

## 요소-멜라민수지로 접착된 파티클보드에 농작물 짚 첨가의 효과

李種規<sup>1</sup> · 金種寅<sup>2</sup> · 吳勇性<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>영남대학교 자연자원대학, <sup>2</sup>국립산림과학원 임산공학부 품질시험팀

## Effect of Agricultural Straw Addition in Particleboard Bonded with Melamine-urea-formaldehyde Resin

Jong-Kyu Lee<sup>1</sup>, Jong-In Kim<sup>2</sup> and Yong-Sung Oh<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Department of Forest Resources, Yeungnam University, Kyongsan 712-749, Korea

<sup>2</sup>Division of Quality Control and Standardization Team, Korea Forest Research Institute, Seoul 130-712, Korea

**요 약:** 벼와 보리 등의 농작물 짚은 파티클보드의 원료로서 부분적으로 대체 첨가 사용할 수 있었다. 파티클보드 접착용 요소-멜라민수지 접착제를 실험실에서 수지 접착제 고형분량에 대해 5% 멜라민을 첨가하여 합성하였다. 두 개의 농작물 짚을 전건 목재파티클 무게에 대해 10, 20, 30, 40% 대체하여 혼합하고 합성한 요소-멜라민수지 접착제로 파티클보드를 제조하였다. 제조된 파티클보드는 물리적, 기계적 성능과 치수안정화에 대해 성능을 비교하였다. 성능평가 결과는 파티클보드에 벼짚과 보릿짚의 대체 첨가율이 증가됨에 따라 제조한 파티클보드의 성능은 감소하는 경향을 보여줬다. 전체적으로 농작물 짚은 파티클보드 제조의 원료로서 15% 대체하여 사용할 수 있었다.

**Abstract:** Agricultural straws such as rice and barley were used as partial replacement of raw materials for particleboard (PB) manufacture. A melamine-urea-formaldehyde (MUF) resin, based on 5 percent melamine addition of the resin solids weight, was synthesized in the laboratory for the bonding of PB. PBs were made using two straw particles based on 10, 20, 30, 40% oven dry weight addition with MUF resin. PBs were tested for physical and mechanical properties, and water soak dimensional stability. The results indicated that as rice and barley straws addition level were increased, the properties of IB, MOR and dimensional stabilities such as thickness swell and water absorption were decreased. Overall, the agricultural straws can be used at 15% substitution of raw materials for PB manufacture.

**Key words :** particleboard, melamine-urea-formaldehyde resin, Pinus densiflora, rice, barley, straw

### 서 론

농작물을 수확하고 얻어지는 짚은 목재와 비교해서 상대적으로 가격이 저렴해서 상업용 보드제조에 사용되고 있다. 그러나 짚 표면의 왁스성분 때문에 전통적으로 목재접착제로 사용되고 있는 요소수지 접착제, 페놀수지 접착제 등과는 쉽게 접착되지 않는 단점이 있다(Spelter, 2000). 반면에 polymeric methylene diphenyl diisocyanate(PMDI) 수지 접착제와는 잘 접착되어 좋은 패널을 생산할 수 있지만, PMDI는 가격 면에서 기존의 접착제와 비

교해서 훨씬 비싸고 PMDI의 유해성 때문에 친환경적으로 다루어져 한다(Spelter, 2000).

벼짚은 이집트에서 많이 발생되는 주요 리그노셀룰로스 물질인데, 이 벼짚으로 제조된 섬유판은 목재섬유로 제조된 하드보드의 성능과 비교하여 열등하지만, 벼짚 원료를 전처리하여 비섬유성 물질을 제거한 후, 제조한 섬유판은 좋은 성능을 보여줬다(Youngquist *et al.*, 1996).

구소련에서 수행된 연구에서 벼짚과 페놀수지로 제조된 벼짚패널에서 매우 좋은 성질을 보여줬다고 보고하고 있다(Kluge *et al.*, 1978). 이 연구에서 패널의 원료인 벼짚을 암모니아와 증기로 전 처리하여 벼짚원료의 열경화성 성질을 증대시킨 후, 제조하였다고 보고했다.

Sellers 등 (1999)은 kenaf와 요소수지 접착제, 페놀수지

\*Corresponding author

E-mail: ysoh@yumail.ac.kr

이 논문은 2004학년도 영남대학교 학술연구조성비 지원에 의한 것임

접착제, PMDI 등 3가지 접착제로 복합패널의 중간층용으로 사용하는 저밀도(240 kg/m<sup>3</sup>) 패널을 제조하고 성능을 평가한 결과, kenaf 중간층용 패널의 박리강도, 열절연, 소음흡수 등의 물리적인 성질에 대해 좋은 결과를 보여줬다고 보고했다. 또 저밀도 패널의 낮은 휨강도는 표면층의 오버레이로 증대시킬 수 있다고 보고했다.

