투명한 사출성형품에서 어닐링 조건에 따른 잔류응력 이완에 관한 연구

조정현 · 박서리* · 김 혁* · 류민영†

서울과학기술대학교 제품설계금형공학과, *서울과학기술대학교 NID융합기술대학원
(2011년 5월 31일 접수, 2011년 9월 28일 수정, 2011년 10월 3일 채택)

Investigation on the Residual Stress Relaxation according to Annealing Condition for Transparent Injection Molded Part

Jeong Hyun Cho, Seo Ri Park*, Hyeok Kim*, and Min-Young Lyu†

Dept. of Product Design and Manufacturing Engineering, Seoul National Univ. of Science and Technology,

*Graduate School of NID Fusion Technology, Seoul National Univ. of Science and Technology,

172 Gongneung 2-dong, Nowon-gu, Seoul 149-743, Korea

(Received May 31, 2011; Revised September 28, 2011; Accepted October 3, 2011)

초록: 사출성형품은 성형 중 온도변화와 전단응력에 의해 잔류응력이 형성된다. 이 잔류응력으로 인해 짧게는 하루 이내에 길게는 수 년 이상 시간이 흐른 뒤 변형과 뒤틀림 등이 발생할 수 있다. 따라서 잔류응력 최소화를 위한 사출성형조건 및 사출성형품의 열처리가 요구된다. 본 논문에서는 투명한 사출성형품을 어닐링 조건 즉, 상대 습도와 온도, 그리고 어닐링 시간을 변화시켜가며 각 어닐링 조건이 잔류응력 해소에 미치는 영향을 조사하였다. 상대습도가 작을 경우 잔류응력의 해소가 매우 적었으나 상대습도 50% 이상에서는 그 영향이 크게 작용하였다. 또한 유리전이온도 부근에서 어닐링 시 매우 빠른 잔류응력 해소를 보였으며 이는 광탄성 장치를 통하여 관찰할 수 있었다. 상대 습도보다는 어닐링 온도가 잔류응력 해소에 더 큰 영향을 미치고 있음을 확인할 수 있다. 시편에서 잔류응력이 해소되면서 시편에서 수지의 흐름방향으로는 수축이, 흐름의 직각방향으로는 팽창이 발생하여 변형이 일어나는 것이 관찰되었다. 어닐링 시 제품의 변형을 최소화 하기 위해서는 지그나 고정구로 시편을 구속한 환경에서 어닐링이 필요할 것으로 판단되었다.

Abstract: Residual stress is developed in the injection molded articles during the molding process due to temperature variation and shear stress. The residual stress causes the deformation and warpage in the injection molded parts shortly within several days or after several years. Therefore, the injection molding conditions should be optimized to reduce the residual stress. And residual stress in the part should be also relaxed after molding process to maintain its shape. According to the annealing conditions, such as relative humidity, temperature and time, this study investigates the relaxation of residual stress generated in the transparent injection molded specimens. Through the experimental results, it was realized that the residual stress was relaxed at a relative humidity higher than 50%. Utilizing photoelasticity equipment, it was found that the residual stress was rapidly relaxed near glass transition temperature. Additionally, we recognized that the specimen shrunk along the flow direction but expanded to the perpendicular direction of the flow during the annealing processes, which resulted in the warpage of the specimen.

Keywords: annealing, transparent injection molded part, residual stress, stress relaxation, warpage of product, photoelasticity.

서 론

사출성형품은 오랜 시간이 지나면 변형이나 뒤틀림 현상이 일어나는 것을 볼 수 있다. 이러한 현상은 사출성형과정 중 생성된 잔류응력 때문이다.¹⁻⁵ 사출성형공정은 수지의 가소화, 충전, 보압, 냉각, 그리고 취출 과정으로 이루어져 있다.

이 때 수지는 가소화와 충전 공정에서 고온과 고압을 받게 되고 보압 공정에서는 고압의 상태가 오랫동안 지속되게 된다. 냉각 공정에서는 고온의 수지가 급속히 냉각하게 되며 취출 공정에서는 금형에 갇혀있던 제품이 자유로워지게 되는 과정을 거치게 된다. 사출성형과정 중 생성되는 잔류응력은 크게 두 가지로 설명된다.^{1,6,7} 첫째는 냉각 시 발생하는 온도차에 의한 영향이다. 수지는 냉각 시 상대적으로 온도가 낮은 금형 벽면에 가까운 부분과 벽면에서 먼 부분, 즉 캐비티 갭의 코어부분의 수지는 온도차이를 가지게 된다. 냉각이

