

두부비지 가수분해물과 페놀수지로 조제한 마루판 화장용 접착제의 접착성능*1

양 인*2 · 안 세 희*3 · 최 인 규*4 · 최 원 실*5 · 김 삼 성*3 · 오 세 창*3†

Bonding Quality of Adhesives Formulated with Okara Hydrolyzates and Phenol-formaldehyde Resins for Bonding Fancy Veneer onto High-density Fiberboard*1

In Yang*2 · Sye-Hee Ahn*3 · In-Gyu Choi*4 · Won-Sil Choi*5 · Sam-Sung Kim*3 ·
Sei-Chang Oh*3†

요 약

본 연구에서는 두부비지 가수분해물과 페놀수지로 조제된 마루판 화장용 접착제의 접착성능을 확인하기 위하여 수행하였다. 먼저 두부비지를 황산과 수산화나트륨으로 화학적으로 개량한 후 가교제로 phenol formaldehyde (PF) prepolymer와 혼합하여 접착제를 조제하였는데, 이 접착제는 고형분 함량을 기준으로 35%의 황산 가수분해물(AC), 35%의 수산화나트륨 가수분해물(AK) 그리고 30%의 PF로 조제하였다. 이렇게 조제된 접착제를 고밀도섬유판에 300 g/m²의 비율로 도포한 후 참나무 무늬목을 접착시켜 7 kg/m²의 압력으로 120°C에서 열압하여 마루판을 제조하였다. 제조된 마루판에 대하여 formaldehyde/phenol 몰비(1.8, 2.1, 2.4), 퇴적시간(0분, 10분, 20분), 열압시간(90초, 120초)이 평면인장강도, 준내수 박리율, 포름알데히드 방산량에 미치는 영향에 대해 조사하였다. 두부비지 접착제를 이용하여 제조된 목질마루판의 평면인장강도는 KS 규격의 최소값을

* 1 접수 2009년 1월 6일, 채택 2009년 5월 22일

* 2 서울대학교 농업생명과학연구원. Research Institute for Agriculture and Life Sciences, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

* 3 대구대학교 생명환경대학 산림자원학과. Department of Forest Resources, Daegu University, Kyongsan 712-714, Korea

* 4 서울대학교 농업생명과학대학 산림과학부 환경재료과학전공. Department of Forest Sciences, College of Agriculture and Life Sciences, Seoul National University, Seoul 151-921, Korea

* 5 국립산림과학원 화학미생물과. Division of Wood Chemistry and Microbiology, Korea Forest Research Institute, Seoul 130-712, Korea

† 주저자(corresponding author) : 오세창(e-mail: osc@daegu.ac.kr)

상회하였으며, 대부분의 포름알데히드 방산량 값은 KS 규격의 E0 기준에 근접하는 것으로 나타났다. 따라서 두부비지 접착제가 마루판 화장용 접착제로 사용될 수 있다는 가능성을 보여 주었으나, 상용화를 위하여 내수성의 향상과 포름알데히드 방산량의 저감을 위한 연구가 필요할 것으로 생각한다.

ABSTRACT

In our study, the potential of okara as an ingredient of new bio-based adhesives was investigated for the production of fancy-veneered flooring boards. Okara was hydrolyzed by 1% sulfuric acid solution (AC) and 1% sodium hydroxide solution (AK). Phenol formaldehyde (PF) prepolymers were prepared as a cross-linker of okara hydrolyzates. Then, okara-based adhesive resins were formulated with 35% AC, 35% AK and 30% PF prepolymer on solid content basis. The adhesive resins were applied on high-density fiberboards (HDF) with the spread rate of 300 g/m². After that, oak fancy veneers are covered on the HDF, and then pressed with the pressure of 7 kg/m² at 120°C. The experimental variables were three mole ratios of formaldehyde to phenol (1.8, 2.1, 2.4), three assembly time (0, 10, 20 min), and two press time (90 sec, 120 sec), respectively. The fancy-veneered high-density fiberboards were tested by dry tensile strength, glue-line failure by wetting and formaldehyde emission. Tensile strength of the boards exceeded the requirement of KS standard. The formaldehyde emissions were approached at the E0 level specified in KS standard. Based on these results, okara can be used as an ingredient of environmentally friendly adhesive resin systems for the production of flooring boards.

