

# 종이의 물리적 특성에 미치는 섬유의 찌그러짐 특성의 영향에 대한 CLSM 분석

김 서 환 · 박 종 문<sup>†</sup> · 김 철 환<sup>\*</sup>

## Analysis of Effects of Fiber's Collapse Index on Physical Properties of Paper Using CLSM

Seo-Hwan Kim, Jong-Moon Park<sup>†</sup> and Chul-Hwan Kim<sup>\*</sup>

### ABSTRACT

The most important effect of refining is believed as the internal fibrillation. The internal fibrillation is the separation of the fiber wall into several lamellae. The internal fibrillation results in fiber swelling as water penetrates the fiber wall. The increase in paper strength as a result of refining was due to delamination which made the fiber more flexible.

Pulp fibers are refined to 20, 40, and 70°SR freeness at Valley beater. Changes of physical paper properties are analyzed depending on fiber wall thickness and fiber's collapse index at 2.5 and 5.6 kg<sub>f</sub> refining loads. At same °SR freeness with 2.5 kg<sub>f</sub> refining load, the fiber wall thickness, fiber's collapse index, water retention value, tensile strength and burst strength are higher than those with 5.6 kg<sub>f</sub> refining load. At low 2.5 kg<sub>f</sub> refining load, fiber wall thickness is increased further than at high 5.6 kg<sub>f</sub> refining load. With higher fiber wall thickness by lower intensity refining load, higher internal fibrillation, flexibility, collapsability of fibers are achieved. Those effects improve WRV, tensile strength, and burst strength. Tear strength shows opposite trend to tensile and burst strength as usual.

### 1. 서 론

고해에 의해서 증가되는 섬유의 유연성은 종이의 강도발현에 많은 영향을 미치게 된다. 섬유유연성의 중요성은 건조동안에 섬유간 접촉면적의 증가에 있다. 이것은 Campbell<sup>1)</sup>에 의해서 제안되었는데, 매우 유연한 섬유는 탈수가 이루어짐에 따라서 건조동안에 표면장력에 의해서 섬유가 접

촉할 수 있을 정도로 충분하게 끌어당긴다는 것이다. 고해전의 섬유유연성은 섬유의 폭이 일정할 때 세포벽 두께에 반비례하나, 고해 이후에는 섬유의 충간분리정도에 비례한다. 고해공정에 의해서 유발된 유연성의 증가는 밀도와 인장강도의 증가와 상관관계가 있으며 Emerton<sup>2)</sup>은 섬유를 더욱 유연하게 만드는 충간분리때문에 고해를 한 종이는 강도가 증가된다고 하였다. 고해가 증가할수

• 충북대학교 산림과학부(School of Forest Resources, Chungbuk National University, Cheongju 361-763, Korea)

\* NICEM (National Instrumentation Center for Environmental Management at Seoul Nat'l University, Suwon 441-744, Korea)

† 주 저자 (corresponding author): e-mail: jmpark@cbucc.chungbuk.ac.kr

록 내부피브릴화가 많이 발생하여 섬유의 유연성이 증가한다는 것은 이미 주지의 사실이며 많은 학자들이 섬유유연성에 미치는 고해의 영향을 측정하기 위해서 노력 하였는데 Kerekes와 Tamdo<sup>3)</sup>는 고해함으로써 증가하는 섬유유연성은 인장강도가 증가하는 것과 상관관계가 있다고 하였다. CLSM을 이용하여 섬유의 내부피브릴화를 측정하였으며, 내부피브릴화의 증가가 섬유유연성을 증가시키는지를 확인하기 위해, 섬유유연성의 측정결과를 수치화할 수 있는 collapse index(CI)를 이용하였다. CI에 의한 측정방법은 기존의 방법보다 측정하기 쉽고, 신속하게 측정결과를 얻을 수 있을뿐만 아니라, 관찰자에 따른 변이를 줄일 수 있는 장점이 있다.

