

실험계획법을 이용한 전분/PVA 블렌드 제조 최적조건 탐구에 관한 연구 1. 다구찌 방법

이 명 석·홍 영 근[†]

수원대학교 공과대학 신소재공학과

(2005년 3월 16일 접수, 2005년 4월 7일 수정 및 채택)

A Study on Optimal Conditions by means of Experimental Design for Preparation of Starch/PVA Blends 1. Taguchi method

Myoung-Seok Lee and Young-Keun Hong[†]

Department of Polymer Engineering, The University of Suwon Suwon 445-743, Korea

(Received March 16, 2005, Revised & Accepted April 7, 2005)

요 약 : 전분/PVA 블렌드의 기계적 물성에 영향을 미칠 수 있는 인자들을 고려하여 최적화 조건을 조사하였다. 실험은 다구찌 방법에 기반을 둔 실험크기 27, 3수준, 13열의 $L_{27}(3^{13})$ 직교배열표가 사용되었다. UTM과 인열 강도계를 통하여 인장강도, 파단신율, 초기탄성률, 인열강도를 측정하여 전분/PVA 블렌드의 제조 최적 조건을 결정하였다. 각 변수들의 분석을 바탕으로 각 인자의 상호작용 효과가 결정되었다. $L_{27}(3^{13})$ 의 분석결과, 글리세롤과 요소가 4가지 기계적 물성의 증진에 가장 중요한 인자로 파악되었다.

ABSTRACT : Optimal conditions for preparation of starch/PVA blends were investigated with the consideration of factors that may influence mechanical properties of the blends. $L_{27}(3^{13})$ experimental designs based on Taguchi method were performed and then tensile strength, strain at break, Young's modulus and tear strength of films of the blends were measured to determine the optimal conditions for preparation. Interaction effects for each factor were determined from analysis of variables. Results of $L_{27}(3^{13})$ experiments indicated that glycerol and urea were important process factors affecting optimization of the mechanical properties.

Keywords : optimization, starch, PVA, blends, experimental design

I. 서 론

합성 플라스틱도 자연 소재와 똑같은 성질, 즉 생분해성을 갖게 하고자 개발된 것이 바로 생분해성 플라스틱이다. 생분해성 플라스틱은 사용시 일반 플라스틱과 같으며, 사용 후 폐기시에는 자연계에 통상 존재하는 미생물에 의해 생물학적으로 분해되어 최종적으로는 이산화탄소 또는 바이오매스

와 같은 것으로 분해된다.^{1,3}

천연 고분자 중에서도 전분이 생분해성 플라스틱 원료로 가장 선호되고 있고, 실제로 전분을 원료로 한 생분해성 플라스틱이 포장 용도로서 현재 가장 많이 실용화되고 있는 실정이다. 전분이 새로운 플라스틱의 주원료로 부각된 가장 큰 이유는, 전분이 생분해성 플라스틱 원료 중에서 생분해정도가 가장 우수하다는 점과 가격이 타 원료에 비해 매우 저렴하며 자원이 풍부하고 공급이 용이하다는 점이다. 즉 전분은 고갈 위기에 처해있는 석

[†]대표저자(e-mail : ykhong@suwon.ac.kr)

화도>99%)은 동양제철화학주식회사에서 제조한 것을 사용하였으며, 옥수수 전분은 대성주식회사에서 제조한 것을 130 °C 오븐에서 건조하여 수분의 함량을 최소화하여 사용하였다.

첨가제로 사용한 글리세롤, 요소 및 카오린은 삼전화학에서 제조한 것을, 셀룰로오스는 Aldrich사에서 제조한 셀룰로오스(α -cellulose)를 그대로 사용하였다. 그리고 클루타릭다이알데하이드(25wt% solution in water)는 ACROS사의 제품을 사용하였다.

2. 다루찌 기법에 의한 실험계획법의 적용

실험계획법(experimental design)은 제품의 특성에 영향을 미치는 여러 가지 인자(factor)를 선정하고 이들의 관계를 알아보기 위한 실험을 실시하여 최적의 제조조건을 찾아내는 실험방법이다. 실험계획은 직교배열표를 이용한다. 직교란 어떤 인자가 어떤 수준에 대해서나 다른 인자의 수준이 같은 횡수씩 나타나는 상태를 말한다. 직교배열표는 각 열이 직교가 되게 미리 만들어 놓은 표이다. 즉, 어떤 수준에 대해서나 다른 열의 전체 수준이 같은 횡수씩 나타나도록 구성되어 있다. 인자가 많을 경우에는 실험횟수가 매우 많아 적은 수의 실험으로 많은 정보를 얻으려는 목적으로 만들어 놓은 표이다.

