

# 제지 슬러지의 첨가가 요소수지 파티클보드의 포름알데히드 방산 및 물리적, 기계적 성질에 미치는 영향\*1

金大俊·李弼宇\*2

## Effects of Paper Sludge Addition on Formaldehyde Emission, and Physical and Mechanical Properties of UF-Particleboard \*1

Dae-Jun Kim · Phil-Woo Lee \*2

### ABSTRACT

This research was carried out to investigate the effect of paper sludge addition on formaldehyde emission, and physical and mechanical properties of UF-particleboard. In order to investigate the effect of paper sludge addition to resin, particleboards were bonded with urea-formaldehyde resins containing 5, 10, 15 % paper sludge powders of three types(A Type: -200 mesh, B Type: -100~+200 mesh, C Type: -50~+100 mesh), based on weight of resin solid. Also the effect of paper sludge addition to furnish was studied from particleboards fabricated with ratios of sludge to particle of 5:95, 10:90, 15:85 based on oven-dry weight. Tests were conducted on the manufactured particleboards to determine formaldehyde emission, bending properties, internal bond strength and thickness swelling.

The obtained results were summarized as follows :

The addition of paper sludge powder to resin yielded a higher pH of cured resin. Formaldehyde emission decreased with the increase of paper sludge powder addition to resin and paper sludge composition ratio to furnish. Particleboard bonded with urea-formaldehyde resin containing paper sludge powder and particleboard mixed with paper sludge have similar bending properties(MOR, MOE) and thickness swelling compared with control particleboard. Internal bond strength of particleboards treated with paper sludge were lower than that of control particleboard. The use of paper sludge as scavenger was achieved reduction of formaldehyde emission without depression of physical and mechanical properties of particleboard. Also the use of paper sludge was able to concluded that there is possibility of partial substitution of wood particle materials.

*Keywords* : UF-particleboard, paper sludge, formaldehyde emission, scavenger, mechanical properties, physical properties

\*1 接受 1994年 2月 8日 Received February 8, 1994

\*2 서울대학교 農業生命科學大學 College of Agriculture & Life Science, Seoul National University, Suwon 441-744, Korea

# 1. 서 론

파티클보드 제조시 가장 널리 이용되고 있는 요소수지는 제조된 제품에서도 포름알데히드가 지속적으로 방산된다는 점으로 인하여 심각한 환경문제가 되고있으며, 이러한 방산의 문제는 그 대부분이 경화된 요소수지의 가수분해에 대한 불안정성에 기인되는 것으로 알려져 있다<sup>1-4)</sup>. 따라서 이러한 분해를 줄이기 위한 방안으로 수지경화 중의 pH저하를 최소화시켜 주거나 포름알데히드와 반응하여 안정화시키는 물질, 즉 scavenger를 수지, 목재 파티클, 제조된 제품 등에 처리하여 포름알데히드 방산을 억제시키려는 연구들이 많이 진행되어 왔다<sup>3,5-9)</sup>.

한편, 펄프 제지 생산과정 중 발생하는 슬러지는 그 양이 막대하며 그것의 처리가 새로운 문제로 심각히 대두되고 있어 슬러지의 효과적인 이용에 대한 연구가 매우 요구되고 있다. 제지 슬러지는 생산과정에 따라 다소 차이가 있으나, pH가 6.8~7.3 정도인 것으로 알려져 있으며<sup>10-12)</sup> N, Mg, Al, Si 등의 여러 성분을 지니는 것으로 보고된 바 있다.<sup>10-12)</sup> 그런데 이와같이 여러 무기성분을 내포하고 있는 제지 슬러지는 포름알데히드 방산을 억제시키기 위한 이전의 연구에서 시험되었던 여러 금속 및 무기물 등과 같이 요소수지내에서 수지의 가수분해를 줄이고 포름알데히드 방산을 억제시킬 수 있는 scavenger로 작용할 수 있을 것으로 생각한다. 또한 제지 슬러지 자체를 separate addition 방법<sup>7)</sup>에서와 같이 scavenger가 처리된 물질로 파티클보드 원료내에 혼합하여 포름알데히드 방산 억제효과를 얻을 수 있을 것이다.

이와같이 제지 슬러지를 요소수지내에 첨가하거나 목재 파티클과 혼합하여 포름알데히드 방산량의 변화를 시험하여 보는 것은 제지 슬러지의 scavenger로의 가능성을 밝혀 볼 수 있으며, 기존의 separate addition 방법의 문제점으로 보고된 scavenger의 처리비용을 감소시키고 보드 강도의 큰 저하없이 포름알데히드 방산 억제효과를 얻을 수 있을 것으로 생각되므로 지금까지의 유리 포름알데히드의 양을 감소시키는 연구에 있어서의 새로운 접근이라고 할 수 있을 것이다. 또한 제지 슬러지의 새로운 이용 분야를 개발한다는 측면에서도 의미있는 일이라고 하겠다.

따라서 본 연구는 요소수지로 제조된 파티클보드의 포름알데히드 방산을 줄이기 위해 제지공정 중 발생하는 세슬러지를 요소수지 내에 첨가하여

나, 목재 파티클과 혼합하여 파티클보드의 포름알데히드 방산 및 물리적, 기계적 성질에 미치는 영향을 시험하는데 그 목적이 있다.

## 2. 재료 및 방법

### 2.1 공시재료

#### 2.1.1 목재 파티클

본 연구에서는 국내 파티클보드 제조회사에서 사용하고 있는 파티클을 분양받아 사용하였으며, 일정한 함수율로 건조한 후 선별(-4~+14 mesh)하여 사용하였다. 건조기내에서 건조한 파티클의 함수율은 4.74 %였으며, 파티클의 원료는 육송 50 %, 미송 30 %, 그리고 가문비나무, 라왕, 기타 잡목이 혼합된 팔만칩이었다.

#### 2.1.2 제지 슬러지

본 연구에서는 국내 모 제지회사의 신문용지 생산공장에서 고지 탈묵 공정 중 발생한 제지 슬러지를 분양받아 사용하였다. 제지 슬러지는 제지공장에서 탈수기를 통과한 것을 분양받아 사용하였으며, 수 주일 동안 천연건조하여 파쇄기로 파쇄한 후 선별(-4~+40 mesh)하였고 선별된 제지 슬러지는 건조기내에서 건조하여 사용하였다. 건조된 제지 슬러지의 함수율은 4.45 %, pH는 7.2, 회분함량은 전건 슬러지 기준으로 40 %였다.