종이의 강도가 발현되는데에는 매우 많은 인자들의 영향이 복합적으로 영향을 주게 되지만 특히, 외부피브릴화는 종이의 겉보기밀도와 광산란에 기여하고, 종이의 강도에는 내부피브릴화가 크게 기여한다.<sup>4)</sup> 섬유의 내부피브릴화는 고해가 진행되는 동안에 섬유 표면에 틈이 생기게 되고 그 사이로 침투한 물이 섬유 내에서 새로운 층(lamella)을 형성하면서 층 사이를 더욱 벌어지게 한다. 새롭게 형성된 층은 섬유의 팽윤을 발생시키고 섬유 유연성의 증가를 유발시키게 된다. 고해동안에 증가하는 섬유의 유연성은 탈수동안에 섬유의 접촉면적을 증가시킴으로써 섬유의 결합강도를 증가시키게 되고 이것은 최종 종이의 강도에 영향을 미치게 된다. 섬유의 유연성을 증가시키는 내부피브릴화는 펄프섬유의 결합능력과 매우 높은 상관관계를 나타낸다. 따라서 본 논문에서는 CLSM을 이용하여 섬유벽 두께의 변화 즉, 팽윤의 정도를 내부피브릴화와 섬유유연성의 정도로써 관찰하였다.

## 2. 재료 및 방법

### 2.1 공시펄프

공시펄프는 캐나다 Howesound Pulp & Paper Limited로부터 구입한 침엽수 표백 크라프트 펄프(SwBKP)를 사용하였다.

### 2.2 실험방법

#### 2.2.1 고해

TAPPI T248에 의거하여 Valley Beater를 이용하여 2.5 kgf, 5.6 kgf의 고해하중에서 20, 40, 그리고 70°SR이 되도록 고해하였다.

#### 2.2.2 수초지

Valley beater로 고해 된 펄프를 0.3%로 희석한 후 TAPPI standard T248 om-81에 의거하여 평량 60 g/m<sup>2</sup>의 수초지를 제작하였다.

#### 2.2.3 펄프섬유의 관찰

##### 2.2.3.1 시료제작 및 CLSM에의한 관찰

CLSM(confocal laser scanning microscope)은 농업과학공동기기센터 (National Instrumentation Center for Environmental Management: NICEM)에 설치된 Bio-Rad MRC-1024를 이용하였다. 이 때 사용된 레이저는 488 nm(청색) 및 568 nm(녹색) 파장대의 25 mW Argon 레이저였다. 횡단면 화상을 얻기 위해 사용된 대물렌즈는 Nikon 100× Plan Fluor (NA 1.3) oil immersion 렌즈이고, 횡단면 화상을 얻기 위해 주어진 stepping distance는 0.10 μm였다. 화상의 collection filter는 slow scan mode에서 Kalman average filter (n=6)를 사용하였다. 그 외에 4, 10, 20×의 대물 렌즈가 섬유 네트워크의 형성과정이나 고해 효과 등을 관찰하기 위해 함께 이용되었다. 특히 내부피브릴화의 정량화에 이용되는 섬유는 scanning 방향에 대해 수직으로 배열된 섬유만을 이용하여 횡단면 화상을 얻었다.

##### 2.2.3.2 CLSM이미지의 화상분석

섬유의 내부피브릴화를 정량화하기 위해서 이용된 화상 분석 프로그램은 독일 Kontron Elektronik사에서 제공되는 KS 400(ver. 3.0)을 이용하였다. 각 치수 측정에 이용된 섬유의 개수는 150-200개였다.

#### 2.2.4 보수도(water retention value) 측정

섬유에서 발생한 내부피브릴화의 정도를 알아보

기 위해서 미세분을 제거하여 장섬유만으로 WRV를 측정하였다. WRV는 TAPPI UM 256에 의거하여 900 G에서 30 분간 원심분리 시킨 후 측정하였다.

### 2.2.5 종이의 물성 측정

#### 2.2.5.1 물리적 성질

종이는 TAPPI standard T402에 의거,  $23 \pm 1^{\circ}\text{C}$ , 상대습도  $50 \pm 2\%$ 의 조건에서 조습처리 되었고, 평량을 계산한 후 TAPPI standard T200 om-83에 의거하여 겉보기밀도를 구하였다.

#### 2.2.5.2 강도적 성질

강도 측정용 시편은 TAPPI standard T220 om-83에 의거, 조습처리한 후 인장강도(T 494 om-85), 인열강도(T 414 om-82), 파열강도(T 403 om-85)를 측정하였고, T 220sp-96에 의거하여 인장지수, 인열지수, 파열지수를 계산하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 유연성에 미치는 내부피브릴화의 영향

Jang 등<sup>5)</sup>은 CLSM을 이용하여 섬유의 찌그러짐 정도를 측정할 수 있다고 하였으며 그 측정방법으로써 내강의 면적을 이용하였다. 섬유의 찌그러짐을 관찰하기 위해서 Jang 등이 제안한 다음의식을 사용하였다.

