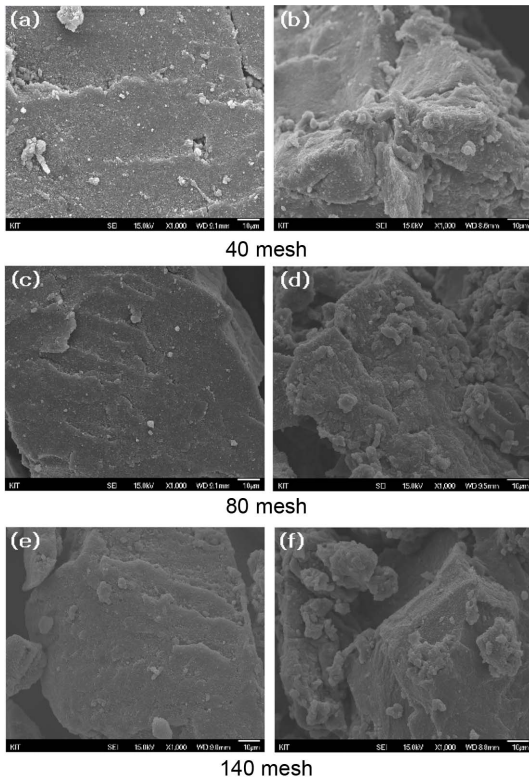


Fig. 4. SEM images of (a), (c), (e) WGR and (b), (d), (f) DWGR.

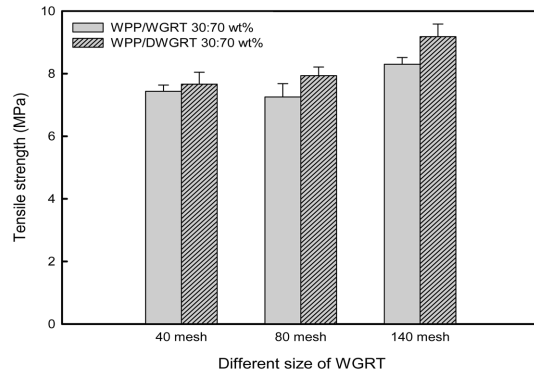


Fig. 5. Tensile strength of waste PP/WGRT and waste PP/DWGRT composites with various size of WGRT.

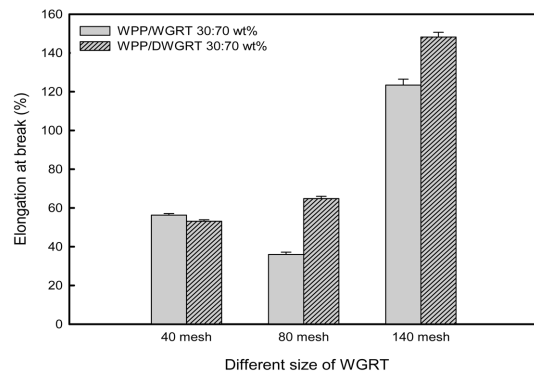


Fig. 6. Elongation at break of waste PP/WGRT and waste PP/DWGRT composites with various size of WGRT.

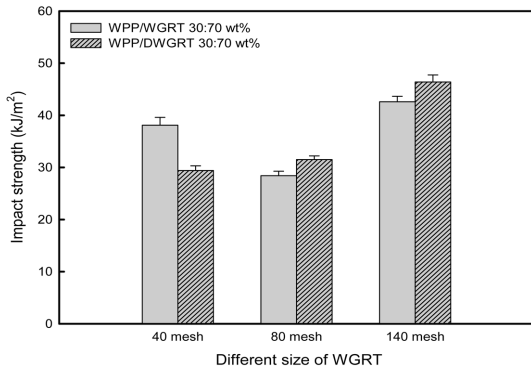


Fig. 7. Impact strength of waste PP/WGRT and waste PP/DWGRT composites with various size of WGRT.

수록 신장률이 증가하는 경향을 보였다. 초음파 처리된 페타이어 분말을 복합체에 첨가했을 때 인장강도와 신장률 모두 증가하게 되는데 이는 페타이어 분말이 압출기 die를 빠져나올 때 초음파 처리에 의해 페타이어 분말의 가교밀도가 감소함과 동시에 열과 압력의 영향으로 표면을 거칠어지기 때문이다. 이러한 결과는 페타이어 분말과 재생 PP간의 계면결합력을 향상시키는 역할을 하며 결과적으로 인장강도와 신장률의 증가 원인이 된다.<sup>16)</sup>

Fig. 7은 초음파 처리 전 후 페타이어 분말이 첨가된 복합체의 충격강도를 나타낸 그림이다. 초음파 처리되지 않은 140 mesh 페타이어 분말이 첨가된 복합체의 경우 42.6 kJ/m<sup>2</sup>으로 가장 높았고, 초음파 처리된 페타이어 분말이 첨가된 복합체 또한 140 mesh 크기가 첨가되었을 때 46.4 kJ/m<sup>2</sup>으로 가장 높은 충격강도를 보였다. 이러한 결과는 페타이어 분말의 크기가 작을수록 이축 압출기 내에서 재생 PP와의 분산성 개선과 계면결합력이 향상되었기 때문이다.