Keywords: okara, phenol-formaldehyde prepolymer, fancy veneer, high-density fiberboard, formaldehyde emissions, glue-line failure

1. 서 론

합성수지 접착제가 개발되어 사용되기 전까지 카제인이나 대두계 단백질과 같은 천연고분자 물질이 접착제로 널리 사용되었다(Lambuth, 1989). 이 천연고분자 계통의 접착제들은 내구성 문제, 특히 낮은 내수성으로 사용이 제한되므로 인해 목재접착 및 목질재료 제조용으로는 높은 강도와 내수성을 보유한 합성수지 접착제가 이들을 대체하여 사용되고 있다. 그러나 대부분의 합성수지 접착제는 환경문제를 야기시키는 포름알데히드(formaldehyde)와 같은 화학물질을 함유하고 있어 건강과 환경에 대한 관심이 전 세계적으로 부각되면서 많은 문제점들이 지적되고 있다. 특히 포름알데히드는 인체에 유해한 화학물질임과 동시에 이 화학물질의 방산은 휘발성 유기

화합물(Volatile Organic Compounds: VOC)의 규제와 연관되어 현재 사회적으로도 큰 이슈가 되고 있으며 법적인 규제사항으로 사용이 엄격히 제한되고 있는 실정이다. 이와 같이 환경문제에 대한 관심이 고조되면서 목재산업계도 환경친화적인 접착제의 개발에 대한 필요성이 시급히 요청되고 있다.

재생가능한 측면과 환경적인 관점에서 대두계 단백질과 대두계 제품들은 접착제의 주요 구성요소로 연구 조사되어 왔다(Jong, 2006; Yang *et al.*, 2006). 특히 대두계 단백질 고분자는 석유계 고분자 물질의 환경적인 문제와 피해를 방지하기 위해 사용이 가능한 대체재로 재조명을 받고 있다(Sun and Bian, 1999). 이러한 여러 연구 결과는 대두계 단백질로 제조한 접착제가 합판용 접착제로 만족할 만한 성능을 나타내고 있다는 것을 말해주고 있다. 그러나 대두

계 접착제는 짧은 저장기간, 낮은 고형분 함량, 긴 열압시간 그리고 취약한 내수성이 단점으로 지적되어 현재 제한적으로 사용되고 있는 실정이다.

대두계 단백질은 단백질의 함유량에 따라 다양한 형태로 제조될 수 있으며 제품 제조과정에서 부산물도 용이하게 얻을 수 있다. 대두(콩)은 국내에서 두부 원료로 많이 사용되고 있으며, 두부제조 후 나오는 비지는 또 다른 하나의 단백질원으로 고려될 수 있어 일정 수준의 단백질을 함유하고 있는 비지를 화학적으로 처리하면 접착제의 원료로 사용이 가능하다.

단백질계 접착제의 원리는 단백질 분자가 수용액에서 분산되어 코일화(coiled)된 구조가 펼쳐지면서, 접촉 면적이 증가되어 다른 계면으로 접촉되는 원리로 단백질 분자들은 경화과정에서 서로 얽히게 되어 접착강도를 보유하게 되는 것이다(Lambuth, 1994). 따라서 폐기물로 인식되는 비지로부터 단백질을 접착이 가능한 구조로 전환시켜 펼친 구조로 만들면 접착강도를 증대시킬 수 있을 것이며 이에 따라 폐기물로부터 친환경적인 새로운 접착제로의 개발이 가능하리라 생각된다. 특히 단백질계 접착제가 갖고 있는 낮은 강도와 내수성 문제는 기존의 합성수지 접착제를 성능개선용으로 전환시켜 사용하면 더욱 좋은 결과를 얻을 수 있을 것이다. 폐자원인 비지가 친환경 접착제로 전환되면 현대사회에서 가장 큰 환경문제인 부산물의 재이용 및 자원화에 대한 새로운 좌표를 제시할 것으로 보인다.

따라서 본 연구에서는 두부 비지를 접착제의 원료로 사용하기 위해 두부비지를 화학적 처리한 후 다양한 몰비로 조제된 페놀 수지(phenol-formaldehyde prepolymers)와 반응시켜 접착제를 조제하고 이를 목질마루판 제조에 이용하여 그 이용 가능성을 확인하고자 수행하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 공시재료

밀도가 1 kg/m^3 인 고밀도섬유판(High-density fiberboards; HDF)을 제조업체로부터 공급받아 목질

마루판용 대판으로 사용하였으며, 무늬목을 접착시 키기에 앞서 그 섬유판을 $300 \text{ mm} \times 75 \text{ mm} \times 9 \text{ mm}$ (L × R × T)의 크기로 재단하였다. 무늬목으로는 $0.45 \pm 0.05 \text{ mm}$ 의 두께를 가진 참나무(*Quercus aliena*) 단판을 구입하여 사용하였으며, 접착하기 전에 $300 \text{ mm} \times 80 \text{ mm}$ 로 재단하고, 70°C 의 오븐에서 5%의 함수율을 보유하도록 건조하였다. 두부비지 접착제의 주원료인 두부비지는 국내의 한 식품회사에서 무상으로 공급받아 사용하였다.

