

## 침엽수, 활엽수 펄프 섬유의 혼합비에 따른 종이의 강도발현 기작 구명

이 진 호 · 박 종 문<sup>†</sup>

(2001년 5월 6일 접수; 2001년 8월 20일 채택)

## Paper Strength Mechanism Depending on Mixing Ratio of Softwood and Hardwood Fibers

Jin-Ho Lee and Jong-Moon Park<sup>†</sup>

(Received on May 6, 2001; Accepted on August 20, 2001)

### ABSTRACT

Paper consists of fiber network and paper properties were highly affected by fiber characteristics. Many researchers have tried to relate fiber and paper properties. Softwood and hardwood fibers are quite different in their properties. Generally, softwood fibers are longer and more flexible than hardwood fibers. At present, many paper mills make mixed paper with softwood and hardwood fibers except for special grade.

During fracture some fibers are broken and others are pulled out. In this paper, the number of broken and pulled out fibers during fracture is analyzed depending on the mixing ratio of softwood and hardwood fibers. Fiber length, curl, kink, coarseness, WRV and formation index were measured. Double-edged notched samples were prepared to observe the number of broken and pulled out fibers.

Mixed paper strength was decreased with increasing hardwood fiber's ratio. During fracture, softwood fibers were more likely broken and hardwood fibers were more likely pulled out. The strength of paper which consists of softwood fibers was determined by fiber's broken strength and that of hardwood fibers by fiber's debonding strength. Paper strength was changed depending on the fiber's bonding capability. If the fiber is longer and more flexible, the fiber network becomes stronger and stiffer.

**Keywords:** *Softwood fiber, Hardwood fiber, Fiber network, Broken, Pulled out, Mixed paper, Debonding*

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

†주저자(Corresponding author): e-mail: jmpark@cbucc.chungbuk.ac.kr

## 1. 서 론

종이는 기본적으로 섬유로 이루어진 network 물질이고, 종이의 특성은 섬유가 어떤 결합을 하고 있는가에 따라서 결정된다. 여러 학자들은 섬유와 종이특성의 관계를 연관지으려 하였는데, Kure 등<sup>1)</sup>은 refining plate와 speed를 조절하여 refining intensity를 변화시키는 실험으로 섬유장이 보존되면서도 collapse한 섬유를 얻어 평활성, 강도, 운전성에 모두 이익을 줄 수 있음을 설명하였고, Wavell<sup>2)</sup>은 섬유의 특성을 분석한 값으로 종이의 인장강도와 인열강도를 예측하였다. 또한 Page<sup>3)</sup>는 펄프화와 표백에 의해 curl과 kink가 생긴 섬유가 고해에 의해서 퍼지면 50% 이상의 강도향상을 가져올 수 있다고 하였다. 이처럼 종이의 특성과 섬유의 특성은 매우 밀접한 관계를 가지고 있다는 것을 알 수 있다. 종이 생산에 쓰이는 섬유는 93%의 목질계 섬유와 7%의 비목질계 섬유로 이루어져 있고, 이 중 1/3은 재생되어 재사용된다.<sup>4)</sup> 종이 원료의 대부분을 차지하고 있는 목질계 섬유는 침엽수 섬유와 활엽수 섬유로 나누어지고 이들은 매우 다른 섬유의 특성을 나타낸다. 일반적으로 침엽수 섬유는 장섬유에 유연하고 활엽수 섬유는 단섬유에 강직하다고 알려져 있다. 현재 초기공정의 대부분은 침엽수 펄프 단독 초기보다는 침엽수와 활엽수 펄프를 혼합하여 초기하고 있기 때문에 본 실험에서는 침엽수와 활엽수 펄프를 혼합 초기하여 섬유의 특성에 따른 종이의 파괴 거동을 알아보고, 종이의 강도 메커니즘을 섬유의 결합과 연관지어 규명해 보았다.

## 2. 재료 및 방법

### 2.1 공시재료

펄프는 국내 제지회사에서 사용하고 있는 표백화학 펄프를 사용하였고, 침엽수는 뉴질랜드산 *Radiata pine*, 활엽수는 칠레산 *Eucalyptus*를 사용하였다.