한편 수지내 첨가제로 사용한 제지 슬러지 미세분은 보드제조용 제지 슬러지 선별시 -40 mesh로 선별된 것들을 재선별하여 사용하였다. 미세분의 재선별은 A Type(-200 mesh), B Type(-100~+200 mesh), C Type(-50~+100 mesh)의 것으로 더욱 세분하였고, 건조기내에서 전건시켜 사용하였다. 각 슬러지 미세분의 회분함량은 50.5 % (A Type), 47.7 % (B Type), 46.9 % (C Type) 였다.

#### 2.1.3 파티클보드 제조용 요소수지

파티클보드 제조를 위한 요소수지는 국내 모 파티클보드 제조회사에서 사용하고 있는 요소수지를 분양받아 사용하였으며, 파티클 전건 중량에 대하여 10 % 첨가하였다. 사용된 요소수지의 pH는 7.5 였으며 불휘발분은 56.0 %였다. 경화제는 10 % 염화암모늄 수용액을 수지 고형분량에 대하여 10 % 첨가하였다.

### 2.2 시험방법

#### 2.2.1 파티클보드의 제조

본 시험에서 제조한 파티클보드의 크기는 40

cm(폭)×32 cm(길이)×0.8 cm(두께)이며, 열압 조건은 최대열압압력 25 kg/cm<sup>2</sup>, 총 열압시간 7 분, 열압온도 150 ℃로 하였고, 목표비중을 0.8 로 하여 제조하였다. 예비압력은 2 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 2 분동안 실시하였다.

제지 슬러지의 수지내 첨가에 따른 영향을 시험하기 위하여 세 가지 유형의 제지 슬러지 미세분을 요소수지 고휘분량에 대하여 5, 10, 15%를 첨가하여 보드를 제조하였으며, 목재 파티클과 제지 슬러지의 혼합에 따른 영향을 시험하기 위하여 파티클보드 제조시 제지 슬러지를 전건 파티클에 대하여 5, 10, 15%를 혼합하여 제지 슬러지 대 파티클의 비율이 5:95, 10:90, 15:85인 혼합보드를 제조하였다.

### 2.2.2 각 시험항목의 측정

제지 슬러지의 수지내에서의 영향을 시험하기 위해 ASTM D 1583-91<sup>6)</sup>에 의하여 경화 후 각 처리의 요소수지의 pH를 측정하였다. 포름알데히드 방산량은 파티클보드 제조 후 7 일간 대기중에 방치한 후 KS F 3104 24h Desiccator 방법<sup>7)</sup>에 의하여 5 회 측정하였다. 또한 KS F 3104<sup>7)</sup>에 의하여 파티클보드의 휨강도, 박리강도, 두께팽창률을 10 회 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 비중, 함수율

Table 1. Moisture content and specific gravity of tested board.

Board Type	M.C.(%)* <sup>1</sup>	Sp. Gr.* <sup>2</sup>
Control	10.91	0.72
A 5%* <sup>3</sup>	11.11	0.71
A 10%	10.87	0.73
A 15%	10.50	0.71
B 5%* <sup>3</sup>	10.79	0.72
B 10%	10.30	0.76
B 15%	10.45	0.76
C 5%* <sup>3</sup>	10.35	0.75
C 10%	10.61	0.81
C 15%	10.47	0.81
D 5%* <sup>4</sup>	10.49	0.74
D 10%	10.21	0.76
D 15%	10.09	0.78

\*<sup>1</sup>: Based on oven-dry weight.

\*<sup>2</sup>: Based on oven-dry volume.

\*<sup>3</sup>: Addition level of paper sludge powder(based on weight of resin solid).

\*<sup>4</sup>: Composition ratio of paper sludge(based on oven-dry weight of wood particle).

각각의 처리로 제조된 보드의 비중과 함수율은 Table 1 과 같다.

세 유형의 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드와 목재파티클과 제지 슬러지를 혼합하여 제조한 파티클보드를 7 일간 실내에서 유지시킨 후에 함수율을 측정한 결과 10.09~11.11%의 분포를 나타내었으며, 전건 비중은 0.71~0.81을 나타내었다. 동일한 열압조건으로 제조하였기 때문에 각각의 보드의 압축률에 따라 비중의 차이가 다소 존재하였다고 생각한다.

### 3.2 제지 슬러지 미세분 첨가에 따른 요소수지의 경화시 pH변화

세 유형의 제지 슬러지 미세분 첨가에 따른 요소수지의 경화 전과 경화 후의 pH 값을 Fig. 1 에 나타내었다.

각각의 처리에 따른 요소수지의 경화 전의 pH는 7.3~7.5 의 범위를 나타내어 제지 슬러지 미세분을 첨가하지 않은 수지와 첨가한 수지들간에 별다른 차이를 보이지 않았으며, 제지 슬러지 미세분의 첨가량이나 유형의 변화에 따라서도 별다른 변화를 보이지 않았다.

한편 경화 후에는 경화 전과는 달리 제지 슬러지 미세분의 첨가량이 증가함에 따라 요소수지의 pH

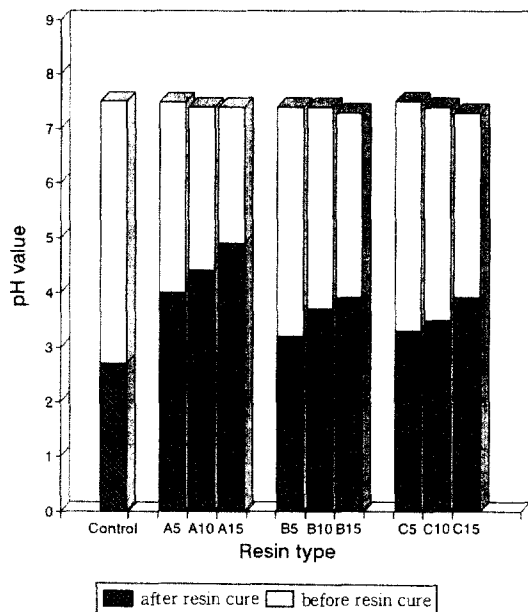


Fig. 1. Effect of paper sludge powder addition on pH of resin before and after cure.