한편 요소-멜라민수지 접착제는 요소수지 접착제에 멜라민을 소량 첨가하여 합성함으로써 요소수지 접착제의 장점인 접착력과 강도 등을 유지시키고, 반면에 단점인 내수성을 개선시킬 수 있고, 접착제 가격 면에서도 멜라민을 소량 사용하기 때문에 경쟁력 있는 패널을 생산할 수 있는 접착제로 널리 잘 알려져 있다

따라서 본 연구의 목적은 벧짚과 보릿짚을 실험실에서 합성한 요소-멜라민수지 접착제로 접착하여 파티클보드를 제조하고 성능을 비교하기 위한 것이다.

## 재료 및 방법

### 1. 목재파티클 및 농작물짚

본 실험에 사용한 소나무 (*Pinus densiflora* Siebol et Zuccarini)의 수령은 20 년이고 흉고직경은 14 cm인 간벌 소경재로부터 중간층용 파티클로 파쇄하여 사용하였다. 목재파티클의 크기는 12~3.5 mesh 사이에서 건조·선별하였다.

사용된 농작물짚은 경북 경산시 지역에서 수확된 벧짚 (*Oryza sativa* L.)과 보릿짚 (*Hordeum vulgare* L.)으로서 중간층용 목재파티클과 유사하게 12~3.5 mesh 사이에서 파쇄한 후, 건조·선별하고 하였다. 벧짚과 보릿짚에 함유된 무기성분이 ICP-Atomic Emission Spectrometer에 의해 정량분석되었다.

제조된 파티클은 열기건조기에서 함수율을 4~5%까지 건조시킨 후, 사용하였다.

### 2. 요소-멜라민수지 접착제

파티클보드 접착용 요소-멜라민수지 접착제의 합성과정은 흡열반응을 조절하기 위한 가장 좋은 조건을 측정하기 위해 2-L 유리반응기에서 수지 접착제 고형분량은 50%를 목표로 실험실에서 합성하였다. 요소-멜라민수지 접착제는 포름알데히드와 요소의 몰비가 1.53, 포름알데히드와 요소-멜라민의 몰비는 1.48이고 일반적인 요소-멜라민수지의 합성과정은 Oh (1999)에 의해서 수행된 방법과 유사하다.

합성된 요소-멜라민수지 접착제의 불 휘발성분, pH, 비중 및 유리포름알데히드량 등을 수지접착제 표준분석방법에 의해 측정하였다. 요소-멜라민수지에 대한 <sup>13</sup>C NMR spectra는 Varian 회사의 NMR 500 MHz spectrometer를 이용하여 얻어졌다. NMR을 위한 시료는 요소-멜라민수

지에 D<sub>2</sub>O를 첨가하여 제조하였다.

### 3. 파티클보드의 제조 및 성능평가

파티클보드 제조를 위해 소나무 목재파티클 100%로 제조한 control과 전건 목재파티클의 무게비로 10, 20, 30, 40%까지 벧짚과 보릿짚파티클을 대체 혼합하여 4반복으로 총 36개의 파티클보드를 제조하였다.

합성한 요소-멜라민수지 접착제는 목재파티클의 전건무게에 대해 8%의 수지고형분량을 첨가하였고, 왁스는 1%를 첨가하였다. 목재파티클은 밀도 737 kg/m<sup>3</sup>인 파티클보드를 제조하기 위해 무게 측정하고 수작업으로 균일한 단층의 mat을 형성하여 파티클보드를 제조하였다. 패널의 크기는 25 cm×25 cm×0.63 cm 이고, 열압온도 162°C, 열압력 3447 kPa, 열압시간 4분에서 수행하였다. 열압기에 장전되기 전의 mat 함수율은 11~12%이었다.

제조된 파티클보드의 밀도, 박리강도, 휨탄성계수, 휨파괴계수 및 두께팽창률과 물흡수율의 치수안정화 시험을 KS F 3104와 ASTM D 1037(ASTM, 1998)과정에 의해 측정하였다. 치수안정화 시험은 물속에서 2-h, 24-h 동안 침적 후, 측정하였다.