### 2.2 실험방법

#### 2.2.1 고해

침엽수와 활엽수를 각각 1.4%의 농도로 실험용

valley beater를 이용하여 고해도 450 mL CSF로 각각 고해하였고 고해의 영향을 평가하기 위해 refining effect를 계산하였다.

$$\text{Refining effect}(\%) = \frac{\Delta \text{ of fiber quality}}{\text{fiber quality before refining}} \times 100 [1]$$

여기서,  $\Delta$  of fiber quality:  $| \text{fiber quality after refining} - \text{fiber quality before refining} |$

#### 2.2.2 섬유 특성분석

##### (가) FQA(Fiber quality analyzer)

고해 전후의 펄프를 일정량 취하여 FQA를 이용하여 섬유장, curl, kink, coarseness 및 fine content를 분석하였다.

##### (나) WRV(Water retention value)

섬유의 유연성을 알아보기 위해서 고해 전 섬유(침엽수 섬유 760 mL CSF, 활엽수 섬유 630 mL CSF)와 고해 후(각각 450 mL CSF) 섬유를 일정량 취하여 TAPPI UM 256에 따라 WRV를 계산하였다.

$$\text{WRV} = \frac{W_T - W_o}{W_o} [2]$$

여기서,  $W_T$ : wet specimen weight(g),  $W_o$ : dry specimen weight (g)

#### 2.2.3 초지

실험실용 원형 수초지기를 이용하여 TAPPI standard T 205 om-88에 의거하여 평량 30 g/m<sup>2</sup>으로 침엽수와 활엽수의 비율을 100:0부터 0:100까지 달리하여 혼합(w/w) 초지하였다.

#### 2.2.4 수초지 물성 측정

제조된 수초지는 TAPPI standard T 402 om-83에 따라 온도 23±1°C, 상대습도 50±2%로 조습 처리한 후 종이의 구조적 특성 보기 위해 겉보기밀도, 지합지수(식 [3])를 구하였다. 강도적 특성은 Hounsfield tensile tester를 이용하여 인장지수(T 494 om-88), zero-span tensile(T 231 cm-96), 내부 결합강도(UM-256)를 측정하였고, 광학적 특성 및 결합의 정도를 알아보기 위해서 산란계수(T 425 om-96)를 측정하고, RBA(Relative bonded area)<sup>5)</sup>를 식 [4]로 계

산하였고, 종이 내 섬유 거동을 알기 위해서 파괴시험을 수행하였다. 파괴시험은 박<sup>6)</sup>의 시편과 같이 DEN(double-edged notched) 시료를 준비하였고 crack 전방 1 mm 부근의 절단 또는 뽑힌 섬유의 개수를 현미경을 이용하여 측정하였다.

$$\text{Formation index} = \frac{\text{S.T.D.V. of gray level}}{\text{mean of gray level}} \quad [3]$$

$$RBA = 1 - \frac{S}{S_u} \quad [4]$$

여기서, S: Light scattering coefficient, Su: Light scattering coefficient of unbonded fibers.

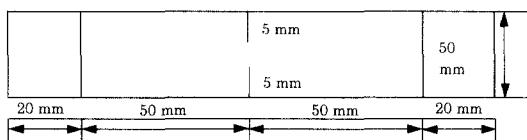


Fig. 1. DEN sample for fracture test.

### 2.2.5 Network solidity

종이는 섬유간 결합에 의한 network 물질이고 종이의 형태적, 물리적 특성은 섬유 network의 구조와 강직성에 따라 변하게 된다. Network solidity는 섬유간 결합에 의해서 유도되는 network의 강직성을 의미하는 것으로, 섬유 network의 특성을 혼합하는

침엽수와 활엽수 섬유의 결합능력(fiber bonding capability)과 파괴시험을 시행한 후 나타나는 섬유의 끊어짐과 뽑힘을 섬유 각각의 거동비(fiber behavior)로 정한 후 식 [5]로 network solidity를 계산하여 종이 강도특성과 비교하였다.