실험인자로 선정된 7가지 인자, 전분, PVA, 글리세롤, 요소, 셀룰로오스, 카오린, GTD를 모두 3수준으로 하고, 3수준계 직교배열표(orthogonal array-OA)로는 $L_9(3^4)$, $L_{27}(3^{13})$ 등이 주로 사용되나, 본 연구에서는 $L_{27}(3^{13})$ 에 모든 인자를 적용하였다. 가장 큰 비중을 차지하는 전분과 PVA의 다양한 비율에

Table 1. Factors and Levels selected in OA- I

Factor	Symbol Used In This Study	Level 1	Level 2	Level 3
Corn Starch(g)	A	5.0	6.25	7.5
PVA(g)	B	3.2	4.1	5.0
Glycerol(g)	C	0.5	1.5	2.5
Urea(g)	D	0	0.075	0.15
Pulp(g)	E	0	0.75	1.5
Kaolin(g)	F	0	0.5	1.0
GTD(g)	G	0	0.5	1.0

Table 2. Factors and Levels selected in OA-II

Factor	Symbol Used In This Study	Level 1	Level 2	Level 3
PVA(g)	A	5.0	6.25	7.5
Corn Starch(g)	B	3.2	4.1	5.0
Glycerol(g)	C	0.5	1.5	2.5
Urea(g)	D	0	0.075	0.15
Pulp(g)	E	0	0.75	1.5
Kaolin(g)	F	0	0.5	1.0
GTD(g)	G	0	0.5	1.0

Table 3. The Orthogonal Array $L_{27}(3^{13})$ used in This Study

Process Condition	Column												
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
2	1	1	1	1	2	2	2	2	2	2	2	2	2
3	1	1	1	1	3	3	3	3	3	3	3	3	3
4	1	2	2	2	1	1	1	2	2	2	3	3	3
5	1	2	2	2	2	2	2	3	3	3	1	1	1
6	1	2	2	2	3	3	3	1	1	1	2	2	2
7	1	3	3	3	1	1	1	3	3	3	2	2	2
8	1	3	3	3	2	2	2	1	1	1	3	3	3
9	1	3	3	3	3	3	3	2	2	2	1	1	1
10	2	1	2	3	1	2	3	1	2	3	1	2	3
11	2	1	2	3	2	3	1	2	3	1	2	3	1
12	2	1	2	3	3	1	2	3	1	2	3	1	2
13	2	2	3	1	1	2	3	2	3	1	3	1	2
14	2	2	3	1	2	3	1	3	1	2	1	2	3
15	2	2	3	1	3	1	2	1	2	3	1	3	2
16	2	3	1	2	1	2	3	3	1	2	2	3	1
17	2	3	1	2	2	3	1	1	2	3	3	1	2
18	2	3	1	2	3	1	2	2	3	1	1	2	3
19	3	1	3	2	1	3	2	1	3	2	1	3	2
20	3	1	3	2	2	1	3	2	1	3	2	1	3
21	3	1	3	2	3	2	1	3	2	1	3	2	1
22	3	2	1	3	1	3	2	2	1	3	3	2	1
23	3	2	1	3	2	1	3	3	2	1	1	3	2
24	3	2	1	3	3	2	1	1	3	2	2	1	3
25	3	3	2	1	1	3	2	3	2	1	2	1	3
26	3	3	2	1	2	1	3	1	3	2	3	2	1
27	3	3	2	1	3	2	1	2	1	3	1	3	2

따른 다른 인자들의 영향력을 조사하기 위해 전분과 PVA를 5수준으로 계획하였으나 7개의 인자중 2개의 5수준인자를 동시에 적용하는 것은 불가능하기 때문에¹⁴ 둘로 나누어 동일한 2개의 직교배열표를 작성하여 주요 요소인 전분과 PVA를 3수준으로 하여 전분이 다량인 경우(OA-I)와 PVA가 다량인 경우(OA-II)의 두가지로 나누어 각 인자의 영향력을 조사하였다. Table 1, 2에 OA-I, OA-II의 인자의 구성과 수준을 나타내었으며, Table 3에 본 실험에 사용된 $L_{27}(3^{13})$ 직교배열표를 나타내었다.