### 3.4. SEBS-g-MA 첨가에 따른 기계적 물성

재생 PP와 페타이어 분말 간 계면결합력 향상을 위해 SEBS-g-MA를 15 phr 첨가하여 기계적 특성을 측정하였다. Fig. 8과 9는 SEBS-g-MA 첨가에 따른 재생 PP/(D)WGRT 복합체의 인장강도와 신장률을 나타낸 그래프이다. 재생 PP/WGRT 복합체의 경우 페타이어 분말 40, 80, 140 mesh 크기별로 각각 7.0, 7.5, 7.6 MPa의 인장강도와 126.1, 143.7, 211.6%의 신장률을 보였다. 재생 PP/DWGRT 복합체의 경우 7.3, 7.6, 9.0 MPa의 인장강도와 127.8, 158.8, 227%의 신장률을

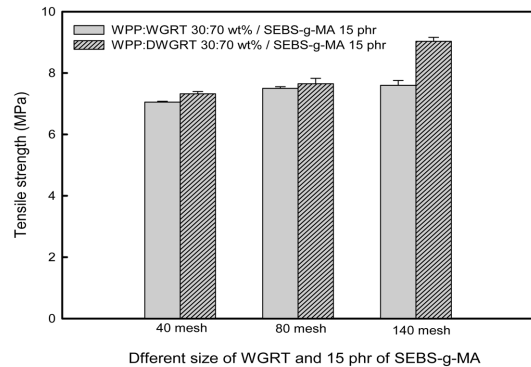


Fig. 8. Tensile strength of waste PP/WGRT and waste PP/DWGRT composites with 15 phr of SEBS-g-MA.

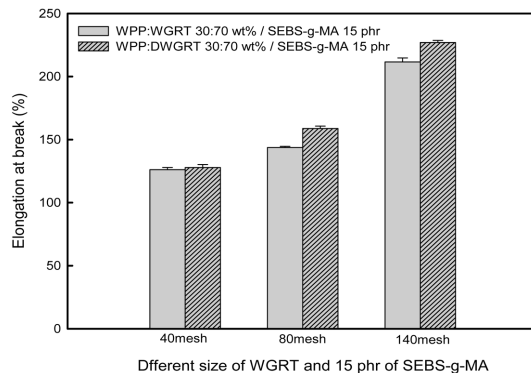


Fig. 9. Elongation at break of waste PP/WGRT and waste PP/DWGRT composites with 15 phr of SEBS-g-MA.

기록하였다. SEBS-g-MA를 첨가하지 않은 복합체의 특성을 보여주는 Fig. 5와 6에 비교했을 때 SEBS-g-MA 첨가에 따른 인장강도의 변화는 거의 없었지만 가공성에 어려움을 보이는 70 wt.%의 페타이어 분말이 첨가되었음에도 불구하고 227%로 신장률이 매우 큰 폭으로 증가하였다.

SEBS-g-MA 첨가에 따른 재생 PP/(D)WGRT 복합체의 충격강도는 Fig. 10에 나타내었다. SEBS-g-MA 첨가 후 충격강도는 40 mesh가 첨가된 복합체가 가장 낮은 충격강도를 보이는데 이것은 페타이어 분말의 크기가 크기 때문에 압출기 내에서 분산이 용이하지 않고, 계면결합력이 낮기 때문이다. 반면에 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 증가하는 경향을 보였고, 탈황된 페타이어 분말이 첨가된 복합체가 60.4 kJ/m<sup>2</sup>의 가장 높은 충격강도를 보였다.

SEBS-g-MA는 고무성질을 가지고 있으며, 주 사슬에

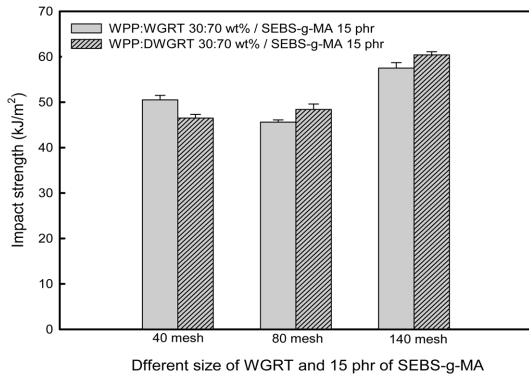


Fig. 10. Impact strength of waste PP/WGRT and waste PP/DWGRT composites with 15 phr of SEBS-g-MA.