가 크게 증가하였으며, 입자의 크기가 가장 작은 A Type 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지가 입자의 크기가 큰 B Type과 C Type 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지에 비해 경화 후 높은 pH를 나타내었다. 제지 슬러지 미세분의 첨가에 따라 수지경화에 따른 pH 저하가 작게 나타난 것은 glass powder, aluminium, magnesium oxide 등이 요소수지의 경화에 따른 pH 저하를 감소시켰다고 보고한 Higuchi 등<sup>5)</sup>, Myers<sup>18)</sup>, Myers와 Koutsky<sup>19)</sup>의 연구 등으로 비추어 볼 때 제지 슬러지 미세분이 수지내에서 위 연구들에서와 같은 작용을 하였기 때문으로 생각한다. 또한 입자의 크기가 가장 작은 A Type 제지 슬러지 미세분이 경화에 따른 요소수지의 pH 저하를 가장 크게 감소시켰는데 이것은 magnesium oxide 등을 이용하여 수지 경화에 따른 pH 변화를 시험한 결과 첨가제의 입자의 크기가 작을수록 수지의 경화 후 높은 pH를 나타냈다고 보고한 Myers<sup>18)</sup>의 결과와 같은 것이다.

### 3. 3 제지 슬러지 첨가에 따른 파티클보드의 포름알데히드 방산

#### 3. 3. 1 수지내 제지 슬러지 미세분의 첨가에 따른 영향

제지 슬러지를 이용한 처리에 따른 파티클보드의 포름알데히드 방산량을 Fig. 2에 나타내었다. 또 그에 대한 Tukey's Test 결과를 Table 2, 3에 나타내었다.

Table 2, 3과 Fig. 2에 나타난 바와 같이 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드의 포름알데히드 방산량은 각 유형의 제지 슬러지 미세분의 첨가량이 5, 10, 15%로 증가함에 따라 A Type은 5.01, 4.41, 4.01 mg/l, B Type은 5.68, 5.51, 4.71 mg/l, C Type은 5.76, 5.46, 4.86 mg/l의 값을 보여 대조보드에 비해 낮은 값을 나타내었으며, 이러한 차이는 통계상으로도 유의하였다. A Type의 10, 15% 첨가의 경우와 B Type, C Type의 15% 첨가의 경우에는 KS F 3104 U 타입 보드의 포름알데히드 방산량(5 mg/l)보다 낮은 값을 나타내었다. 한편 제지 슬러지 유형에 따른 영향을 살펴보면 각각의 첨가량에서 전반적으로 A Type, B Type, C Type의 순서로, 즉 입자가 작을수록 포름알데히드 방산 억제효과가 크게 나타남을 알 수 있다.

제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드의 포름알데히드 방산량이 일반 요

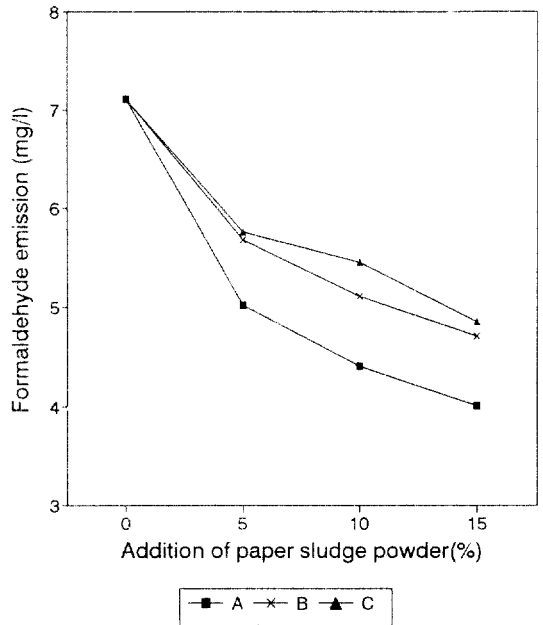


Fig. 2. Effect of paper sludge powder addition to resin on formaldehyde emission from particleboard.

소수지로 제조한 파티클보드에 비해 낮게 나타난 것은 여러 원인이 있을 것으로 생각되나, 그 중 가장 큰 원인은 제지 슬러지 미세분이 수지내에서 scavenger로 작용하여 요소수지의 경화에 따른 pH 저하를 감소시키며 수지의 가수분해에 대한 저항성을 높였기 때문으로 생각한다. 이와 같은 추측은 Fig. 1에서 나타난 결과들과 이전의 연구 결과들에 근거한 것이다. Higuchi와 Sakata<sup>19)</sup>와 Allan 등<sup>20)</sup>은 수지의 낮은 pH는 경화 속도 뿐만 아니라 경화 후 수지의 가수분해도 빠르게 한다고 보고한 바 있으며, 이러한 수지의 가수분해는 Robitschek과 Christensen<sup>1)</sup>, Meyer<sup>2)</sup>, Graves<sup>4)</sup>, Myers<sup>21)</sup> 등 여러 연구에서 보고된 바와 같이 이후의 포름알데히드 방산에 크게 관계한다. Fig. 1에서 나타난 바와 같이 제지 슬러지 미세분을 요소수지내에 첨가한 경우 경화 후 높은 pH를 가지는 것은 제지 슬러지의 첨가로 요소수지의 가수분해에 대한 저항성이 높아질 수 있다는 생각을 할 수 있게 하며, 이러한 사실은 Higuchi와 Sakata<sup>19)</sup>와 Myers<sup>22)</sup>가 요소수지의 가수분해는 중성 부근의 pH에서 최소화 할 수 있다고 보고한 바를 통해서도 알 수 있다.

Table 2. Influence of paper sludge addition to resin and furnish on properties of tested board.