측정된 기계적 물성의 수치가 커질수록 우수한 기계적 물성을 나타내기 때문에 S/N비(signal-to-noise ratio)는 망대특성(larger-the-better)¹⁴을 적용하였고 아래와 같이 정의된다. S/N비의 산출 및 정보의 분석은 MiniTab package에 의해 수행되었다.

$$S/N = -10 \log \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{1}{y_i^2}$$

n : 고려 물성 개수(4)

y : 물성치

S/N비 계산에서의 가정은 본 실험에서 우수한 기계적 물성을 논함에 있어서 4가지 물성의 중요도(weight)는 똑같다고 본다. 즉, 잘 늘어나면서도 잘 끊어지지 않고, 잘 찢어지지 않으면서, 변형 후 탄성회복력이 큰 그러한 물성을 갖는 전분/PVA 배합조건을 찾는 것이다.

3. 블렌드의 제조

직교배열표(OA-I, II)에 의한 각 인자들의 수준에 의한 조성에 따라 실험을 실행하였다. 전분, PVA, 증류수를 80 °C에서 3시간 동안 고속으로 교반하여 전분을 충분히 용해시킨 후 나머지 첨가제를 투입하여 95 °C에서 2시간 교반하여 조성물을 얻고, GTD가 포함된 실험번호(1수준이 아닌 경우)에 대해서는 GTD를 투입후 상온에서 1시간동안 추가 교반하였다. 이 때 증류수와 모든 인자들의 중량비는 95 : 5로 하였다. 얻어진 혼합물을 제작된 틀에서 casting하여 상온 건조를 통해 필름을 형성하고 60 °C에서 8~9시간 추가 건조한 후 필름을 틀에서 제거하였다. 이는 모든 실험번호에 적용되

었으며, 측정을 위하여 제작된 필름은 PE bag에 담아 4 °C에서 보관하였다.

4. 시편제조 및 기계적 거동 관찰

제조된 전분/PVA 필름의 인장시편은 ASTM D-882에 의거하여 제작하였다. 인장시편은 12개씩 제작되었으며, UTM은 Lloyd Instrument사의 LR-5K model을 이용하여 제작된 덤벨 형태의 인장시편으로부터 인장강도, 파단신율, 초기탄성률을 얻어내었다. 게이지 길이는 25 mm, crosshead 속도는 50 mm/min이었으며 실험은 상온에서 실시했다. 측정된 결과 중 최소값과 최대값을 제외한 나머지 10개의 평균을 결과값으로 사용하였다. 인열시편은 ASTM-1592에 의거하여 제작하여 사용하였으며 Elmendorf Tearing Tester(TOYO SEIKI SEISAHU-SHO, Japan)를 사용하여 시편의 인열강도를 측정하였다. 1600-gf의 추를 사용하였으며 인열시편은 16장씩 제작되었다. 최소값과 최대값을 제외한 나머지 측정값들의 평균을 결과값으로 사용하였다.

5. 실험의 검토 및 최적화와 재현성 검토

직교배열표에 의해 실시된 실험 결과 데이터를 S/N비로 바꾸어 최적조건 및 기술적인 정보를 도출한 후, 최적조건이 재현되는지 확인실험을 2회씩 실시하였으며, 확인실험결과가 최적화 상태의 예측값과 비교하여 재현성을 판단하였다. 재현성 확인은 S/N비에 대해서만 실시하였고 재현성이 있다고 판단되는 경우는 최적화 상태의 예측값과 확인실험의 결과의 차이가 30%이내이면 재현성이 있다고 판단하였다.¹⁴

III. 결과 및 고찰

1. 다구찌 기법에 의한 실험계획법의 분석

직교배열표(OA-I, II)에 의한 각 인자들의 수준에 의한 조성에 따라 배합하고 각 배합에서 얻어진 4가지 물성치와 그에 따른 S/N비를 Table 4, 5에 나타내었다. S/N비의 크기로 보아서는 OA-I (전분>PVA)의 경우 실험번호 5번(31.2)과 27번(30.4)이 가장 높았으며 24번(14.8)과 4번(15.8)이 가