2.2. 접착제의 합성 및 무늬목 접착

두부비지의 화학적 처리를 위하여 먼저 비지를 24시간 동안 70°C 의 오븐에서 건조하였다. 건조된 비지를 가정용 믹서로 분쇄하여 분말화한 후 60 mesh를 통과한 비지 분말 200 g을 340 ml의 1% 황산 용액에 첨가하여 80°C 에서 60분 간 반응시켜 두부비지의 산 가수분해물(AC)을 조제하였다. 같은 방법으로 1%의 수산화나트륨 용액에서 반응시켜 두부비지의 알칼리 가수분해물(AK)을 준비하였다.

가교제로 사용된 PF prepolymers는 Yang *et al.* (2006)의 연구에서 사용했던 방법을 참조하여 조제하였는데, 1몰의 phenol과 1.8몰의 formaldehyde를 $75 \pm 2^\circ\text{C}$ 에서 90분 간 반응시킨 후 $95 \pm 2^\circ\text{C}$ 에서 60분 간 추가적으로 반응시켜 1.8-PF를 조제하였으며, 2.1-PF와 2.4-PF도 각각의 2.1, 2.4의 F/P 몰비로 조절하여 1.8-PF의 조제방법과 동일하게 하여 제조하였다. 제조된 PF prepolymers는 약 50%의 고형분과 $100 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 의 점도를 보유하였다.

두부비지 접착제는 고형분 함량을 기준으로 35%의 AC, 35%의 AK, 그리고 30%의 PF를 이용하여 조제하였으며, 두부비지 가수분해물(AC/AK)에 PF를 첨가한 후 60°C 에서 10분 동안 교반하여 접착제의 조제를 완료하였다. 이렇게 조제된 접착제들은 연한 갈색의 색상을 나타내었으며 측정된 점도와 PH는 각각 $4,200 \sim 4,900 \text{ mPa} \cdot \text{s}$, $5.8 \sim 6.5$ 로 나타났다. 각 접착제는 도장용 붓을 이용하여 300 g/m^2 의 도포량으로 HDF에 도포하였다.

Table 1. Analyses of variance for the adhesive strengths and formaldehyde emission of fancy veneers bonded with okara-based adhesives onto high-density fiberboards depending on PF mole ratio, assembly time and press time

Source ¹	DF	Dry tensile strength		Rate of delamination		Formaldehyde emission	
		F Value	Pr > F	F Value	Pr > F	F Value	Pr > F
PF mole ratio	2	54.19	<0001	5.83	0.0042	521.72	<0001
Assembly time	2	0.02	0.9819	0.75	0.4762	576.33	<0001
Press time	1	6.88	0.0094	14.29	0.0003	1.26	0.2771
PF * Assem	4	3.90	0.0045	2.03	0.0972	45.99	<0001
PF * Press	2	0.35	0.7032	0.16	0.8545	168.64	<0001
Assem * Press	2	1.80	0.1673	8.54	0.0004	127.10	<0001

¹ PF: phenol/formaldehyde mole ratio; Assem: assembly time; and Press: press time.

2.3. 무늬목 접착 및 접착 성능 평가

두부비지 접착제를 HDF에 도포한 후 상온에서 0분, 10분 그리고 20분의 개방 퇴적시간을 적용하였으며, 무늬목을 HDF 위에 붙인 후 120°C의 온도에서 7 kg/cm²의 압력으로 90 및 120 초간 열압을 실시하여 접착을 완료하였다. 이렇게 접착이 완료된 목질마루판의 접착성능을 조사하기 위하여 KS F 3126에 준하여 7.5 cm × 5 cm의 크기로 절단하여 30개의 시편을 준비하였다. 이 중 10개의 시편은 건조 상태에서 만능강도시험기를 이용하여 평면인장강도를 조사하였으며, 다른 10개의 시편은 KS F 3101의 침지박리시험법 중 준내수 침지박리 접착력 시험법을 적용하여 70°C의 온수에서 2시간 동안 침지시키고 60°C의 오븐에서 3시간 동안 건조시킨 후 육안으로 접착층의 박리율을 조사하였다. 포름알데히드 방산량은 KS M 1998-4에 준하여 수행하였는데, 본 연구에서 조사된 모든 인자(F/P 몰비, 퇴적시간, 열압시간)별로 12개씩의 시편을 15 cm × 5 cm 크기로 준비하고, 그 시편의 옆면을 실링 테이프로 밀봉한 후 24시간 데시케이터법을 이용하여 포름알데히드 방산량을 측정하였다.