### 4. 통계분석

파티클보드의 성능평가 data는 SAS institute의 SAS Programing package(SAS Institute, 1994)을 이용하여 분석하였다. 완전임의배치법에 의한 분산분석(ANOVA)을 9 종류의 파티클보드와 2종류 농작물 짚에 대한 밀도, 박리강도, 휨탄성계수, 휨파괴계수 및 치수안정화 등의 효과를 분석하기 위해 사용하였고, 최소유의차에 의한 평균간 유의성도 검정하였다(P<0.05). 또 표준변차와 변이계수들도 역시 얻어졌다.

## 결과 및 고찰

### 1. 요소-멜라민수지 접착제의 성질

요소-멜라민수지 접착제의 불 휘발성분은 50.1%, 비중은

**Table 1. Properties of melamine-urea-formaldehyde (MUF) resin synthesized in this study.**

Properties	Unit	MUF resin
F/U	mole ratio	1.53
F/(U+M)	mole ratio	1.48
Melamin content	%	5
Solid content	%	50.1
Specific gravity	--	1.2
pH	--	7.6
Free formaldehyde		0.25

F : formaldehyde. U : urea, M : melamine

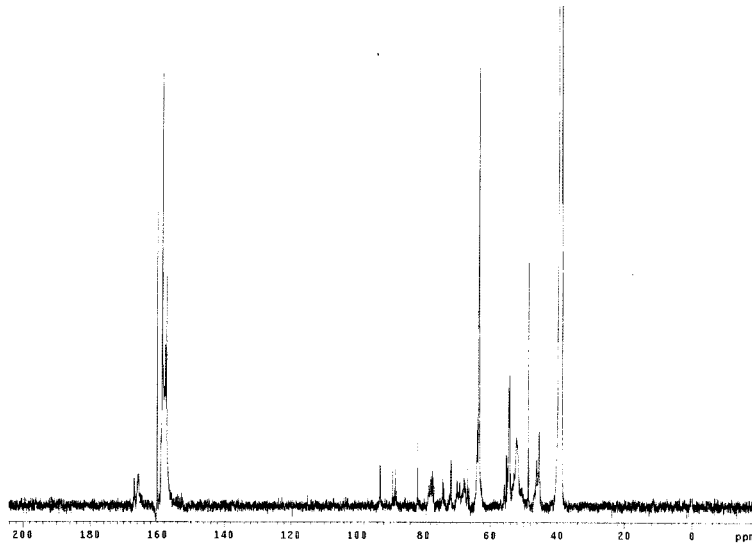


Figure 1.  $^{13}\text{C}$  NMR spectra of melamine-urea-formaldehyde resin synthesized in this study.

1.2, pH는 7.6, 유리포름알데히드는 0.25%로 낮은 수준을 보여줬다(Table 1). Figure 1은 합성한 요소-멜라민수지 접착제의  $^{13}\text{C}$  NMR spectra이다. 49 ppm에서 methylene(-NH-CH<sub>2</sub>-NH-)의 피크가 나타나고, 64 ppm에서 hydroxymethyl (-NHCH<sub>2</sub>OH)기가 매우 강하게 나타나고 있는데, hydroxymethyl기는 요소와 포름알데히드의 중합반응에 의한 것으로 매우 중요하고 이런 강한 피크는 접착제의 좋은 성질과 밀접한 관계가 있다. 71.7 ppm에서 methyl기가 나타나고 있는데 접착제 합성 초기단계에서 생성된 methyl기는 중합반응에서 중요한 역할을 한다. 유리포름알데히드는 84.5 ppm에서 약하게 나타나고 있고, 159 ppm에서 urea와 melamine의 응축 결합에 의한 피크가 나타나고, 160~165 ppm 사이에서 urea, monomethylol urea, dimethylol urea가 나타나고, 165~167 ppm 사이에서 멜라민 방향성 핵의 탄소에 의한 피크가 나타났다. 전체적인 요소-멜라민수지의  $^{13}\text{C}$  NMR spectra는 멜라민의 특성이 잘 나타나고, 유리포름알데히드량이 매우 낮은 친환경 접착제이다(Pizzi, 1994).

## 2. 볏짚과 보릿짚의 특성

볏짚과 보릿짚의 성분분석과 다른 성질은 Table 2와 같다. 볏짚과 보릿짚의 성분분석에서 볏짚의 알루미늄, 인, 나트륨 등의 성분이 보릿짚보다 많이 함유되어 있다. 볏짚과 보릿짚의 회분량은 각각 10.3과 8.9%로 볏짚이 보릿짚보다 무기물량이 높았다. 이런 회분량의 수치는 소나무의 회분량 0.4% 및 일반 국산목재에 함유된 무기물 1%미만 정도와 비교하면 상대적으로 매우 높은 수치이다(임업연구원, 1994). 높은 무기물의 함량은 목질패널산업의 마무리공정에서 사용하는 절삭 톱과 같은 장비 부식에 영향을 준다(Sellers, 1993). 볏짚과 보릿짚의 pH는 6.5와 6.4로

Table 2. Elemental, ash and pH of straw type.