†To whom correspondence should be addressed.
E-mail: mylyu@seoultech.ac.kr

진행될 때 초기에는 금형 벽면에 가까운 수지는 차가운 온도로 인해 수축하게 되지만 수지 내부는 온도가 높은 용융 상태이므로 수축이 없다. 이 때 벽면의 수지는 인장을 받게 되고 벽면에서 떨어져 있는 중앙의 수지는 압축을 받게 된다. 냉각이 더 진행되면 중앙부의 수지가 냉각되면서 수축을 하게 된다. 이러한 과정에서 이미 냉각된 금형 벽면의 수지는 압축을 받게 되고 중앙부의 수지는 인장을 받게 된다. 두 번째는 흐름에 의한 영향이다. 수지가 흐르면서 금형의 벽면 근방에서는 높은 전단변형률에 의해 큰 전단응력을 받으며 고분자 사슬이 흐름방향으로 배향된다. 캐비티 갭의 내부 코어 층에서는 분수유동에 의해 흐름과 수직방향으로 배향된다. 고분자 사슬들은 안정된 상태로 정렬하려 하지만 안정화 되기 전 고화가 되면서 고분자는 잔류응력을 가지고 성형품 안에 남게 된다. 이렇게 두 가지 형태의 잔류응력은 시간이 지나면 변형이나 뒤틀림의 결함을 일으킨다.

성형 중 생성된 잔류응력을 해소하기 위해서는 내부의 인장 및 압축의 잔류응력을 풀어주기 위한 조건과 고분자 배향이 안정화 상태로 올 수 있게 하는 조건이 필요하다. 잔류응력은 어닐링을 통하여 해소될 수 있는데 이는 습도, 시간, 온도 조절을 통해 이루어진다. 플라스틱 어닐링에 관한 연구 중 어닐링 후 급랭 혹은 서랭을 통한 기계적 강도 측정, 물성 및 가공성에 관한 연구 논문은 다수 있다.⁸⁻¹⁰ 또한 온도가 높을수록 상대습도가 클수록 시간이 경과할수록 잔류응력 해소에 유리하다는 논문도 존재하지만 각 어닐링 조건에 대해 폭넓게 연구한 논문은 없는 상황이다.^{11,12}

본 논문에서는 투명 플라스틱 시편을 동일한 사출조건으로 제작한 후 어닐링을 통한 잔류응력 해소에 관한 연구를 수행하였다. 어닐링은 항온항습기를 이용하여 실험을 수행하였으며, 어닐링 조건으로 상대습도, 온도, 그리고 어닐링 시간을 폭 넓게 변화시키며 실험을 수행하였다. 그리고 잔류응력해소에 적절한 조건을 검토하였다. 잔류응력의 변화는 광탄성 측정장치를 이용하여 시편의 복굴절을 통하여 관찰하였다. 또한 어닐링 전후 시편의 치수변화를 비교 분석하였다.

실 험

시편 사출. Figure 1은 본 실험에 사용된 시편 형상을 보여주고 있다. 육면체에서 한 면이 없는 사각 박스 형상으로 시편의 치수는 가로 106 mm, 세로 106 mm, 높이 23 mm, 두께 3 mm로 이루어져 있다. 사용한 수지는 광탄성 측정장치를 통하여 그 특성이 잘 드러나는 비결정성 수지로 LG화학의 GPPS(General Purpose Polystyrene)이다. 그레이드는 25SPI이고, 용융지수(220 °C/10 kg)는 47 g/10 min이고, T_g 는 99.05 °C이다.

본 연구에 사용된 사출기는 LG Machinery사의 IDE140EN II이며 사출온도 250 °C, 사출시간 7초, 냉각시간 30초로 설정하였다.

어닐링. 어닐링을 하기 위한 항온항습기는 Neuronfit사의 MRU-800-ME를 사용하였다. 어닐링은 시간과 온도 그리고

Figure 1. Dimension of specimen.

Table 1. Annealing Conditions

Parameter	Setting
Time(hr)	0 ~ 4
Relative humidity(%)	20, 50, 80
Temperature(°C)	80, 90, 100

습도를 주요 변수로 하는데 본 항온 항습기는 온도 -40~150 °C, 습도 10~98%까지 제어가 가능하다. 본 논문에서는 Table 1과 같이 온도, 습도, 시간에 대한 실험 조건에 따라 어닐링을 진행하였다.