그래프트된 maleic anhydride가 복합체 제조 시 압출기 내에서 열에 의해 개환반응을 거쳐 페타이어 분말의 hydroxyl group과 결합하여 계면결합력을 증가시키기 때문에 복합체의 인장강도, 신장률, 충격강도를 향상시키는 보강제 역할을 한다.<sup>10)</sup>

#### 4. 결 론

본 연구에서는 재생 PP 및 페타이어 분말의 효율적인 재활용을 위해 초음파를 이용하여 40, 80, 140 mesh의 크기가 다른 페타이어 분말을 탈황시킨 후 30:70 wt.% 함량으로 복합체를 제조하였으며 재생 PP와 페타이어 분말의 상용성을 더욱 증가시키기 위해 SEBS-g-MA를 첨가하였다. 초음파 처리 및 페타이어 분말의 크기가 복합체의 기계적 물성에 미치는 영향을 조사하였으며 세부 결과는 다음과 같다.

1. 초음파 처리 전 후 페타이어 분말의 가교밀도와 Gel fraction은 분말의 크기가 작아질수록 감소하였으며, 탈황된 페타이어 분말의 경우 큰 폭으로 감소하였다. 반면, 가교밀도가 감소할수록 탈황도는 증가하는 경향을 보였으며, 이는 페타이어 분말의 표면적이 커져 초음파에 노출되는 부분이 넓어진 결과이다.

2. 40, 80, 140 mesh 크기의 페타이어 분말을 초음파 처리한 결과 초음파 처리하지 않은 페타이어 분말과 표면을 비교했을 때 상대적으로 더욱 거칠어진 것을 확인할 수 있었다. 이것은 초음파 처리에 의해 페타이어 분말의 가교결합이 감소하고, 이축압출기 내에서 열과 압력에 의해 미가교 영역이 녹았기 때문이다. 페타이어 분말의 거친 표면에 재생 PP가 함침이 잘 되어 계면결

합력이 향상되기 때문에 초음파 처리한 페타이어 분말로 제조된 복합체의 기계적 특성이 향상된 것을 알 수 있었다.

3. 초음파 처리된 페타이어 분말이 첨가된 복합체는 초음파 처리되지 않은 페타이어가 첨가된 복합체보다 전체적으로 인장강도가 증가하였고, 초음파 처리된 페타이어 분말이 첨가된 재생 PP/DWGRT 복합체는 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 인장강도가 증가하였다. 이는 초음파 처리에 의해 페타이어 분말의 표면이 거칠어져 재생 PP와의 젖음성이 향상되었기 때문이라고 판단된다.

4. 신장률의 경우 초음파 처리되지 않은 페타이어 분말이 첨가된 복합체는 80 mesh가 첨가되었을 때 가장 낮은 신장률을 보였고, 140 mesh가 첨가되었을 때 가장 높은 신장률을 보였다. 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 신장률이 증가하는 경향이 나타났다.

5. 초음파 처리되지 않은 페타이어 분말이 첨가된 복합체의 경우 140 mesh의 페타이어 분말이 첨가되었을 때 충격강도가 42.6 kJ/m<sup>2</sup>으로 가장 높았고, 초음파 처리된 페타이어 분말 또한 140 mesh가 첨가되었을 때 46.4 kJ/m<sup>2</sup>의 가장 높은 충격강도를 나타내었다.

6. 상용화제 SEBS-g-MA를 첨가한 재생 PP/DWGRT 복합체는 인장강도의 변화는 거의 없었고, 신장률은 227%로 70 wt%의 페타이어 분말이 첨가되어 가공성에 어려움이 있음에도 불구하고 매우 높은 값을 보였다. 이러한 결과는 페타이어 분말의 초음파 처리에 의한 가교결합의 감소와 SEBS에 그래프트된 MA그룹이 WGRT 내에 존재하는 carbon black의 -OH기와 결합하여 상용성이 증가했기 때문이다. 또한, 충격강도는 페타이어 분말의 크기가 작아질수록 증가하는 경향을 보였고, 탈황된 페타이어 분말이 첨가된 복합체가 가장 높은 충격강도를 보였다.