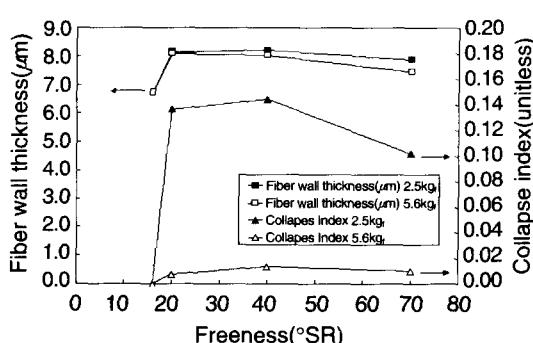


Fig. 1. Effect of °SR freeness on fiber wall thickness and collapse index.

$\text{Collapse Index (CI)} = 1 - (\text{LA}/\text{LA}_0)$

$\text{LA} = \text{lumen area obtained from the cross-sectional image of a fiber (after treatments that may have caused flattening or collapse)}$

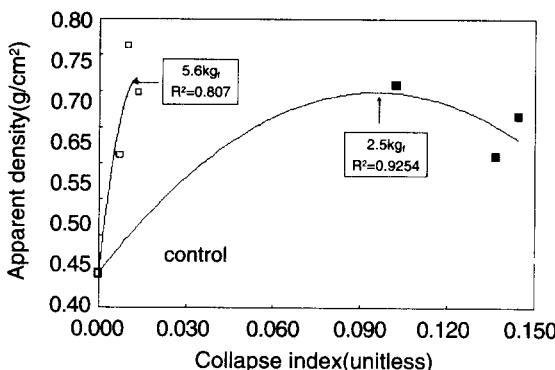
$\text{LA}_0 = \text{lumen cross-sectional area of the same fiber, as if it had not been subjected to any external forces, and therefore had not collapsed.}$

Stone과 Scallan<sup>6)</sup>은 펄프와 고해공정동안에 섬유벽 내에 형성된 박막(lamella) 수의 제곱만큼 섬유의 유연성이 증가한다고 하였다. Fig. 1은 섬유벽두께의 변화와 찌그러짐 지수(collapse index: CI)를 비교한 것이다. 섬유벽 두께가 최초의 섬유벽 두께와 비교하여 증가함에 따라서 섬유의 찌그러짐 지수는 증가하였다.  $5.6 \text{ kgf}$ 의 고해하중에서는  $2.5 \text{ kgf}$ 의 고해하중보다 찌그러짐의 지수가 섬유벽 두께의 변화에 대해서 적은 영향을 받는다.<sup>7)</sup> 이것은 저전단에서 고해된 섬유는 더 유연해지는 반면에 고전단에서 고해처리된 섬유는 낮은 유연성을 갖는다는 것이다. 또한  $40^{\circ}$  SR에서 섬유벽 두께가 감소됨과 동시에 섬유 유연성도 감소하고 있음은 섬유의 유연성 변화에 섬유벽 두께의 변화가 커다란 영향을 미치고 있음을 나타낸다.

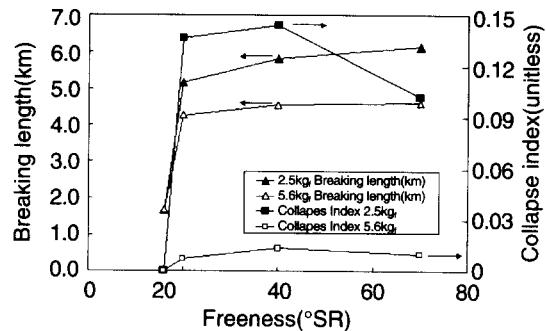
### 3.2 찌그러짐 지수의 종이물성에 미치는 영향

#### 3.2.1 겉보기 밀도에 미치는 찌그러짐 지수의 영향

Fig. 2는 겉보기 밀도에 미치는 찌그러짐 지수의 영향을 나타낸 것이다. 찌그러짐 지수가 증가함에 따라서  $2.5 \text{ kgf}$ 의 고해하중에서의 겉보기 밀도는 점차로 증가하는 경향을 보이지만  $5.6 \text{ kgf}$ 의 고해하중에서 고해된 펄프는 커다란 변화를 보이지 않고 있다. 이것은 Abitz 등<sup>8)</sup>의 결과와 동일한 결과로써 높은 고해하중에서는 단섬유와 미세섬유의 영향으로 찌그러짐 지수와 관계없이 겉보기 밀도가 증가하지만 낮은 하중에서는 겉보기 밀도에 섬유의 찌그러짐이 많은 상관관계를 가지고 있음



**Fig. 2. Relationship between collapse index and apparent density.**



**Fig. 3. Changes of collapse index and breaking length with refining degree.**

을 알 수가 있다.