Type analysis	Basis	Straw type (anhydrous basis)	
		Rice	Barley
Aluminum	ppm	144.9	89.1
Calcium	ppm	4485.4	4044.0
Cobalt	ppm	3.5	4.0
Iron	ppm	284.5	298.4
Manganese	ppm	44.2	1398.5
Magnesium	ppm	1403.7	1490.2
Phosphorus	ppm	1302.0	502.0
Sodium	ppm	6204.9	611.3
Zinc	ppm	6.0	11.7
Ash (600°C)	%	10.3	8.9
pH	--	6.5	6.4

ppm = parts per million.

차이가 없었으나(Table 2), 소나무의 pH 4.5와 비교하면 다소 높았고, 이런 pH의 차이는 접착에 영향을 준다(Oh and Lee, 2004).

## 3. 파티클보드의 성능평가

볏짚과 보릿짚파티클을 전건 목재 무게비에 대해 10, 20, 30, 40% 대체 첨가하여 제조된 파티클보드와 소나무 간벌소경재 100% 목재파티클(control)로 제조된 파티클보드의 성능 평가 결과는 Table 3과 같다. 제조된 파티클보드의 밀도 분포범위는 678~723 kg/m<sup>3</sup>이었고, 박리강도 분포범위는 0.12~0.90 N/mm<sup>2</sup>이었다. 볏짚과 보릿짚을 대체 첨가하여 제조한 파티클보드의 박리강도는 첨가량이 증가함에 따라 감소하는 경향을 보여줬다. 그러나 KS F 3104 파티클보드 품질기준 8.0형의 박리강도에 대한 최소요구는 0.15 N/mm<sup>2</sup>이다(한국표준협회, 2002). 제조된 파티클보드의 휨탄성계수의 분포범위는 1218~1897 N/mm<sup>2</sup>

**Table 3. Test results of particleboard made in this study.**

Straw addition (%)	Density (kg/m <sup>3</sup> )	IB	MOE (N/mm <sup>2</sup> )	MOR	Thickness swell		Water absorption	
					2-h	24-h	2-h	24-h
Control (0)	723 (0.3) A	0.90 (3.3) A	1897 (3.0) A	11.2 (3.6) A	12.3 (3.2) F	30.8 (4.9) F	13.2 (5.4) E	51.7 (7.2) F
10	719 (0.5) AB	0.51 (17.5) B	1754 (4.6) AB	9.0 (5.7) B	15.6 (4.8) CD	40.2 (3.0) E	19.2 (4.0) CD	82.6 (1.4) DE
20	714 (0.5) ABC	0.25 (16.5) D	1656 (10.9) BC	7.0 (11.0) C	17.2 (6.8) BC	46.6 (8.9) BC	22.2 (16.9) BC	91.6 (10.4) C
Rice	718 (0.5) AB	0.22 (9.9) DE	1611 (8.8) BC	6.5 (6.7) CD	17.7 (8.6) AB	47.6 (5.7) BC	22.8 (8.6) B	106.8 (5.9) B
40	718 (0.6) AB	0.13 (7.1) FG	1521 (7.1) CD	5.8 (13.4) DE	19.4 (7.2) A	57.9 (2.8) B	26.8 (3.7) A	121.2 (4.5) A
10	708 (0.4) BCD	0.41 (13.3) C	1834 (6.3) A	8.7 (8.5) B	13.6 (4.4) EF	39.7 (2.5) E	16.9 (0.9) D	79.3 (0.9) E
20	678 (0.3) E	0.21 (20.6) DEF	1587 (5.1) BC	6.9 (8.8) C	14.2 (1.3) DE	42.9 (4.9) DE	18.2 (4.1) D	91.2 (2.7) CD
Barley	705 (0.5) CD	0.17 (13.9) EFG	1402 (6.4) D	5.8 (7.2) DE	15.6 (6.0) CD	44.7 (1.3) CD	21.7 (3.6) BC	92.9 (4.3) C
40	699 (0.5) D	0.12 (19.4) G	1218 (13.8) E	5.4 (3.1) E	16.7 (5.2) BC	48.8 (2.3) B	26.3 (5.3) A	111.0 (1.6) B

Values in parenthesis are coefficient of variance in percent.

Internal bond (IB) values represent an average of 16 test specimens.

Modulus of elasticity (MOE) and modulus of rupture (MOR) values represent an average of 8 test specimens.