Table 4. Mechanical Properties and S/N Ratios of OA-I

Process Condition	Mechanical Properties					S/N Ratio
	Tensile Strength (N/mm ²)	Strain at Break (%)	Tear Strength (gf)	Young's Modulus (N/mm ²)		
1	49.0	16.0	1280	1776	29.7	
2	17.3	10.4	1248	902	25.0	
3	9.7	6.7	1280	386	20.9	
4	3.9	4.9	1200	2379	15.8	
5	19.6	46.8	4000	669	31.2	
6	7.9	22.9	2560	136	23.5	
7	18.8	7.0	2400	903	22.4	
8	28.1	3.3	2400	1656	16.3	
9	15.7	95.6	4800	28	28.7	
10	18.1	3.7	1600	736	17.2	
11	17.3	7.1	1570	751	22.3	
12	9.7	13.3	1120	233	23.9	
13	32.8	4.6	2000	1372	19.3	
14	31.2	15.9	1840	1384	29.0	
15	15.8	17.1	1280	601	27.3	
16	31.0	6.6	2000	1896	22.2	
17	23.8	7.1	2080	1271	22.7	
18	11.6	86.0	4320	102	27.2	
19	49.3	4.8	2240	2843	19.7	
20	18.4	6.7	1040	1140	22.1	
21	12.3	16.2	1600	410	25.9	
22	42.1	4.8	1920	1918	19.6	
23	30.9	15.1	2800	1963	28.7	
24	30.5	2.8	1584	1763	14.8	
25	36.7	4.0	1200	1716	18.0	
26	21.7	6.9	2080	1131	22.4	
27	18.4	37.7	1600	766	30.4	

장 낮았다. OA-II(PVA > 전분)의 경우에는 9번(29.8)과 1번(29.3)이 가장 높았으며 8번(16.3)과 3번(17.1)이 가장 낮았다. 전분이 PVA보다 많이 포함된 경우에서 최고 S/N비를 얻을 수 있으나 또한 최저 S/N비도 나왔다. S/N비 평균치를 계산하면 OA-I의 경우 23.2, OA-II의 경우 24.5를 나타내어 OA-I, 즉 전분이 PVA보다 많이 포함된 경우의 물성치의 진폭이 더 큼을 알 수 있다.

OA-I의 S/N비를 도식화하여 Figure 2에 나타내

었다. Figure 2는 각 인자들의 S/N비와 특성치에 미치는 영향력을 나타낸다. 그림에서 중간선은 OA-I의 S/N비 평균치(23.2)를, 첫 번째 그래프(A)에서 1수준에 해당되는 S/N비는 직교배열표에서 A를 1수준으로 고정한 실험, 즉 실험번호 1에서 9까지의 S/N비의 평균값(23.7)이다. 따라서 2수준에 해당되는 S/N비는 직교배열표에서 A를 2수준으로 고정한 실험, 즉 실험번호 10에서 18까지의 S/N비의 평균값(23.5)이며, 3수준에 해당되는 S/N비는 직교배열

Table 5. Mechanical Properties and S/N Ratios of OA-II

Process Condition	Mechanical Properties				S/N Ratios
	Tensile Strength (N/mm ²)	Strain at Break (%)	Tear Strength (gf)	Young's Modulus (N/mm ²)	
1	17.5	126.4	6080	27	29.3
2	11.9	10.5	1520	189	24.0
3	3.6	24.6	1280	68	17.1
4	21.4	17.8	2880	1167	28.7
5	9.9	25.4	3040	262	25.3
6	5.5	23.7	1760	38	20.6
7	18.8	7.0	2400	903	22.4
8	28.1	3.3	2240	1657	16.3
9	15.7	95.6	4800	289	29.8
10	14.5	14.0	1520	295	26.1
11	10.9	41.9	1760	385	26.5
12	5.3	35.4	1840	34	20.3
13	12.2	15.0	1040	308	25.5
14	11.3	155.4	6400	29	26.4
15	6.7	50.0	2000	47	22.4
16	19.0	6.3	1760	1104	21.5
17	12.6	58.8	3520	201	27.8
18	7.4	48.8	2720	59	23.3
19	15.2	21.2	2880	421	27.8
20	14.6	12.0	1920	412	25.4
21	13.1	166.8	6560	42	27.9
22	21.0	12.8	2000	609	26.8
23	13.0	18.1	2080	313	26.5
24	6.1	101.9	2080	31	21.6
25	12.4	22.9	2720	312	26.7
26	12.3	13.7	2560	438	19.2
27	10.8	142.1	2880	33	26.2

표에서 A를 3수준으로 고정된 실험, 즉 실험번호 19에서 27까지의 S/N비의 평균값(22.4)이다. 인자들이 모두 S/N비 증가에 기여하지는 않았다. E와 G는 수준이 커짐에 따라 S/N값이 큰 폭으로 감소하고 C와 D는 증가함을 알 수 있다. F의 경우 1수준과 1수준의 차는 거의 없으나 3수준에서 감소를 보이고 있다. 첨가제 중 E, F, G는 1수준(첨가하지 않은 경우)일 때 가장 큰 S/N비를 가지므로 혼합물에 E, F, G의 첨가는 기계적 물성 증진에 효과

가 없음을 알 수 있다.