### 3.2.2 섬유의 유연성이 종이강도에 미치는 영향

1989년에 Kibblewhite<sup>9)</sup>는 고해가 증가함에 따라서 섬유벽의 박리가 섬유내부쪽으로 확장되기 때문에 섬유의 내강이 줄어들며 섬유의 전체 면적은 변화가 작다고 하였다. 따라서 섬유내강의 면적이 줄어드는 것은 섬유벽 두께가 증가함을 의미하는 동시에 섬유의 유연성이 증가한다는 것을 뜻 한다. Fig. 3은 고해도에 따른 찌그러짐 지수와 인장강도의 변화를 나타낸 것이다. 2.5 kgf의 고해하중에서는 찌그러짐 지수의 값이 5.6 kgf의 고해하중에서보다 월등하게 높은 것을 알 수가 있다. 이것은 고해 시에 저전단력에서 섬유의 박리가 더 많이 발생하고 섬유의 찌그러짐을 더 많이 유발하기 때문이다. Page<sup>10)</sup>는 고해가 섬유벽을 부드럽게 하기 때문에 건조되는 동안에 섬유의 찌그러짐이 발생한다고 하였다. 고해공정중에 발생하는 섬유의 팽윤은 섬유의 유연성에 크게 기여한다. 찌그러짐이 많이 발생한 섬유는 건조 시에 섬유의 접촉면적을 넓혀줌으로써 종이의 강도 향상에 기여한다. 그러므로 섬유유연성이 큰 2.5 kgf의 고해하중에서의 섬유로 제작된 종이의 인장강도가 5.6 kgf의 고해하중의 것보다 크다. 이것은 저전단에서의 고해가 내부피브릴화를 많이 발생하도록 하여 박리를 많이 발생시키며, 또한 박리가 많이 발생한 섬유는 많이 찌그러짐으로 인해서 강도가 증가한다는 것을 보여준다.

#### (가) 인장강도에 미치는 찌그러짐 지수의 영향

Fig. 4는 인장강도와 찌그러짐 지수와의 관계를 나타낸 그래프이다. 찌그러짐 지수가 증가함에 따라서 인장강도는 거의 직선적으로 증가하는 것을 알 수가 있다. 이를 통해 섬유의 유연성이 종이의 강도를 결정하는데 중요한 인자이며 박리에 의해서 발생하는 섬유의 유연성은 섬유간 결합에도움을 준다<sup>3)</sup>는 사실을 확인할 수 있다.

#### (나) 파열강도에 미치는 찌그러짐 지수의 영향

Fig. 5에서 볼 수 있는 바와 같이 파열강도 역시 찌그러짐 지수와 높은 상관관계를 가지고 있다. 섬유의 유연성이 증가함에 따라서 섬유간 결합면적의 증대를 유발하여 종이의 강도를 향상시킨다.<sup>8, 11)</sup> 위에서 보는 바와 같이 찌그러짐 지수와 강도와는 높은 상관관계를 갖는 것으로 미루어 섬유의 유연성은 종이의 파열강도에도 큰 영향을 미친다.

#### (다) 인열강도에 미치는 찌그러짐 지수의 영향

Fig. 6은 인열강도와 찌그러짐 지수와의 상관관계를 나타낸 것이다. 5.6 kgf의 고해하중에서는 찌그러짐과 상관없이 인열강도는 계속적으로 저하되는 반면에 2.5 kgf의 고해하중에서는 찌그러짐 지수가 증가함에 따라서 인열강도가 최초에 감소하다가 후에 상승하고 있음을 알 수가 있다. 5.6 kgf의 고해하중 즉, 고전단 조건下에서는 내부피브릴화보다 외부피브릴화 또는 단섬유화가 많이 발생하여 찌그러짐 지수의 큰 상승업이 겉보기 밀도가 상승하는 것과 같이 인열강도도 찌그러짐 지수의 큰 상승 없이 저하되고 있는 것을 알 수가 있다.