$$\text{Paper Network solidity} = \{\text{SW F.B.C.} \times (\text{SW fiber behavior})\} + \{\text{HW F.B.C.} \times (\text{HW fiber behavior})\} \quad [5]$$

여기서, F.B.C. : fiber bonding capability

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 종이 및 섬유의 특성

#### 3.1.1 FQA와 WRV

Table 1은 FQA의 결과이고 Fig. 2는 고해의 효과를 비교한 것이다. Refining effect가 100%에 가까울수록 고해 후 섬유의 변화가 많이 일어난 것을 의미하는 것으로 섬유에 대한 고해의 영향 정도를 파악할 수 있다. Refining effect 비교시 고해도 450 mL CSF에서 침엽수 섬유는 고해 전과 비교하여 섬유의 특성이 많이 변화하지만 활엽수 섬유는 큰 변화가 없음을 알 수 있다. 고해도 450 mL CSF에서 침엽수 섬유가 활엽수 섬유보다 0.045 mg 정도 coarseness가 크지만 침엽수 섬유가 고해에 의해서 섬유의 변화가

Table 1. Results of FQA

	Fines Content (%)	Fiber length (mm)	Curl	Kink		Coarseness (mg/m)
	length weighted mean	length weighted mean	length weighted mean	kink index (1/mm)	total kink angle (°)	
before refining (softwood fiber)	3.620	2.137	0.143	1.810	59.833	0.383
after refining (softwood fiber)	5.457	1.343	0.052	0.830	16.633	0.263
before refining (hardwood fiber)	3.877	0.701	0.086	1.473	22.433	0.264
after refining (hardwood fiber)	6.517	0.657	0.067	1.367	19.767	0.218

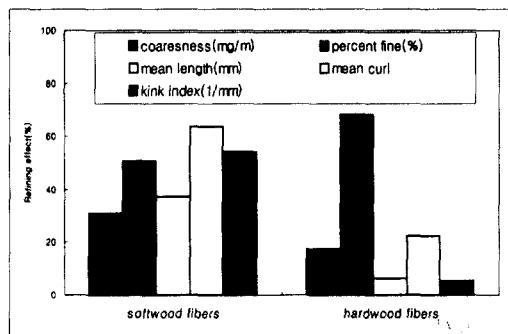


Fig. 2. Refining effect.

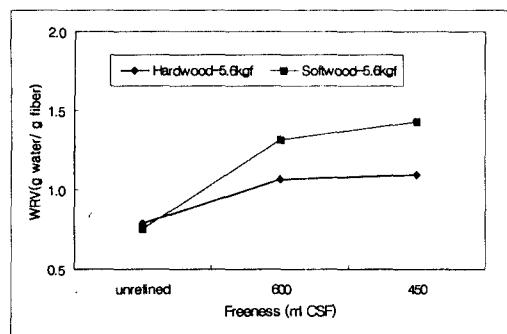


Fig. 3. WRV depending on refining level (refining load = 5.6 kgf).

많기 때문에 침엽수 섬유가 좀 더 유연하리라 예상할 수 있고, 섬유 피브릴화의 간접지수인 WRV 측정 결과인 Fig. 3에서 침엽수가 활엽수에 비해서 훨씬 유연해진 것을 알 수 있다. FQA에 의한 미세분 함량 측정의 경우 측정시료를 만들기 위해 많은 희석을 필요로 하기 때문에 희석과정에서 다양한 미세분이 빠져 나가 측정값이 실제 미세분 함량보다 적게 나온 것으로 판단되고, 전체 미세분 함량은 적지만 활엽수 섬유가 침엽수 섬유보다 미세분 함량이 증가한 것을 알 수 있다. 침엽수 섬유는 고해에 의해서 섬유가 짧아지길 하지만 꼬임이 퍼지고 유연해지며, 활엽수 섬유는 고해 후 섬유장의 변화가 적게 일어나며 침엽수에 비해 휘어지고 꼬임이 있는 강직한 섬유의 특성을 가지게 된다.