2.4. 실험설계 및 통계학적 분석

본 연구는 고밀도 섬유판 위에 무늬목을 접착시키

기 위해 사용된 두부비지 접착제의 접착성능을 알아보기 위하여 수행되었다. 본 연구를 위한 실험 설계는 두 개의 3 × 3 다원변량분석(factorial design) 방법을 사용하였는데, 사용된 인자(factor)로는 두 종류의 열압시간(90, 120초)에 세 종류의 F/P 몰비(1.8, 2.1, 2.4)와 세 종류의 퇴적시간(0, 10, 20분)로 구성되어 있다. 조사된 데이터는 SAS (Statistical Analysis System, 2002) 프로그램에 의해 통계학적 분석이 수행되었으며, 그 분석은 95%의 신뢰범위에서 실시하였다. 접착성능과 포름알데히드 방산량에 대한 각 인자의 영향은 분산분석(Analysis of Variance: ANOVA)에 의해 조사되었으며, 통계학적으로 p<0.05 수준에서 영향을 받았을 경우 t-test에 의해 각 데이터의 평균치 간의 차이가 유의한지를 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 포름알데히드와 페놀의 몰비 영향

고밀도 섬유판에 무늬목 접착을 위하여 사용된 두부비지 접착제의 접착성능과 포름알데히드 방산량에 대한 각 인자들의 영향을 분산분석을 이용하여 분석한 결과는 Table 1과 같다. 두부비지 가수분해물(이하 OK)과 1.8, 2.1, 2.4의 F/P 몰비로 준비된 PF(이하 1.8-PF, 2.1-PF, 2.4-PF)로 조제된 두부비지

Table 2. Rate of delamination (unit: %) of fancy veneers bonded with okara-based adhesives onto high-density fiberboards

F/P mole ratio	90 sec ¹			120 sec ¹		
	0 min ²	10 min ²	20 min ²	0 min ²	10 min ²	20 min ²
18	625 (26.2)	261 (3.4)	292 (10.2)	288 (9.1)	53.9 (32.7)	79.2 (29.2)
21	23.9 (5.9)	25.2 (2.4)	28.7 (8.9)	61.7 (34.5)	30.1 (11.3)	27.3 (5.8)
24	54.2 (33.2)	37.4 (20.9)	26.7 (7.5)	29.9 (8.9)	63.1 (35.2)	80.1 (28.9)

¹ press time.

² open assembly time.

Number in parenthesis means the standard deviation for the value of each rate of delamination.

접착제(이하 OK/PF)를 이용하여 접착된 무늬목의 평면인장강도는 각각 1.33, 1.03, 0.76 N/mm²이었으며, 통계학적으로 F/P의 몰비가 증가함에 따라 평면인장강도가 감소하였는데(p=0.01), 이러한 결과는 OK/PF 접착제의 분자량 크기에 의해 기인한 것으로 사료되며 따라서 향후 연구에서는 각 접착제의 분자량을 측정하여 평면인장강도와의 상호 관련성을 확인하는 것이 필요할 것으로 생각된다. 즉 OK/PF의 제조에 높은 포름알데히드 함유량을 보유한 PF prepolymer를 사용할 경우 두부비지 가수분해물과의 가교결합 정도가 증가되어 접착제의 분자량이 증가됨에 따라 접착제가 고밀도섬유판 또는 무늬목으로 충분한 침투가 발생하지 않은 결과로 추측되며, 따라서 향후 실험에서는 각 시편에 대한 접착제의 침투 차이를 현미경으로 관찰하여 이러한 추론을 확인하는 연구가 반드시 필요할 것으로 생각된다.

한편 Table 2는 OK/PF로 접착된 무늬목 시편을 KS F 3101의 준내수 시험조건에 노출시킨 후 조사된 접착능을 보여준다. OK/1.8-PF와 OK/2.1-PF로 제조한 시편 간에는 접착능에 차이가 없었으나, OK/2.4-PF로 제조한 시편은 OK/1.8-PF 또는 OK/2.1-PF로 조제한 시편에 비해 통계학적으로 낮은 것으로 나타났는데(p=0.01), 이 결과는 접착제 경화 정도의 차이로 기인된 것으로 생각된다. 즉 2.4-PF로 조제한 OK/PF의 경우 높은 포름알데히드 몰비로 조제되어 가교반응을 통한 경화를 위해 많은 열에너지의 공급이 필요하나, 본 연구에서 사용된 열압온도와 시간은 OK/2.4-PF의 경화를 위해 불충분하여 접착제의 경화 정도가 감소되면서 접착능이