OA-II에도 OA-I과 동일한 분석을 실행하였으며, Figure 3에 이를 나타내었다. 그림에서 중간선은 OA-II의 S/N비 평균치(24.5)를 나타내고 있다. 여기서 D는 2수준을 최고점으로 가졌으며 C, E, F, G는 수준이 증가함에 따라 값이 감소함을 알 수 있다. C와 D가 OA-I, II에서 공통적으로 기계적 물성의 결정에 가장 중요한 인자라는 것을 알 수 있다.

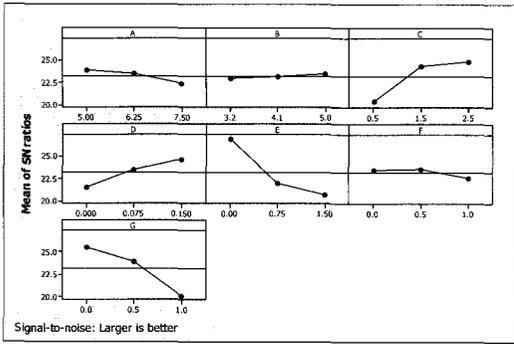


Figure 2. Main effect plot (data means) for S/N ratios in OA- I.

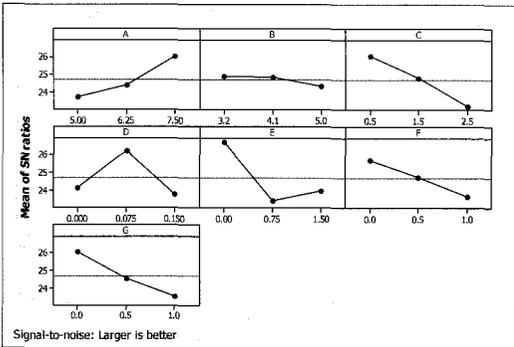


Figure 3. Main effects plot (data means) for S/N ratios in OA- II.

2. 확인 실험을 통한 최적화 상태의 재현성 검증

통계적 결과의 검증을 위해 확인 실험을 실시하였다. OA-I의 경우, Figure 2를 통하여 얻을 수 있는 예측되는 최적화 인자의 수준은 A1B3C3D3E1F1G1 이고 이에 대한 검증실험을 수행하였으며 현재의 최고 S/N비는 실험번호 5번(A1B2C2D3E1F1G1)이다. 최적화 상태의 S/N비 예측값과 실험값을 Table 6에 나타내었다. 예측값은 Figure 3에서의 최적화 인자의 수준인 A1수준 B3수준 C3수준 D3수준 E1수준 F1수준 G1수준에 해당되는 S/N비의 평균값이며, 실험값은 최적화 인자의 수준인 A1수준 B3수준 C3수준 D3수준 E1수준 F1수준 G1수준에 따라 배합하여 얻어진 물성치에서 구한 S/N비이다. 예측된 최적화 상태에서의 실험값은 예측값에 조금 못 미치는 값을 나타내었으나 예측값에서 크게 벗어나지는 않았고, 현재의 가장 높은 S/N비보다 높은 값이 산출되어 재현성이 있다고 판단하여 이를 최적화된 상태로 결정하였다.

OA-II의 경우, Figure 3을 통하여 얻을 수 있는 예측되는 최적화 인자의 수준은 A3B1C1D2E1F1G1 이고 이에 대한 검증실험을 수행하였다. 현재의 최고 S/N비는 실험번호 9번(A1B3C3D2E1F1G1)이다. 최적화 상태의 예측값과 실험값을 Table 7에 나타내었다. 예측값은 Figure 3에서의 예측된 최적화

Table 6. Prediction and Experiments of OA- I

Factors and Levels	Mechanical Properties				S/N Ratios	
	Tensile Strength (N/mm ²)	Strain at Break (%)	Young's Modulus (N/mm ²)	Tear Strength (gf)	Experiment	Prediction
Opt.	22.9	98.3	410	5600	33.0	34.9
No.5	19.6	46.8	670	4000	31.2	-