Board Type	Formaldehyde Emission (mg /l)	Static Bending		Internal Bond Strength (kgf /cm <sup>2</sup> )	Thickness Swelling (%)
		MOR (kgf /cm <sup>2</sup> )	MOE (kgf /cm <sup>2</sup> )		
Control	7.11 ± 0.10 A* <sup>3</sup>	137.3 ± 15.3 A	20591 ± 1907 A	8.8 ± 0.80 A	28.3 ± 2.6 A
A 5%* <sup>1</sup>	5.02 ± 0.08 B	137.1 ± 18.2 A	20634 ± 1571 A	8.4 ± 0.29 A	26.0 ± 4.3 A
A 10%	4.41 ± 0.21 BC	133.0 ± 12.3 A	19988 ± 414 A	7.8 ± 1.05 B	28.2 ± 4.8 A
A 15%	4.01 ± 0.61 C	133.8 ± 7.1 A	19389 ± 1178 A	7.8 ± 0.79 B	26.6 ± 3.8 A
Control	7.11 ± 0.10 A	137.3 ± 15.3 A	20591 ± 1907 A	8.8 ± 0.80 A	28.3 ± 2.6 A
B 5%* <sup>1</sup>	5.68 ± 0.07 B	133.1 ± 25.0 A	20410 ± 1794 A	7.4 ± 0.20 B	28.3 ± 3.5 A
B 10%	5.51 ± 0.15 C	138.1 ± 13.5 A	21328 ± 1013 A	7.4 ± 0.64 B	27.6 ± 3.4 A
B 15%	4.71 ± 0.19 D	136.3 ± 24.6 A	20104 ± 1772 A	6.8 ± 0.14 B	28.3 ± 3.5 A
Control	7.11 ± 0.10 A	137.3 ± 15.3 A	20591 ± 1907 A	8.8 ± 0.80 A	28.3 ± 2.6 A
C 5%* <sup>1</sup>	5.76 ± 0.07 B	138.1 ± 14.6 A	20857 ± 795 A	7.7 ± 0.35 B	27.4 ± 2.5 A
C 10%	5.46 ± 0.05 C	140.3 ± 6.2 A	21433 ± 1176 A	6.8 ± 0.86 BC	27.8 ± 5.2 A
C 15%	4.86 ± 0.18 D	136.2 ± 19.0 A	21544 ± 2141 A	6.9 ± 0.41 C	28.7 ± 3.4 A
Control	7.11 ± 0.10 A	137.3 ± 15.3 A	20591 ± 1907 A	8.8 ± 0.80 A	28.3 ± 2.6 A
D 5%* <sup>2</sup>	6.34 ± 0.09 B	135.5 ± 16.4 A	21411 ± 1627 A	7.8 ± 0.87 AB	26.3 ± 3.6 A
D 10%	5.61 ± 0.13 C	136.6 ± 14.1 A	20937 ± 1659 A	7.9 ± 0.92 AB	26.3 ± 2.9 A
D 15%	5.11 ± 0.09 D	130.3 ± 14.2 A	20153 ± 585 A	7.6 ± 0.48 B	26.1 ± 2.4 A

\*<sup>1</sup> : Addition level of paper sludge powder (based on weight of resin solid).

\*<sup>2</sup> : Composition ratio of paper sludge (based on oven-dry weight of wood particle).

\*<sup>3</sup> : Means with the same letter are not significantly different at the 5 % level from tukey's test. The letters are assigned in descending order based on the relative magnitude of the mean, but invert order in formaldehyde emission and thickness swelling.

Table 3. Influence of added paper sludge powder type on properties of tested board at same addition level.

Board Type	Formaldehyde Emission (mg /l)	Static Bending		Internal Bond Strength (kgf /cm <sup>2</sup> )	Thickness Swelling (%)
		MOR (kgf /cm <sup>2</sup> )	MOE (kgf /cm <sup>2</sup> )		
A 5%* <sup>1</sup>	5.02 ± 0.08 B* <sup>2</sup>	137.1 ± 18.2 A	20634 ± 1571 A	8.4 ± 0.29 A	26.0 ± 4.3 A
B 5%	5.68 ± 0.07 A	133.1 ± 25.0 A	20410 ± 1794 A	7.4 ± 0.20 B	28.3 ± 3.5 A
C 5%	5.76 ± 0.07 A	138.1 ± 14.6 A	20857 ± 795 A	7.7 ± 0.35 B	27.4 ± 2.5 A
A 10% <sup>1</sup>	4.41 ± 0.21 C	133.0 ± 12.3 A	19988 ± 414 A	7.8 ± 1.05 A	28.2 ± 4.8 A
B 10%	5.51 ± 0.15 B	138.1 ± 13.5 A	21328 ± 1013 A	7.4 ± 0.64 AB	27.6 ± 3.4 A
C 10%	5.46 ± 0.05 A	140.3 ± 6.2 A	21433 ± 1176 A	6.8 ± 0.86 B	27.8 ± 5.2 A
A 15% <sup>1</sup>	4.01 ± 0.61 B	133.8 ± 7.1 A	19389 ± 1178 A	7.8 ± 0.79 A	26.6 ± 3.8 A
B 15%	4.71 ± 0.19 AB	136.3 ± 24.6 A	20104 ± 1772 A	6.8 ± 0.14 B	28.3 ± 3.5 A
C 15%	4.86 ± 0.18 A	136.2 ± 19.0 A	21544 ± 2141 A	6.9 ± 0.41 B	28.7 ± 3.4 A

\*<sup>1</sup> : Addition level of paper sludge powder (based on weight of resin solid).

\*<sup>2</sup> : Means with the same letter are not significantly different at the 5 % level from tukey's test. The letters are assigned in descending order based on the relative magnitude of the mean, but invert order in formaldehyde emission and thickness swelling.

또한 Higuchi 등<sup>5)</sup>은 요소수지의 가수분해를 줄이기 위해 glass powder를 첨가한 결과, 첨가량이 증가함에 따라 수지경화에 따른 pH 저하가 작았고 가수분해에 대한 저항성도 향상됨을 보고하였으며, Myers<sup>18)</sup>는 aluminium, magnesium oxide, soda lime glass 등을 수지의 내구성 높이기 위

한 scavenger로 첨가한 결과, 이러한 scavenger들이 경화 후 수지의 pH를 변화시켰다고 보고하였다. 그리고 Myers와 Koutsky<sup>9)</sup>는 요소수지내에 aluminum powder, magnesium oxide, soda lime glass 등을 첨가하였는데, 그 중에서 특히 aluminum의 경우는 경화된 수지의 pH 값을 4.0 이상으

로 증가시키면서 수지의 포름알데히드 방산도 크게 억제시켰다고 보고하였다.