낮아진 것으로 추측된다. 한편 포름알데히드 방산량의 경우, OK/PF에서 F/P의 몰비에 의해 영향을 받았는데(p=0.01), Fig. 3에서 보듯이 OK/1.8-PF로 접착된 무늬목의 방산량이 0.90 mg/ℓ로 가장 높았으며, OK/2.1-PF로 접착된 무늬목의 방산량은 0.76 mg/ℓ로 감소하였으나, OK/2.4-PF로 접착된 무늬목에서 0.85 mg/ℓ로 다시 증가하였다. 포름알데히드 방산량이 가장 낮을 것으로 예상했던 OK/1.8-PF가 가장 높았던 이유는 과도한 열압에 의한 접착층의 열화에 의해 발생된 것으로 추측된다. 그러나 대판으로 사용된 HDF의 보관 방법이나 기간 또는 기타 환경적 요인 등에 따라 포름알데히드 방산량에 영향을 미칠 수 있으므로, 다양한 종류의 대판에 두부비지 접착제를 적용시킨 후 포름알데히드 방산량의 차이에 대한 연구가 필요할 것으로 생각한다. 한편 OK/2.1-PF와 OK/2.4-PF의 포름알데히드 방산량 차이는 경화 정도의 차이에 의해 가교반응에 이용되지 못한 유리 포름알데히드의 방산량의 차이에 의한 것으로 추측된다. 따라서 OK/PF를 이용하여 접착시킨 무늬목에서 포름알데히드 방산량의 감소를 위하여 열압시간을 연장시키는 것이 필요하다.

3.2. 퇴적시간의 영향

본 연구에서 OK/PF로 접착된 무늬목 단판의 접착 성능과 포름알데히드 방산량에 대한 퇴적시간의 영향을 알아보기 위해 접착제를 도포한 후 세 조건(0분, 10분, 20분)의 퇴적시간을 적용시켰다. 평면인장강도의 경우, Table 1과 Fig. 1에서 보듯이 0분,

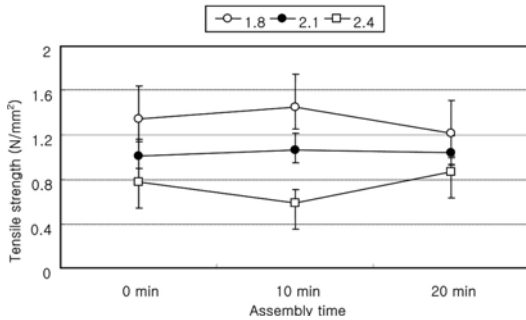


Fig. 1. Interaction effect of F/P mole ratio and assembly time on the dry tensile strength of fancy veneers bonded with okara-based adhesives onto high-density fiberboards.

10분 그리고 20분의 퇴적시간에서 1.06, 1.06 그리고 1.07 N/mm²로 차이가 없었으며(p=0.98), 또한 퇴적시간은 접착능에도 영향을 미치지 않는 것으로 조사되었다(p=0.48). 그러나 포름알데히드 방산량은 퇴적시간에 따라 통계학적인 차이가 발생했는데(p=0.01), 0분의 퇴적시간에서 0.83 mg/l의 포름알데히드가 방산된 반면 10분의 퇴적시간에서 0.91 mg/l로 가장 높은 포름알데히드가 방산되었다. 그러나 퇴적시간을 20분으로 연장시켰을 경우 0.77 mg/l로 가장 낮은 포름알데히드가 방산되는 것으로 조사되었다. 이는 퇴적시간의 연장과 함께 접착제 내의 수분이 증발됨으로써 OK/PF의 경화 정도를 향상시킨 결과에서 기인한 것으로 생각되며, 10분의 퇴적시간을 적용시킨 시편보다 퇴적시간 없이 제조한 시편에서 적은 포름알데히드가 방산되는 이유는 Yang *et al.* (2006)의 연구 결과에서 언급한 바와 같이 접착제의 유동성이 높아 열압과정 중에 접착제가 고밀도 섬유판 또는 무늬목에 과침투하여 접착층에 존재하는 접착제 양이 감소하여 발생한 것으로 추측된다. 추후 이 추론을 확인하기 위하여 각 퇴적시간 별 시편의 현미경적 관찰이 필요할 것으로 생각된다.

3.3. 열압시간의 영향

열압시간에 따른 평면인장강도를 비교하면, 90초

간 열압한 시편에서 평균적으로 1.12 N/mm²로 조사되어 120초 간 열압시켜 조제한 무늬목의 1.01 N/mm²에 비해 높은 것으로 조사되었다(p=0.01). 이 결과는 과도한 열압에 따른 무늬목의 열화현상으로 기인된 것으로 생각된다. 그러나 접착능의 경우 반대의 결과가 나타났는데(p=0.01), 대두박 접착제로 제조한 플레이크보드의 접착능과 치수안정성이 열압시간의 연장과 함께 향상되었다는 Yang *et al.* (2005)의 연구 결과에서 지적하였듯이 열압시간의 연장과 함께 OK/PF의 경화 정도가 향상된 결과에서 기인된 것으로 생각된다. 한편 포름알데히드 방산량은 열압시간에 의해 영향을 받지 않았는데(p=0.28), 상기 결과를 토대로 OK/PF의 상용화를 위한 건조 및 접착능의 향상을 위하여 다양한 열압시간 및 온도의 적용을 통한 OK/PF의 최적 경화조건을 찾는 것이 필요할 것으로 생각된다.