잔류응력 관찰. 어닐링한 시편의 잔류응력 변화를 복굴절을 통해 관찰하였다. 복굴절 관찰 장치는 Strainoptic사의 PS-100이다. Figure 2는 복굴절이 발생하는 원리를 나타낸 것이다. 빛은 전자파의 일종으로 두 개의 직교하는 파로 구성되어 있다. 이 두 파가 편광필름을 통과하게 되면 하나의 파장만 통과하게 된다. 그리고 편광된 파장이 잔류응력을 함유한 사출 성형품을 통과할 경우 성형품 내에서 두 방향으로 굴절이 일어난다. 이 굴절된 파가 다시 편광판을 지나게 되면 두 파의 위상 차 때문에 컬러 패턴이 나타나게 된다. 두 편광판을 통하여 나타난 복굴절된 빛은 재료의 내부 응력 크기에 따라 여러 색의 형태로 나타나는데 이 관계는 Figure 3에 나타나 있다. 시편에서 복굴절된 두 파의 위상 차는 시편 내부의 잔류응력 크기에 비례하며 지체량(retardation)으로 표현된다.^{13,14} 색의 스펙트럼은 검정색으로

Figure 2. Birefringence principle.¹³

Figure 3. Color spectrum according to retardation caused by residual stress in the specimen.

갈수록 지체량은 '0'에 가까워지며 이와 반대로 녹색으로 갈수록 지체량은 증가하는 형태를 지니고 있다. 본 연구 사용한 시편의 어닐링 전 복굴절을 관찰해보면 전반적으로 게이트 주위(Point 1)에서 녹색을 띠면서 가장 높은 응력이 넓은 분포로 나타나고 게이트에서 멀어질수록(Point 2) 노란색을 띠며 비교적 작은 응력을 보이고 있다. 또한 색의 스펙트럼 범위가 넓게 나타나는 것을 통해 볼 때 시편 내 다양한 크기의 잔류응력이 존재함을 확인할 수 있다.

결과 및 토론

온도에 따른 어닐링 효과. 일정한 상대습도에서 어닐링 온도와 시간에 따른 결과가 Figure 4에 나타나 있다. 전체적으로 어닐링 시간이 경과함에 따라 그리고 온도가 높아짐에 따라 어닐링 효과가 크게 나타남을 알 수 있다. 이는 어닐링이 진행됨에 따라 시편에 나타난 한 곳에 집중된 복굴절 패턴이 넓어짐을 의미한다. Figure 4(a), (b) 그리고 (c)를 비교해 보면 어닐링 온도가 높을수록 잔류응력의 이완이 잘 되었고 이는 상대습도가 높을수록 그 효과가 크게 나타났다.

어닐링 온도 80 °C일 경우 상대습도에 관계없이 시간이 경과해도 복굴절 패턴이 거의 유사하였고 이를 통해 잔류응력의 이완이 매우 작다는 것을 관찰할 수 있다. 어닐링 온도 90 °C의 경우 상대습도 20%, 50%에서 어닐링 온도 80 °C와 비교 시 색의 스펙트럼 범위는 유사하나 높은 복굴절을 가졌던 영역의 크기가 미미하게 줄어드는 것을 관

(a) Relative humidity: 20%

(b) Relative humidity: 50%

(c) Relative humidity: 80%

Figure 4. Variations of birefringence according to annealing temperature and annealing time.

찰할 수 있다. 어닐링 온도 100 °C의 경우 모든 상대습도 조건에서 80, 90 °C의 시편에서 게이트 주변으로 집중된 복굴절 패턴이 크게 완화된 현상을 보이고 있음을 알 수 있다. 또한 100 °C에서는 습도가 낮은 조건에서도 짧은 시간 내에 잔류응력이 이완되는 것을 관찰할 수 있다. 그리고 어닐링 온도 100 °C에서는 2시간이 지나면 복굴절 패턴의 색이 검정색에 가까워졌고 시편에 변형이 발생되었다. 즉, 2시간 이상 어닐링 시 잔류응력이 모두 이완이 되는 것을 알 수 있다.

온도에 따른 어닐링 실험 결과 온도가 높을수록 특히 T_g 근처의 온도에서 잔류응력의 이완에 유리한 결과를 보였다. 이것은 온도가 높을수록 고분자 사슬의 움직임이 쉬워서 이완이 잘되는 현상을 보였다고 사료되며, 이러한 현상은 다른 고분자 재료에서도 유사한 경향을 나타낼 것이라 판단된다.