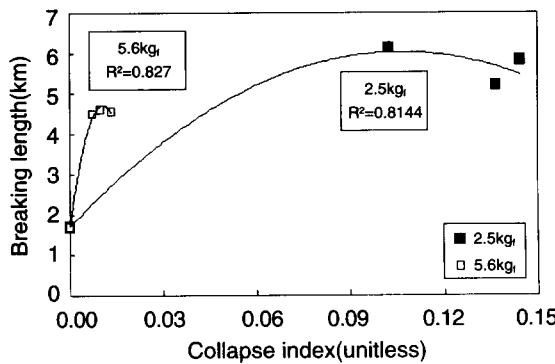


Fig. 4. Relationship between collapse index and breaking length.

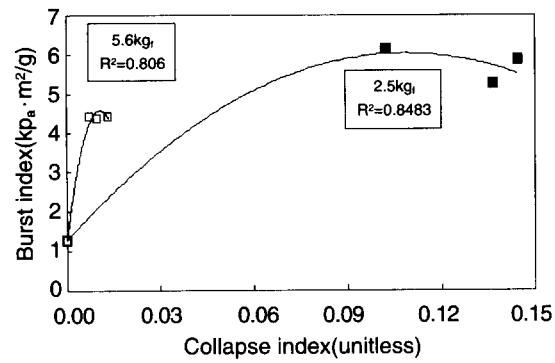


Fig. 5. Relationship between collapse index and burst index.

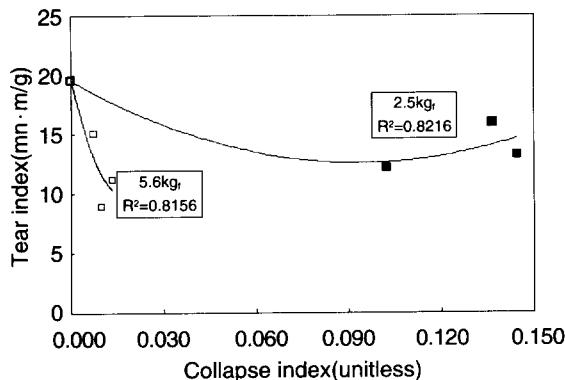


Fig. 6. Relationship between collapse index and tear index.

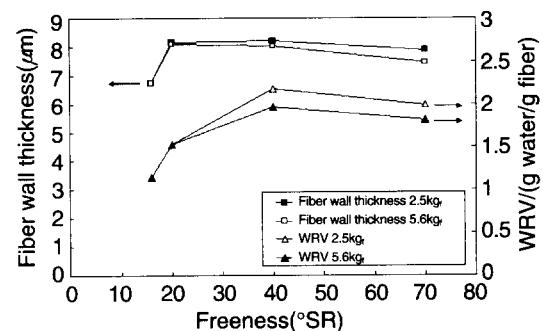


Fig. 7. Effect of refining load on fiber wall thickness and WRV.

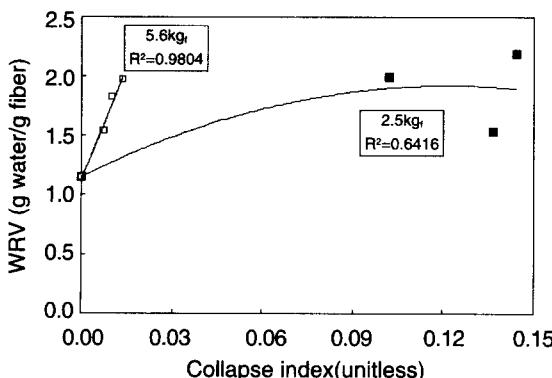
### 3.2.3 WRV에 미치는 섬유형태의 영향

Fig. 7은 섬유벽 두께와 WRV의 관계를 나타낸 것으로 미세섬유의 영향을 제외한 섬유자체의 WRV를 알아보기 위해서 900 G에서 장섬유만으로 측정하였다.<sup>12)</sup> WRV는 섬유유연성의 유용한 측정방법으로써 2.5 kg<sub>f</sub>의 고해하중과 5.6 kg<sub>f</sub>의 고해하중조건 모두에서 고해도가 높을수록 증가하는 경향을 보이다가 섬유벽 두께가 감소하는 40° SR부터는 감소하기 시작한다. 2.5 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서 측정한 WRV는 5.6 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서 고해 처리된 펄프섬유보다 높은 값을 나타내는데 이것은 박리가 많이 발생한 펄프섬유의 섬유벽 사이에 물이 존재하기 때문이다. 반면에 5.6 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서 고해된 펄프섬유는 20°SR 까지는 박리가 발생하였으나 그 이후로는 박리가 발생하