3.4. 각 인자간의 상호영향

평면인장강도에 대한 각 인자간의 상호작용을 분석한 결과, PF 몰비와 열압시간(p=0.70), 그리고 퇴적시간과 열압시간(p=0.17)간에 평면인장강도에 대한 상호 작용은 없었으나, 각 PF 몰비에서 퇴적시간의 연장에 따른 평면인장강도는 상호작용이 있는 것으로 나타났다(p=0.01). 즉, Fig. 1에서 보는 바와 같이 퇴적시간을 0분에서 10분으로 연장시켰을 때, OK/1.8-PF로 접착시킨 무늬목의 평면인장강도는 증가하였으나, 그 이상의 연장은 오히려 강도를 감소시켰다. 반대로 OK/2.4-PF로 접착된 무늬목의 평면인장강도는 퇴적시간을 10분으로 연장시킴에 따라 감소하였으나, 20분의 퇴적시간에서는 증가하였는데, 이는 퇴적시간 연장에 따른 두부비지 접착제의 유동성 변화로부터 비롯되었을 것으로 생각된다. 다시 말하면, OK/1.8-PF에서 퇴적시간을 10분으로 연장시켰을 때 접착제 내의 수분이 증발됨에 따라 열압시 접착제의 유동성이 감소하여 고밀도 섬유판 또는 무늬목의 내부로 접착제의 과침투를 억제시킨 결과로 생각되며, OK/1.8-PF의 20분의 퇴적시간과 OK/2.4-PF에서 10분으로 퇴적시간을 연장하였을 때 나타난 평면인장강도의 감소는 접착제의 유동

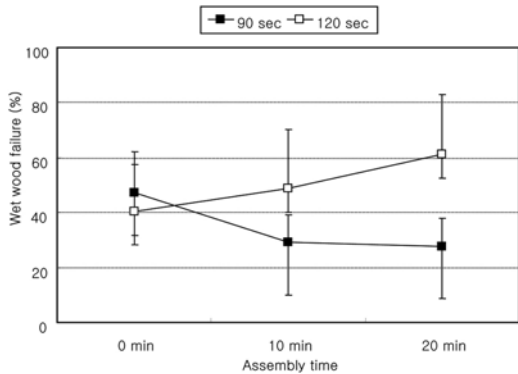


Fig. 2. Interaction effect of press time and assembly time on the rate of delamination of fancy veneers bonded with okara-based adhesives onto high-density fiberboards.

성이 저하됨에 따라 접착제의 적절한 침투가 발생하지 않은 결과로부터 기인한 것으로 추측된다. 한편 OK/2.4-PF에서 10분에서 20분으로 퇴적시간을 연장하였을 경우 평면인장강도는 향상되었는데, 이 결과에 대한 확실한 원인을 규명하기 위해 두부비지 접착제가 무늬목 및 고밀도 섬유판으로 침투하는 정도를 현미경으로 확인하는 것이 필요할 것으로 생각된다.

OK/PF의 접착능에 대한 각 인자 간의 상호영향을 보면, PF의 몰비와 퇴적시간($p=0.10$) 그리고 PF의 몰비와 열압시간($p=0.86$) 간에는 상호영향이 없었으나, 퇴적시간과 열압시간 간에는 접착능에 대해 상호영향을 있는 것으로 조사되었다($p=0.01$). 즉 90초 간 열압시켜 접착시킨 무늬목 시편의 접착능은 퇴적시간의 적용과 함께 크게 감소하였으나, 120초 간의 열압으로 접착된 무늬목의 접착능은 퇴적시간의 연장과 함께 증가하였는데 (Fig. 2), 이 결과는 OK/PF의 경화 정도가 열압시간 및 퇴적시간의 연장과 함께 향상되어 접착능이 증가한 것으로 생각된다. 한편, 대두박 접착제를 합판 제조에 적용시킨 Yang *et al.* (2006)의 연구에서도 퇴적시간의 연장이 접착능을 향상시켰다고 보고하였는데, 이 연구들의 결과를 종합하면 고품분 함량이 낮은 대두계 접착제 또는 OK/PF의 접착능 향상을 위해 퇴적시간 또는

열압시간을 연장시키거나 또는 접착제 자체의 고품분 함량을 증가시키는 것이 필요할 것으로 생각된다.