습도와 시간에 따른 어닐링 효과. 일정한 온도에서 상대 습도와 시간에 따라 관찰한 어닐링 결과는 Figure 5와 같다. 전체적인 상대습도에 따른 어닐링 결과를 어닐링 전과 비교해보면 어닐링 후 상대습도가 높을수록 색의 스펙트럼 범

위가 좁아지고 게이트 주변의 복굴절이 작아졌다. 이를 통해 상대습도가 높을수록 잔류응력의 이완이 잘 되는 것을 관찰할 수 있다. 상대습도가 높으면 재료 내에 습기가 증가하게 되고 이는 고분자 사슬의 움직임을 쉽게 해준다. 따라서 내부에 갇혀있던 잔류응력의 이완이 쉬어진다.¹¹ 어닐링 온도가 높아질수록 더 효과적으로 나타났다. 각 온도 별로 습도에 따른 영향을 살펴보면 Figure 5(a)의 어닐링 온도 80 °C일 경우 습도가 20%에서 50%로 증가할 때는 잔류응력의 이완이 매우 미미하고, 상대습도가 80%로 높아질 경우에도 상대습도 50%의 결과와 유사한 경향이 나타남을 관찰할 수 있다. 이러한 현상을 통해 낮은 온도에서는 습도가 높아도 잔류응력 해소가 매우 작음을 알 수 있다. Figure 5(b)의 어닐링 온도 90 °C에서는 상대습도가 커질수록 게이트 주변의 높은 복굴절을 가졌던 영역이 작아지는 현상이 나타난다. 상대습도 80%일 때 2시간 어닐링할 경우 잔류응력이 해소되면서 변형이 일어난다. 이는 어닐링 온도 90 °C부터 잔류응력이 크게 해소되는 것을 알 수 있다. Figure 5(c)의 어닐링 온도 100 °C일 때는 모든 습도조건에서 1시간 어닐링 시 시편의 복굴절 스펙트럼이 대부분 회색에 가까워지는 것을 관찰할 수 있다. 이는 어닐링 온도 100 °C에서 잔류응력이 상대습도에 크게 의존하지 않고 해소되었다고 판단된다. 이는 고분자 사슬이 움직이기 위해서는 적절한 온도가 필요하며 T_g 온도까지 어닐링 온도를 올리면 잔류응력이 어닐링 습도에 크게 의존하지 않고 해소된 것으로 판단된다. 따라서 잔류응력 해소는 상대습도보다는 어닐링 온도에 큰 영향을 받고 있는 것으로 판단된다. 상대습도가 80%이고 어닐링 온도가 100 °C인 경우, 시편에 수분이 많이 흡수되어 뿌옇게 되었다가 투명해지는 현상이 나타났으나 투명도에는 영향이 없었다.

잔류응력 해소가 크게 나타난 어닐링 온도 100 °C에서 어닐링한 후 복굴절 변화패턴을 시간에 따라 관찰하였다. 관찰 결과는 Figure 6과 같다. 전체적으로 어닐링 20분 후에는 큰 변화가 없지만 시간이 지나면서 상대습도 20%에서는 어닐링 40분 후부터, 상대습도 50%에서 어닐링 25분 후부터 색의 스펙트럼 범위가 좁아지면서 전체적인 복굴절양이 작아지는 것을 확인할 수 있다.

잔류응력이 해소됨에 따라 변형이 발생하는 것을 관찰할 수 있었는데 이러한 변형을 막기 위해서는 지그 등을 이용하여 구속된 상태에서 어닐링을 해야 할 것으로 판단된다.

어닐링에 따른 치수 변화. 어닐링 전후 시편의 변형을 측정하기 위해 Figure 7에 나타난 바와 같이 여섯 곳의 치수를 측정하였다. 측정 위치를 수지 흐름방향에 대한 치수는 'A', 흐름의 직각방향의 치수는 'B'라고 하였다. 'A'와 'B' 모두 게이트와 가까운 부분과 먼 부분으로 나누어 각각 세 곳을 측정하였다.

측정결과가 Figure 8에 나타나 있다. 수지의 흐름방향에 대한 치수 변화를 살펴보면 전체적으로 어닐링 후가 전보다 치수가 줄어드는 것을 볼 수 있다. 이는 흐름방향으로 배향된 고분자 사슬이 어닐링 과정을 거쳐 안정한 상태로

(a) Temperature: 80 °C

(b) Temperature: 90 °C

(c) Temperature: 100 °C

Figure 5. Variations of birefringence according to relative humidity and annealing time.

(a) Relative humidity: 20%

(b) Relative humidity: 50%

Figure 6. Variations of birefringence according to annealing time at 100 °C. **Figure 7.** Measurement points of dimension before and after annealing for flow direction (A1, A2, A3) and perpendicular to flow direction (B1, B2, B3).