는 동시에 외부피브릴화가 발생함으로써 비표면적의 증가를 유발하여 WRV는 증가하는 경향을 나타낸다. Fig. 8은 WRV와 찌그러짐 지수와의 상관관계를 나타낸 것이다. WRV의 변화는 섬유의 찌그러짐 지수와 관계가 있다는 것을 보여준다. 2.5 kg<sub>f</sub>의 고해하중 조건과 비교해 볼 때, 5.6 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서 고해한 펄프는 섬유의 내부피브릴이 많이 발생하지 않았기 때문에 WRV의 변화가 적었다. 반면에 2.5 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서 WRV의 증가와 함께 내부피브릴화가 진행되고 섬유의 유연성이 증가하였다.

## 4. 결 론

고해하중을 달리하여 해리, 20, 40 그리고 70°



**Fig. 8. Relationship between collapse index and WRV.**

SR까지 Valley beater에서 펄프를 고해한 후, CLSM을 이용하여 섬유벽 두께와 섬유의 찌그러짐 지수를 측정하였고 이를 결과를 기준으로 종이의 물리적 특성과의 관계를 분석하였다. 2.5 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서는 5.6 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서보다 섬유벽 두께가 더 두껍고 유연성도 높게 나타났다. 따라서 고해하중이 낮을 때, 섬유의 내부피브릴화가 더 많이 발생하며 섬유의 유연성도 높아졌다.

섬유의 찌그러짐 지수와 강도와의 관계를 알아보기 위하여 걸보기 밀도, 인장강도, 파열강도 그리고 인열강도를 측정하였다. 2.5 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서는 섬유의 찌그러짐 지수의 적은 변화와 함께 강도가 증가하지만, 5.6 kg<sub>f</sub>의 고해하중에서는 섬유의 찌그러짐 지수의 적은 변화와 함께 강도가 증가하고 있음을 알 수가 있었다. 이는 낮은 고해하중에 의하여 섬유의 두께가 크게 팽윤하여 내부피브릴화가 증가함에 따른 찌그러짐 지수의 증가, 유연성의 증가로 인장강도, 파열강도의 증가, 인열강도의 저하가 일어났다고 판단된다. 미세섬유의 영향을 배제하기 위해서 장섬유만의 WRV값도 5.6 kg<sub>f</sub>의 고해하중보다 2.5 kg<sub>f</sub>의

고해하중에서 더 큰 영향을 받았다.

## 인용문헌

1. Campbell, W. B., Bull. For. Ser., Dept. Int. Canada, 84(1933).
2. Emerton, H. W., Tech. Soc. B. P. & B.I.R.A., Kenley(1957).
3. Kerekes, R. J., and Tamdo, P. A., JPPS 11(2):J60 (1985).
4. Evans, K. E., and Gibson, A. G., Composites Science and Technology, 25:149 (1986).
5. Jang, H. F., Howard, R. C., and Seth, R. S., Tappi J. 78(12):131 (1995).
6. Stone, J. E., and Scallan, A. M., Pulp and Paper Mag. Can. 66(8):T407 (1965).
7. Kim, C. H., Park, J. M., and Kim, S. H., IAWA J., 19(4), (in press), (1998).
8. Abitz, P., and Luner, P., Fundamentals of Papermaking, Ed, Baker, C. F., and Punton, V. W., Vol. 1, 67, Mechanical Engineering Publications Limited (1989).
9. Kibblewhite, R. P., Fundamentals of Papermaking, Ed, Baker, C. F. and Punton, V. W., Vol. 1, 121, Mechanical Engineering Publications Limited, London (1987).
10. Page, D. H., Fundamental of Papermaking, Ed, Baker, C. F. and Punton, V. W. Vol. 1, 1, Mechanical Engineering Publications Limited, London (1989).
11. Young, J. H., Pulp and Paper, Ed, Casey, J. P., Vol. 2, 821, A Wiley-Interscience Publication, New York (1980).
12. Lee, K. J., and Park, J. M., J. of Korea Tappi 30(2):47(1998).