포름알데히드 방산량의 경우 본 연구에서 조사된 모든 인자간에 상호영향이 있는 것으로 나타났다 (Table 1). 먼저 일정한 F/P의 몰비에서 퇴적시간에 따른 포름알데히드 방산량을 보면 OK/PF-1.8과 OK/PF-2.1를 적용시킨 무늬목에서 10분의 퇴적시간에서 가장 많은 포름알데히드를 방산하였으나, OK/PF-2.4로 접착시킨 무늬목 시편에서는 20분의 퇴적시간에서 가장 높았는데 (Fig. 3), 이 결과로부터 F/P의 몰비가 높을수록 접착제의 완전경화를 위해 퇴적시간의 연장이 필요할 것으로 생각된다. 한편, Fig. 2에서 보는 바와 같이 OK/1.8-PF로 접착된 무늬목의 포름알데히드 방산량은 열압시간의 연장과 함께 증가하였는데 이 결과는 열압시간과 포름알데히드 방산량 사이에 관계에서 언급했듯이 과도한 열압에 따른 접착층의 열화에 의해 기인한 것으로 추측된다. 또한 열압시간 연장에 따른 OK/2.1-PF로 조제된 무늬목의 포름알데히드 방산량의 감소는 열압시간의 연장과 함께 접착제의 경화정도가 향상된 결과라 생각되며, OK/2.4-PF를 적용시킨 무늬목의 포름알데히드 방산량은 열압시간에 대해 영향을 받지 않았는데 이 결과는 F/P의 몰비가 높을 경우 그 접착제의 경화를 위해 긴 열압시간이 필요하며 본 연구에서 조사된 90~120초의 열압시간 내에서는 OK/PF-2.4의 경화를 촉진시키기에 충분치 않아 나타난 결과라 생각된다.

퇴적시간별 열압시간에 따른 포름알데히드 방산량의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 예를 들면, 포름알데히드 방산량은 0분 및 10분의 퇴적시간에서는 열압시간의 연장과 함께 감소하였는데, 이는 OK/PF가 0분 또는 10분의 퇴적시간을 통해 적정 유동성을 보유함으로써 열압시간의 연장과 함께 경화 정도가 향상되어 얻어진 결과로 추측된다. 20분의 퇴적시간에서 포름알데히드 방산량은 열압시간의 연장과 함께 증가하였으며 0분 및 10분의 퇴적시간에 비교하면 낮은 것으로 조사되었는데 이 결과는 OK/PF가 20분의 퇴적시간동안 접착제 내의 많은 수분이 증발되어 유동성이 저하됨으로써 접착제의 경화가 지연

두부비지 가수분해물과 페놀수지로 조제한 마루판 화장용 접착제의 접착성능

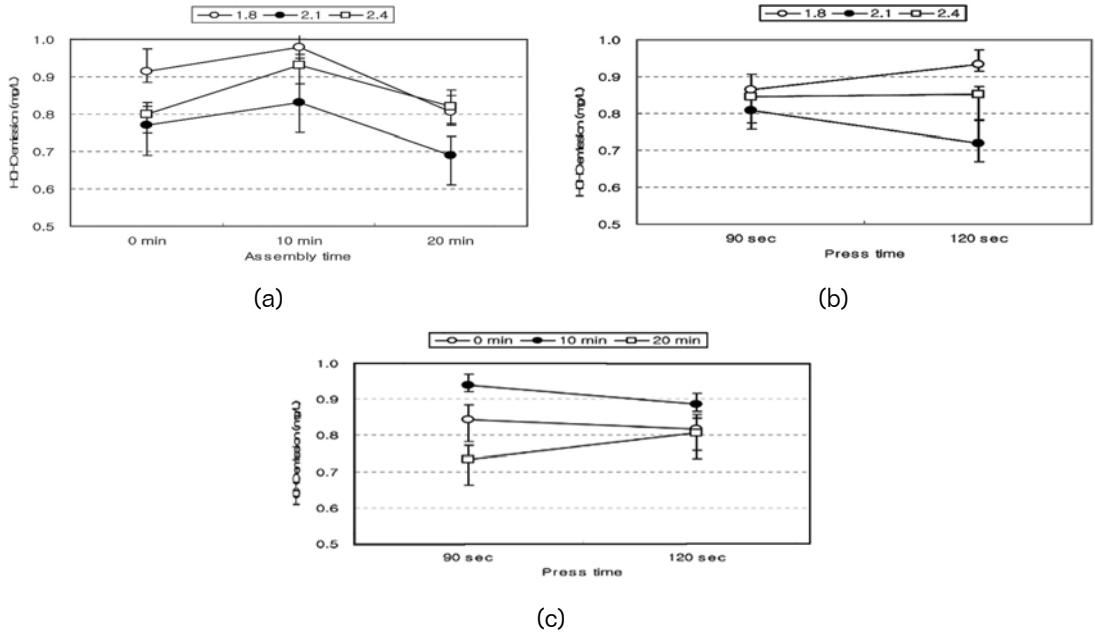


Fig. 3. Interaction effects of F/P mole ratio and assembly time (a), F/P mole ratio and press time (b) and assembly time and press time (c) on the formaldehyde emission of fancy veneers bonded with okara-based adhesives onto high-density fiberboards.