Fig. 4는 혼합 초기에 따른 종이의 구조의 변화를 나타낸 것으로 활엽수 섬유가 첨가될수록 종이가 bulk해짐을 알 수 있다. Paavilainen<sup>7)</sup>은 coarseness가 감소할수록 종이의 겉보기밀도가 증가한다고 하였는데, 이는 동일한 섬유장에서 coarseness의 감

소는 유연성의 증가와 피브릴화의 증가 등 결합을 증대시키는 인자들의 향상을 의미하기 때문이다. Page 등<sup>8)</sup>은 curl과 kink가 증가할수록 bulk가 증가한다고 하였는데, 변형이 일어난 섬유는 섬유간 결합이 저해되기 때문에 bulk한 종이를 만들게 되는 것으로 판단된다. 실험에 쓰인 활엽수 섬유는 고해 후에도 섬유 자체가 가지는 휘어짐의 완화가 크지 않음을 보아 섬유 자체의 강직성과 섬유에 잔존하는 curl과 kink가 섬유간 결합을 저해하기 때문에 두께가 큰 종이를 만들게 되는 것으로 판단된다.

### 3.1.2 지합측정

Fig. 5와 6은 gray level을 이용한 지합 측정<sup>9)</sup>의 결과로서 침·활엽수 혼합 초기의 경우 활엽수의 첨가량이 증가할수록 gray level 평균과 표준편차 (S.T.D.V.)가 감소하고, Formation index값 역시 활엽수 첨가량이 증가함에 따라 감소함을 나타냈다. 이는 활엽수 첨가량이 증가할수록 종이 내의 섬유 분포가 균일해짐을 의미한다. Jokinen 등,<sup>10)</sup> Kerekes 등,<sup>11,12)</sup> Dodson,<sup>13)</sup> Caulfield 등<sup>14)</sup>은 섬유장이 증가할수록 지합이 불량해질 가능성이 증가한다고 하였고, Kerekes 등<sup>15)</sup>은 coarseness가 감소할수록 지합이 개선된다고 하였는데, coarseness가 감소한다는 것은 결국 섬유가 유연해져 결합이 개선되기 때문이다. 침엽수는 고해에 의해서 섬유가 영향을 많이 받아 유연성이 좋지만 활엽수에 비해서 길이가 길기 때문에 나쁜 지합을 나타내게 된다. 지합에는 여러 가지 요소가 영향을 미치지만 침엽수가 활엽수보다 유연성이 좋음에도 불구하고 나쁜 지합을 나타내는 것으로 보아 지합은 길이에 가장 큰 영향을 받는 것으로 판단된다.

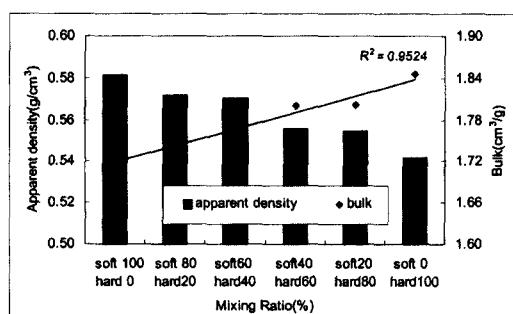


Fig. 4. Structural characteristic of mixed paper.

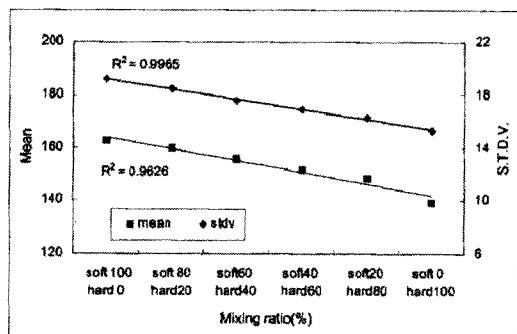


Fig. 5. Average and S.T.D.V. of gray level.