Thickness swell and water absorption values represent an average of 8 test specimens.

Means with the same letter are not significantly different.

**Table 4. Summary of average panel test data by straw type and grouped by LSD significant across four straw application rates.**

Straw type	Density (kg/m <sup>3</sup> )	Internal bond	Modulus of elasticity ----- (N/mm <sup>2</sup> ) -----	Modulus of rupture	Thickness swell		Water absorption	
					2-h	24-h	2-h	24-h
Rice	717 A	0.28 A	1635 A	7.1 A	17.4 A	44.3 A	26.2 A	94.2 A
Barley	698 B	0.23 A	1463 B	6.2 A	17.2 A	47.8 A	26.4 A	101.7 A
LSD	8	14.5	133	1.0	1.6	4.9	3.2	13.6

이었다. 제조된 파티클보드의 휨파괴계수의 분포범위는 5.4~11.2 N/mm<sup>2</sup>이었다. 벧짚과 보릿짚을 무게비로 대체 첨가하여 제조된 파티클보드의 박리강도 및 휨파괴계수 등의 기계적 성능이 감소하는 원인은 벧짚과 보릿짚에 함유된 왁스 성분이 접착에 나쁘게 작용한 것으로 사료된다 (Sellers, 1999).

제조된 파티클보드의 2-h와 24-h 두께팽창률 분포범위는 12.3~19.4%와 30.8~57.9%이었다. 제조된 파티클보드의 2-h와 24-h 물흡수율 분포범위는 13.2~26.8%와 51.7~121.2%이었다. 제조된 파티클보드의 물흡수율과 두께팽창률은 벧짚과 보릿짚 대체 첨가량이 증가함에 따라서 증가하는 경향을 보여줬다.

## 결론

파티클보드의 원료로서 벧짚과 보릿짚을 전건 목재무게에 대해 10, 20, 30, 40%까지 목재파티클을 대체하여 요소-멜라민수지 접착제를 전건 목재무게에 대해 8% 첨가하여 파티클보드를 제조하고 성능을 비교한 결과, 제조한 파티클보드의 박리강도와 휨강도 등의 기계적인 성능은 KS F 3104 파티클보드 품질기준 8.0형과 비교되는 좋은 결과를 보여줬다. 전체적으로 벧짚과 보릿짚의 적정 대체 첨가량은 전건 목재파티클 무게에 대해 15%이었다.

## 참고문헌

1. 임업연구원. 1994. 한국산 주요목재의 성질과 용도. 임업연구원 연구자료 제95호. 서울. pp.270.
2. 한국표준협회. 2002. 한국산업규격-파티클보드 KS F 3104. 서울.
3. ASTM. 1998. Standard test methods for evaluating properties of wood-based fiber and particle panel materials. ASTM D 1037-96. American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA.
4. Kluge, Z. E., L.V.Tsekulina, and T.G. Savel'eva. 1978. Manufacture of hardboards from rice straw. Tekhnol. Modif. Drev. 55-63.
5. Oh, Y.-S. 1999. Evaluation of melamine-modified urea-formaldehyde resin binders for particleboard. Forest Prod. J. 49(11/12): 31-34.
6. Oh, Y.-S. and J.-K. Lee. 2004. Evaluation of Korean softwood plywood bonded with urea-formaldehyde resin adhesive. Forest Prod. J. 54(2): 77-80.
7. Pizzi, A. 1994. Chapter 3. Melamine-formaldehyde adhesives. Advanced Wood Adhesives Technology. Marcel Dekker, New York. pp. 67-88.
8. SAS Institute. 1994. SAS system for Microsoft Windows, Release 6.10. SAS Institute, Cary, NC.
9. Sellers, T. Jr. 1989. Knife wear due to filler type in plywood adhesives. Forest Prod. J. 39(4):39-41.
10. Sellers, T. Jr., G.D. Miller, and M.J. Fuller. 1999. Kenaf core as board raw material. In: Kenaf properties, processing and products. T. Sellers Jr. and N.A. Reichert eds. Ag and Bio Engineering Dept. Mississippi State University, MS. p.349-357.
11. Spelter, H. 2000. Momentum gathers for ag fiber production, but there's a long way to go. Panel World 41(1): 96-97.
12. Youngquist, J.A., A.M. Krysik, B.W. English, H.N. Spelter, and P. Chow. 1996. Agricultural fibers for use in building components. In: The use of recycled wood and paper in building application. Proceeding of 1996 symposium by USDA. Proc. 7286. Madison, WI. Forest Products Society. p123-134.

(2005년 9월 12일 접수, 2005년 10월 5일 채택)