#### 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부와 한국연구재단의 지역혁신인력양성사업으로 수행된 연구결과임(2012H1B8A 2026258).

#### References

1. B. Adhikari, D. De and S. Mait., 2000 : *Reclamation and recycling of waste rubber*, Progress in Polymer Science,



- 25, pp909-948.
2. K. Oliphant and W. E. Baker., 1993 : *The use of cryogenically ground rubber tires as a filler in polyolefin blends*, Polymer Engineering and Science, **33**(3), pp166-174.
  3. J. Lee., 2010 : *Recycling of waste rubber*, KIC News, **10**(3), pp42-49.
  4. J. Y. An, J. M. Park, D. S. Bang, B. S. Kim and M. H. Oh., 2014 : *Characterization of thermo-plastic vulcanized (TPV) composite prepared by the waste tire and plastic powder*, J. of Korean Inst. of Resources Recycling **23**(4), pp30-36
  5. J. M. Park, J. Y. An, D. S. Bang, B. S. Kim and M. H. Oh., 2014 : *Characteristics studies of waste tire rubber powders using the different grinding methods*, J. of Korean Inst. of Resources Recycling **23**(3), pp44-50
  6. H. S. Kye, K. C. Shin and D. S. Bang., 2006 : *A study on the mechanical properties and rheological properties of the recycled polyethylene composites with ground waste tire powder*, Elastomer, **41**(2), pp97-107.
  7. Y. K. Hong., 2004 : *Mechanical properties of plastic waste/ground rubber tire composite*, Elastomer, **39**(4), pp294-300.
  8. S. L. Zhang, Z. X. Zhang, Z. X. Xin, K. Pal and J. K. Kim., 2010 : *Prediction of mechanical properties of polypropylene/waste ground rubber tire powder treated by bitumen composites via uniform design and artificial neural networks*, Materials and Design, **31**, pp1900-1905.
  9. F. A. Ghasemi, G. Payganeh, M. Rahmani and M. R. Kalae., 2012 : *Investigating the effects of waste ground rubber tire powder and PP-g-MA compatibilizer on the mechanical properties of PP/waste ground rubber tire (WGRT) powder/PP-g-MA composites*, Nanomaterials and Biostructures, **7**(4), pp1859-1868.
  10. S. Pichaiyut, C. Nakason, A. Kaesaman and S. Kiatkamjornwong., 2008 : *Influences of blend compatibilizers on dynamic, mechanical, and morphological properties of dynamically cured maleated natural rubber and high-density polyethylene blends*, Polymer Testing, **27**, pp566-580.
  11. R. Sonnier, E. Leroy, L. Clerc, A. Bergeret and J. M. Lopez-Cuesta., 2008 : *Polyethylene/ground tyre rubber blends: Influence of particle morphology and oxidation on mechanical properties*, Polymer Testing, **26**, pp274-281.
  12. C. K. Hong and A. I. Isayev., 2003 : *An application of high-power ultrasound to rubber recycling*, Elastomer, **38**(2), pp103-121.
  13. M. H. Entezari, N. Ghows and M. Chamsaz., 2005 : *Combination of ultrasound and discarded tire rubber: Removal of Cr(III) from aqueous solution*, J. Phys. Chem. A, **109**, pp4638-4642.
  14. K. H. Park, D. H. Kim, J. K. Jung, S. G. Kim, D. S. Bang, M. H. Oh and B. S. Kim., 2014 : *Effect of compatibilizers on the mechanical properties of waste polypropylene/waste ground rubber tire composites*, J. of Korean Inst. Resources Recycling, **23**(1), pp1-10.
  15. S. Rodsuk, S. Ritsuar and K. Wattanakul., 2012 : *Characterization the effect of disulfide compound on the devulcanization of thermoplastic vulcanizate*, AIP Conf. Proc., **1482**, pp240-245.
  16. J. K. Kim, S. H. Hwang, J. H. Jung and S. Y. Pack., 2003 : *A study on recycling technology of waste tire powder by particle size distribution analysis*, Elastomer, **38**(2), pp128-138.



김 동 학

- 금오공과대학교 고분자공학과 학사
- 현재 금오공과대학교 고분자공학과 석사과정



김 성 길

- 금오공과대학교 고분자공학과 학사
- 현재 금오공과대학교 고분자공학과 석사과정



**이 민 지**

- 금오공과대학교 고분자공학과 학사
- 현재 금오공과대학교 고분자공학과 석사과정



**박 종 문**

- 금오공과대학교 신소재시스템공학부 학사
- 금오공과대학교 신소재시스템공학과 석사
- 현재 금오공과대학교 신소재공학과 박사과정



**오 명 훈**

- 고려대학교 금속공학 학사
- 고려대학교 금속공학 석사
- University of Kyoto 재료공학 박사
- 현재 금오공과대학교 신소재시스템공학부 교수



**김 봉 석**

- University of Louisville 기계공학 학사
- University of Louisville 기계공학 석사
- 현재 (주)엡크루트 대표이사



**김 진 국**

- 연세대학교 화학공학 학사
- 연세대학교 화학공학 석사
- University of Akron 고분자공학 박사
- 현재 경상대학교 나노신소재융합공학과 교수



**방 대 석**

- 연세대학교 화학공학 학사
- University of Detroit 화학공학 석사
- University of Akron 고분자공학 박사
- 현재 금오공과대학교 에너지융합소재공학부 교수