이상의 결과들을 종합하여 보고 이전의 제지 슬러지의 성분에 관한 연구들<sup>10-15)</sup>로 미루어 볼때 제지 슬러지내에 존재하는 금속이온이나 무기물 등으로 인하여 제지 슬러지 미세분이 수지안에서 scavenger로 작용하여 수지경화에 따른 pH저하를 최소화시켜 수지의 가수분해와 이후의 포름알데히드 방산도 감소시켰다고 생각한다. 그리고 A Type의 제지 슬러지 미세분의 효과가 가장 좋은 것은 Fig. 1에서 나타난 바와 같이 A Type의 제지 슬러지 미세분이 경화에 따른 요소수지의 pH저하를 가장 크게 감소시켰기 때문으로 생각한다. B Type과 C Type 제지 슬러지 미세분의 수지 경화에 따른 pH에 대한 영향은 거의 유사하였는데, 포름알데히드 방산에 대한 영향도 유사한 결과를 나타내었다.

### 3. 3. 2 목재 파티클과 제지 슬러지의 혼합에 따른 영향

목재 파티클과 제지 슬러지의 혼합에 따른 포름알데히드 방산량의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 또 그에 대한 Tukey's Test 결과를 Table 2, 3에 나타내었다.

Table 2, 3과 Fig. 3에서 알 수 있듯이 목재 파티클과 제지 슬러지를 혼합하여 제조한 보드의 포

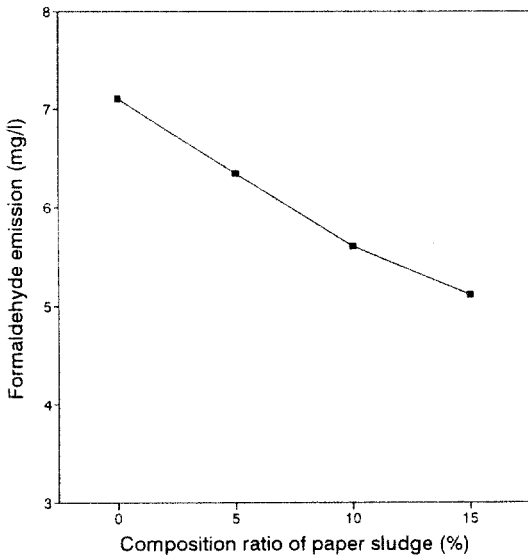


Fig. 3. Effect of paper sludge addition to wood particle on formaldehyde emission from particleboard.

름알데히드 방산량은 제지 슬러지의 혼합량이 5, 10, 15 %로 증가함에 따라 6.34, 5.61, 5.11 mg/l의 값을 보여 대조보드에 비해 낮은 값을 나타내었으며, 이러한 차이는 통계상으로도 유의하였다. 제지 슬러지를 혼합한 처리로 얻은 값들은 KS F 3104 U 타입 보드의 포름알데히드 방산량(5 mg/l)보다는 다소 높은 값이나 제지 슬러지의 혼합량을 다소 증가시키거나 제조조건을 조절한다면 위 기준을 만족시킬 수 있을 것으로 생각한다.

이와같이 제지 슬러지를 파티클보드의 원료에 일부 첨가한 것은 Myers<sup>7)</sup>가 분류한 separate addition 방법의 응용으로 볼 수 있으며, 그에 따른 포름알데히드 방산량의 감소 원인은 제지 슬러지가 목재 파티클과 혼합되었을때 separate addition 방법에서의 scavenger 처리 원료와 같이 작용하여 포름알데히드 방산량을 감소시켰기 때문이라고 생각한다. 그리고 제지 슬러지를 scavenger 처리 원료로 보는 것은 파티클보드 제조시 이용되는 요소수지내에 제지 슬러지 미세분을 첨가하여 얻은 Table 2, 3과 Fig. 2의 결과에 근거한 것이다. 한편 Poblete와 Roffael<sup>21)</sup>은 일반 목재 파티클은 파티클보드 제조시 높은 온도와 압력 등으로 인하여 다양한 화학적 변화와 pH 값의 저하를 나타내게 되며, 이러한 반응은 경화제와 포름알데히드의 존재하에서 더욱 악화된다고 하였는데 제지 슬러지의 경우는 그 안에 존재하는 여러 금속이온이나 무기물들<sup>10,12-15)</sup>로 인하여 이러한 변화에 대해 목재 파티클과는 다르게 반응할 것으로 생각한다. 따라서 그에 따른 수지와 의 계면에서의 작용도 일반 목재 파티클과는 다를 것으로 생각되며, 이러한 원인들 역시 일반 목재 파티클만으로 제조된 보드와는 다른 포름알데히드 방산량을 나타내게 했을 것으로 생각한다.

한편 제지 슬러지 혼합에 따른 포름알데히드 방산 억제효과는 파티클보드 원료에 멜라민이 주입된 칩을 혼합하여 대조보드의 53 % 정도로 포름알데히드 방산을 억제시켰다고 보고한 Scheuermann 등<sup>21)</sup>의 결과와 요소가 주입된 칩을 혼합하여 대조보드의 25 % 이하로 포름알데히드 방산을 억제시켰다는 Graser<sup>25)</sup>의 결과 그리고 요소가 주입된 paper fiber를 첨가하여 대조보드의 29 %로 포름알데히드 방산을 억제시켰다는 Graser 등<sup>26)</sup>의 결과에 비하면 크지 않은 편이다. 그런데 이전의 처리들은 scavenger를 처리하는데 비용이 많이 들고 제조된 보드의 강도에 좋지 않은 영향을 미칠 수 있기 때문에 scavenger의 처리는 아주 약간의

부분에만 국한되었으나, 제지 슬러지의 경우는 별도의 처리가 필요없으며 그 첨가량도 이전의 방법들에 비해 높일 수 있어 포름알데히드 방산량 감소뿐만 아니라 부족해지고 있는 목재 자원을 일부 대체할 수 있는 효과도 얻을 수 있다.

### 3. 4 제지 슬러지 첨가에 따른 파티클보드의 물리적, 기계적 성질

#### 3. 4. 1 휨강도

제지 슬러지의 처리에 따른 휨강도적 성질을 Fig. 4, 5에 나타내었다. 또 그에 대한 Tukey's Test 결과를 Table 2, 3에 나타내었다.

Table 2, 3과 Fig. 4, 5에서 알 수 있듯이 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드와 목재 파티클과 제지 슬러지를 혼합하여 제조한 파티클보드의 휨파괴계수와 휨탄성계수는 각각 130.0~140.3 kgf/cm<sup>2</sup>, 19389~21544 kgf/cm<sup>2</sup>와 130.3~136.6 kgf/cm<sup>2</sup>, 20153~21411 kgf/cm<sup>2</sup>로 대조보드와 유사한 값을 나타내었다. 이것은 KS F 3104 150 타입 보드의 휨파괴계수(130 kgf/cm<sup>2</sup> 이상)와 휨탄성계수(20000 kgf/cm<sup>2</sup> 이상)를 만족시키는 결과이다.