Table 7. Prediction and Experiments of OA-II

Factors and Levels	Mechanical Properties				S/N Ratios	
	Tensile Strength (N/mm ²)	Strain at Break (%)	Young's Modulus (N/mm ²)	Tear Strength (gf)	Experiment	Prediction
Opt.	31.9	78.7	951	6520	32.1	34.1
No.9	15.7	95.6	289	4800	29.8	-

상태인 A3B1C1D2E1F1G1 역시 예측값보다 조금 낮은 실험값을 나타내었다. 그러나 예측값에서 크게 벗어나지 않았고 현재의 가장 높은 S/N비에 비해 상당히 높은 값이 산출되어 재현성이 있다고 판단하여 이를 최적화된 상태로 결정하였다.

IV. 결 론

본 실험에서는 통계적 분석법인 다구찌 방법을 블렌드의 제조 최적조건에 응용하여 보았다. 7가지 요소에 각 요소가 3수준을 갖는다면 일반적인 실험에서는 3⁷번, 즉 2187번의 실험을 행하여야 하나 실험계획법을 이용하면 27번의 실험으로 중요 요소(인자)를 찾아낼 수 있다. 다구찌 방법에 의해 글리세롤과 요소는 전분/PVA 블렌드의 기계적 물성에 가장 중요한 인자로 파악되었으며, 기계적 강도의 증가를 예상한 셀룰로오스, 카오린, GTD는 오히려 기계적 물성의 감소를 유발하는 인자라는 것을 알 수 있었다. 본 실험분석법은 어떤 원하는 물성을 나타내기 위한 고무 배합의 recipe 선정에도 긴요하게 사용될 수 있을 것이다.

감사의 글

본 연구는 수원대학교 환경정정기술연구센터(RRC)의 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. 황선일, "생분해성 플라스틱의 기술 개발 동향", KISTI, 2002.
2. D.R. Coffin, M.L. Fishman, J.J. Unruh, and T. Ly, "Pectin/Starch/Glycerol Films : Blends or Composite", *J.M.S. Pure Appl. Chem.*, **33**, 639 (1996).
3. 조관호, "생분해성 플라스틱의 현황과 전망", *한국유기성폐자원학회지*, **9**, 7 (2001).

4. 강혜정, 정기원, "생분해성 플라스틱의 개발 동향", *공업 기술*, **9**, 138 (1998).
5. 손원근, 박원호, 이진영, "PVA의 환경적 분해", *고분자과학과 기술*, **15**(1), 38 (2004).
6. Gena Nashed, Rulande, P.G. Rutgers and Peter A. Sopade, "The Plasticisation Effect of Glycerol and Water on the Gelatinisation of Wheat Starch", *Starch*, **55**, 131 (2003).
7. A. Jansson and F. Thuvander, "Influence of Thickness on the Mechanical Properties for Starch Films", *Carbohydrate Polymers*, **56**, 499 (2004).
8. Xiudong You, Li Li, Jianping Gao, Jiugao Yu, and Zhuxuan Zhao, "Biodegradable Extruded Starch Blends", *J. Appl. Polym. Sci.*, **88**, 627 (2003).
9. Siddaramaiah, B. Raj, and R. Somashekar, "Structure-Property Relation in Polyvinyl Alcohol/Starch Composites", *J. Appl. Polym. Sci.*, **91**, 630 (2004).
10. Eli Ruckenstein and Yue Sun, "Preparation and Characteristic of Polymer-Based Large Adsorbent Particles", *J. Appl. Polym. Sci.*, **61**, 1949 (1996).
11. N. Tudorachi, C.N. Cascaval, M. Rusu, and M. Rruteanu, "Testing of Polyvinyl Alcohol and Starch Mixtures as Biodegradable Polymeric Materials", *Polymer Testing*, **19**, 785 (2000).
12. A.A.S. Curvelo, A.J.F. de Carvalho, and J.A.M. Agenelli, "Thermoplastic Starch-Cellulosic Fibers Composites : Preliminary Results", *Carbohydrate Polymers*, **45**, 183 (2001).
13. A.A.S. Curvelo, A.J.F. de Carvalho, and J.A.M. Agenelli, "A first Insight on Composites of Thermoplastic Starch and Kaolin", *Carbohydrate Polymers*, **45**, 189 (2001).
14. 이상복, "다구찌 기법 활용", *이레테크*, 11-85, 2001.
15. 박성현, "현대실험계획법", 민영사, 11-21, 423-491, 573-585, 631-646, 1995.