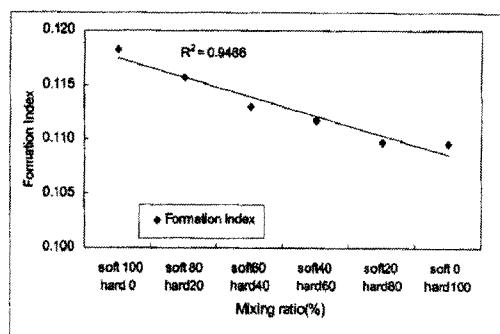


Fig. 6. Formation index of mixed papers.

### 3.1.3 혼합 초지의 평면 SEM

Fig. 7은 종이의 평면을 SEM 촬영한 것으로 활엽수의 첨가량이 증가할수록 평면상으로 섬유가 치밀해짐을 확인할 수 있다.

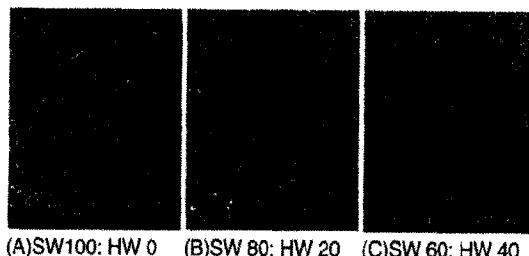


Fig. 7. SEM images of mixed papers.

### 3.1.4 비산란 계수와 결합강도

Fig. 8은 혼합 초지한 종이의 산란계수와 내부 결합강도를, Fig. 9는 혼합 초지한 종이의 투기도를 나타낸 것이다. 산란계수는 종이 내로 빛이 통과할 때 빛의 산란되는 정도로서 종이 내의 산란은 섬유와 섬유 사이의 공간이 클수록 커지게 된다.<sup>[16]</sup> 혼합 초지한 종이에 있어서 활엽수 섬유의 첨가량이 증가할수록 산란계수가 커지고 결합강도는 작아지는데 이는 활엽수 섬유가 강직하고 섬유의 휘어짐이 큼에 따라 섬유간 결합을 잘 이루지 못하기 때문이다. Fig. 9는 혼합 초지한 종이의 투기도를 나타낸 것으로서 활엽수 섬유의 첨가량이 증가할수록 투기도가 작아지는 것을 알 수 있다. 활엽수 섬유는 고해 후에도 강직한 섬유 특성을 나타내기 때문에 종이의 두께 방향으로 치밀한 구조를 만들지 못하는 것으로 판단된다.

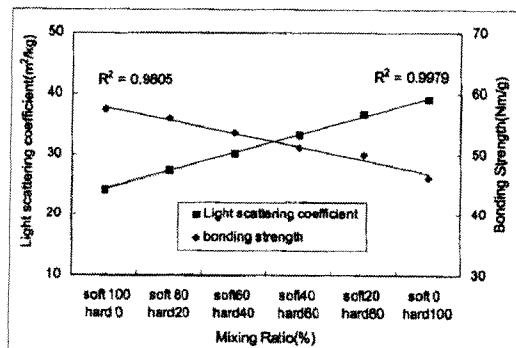


Fig. 8. Light scattering coefficient and bonding strength of mixed papers.

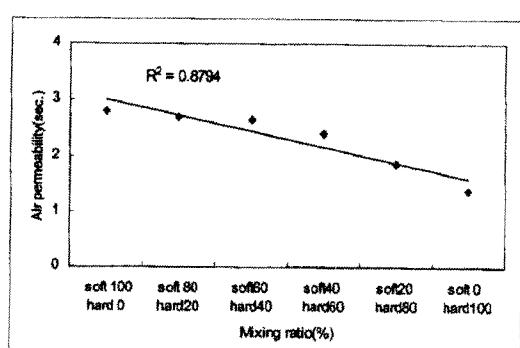
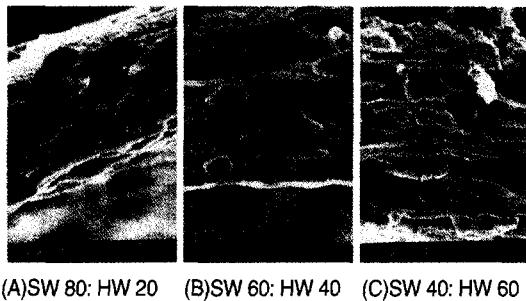


Fig. 9. Air permeability of mixed papers.