제지 슬러지 미세분의 첨가에 따른 보드 강도의 저하가 나타나지 않은 것은 제지 슬러지 미세분의 첨가가 수지경화에 크게 영향하지 않았기 때문일 것으로 생각하며, 이러한 결과는 urea의 첨가량이

증가함에 따라 강도의 감소를 나타냈다고 보고한 Myers와 Nagaoka<sup>6)</sup>의 연구보다는 좋은 결과이며, sodium bisulfite, sodium thiosulfate 등의 sulfur compound를 파티클보드 제조시 수지내에 첨가한 결과 각 첨가물질에 따라 파티클보드의 휨탄성계수와 휨파괴계수의 증감의 경향은 약간 다르나 각 처리 간의 유의한 차이는 없었다고 보고한 Meyer 등<sup>3)</sup>의 연구와는 유사한 결과이다. 제지 슬러지 미세분의 첨가량의 변화나 유형의 변화에 따른 영향은 뚜렷하지 않았고 통계상의 유의성도 없었다.

목재 파티클과 제지 슬러지의 혼합에 따른 결과는 파티클보드 원료에 멜라민이 주입된 칩을 혼합하여 대조보드와 유사한 휨파괴계수를 얻었다는 Scheuermann 등<sup>24)</sup>의 보고와 요소가 주입된 칩을 혼합하여 대조보드의 90% 정도의 휨파괴계수를 얻었다는 Graser<sup>25)</sup>의 보고, 그리고 요소가 주입된 paper fiber를 첨가하여 대조보드와 거의 유사한 휨파괴계수를 얻었다는 Graser 등<sup>26)</sup>의 보고와 유사한 경향을 나타낸 것이다. 그러나 이전의 연구들에서 scavenger 처리원료의 혼합량이 처리비용과 강도에 미치는 영향 등으로 인해 5% 정도였다는 것을 고려해 보면 15% 정도를 첨가하고도 대조보드와 유의한 차이를 가지지 않은 제지 슬러지의 혼합에 따른 결과는 매우 우수한 것으로 평가할 수 있다. 또한 제지 슬러지를 파티클보드 원료에 30% 정도 혼합한 경우에도 대조보드의 휨강도적 성질과 유의한 차이가 없었다는 이 등<sup>27)</sup>의 보고 등으로 볼 때, 파티클보드의 원료에 대한 제지 슬러지의

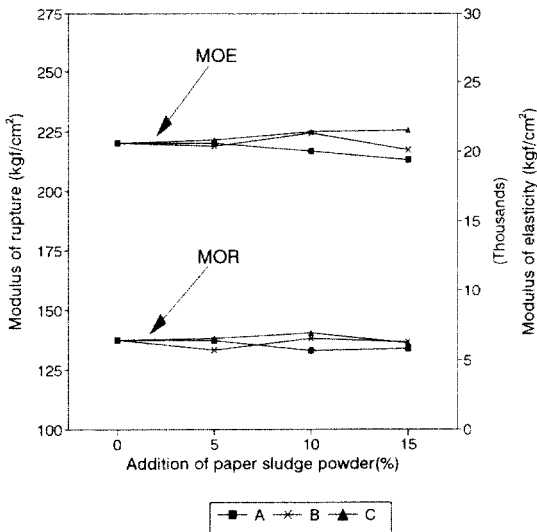


Fig. 4. Effect of paper sludge powder addition to resin on bending properties(MOR, MOE) of particleboard.

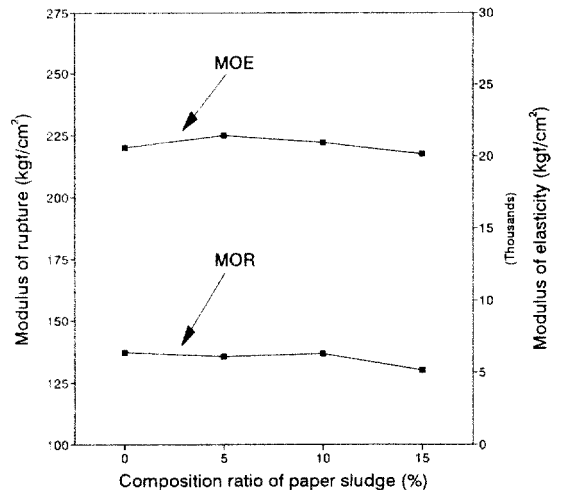


Fig. 5. Effect of paper sludge addition to wood particle on bending properties(MOR, MOE) of particleboard.

혼합량을 본 연구에서 보다 좀 더 높일 경우에도 휨강도적 성질에는 유의한 차이가 없이 포름알데히드 방산 억제효과를 크게 얻을 수 있을 것으로 생각한다.

### 3. 4. 2 박리강도

제지 슬러지를 이용한 처리에 따른 박리강도를 Fig. 6, 7에 나타내었다. 또 그에 대한 Tukey's Test 결과를 Table 2, 3에 나타내었다.

Table 2, 3과 Fig. 6, 7에서 알 수 있듯이 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드와 목재 파티클과 제지 슬러지를 혼합하여 제조한 파티클보드의 박리강도는 각각 6.8~8.4 kgf/cm<sup>2</sup>와 7.6~7.9 kgf/cm<sup>2</sup>로 대조보드보다 다소 낮은 값을 나타내었으나, KS F 3104 200 타입 보드의 기준(5 kgf/cm<sup>2</sup> 이상)은 만족시켰다.

수지내에 포름알데히드 scavenger를 첨가할 경우 박리강도의 저하를 가져온 것은 Myers와 Nagaoka<sup>6)</sup>와 Sellers 등<sup>28)</sup>의 연구에서도 나타난 바와 같이 제지 슬러지 미세분의 경우도 유사한 결과를 나타내었다. Meyer 등<sup>3)</sup>은 sulfur compound를 첨가한 결과, 박리강도가 다소 감소하나 통계적으로 유의한 차이는 없었다고 하였다.