되어 포름알데히드 방산량이 증가한 것으로 추측된다. 따라서 퇴적시간, 열압시간, 포름알데히드 방산량 상호간에는 밀접한 상관성이 있었으나 보다 더 세밀한 시험이 필요한 것으로 판단된다.

4. 결 론

두부비지 접착제를 이용하여 고밀도 섬유판에 참나무 무늬목을 접착시킨 목질마루판의 평면 인장강도는 KS F 3126에서 지정한 최소값인 0.4 N/mm²를 상회하였다. 또한 그 보드의 평면인장강도는 F/P 몰비와 열압시간이 증가할수록 감소하였으나, 퇴적시간에 의해서는 영향을 받지 않았다. 준내수 조건에서 노출시킨 목질마루판의 접착능은 2.4의 F/P 몰비와 90초의 열압시간에서 가장 낮았으며 퇴적시간별 차이는 없는 것으로 조사되었다. 두부비지 접착제로 제조된 모든 목질마루판의 포름알데히드 방산량은 OK/2.1-PF와 20분의 퇴적시간이 적용된 보드에서

가장 낮은 것으로 나타났다. 상기 결과를 종합하면 목질마루판 제조를 위한 본 연구상 두부비지 접착제의 최적 제조 및 적용조건으로는 2.4-PF, 20분의 퇴적시간, 그리고 120초 이상의 열압시간이 필요할 것이라는 결론을 얻었다. 한편 두부비지 접착제로 제조한 목질마루판의 접착성능과 포름알데히드 방산량은 KS 규격에서 요구하는 E1 수준의 최소치를 모두 상회하였으나, 이 접착제의 상용화를 위해 접착능의 향상과 포름알데히드 방산량의 저감을 위한 연구가 필요할 것으로 생각되며, 또한 목질마루판의 제조 공정상 열압시간의 단축을 위한 접착제의 고형분 함량 향상 및 점도 저하를 위한 연구, 그리고 이렇게 조제된 두부비지 접착제의 접착성능과 목질 재료의 침투 정도 간의 관계를 확인하는 현미경적 관찰이 필요할 것으로 생각한다.

사 사

본 연구는 농림부 농림기술개발사업의 지원에 의해 수행되었습니다. 한편 접착제의 주 원료로 사용된 두부비지와 고밀도섬유판을 무상으로 공급하여 주신 (주) CJ 식품의 권순희 상무님과 (주) 한솔 홈테크의 황재민 차장에게 감사를 드립니다. 또한 두부비지를 접착제 원료로 사용할 수 있도록 준비과정에서 큰 도움을 준 정한섭, 홍창영 학생에게도 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. Jong, L. 2006. Effect of soy protein concentrate in elastomer composites. *Composites: Part A* 37: 438~446.
2. Lambuth, A. L. 1989. Adhesives from renewable resources; Historical perspective and wood industry needs. *In Adhesives from Renewable Resources*, ACS Symposium Series 385:1~10 American Chemical Society, WA. DC.
3. Lambuth, A. L. 1994. Protein Adhesives for Wood. *In Handbook of Adhesive technology*. pp. 259~281.
4. SAS Institute. 2002. SAS/STAT User's guide. Cary, N.C.
5. Sun, X. and K. Bian. 1999. Shear strength and water resistance of modified soy protein adhesives. *JAOCS* 76(8): 977~980.
6. Yang, I., M. L. Kuo, and D. J. Myers. 2005. Physical properties of hybrid poplar flakeboard bonded with alkaline phenolic soy adhesives. *J. of the Wood Science and Technology* 33(5): 66~75.
7. Yang I., M. L. Kuo, D. J. Myers, and A. Pu. 2006. Protein-based wood adhesive resins for wood panels. *J. of Wood Science* 52(6): 503~508.
8. Yang, I., M. L. Kuo, and D. J. Myers. 2006. Southern pine plywood adhesive glue bond quality bonded with soybean-based phenolic adhesives. *JAOCS* 83(3): 231~237.
9. 한국산업규격. 2005. 건축내장재의 폼알데히드 방산량 측정 - 제4부 테시케이터법. KS M 1998-4.
10. 한국산업규격. 2006. 보통합판. KS F 3101.
11. 한국산업규격. 2006. 치장목질 마루판. KS F 3126.