**Fig. 10. SEM images of mixed papers.**

### 3.1.5 혼합 초기의 두께 방향 SEM

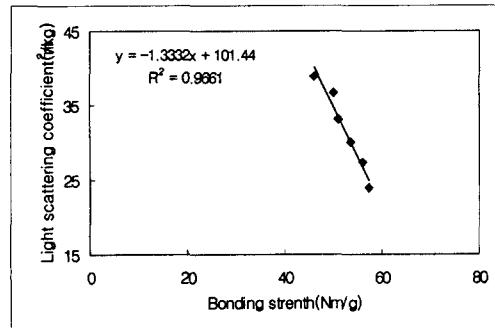
Fig. 10은 혼합 초기한 종이의 두께 방향을 촬영한 것으로 활엽수 첨가량이 증가할수록 섬유 내강과 섬유 사이의 공간이 커짐을 확인할 수 있다.

## 3.2 종이의 결합 특성

### 3.2.1 RBA

RBA는 섬유간 결합면적으로서 종이 내에 섬유의 결합면적을 직접 측정하는 것은 거의 불가능하기 때문에 여러 가지 간접적인 측정방법이 이용된다. 여러 측정법 중 산란계수를 이용하여 결합면적을 간접적으로 측정하는 경우 문제는 결합하지 않는 섬유의 산란계수를 측정하는 것으로, 이는 결합력과 산란계수와의 상관식으로부터 구할 수 있다.

Fig. 11은 비산란계수와 결합강도와의 관계를 나타



**Fig. 11. Relationship between light scattering coefficient and bonding strength.**

낸 것으로서 산란계수가 증가할수록 결합 강도가 감소하는 경향을 나타낸다. 비산란계수는 섬유와 섬유 사이의 공간이 커질수록 증가하기 때문에 결합 강도는 감소하게 된다. Fig. 12는 혼합 초기한 종이의 RBA를 계산한 것으로 활엽수의 첨가량이 증가할수록 RBA가 감소함을 알 수 있다.

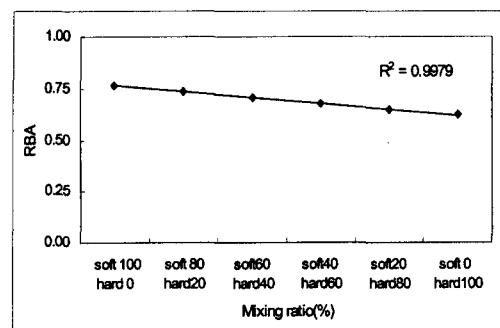
Fig. 13은 RBA와 인장강도, 산란계수를 비교한 것인데 RBA 감소함에 따라 인장강도는 감소하고 산란계수는 증가하는 것을 나타내며 RBA와의 correlation( $r$ )은 0.96과 -1로서 매우 높은 상관을 나타내었다.

### 3.2.2 Network solidity and RBA

종이의 강도 발현은 섬유 자체의 특성이 가장 중요하지만 섬유 network가 어떻게 형성되어 있는가에 따라서 섬유의 강도 발현이 결정되기 때문에 섬유 network 또한 섬유의 특성 못지않게 중요한 인자이다. Network를 형성하는 데 있어서 증가시키는 것과 감소시키는 것은 여러 가지가 있지만 본 실험에서는 아래와 같이 간단히 나누었다.