목재파티클과 제지 슬러지의 혼합에 따른 결과는 이전의 separate addition 방법에 의한 포름알데히드 방산 억제연구<sup>24,25,26)</sup>에서 목재 파티클에 대

한 scavenger 처리 원료의 혼합량이 2~5% 정도였을 때 대조보드의 88~95% 정도의 박리강도를 얻은 것과 유사한 경향이다. 그러나 요소를 주입한 paper fiber를 14% 혼합하였을 때 대조보드에 비해 46%나 박리강도가 감소하였다는 Graser<sup>25)</sup>의 보고와 비교해 보면, 제지 슬러지의 혼합이 다른 scavenger 처리 원료의 혼합에 비해 박리강도의 저하를 작게 가져온다고 판단할 수 있다. 이와 같이 제지 슬러지를 혼합했을 때 박리강도의 저하가 작은 것은 이 등<sup>27)</sup>의 연구에서 언급된 바와 같이 제지 슬러지의 용적 밀도가 파티클에 비해 높은 반면, 압축률은 제지 슬러지가 낮기 때문에 열압시에 압축저항이 파티클보다 덜 발생되어 제지 슬러지가 파티클 사이의 빈 공간으로 유동이 쉽게 되어 밀도 분포가 균일한 보드를 형성하기 때문이라고 생각한다.

### 3. 4. 3 두께팽창률

제지 슬러지를 이용한 처리에 따른 두께팽창률을 Fig. 6, 7에 나타내었다. 또 그에 대한 Tukey's Test 결과를 Table 2, 3에 나타내었다.

제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드의 두께팽창률은 26.0~28.7%로 대조보드와 유사한 값을 나타내었고, 이러한 결과는 sulfur compound를 첨가하여 실험한 결과 sodium thiosulfate를 제외한 다른 화합물을 첨가한

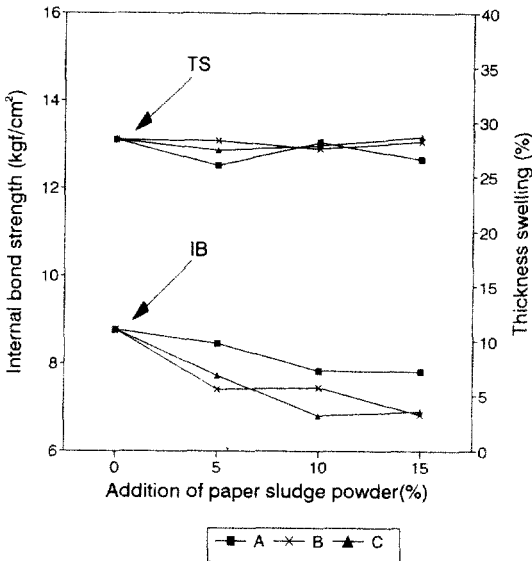


Fig. 6. Effect of paper sludge powder addition to resin on internal bond strength and thickness swelling of particleboard.

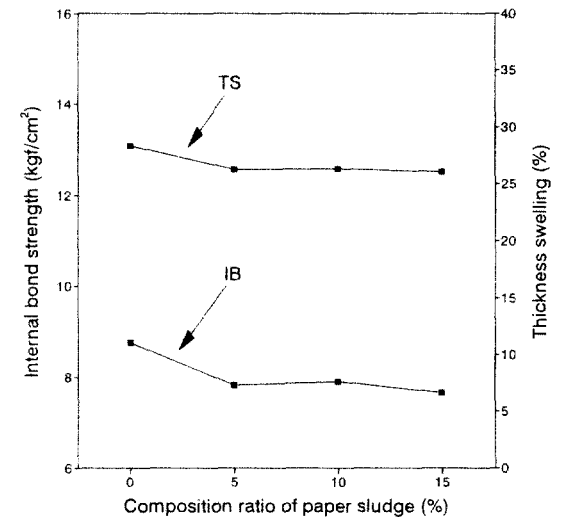


Fig. 7. Effect of paper sludge addition to wood particle on internal bond strength and thickness swelling of particleboard.



경우, 두께팽창의 유의한 차이가 없었다고 보고한 Meyer 등<sup>23)</sup>의 결과와 유사한 경향이다. 제지 슬러지 미세분의 첨가량의 변화나 유형의 변화에 따른 영향은 뚜렷하지 않았고 통계상의 유의성도 없었다.

목재 파티클과 제지 슬러지를 혼합하여 제조한 파티클보드의 두께팽창률은 26.1~26.3 %로 대조 보드에 비해 다소 낮은 값을 나타내었으나, 통계상의 유의성은 없었다. 이러한 결과는 제지 슬러지의 혼합비율이 증가함에 따라 두께팽창률이 다소 감소하였다고 보고한 이 등<sup>27)</sup>의 결과와 유사한 것이다. 또한 separate addition 방법으로 처리한 결과, 대조보드의 두께팽창률과 거의 유사한 값을 나타내었다고 보고한 Scheuermann<sup>24)</sup>과 Graser 등<sup>25)</sup>의 결과와도 유사한 경향을 나타낸 것이며, 대조 보드에 비해 두께팽창률이 55 % 증가하였다고 보고한 Graser<sup>25)</sup>의 연구에 비하면 좋은 결과라고 할 수 있다.

#### 4. 결 론

요소수지로 제조된 파티클보드의 포름알데히드 방산을 줄이기 위해 제지공정 중 발생하는 폐 슬러지를 요소수지내에 첨가하거나 목재 파티클과 혼합하여 파티클보드의 포름알데히드 방산 및 물리적, 기계적 성질에 미치는 영향을 시험하여 얻은 결과는 다음과 같다.

1. 경화 후 수지의 pH를 측정된 결과, 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지의 경화에 따른 pH의 감소가 제지 슬러지 미세분을 첨가하지 않은 수지에 비해 작았다.
2. 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드 및 목재파티클에 제지 슬러지를 혼합하여 제조한 파티클보드의 포름알데히드 방산량을 시험한 결과, 수지내 제지 슬러지 미세분의 첨가량과 목재 파티클에 대한 제지 슬러지의 혼합량이 증가함에 따라 포름알데히드 방산량이 크게 감소되었다.
3. 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 제조한 파티클보드 및 목재파티클과 제지 슬러지를 혼합하여 제조한 파티클보드의 물리적, 기계적 성질을 시험한 결과, 휨탄성계수, 휨파괴계수, 두께팽창률은 대조보드와 유사한 값을 나타내었다. 그러나 박리강도에서는 수지내 제지 슬러지 미세분 첨가와 목재 파티클에 대한 제지 슬러지의 혼합에 따라 대조보드에 비해 다소 강도

의 감소를 나타내었다.