돌아가면서 고분자 사슬의 스프링 백 효과에 의해 나타난 것이라고 판단된다. 게이트에 가까운 A2가 A1과 A3에 비해 치수가 크게 나타났다. 이는 수지가 게이트로부터 흘러가면서 A2방향이 A1과 A3보다 먼저 캐비티 끝에 도달하게

(a) Flow direction (A1, A2, A3)

(b) Perpendicular to flow direction (B1, B2, B3)

Figure 8. Variations of dimension before and after annealing.

되고, 즉 충전이 먼저 완료되고 그 후 보압을 받는 시간이 길어서 패키징이 잘 되어 나타난 현상이라 판단된다. 흐름의 직각방향의 치수 결과를 살펴보면 어닐링 후 치수가 더 커진 것을 확인할 수 있다. 이는 흐름방향으로 치수가 줄어들었기 때문에 흐름의 직각방향으로 치수가 보상되면서 늘어난 것이라고 판단된다.

결론

본 연구에서는 어닐링 시 온도, 상대습도, 시간 등 어닐링 조건에 따른 잔류응력의 이완을 관찰하였다. 온도가 높을수록, 상대습도가 높을수록 그리고 어닐링 시간이 길수록 잔류응력 해소에 유리하였다. 본 실험에서 사용한 어닐링 조건 중 어닐링 온도가 잔류응력 해소에 가장 큰 영향을 미쳤다. 상대습도의 영향은 온도가 낮을 경우는 큰 차이가 없으나 온도가 높을 때는 습도가 높을수록 잔류응력 해소에

유리하다는 것을 볼 수 있었다. 온도와 습도가 낮을 때는 어닐링 시간에 크게 의존되지 않으나 높은 온도와 습도에서는 어닐링 시간에 따라 잔류응력의 해소에 차이가 있었다. 흐름에 의한 잔류응력은 분자 배향과 관련되어서 유리전이 온도 부근에서 어닐링해야 잔류응력을 해소할 수 있고, 열에 의한 잔류응력은 유리전이온도보다 낮은 온도에서도 시간이 지남에 따라 해소될 수 있다. 어닐링에 따라 잔류응력이 해소되면서 수지의 흐름방향으로 수축이 일어나고 흐름의 직각방향으로 팽창이 일어났으며 이로 인해 제품에 변형이 발생하였다. 따라서 어닐링 시 지그 사용 등과 같은 제품의 변형을 방지하기 위한 대책이 필요하다.

감사의 글: 본 과제(연구)는 지식경제부와 한국산업기술진흥원의 전략기술인력양성사업으로 수행된 결과입니다.

참 고 문 헌

1. A. I. Isayev, "Thermal Stressed", in *Encyclopedia of Polymer Science and Engineering*, John Wiley & Sons, New York, Vol. **16**, p 747 (1989).
2. M. R. kamal and P. G. Lafleur, *Polym. Eng. Sci.*, **26**, 103 (1986).
3. M. Thompson and J. R. White, *Polym. Eng. Sci.*, **24**, 227 (1984).
4. W. Dietz and J. L. White, *Rheol. Acta*, **17**, 676 (1978).
5. M. Rezayat and R. O. Stafford, *Polym. Eng. Sci.*, **31**, 393 (1991).
6. S. Lee, J. D. L. Vega, and D. C. Bogue, *J. Appl. Polym. Sci.*, **31**, 2791 (1986).
7. H. Janeschitz-Kriegl, *Rheol. Acta*, **16**, 327 (1977).
8. H.-M. Kim, D.-H. Kim, J.-U. Gu, N.-S. Choi, and S.-K. Kim, *J. Korean Soc. Compos. Mater.*, **22**, 1 (2009).
9. D. H. Cho, S. J. Kim, and D. H. Chang, *Textile Coloration and Finishing*, **10**, 15 (1998).
10. K.-K. Choi and Y.-S. Lee, *Transactions of Materials Processing*, **15**, 539 (2006).
11. M.-Y. Lyu and Y. L. Pae, *Polymer(Korea)*, **27**, 113 (2003).
12. X. Zhang, T.-Y. Zhang, M. Wong, and Y. Zohar, *Sens. Actuators A*, **64**, 109 (1998).
13. Photoelasticity Principles and Measuring Techniques (IM-100), Strainoptic Technologies, Inc.
14. J. S. Hong, S. R. Park, and M.-Y. Lyu, *Polymer(Korea)*, **35**, 1 (2011).