Fiber bonding을 증가시키는 섬유 특성인자로는 fiber length, flexibility 등이 있고, fiber bonding을 감소시키는 인자로는 fiber coarseness, curl, kink 등이 있다. 위의 인자들 중 FQA로 분석 가능한 length, coarseness, curl, kink를 이용하여 섬유의 결합능력 값인 fiber bonding capability를 아래의 식으로 계산하였다.

$$\text{Fiber Bonding Capability} (m^3/mg) = (\text{fiber length}) / (\text{fiber coarseness} \times \text{curl} \times \text{kink}) \quad [6]$$



**Fig. 12. RBA of mixed papers.**

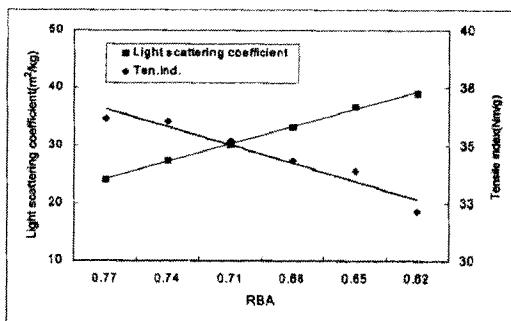


Fig. 13. Relationship among RBA and tensile index and light scattering coefficient.

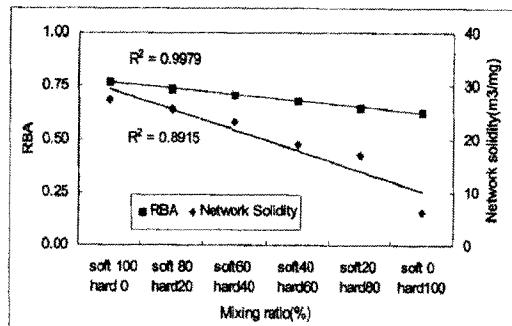


Fig. 14. Relationship between RBA and network solidity.

위의 식으로 계산된 침엽수와 활엽수 섬유의 F.B.C.(fiber bonding capability)는 각각 38.75와 7.04로 활엽수 섬유가 침엽수 섬유에 비해서 섬유의 결합능력이 현저히 작음을 알 수 있다. Fig. 14는 식 [5]를 이용하여 계산한 network solidity와 RBA를 나타낸 것으로 활엽수 섬유의 비율이 증가할수록 network solidity가 감소하는 것으로 보아 활엽수 섬유로 초기화 종이의 network의 강도가 약함을 알 수 있고 활엽수 섬유로 초기화 종이의 강도 약화는 활엽수 섬유의 약한 network 형성 능력 때문임을 알 수 있다. Network solidity와 RBA와의 상관은 0.93으로 섬유의 특성으로 계산한 network solidity로 종이의 구조와 강도예측이 가능함을 알 수 있다.

### 3.2.3 섬유의 파괴 거동 특성

파괴시험은 종이가 결점이 있는 상태에서의 인장시험으로서 제지 공정의 운전성 평가나 지질 현상에 대

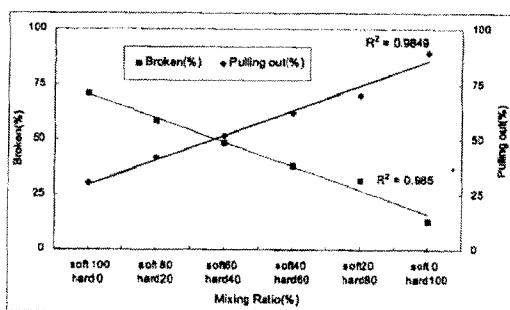


Fig. 15. Broken and pulling out movement of fibers during paper fracture.

해 이용되고 있다. 또한 파괴시험은 응력이 종이의 결점 부분에 집중한 후 결점 끝 부분에서 내부로 순차적으로 전달되기 때문에, 응력에 대한 섬유 개개의 거동을 분석할 수 있다고 판단되어 파괴시험을 수행하였다. Fig. 15는 파괴시험시 나타나는 섬유의 거동으로 침엽수 섬유는 대부분이 절단되고 활엽수 섬유 대부분은 뽑히는 것을 알 수 있다. 이는 고해 후 섬유의 특성에 따른 것으로 침엽수 섬유는 고해 후 결합력을 증대시키는 피브릴화나 유연성 등이 증대되어 섬유간 결합이 잘 일어나 종이의 입장시 섬유의 파괴가 유도되고 활엽수 섬유의 경우 결합력의 저해로 인해 섬유의 뽑힘이 유도된다고 판단된다.