4. 결론적으로 파티클보드의 포름알데히드 방산 및 물리적, 기계적 성질에 대한 제지 슬러지의 영향을 시험한 결과들을 종합해 볼때, 제지 슬러지 미세분을 첨가한 요소수지로 보드를 제조하는 것과 파티클보드 원료내에 제지 슬러지를 혼합하여 보드를 제조하는 것은 파티클보드의 물리적, 기계적 성질의 저하 없이 포름알데히드 방산을 효과적으로 억제하였으며, 특히 원료내에 제지 슬러지를 혼합하는 경우에는 기존의 방법에서 소요되었던 별도의 scavenger 처리비용 없이 포름알데히드 방산량이 적은 보드를 생산 가능하게 하며, 기존의 방법에 비해 첨가량을 늘릴 수 있어 부족해지고 있는 목재 자원을 효과적으로 일부 대체할 수 있다는 장점을 가지고 있다.

#### 참 고 문 헌

1. Robitschek, P. and R. L. Christensen. 1976. Degradation phenomena in urea-formaldehyde resin-bonded particleboard. *Forest Prod. J.* 26(12):43~46
2. Meyer, B. 1979. Formaldehyde release from urea-formaldehyde systems. Proc. 13th Washington State Univ. Int. Symp. on Particleboard, Pullman, Wash.:343~354
3. Meyer, B., W. E. Johns and J. K. Woo. 1980. Formaldehyde release from sulfur-modified urea-formaldehyde resin systems. *Forest Prod. J.* 30(3):24~31
4. Graves, G. 1985. Urea-formaldehyde resins :A primary binder. In: Proc. Symposium on wood adhesives in 1985: Status and needs, May 14-16, Madison, WI. Sponsord by the Forest Prod. Lab. and Forest Prod. Res. Soc.:27~33
5. Higuchi, M., K. Kuwazuru and I. Sakata. 1980. Studies on the improvement of urea-formaldehyde resin adhesives III. Water-resistance improvement by an acid scavenger. *Mokuzai Gakkaishi* 25(7):496~502
6. Myers, G. E. and M. Nagaoka. 1981. Formaldehyde emission: methods of measurement and effects of several particleboard

- variables. *Wood Sci.* 13(3):140~150
7. Myers, G. E. 1985. Effect of separate additions to furnish or veneer on formaldehyde emission and other properties: a literature review(1960-1984). *Forest Prod. J.* 35(6):57~62
  8. Myers, G. E. 1986. Effects of post-manufacture board treatments on formaldehyde emission: a literature review(1960-1984). *Forest Prod. J.* 36(6):41~51
  9. Myers, G. E. and J. A. Koutsky. 1990. Formaldehyde liberation and cure behavior of urea-formaldehyde resins. *Holzforschung* 44(2):117~126
  10. McGovern, J. N., J. G. Berbee, J. G. Bockheim and A. J. Baker. 1983. Characteristics of combined effluent treatment sludges from several types of pulp and paper mills. *Tappi* 66(3):115~118
  11. 한순교, 이화형. 1987. 제지 슬러지 비료화 연구. *펄프·종이 기술* 19(2):56~63
  12. Campbell, A. G., R. R. Engebretson and R. R. Tripepi. 1991. Composting a combined RMP /CMP pulp and paper sludge. *Tappi* 74(9):183~191
  13. Fredrick, W. J., T. M. Grace and T. W. Joyce. 1981. Disposal of secondary sludge in the kraft recovery system. *Tappi* 64(1):59~62
  14. 박영성, 한근희, 손재익, 정태호. 1990. 제지 슬러지의 유동층 건조장치 적용시험 연구(상). *제지계* 208:19~24
  15. 전병관, 김운섭. 1992. 산업폐기물의 미세 섬유소 처리에 관한 연구 -제지공장 슬러지의 가수분해와 메탄발효특성-. *펄프·종이 기술* 24(2):22~28
  16. American Society for Testing and Materials. 1991. Standard test method for hydrogen ion concentration of dry adhesive films. ASTM D 1583-91
  17. 한국공업표준협회. 1987. KSF 3104. 파티클보드
  18. Myers, G. E. 1983. Use of acid scavengers to improve durability of acid-catalyzed adhesive wood bonds. *Forest. Prod. J.* 33(4):49~57
  19. Higuchi, M. and I. Sakata. 1979. Studies on the improvement of urea-formaldehyde resin adhesives I. A possibility of water-resistance improvement. *Mokuzai Gakkaishi* 25(7):496~502
  20. Allan, G. G., J. Dutkiewicz and E. J. Gilmartin. 1980. Long-term stability of urea-formaldehyde foam insulation. *Environment. Sci. Tech.* 14:1235~1240
  21. Myers, G. E. 1985. Resin hydrolysis and mechanisms of formaldehyde release from bonded wood products. In: Proc. Symposium on wood adhesives in 1985: Status and needs, May 14-16, Madison, WI. Sponsord by the Forest Prod. Lab. and Forest Prod. Res. Soc.:119~156
  22. Myers, G. E. 1982. Formaldehyde dynamic air contamination by hardwood plywood: effects of several variables and board treatments. *Forest Prod. J.* 32(4)20~25
  23. Poblete, H. and E. Roffael. 1985. On chemical changes in wood particles during pressing with urea-formaldehyde resins as binder. *Holz als Roh-und Werkstoff* 43:57~62
  24. Scheuermann, H., L. Skark and W. Clad. 1967. Process for the production of particleboard with decreased eventual formaldehyde emission. German patent 1,653,167; Nov.
  25. Graser, M. 1977. Process for the production of industrial materials from wood. German patent 2,553,459; June
  26. Graser, M., E. W. Hann, H. Henkel, J. Mayer and C. Schmidt-Hellerau. 1978. Process for the production of wood materials with reduced subsequent formaldehyde seperation. German patent 2,740,207; Nov.
  27. 이필우, 윤형운, 김대준, 손정일. 1993. 슬러지-파티클보드의 제조가능성 및 구성비율에 관한 기초연구. *목재공학* 21(2):57~65
  28. Sellers, T. Jr., G. D. Miler. and W. L. Nieh. 1990. Evaluation of post-added ester and /or urea as a formaldehyde scavenger in UF resins used to bond southern pine particleboard. *Forest Prod. J.* 41(1):53~56