## 4. 결 론

본 실험에서 침엽수와 활엽수 펄프섬유를 혼합 초기하여 섬유의 특성에 따른 종이 내의 파괴 거동과 종이의 강도 메커니즘을 섬유의 결합과 연관지어 규명해보았을 때 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

1. 450 mL C.S.F.로 고해하였을 때 침엽수 섬유가 활엽수 섬유보다 길고 커 적으며 유연한 섬유의 특성을 나타내었다.
2. 혼합 초기하였을 때 활엽수의 첨가량이 증가할수록 평면상으로는 치밀한 종이 구조를 나타내었지만, Z-direction으로의 치밀성은 오히려 저하되었다.
3. 혼합 초기하였을 때 활엽수의 첨가량이 증가할수록 결합강도, RBA 등 결합을 나타내는 인자들이 모두 감소하는 경향을 나타내었다.
4. 파괴시험시 침엽수 섬유 단독 초기시 70% 이상이 뽑어지고, 활엽수 섬유 단독 초기시 80% 이상이 뽑힌다.

히는 현상을 나타내었다.

5. 종이의 강도 발현은 섬유가 외부의 응력에 대해 어떻게 반응하는가에 의해서 나타나는 것으로 강한 섬유간 결합을 유도하는 섬유의 경우 섬유의 끊어짐에 의한 강도가 발현되고 약한 섬유간 결합의 경우 뽑힘에 의한 강도가 결정된다.

## 인용 문헌

1. Kure, K.-A., Sabourin, M. J., Dahlqvist, G., and Helle, T., Adjusting refining intensity by changing refiner plate design and rotational speed-effect on structural fiber properties, *Journal of Pulp and Paper Science*. 26(10):10 (2000).
2. Wavell, F. C., Explaining handsheet tensile and tear in terms of fiber-quality number, *Tappi J.* 78 (1):101 (1995).
3. Page, D. H., Seth, R. S., Jordan, B. D., et al., *J. Pulp Paper Sci.* 10(5):J 74 (1984).
4. Smook, G. A., Handbook for Pulp & Paper Technologists, Joint textbook committee of the paper industry, p. 9 (1982).
5. Niskanen, K., Paper Physics, Finnish Paper Engineer's Association and *Tappi J.*, p. 25 (1998).
6. Park, J.-M., Study of Yield and Fracture of Paper, State University of New York, Ph. D. Thesis (1993).
7. Paavilainen, L., Importance of cross-dimensional fiber properties and coarseness for the characterization of softwood sulphate pulp, *Paper and Timber* 75(5), p. 343 (1993).
8. Page, D., Seth, R., and Jordan, B., *Papermaking Raw Materials: Transactions of the 8th Fundamental Research Symposium*, Oxford, p. 183 (1985).
9. 조용민, 투과광 走査機의 화상분석법에 의한 종이의 물성 평가, 서울대학교, 박사학위논문 (2000).
10. Jokinen, O., and Ebeling, K., *Paperi Puu* 67(5) p. 317 (1985).
11. Kerekes, R. J., and Schell, C. J., *JPPS J.* 18(1), p. 32 (1992).
12. Kerekes, R. J., and Schell, C. J., *Tappi J.* 78(2) p. 133 (1995).
13. Dodson, C. T. J., *JPPS*. 16(4) p. J136 (1990).
14. Caulfield, D. F., Passaretti, J. D., and Sobczynski, S. F., Fiber Quality Factors in Papermaking-The Importance of Fiber Length and Strength, Materials Research Society Symposium Proceedings San Francisco, CA, April 18-20, Vol. 197, p.125 - 141 (1990).
15. Kerekes, R. J., and Schell, C. J., Effects of fiber length and coarseness on pulp flocculation, *Tappi J.* 78(2). p. 133 (1995).
16. 이학래, 이복진, 신동소, 임기표, 서영범, 원종명, 손창만, 제지과학, 광일문화사, pp. 409-415 (2000).