

열가소성수지 필름의 적층방법에 따른 합판의 접착성능¹

강 은 창^{2,†} · 이 상 민² · 박 종 영³

Adhesion Performance of Plywoods Prepared with Different Layering Methods of Thermoplastic Resin Films¹

Eunchang Kang^{2,†} · Sang-Min Lee² · Jong-Young Park³

요 약

본 연구에서는 열가소성수지 필름의 사용량과 적층방향에 따른 합판의 접착성능을 알아보고자 하였다. 사용된 표판과 이판은 열대산 활엽수 잡목(Mixed light hardwood) 단판과 심판은 라디에타파인(*Pinus radiata D. Don*) 단판을 사용하였다. 필름은 폴리프로필렌(Polypropylene, PP) 필름과 폴리에틸렌(Polyethylene, PE) 필름을 사용하였다. 먼저 PP와 PE 필름의 특성을 알아보기 위하여 열분석과 인장강도를 조사하였다. 그 결과, PP 필름과 PE 필름의 용융온도는 163.4℃, 109.7℃였으며, 결정화온도는 98.9℃, 93.6℃로 나타났다. 각 필름별 인장강도와 신장률은 길이방향보다 폭방향에 더 큰 것으로 나타났다. 필름의 특성을 고려하여, 필름 사용량에 대한 시험은 단판 상에 목표두께별로 필름을 적층하는 방법으로 실시하였다. 그리고 필름의 적층방향에 따른 시험은 단판의 목리방향을 기준으로 필름의 길이방향과 폭방향을 구분하여 각각 적층한 후 합판을 제조하였다. 각각 제조된 합판으로 접착성능을 시험한 결과, 준내수 인장전단 접착력은 PP 필름 두께가 0.05 mm 이상, PE 필름은 0.10 mm 이상일 때 KS기준을 만족하였다. 내수 인장전단 접착력은 PP 필름 두께가 0.20 mm일 때 KS기준을 상회하였다. 필름의 적층방향별 접착성능 시험에서, 단판의 목리방향과 필름의 폭방향으로 적층했던 합판은 필름의 길이방향으로 적층했던 합판보다 더 우수한 결과를 보였다. 현미경으로 관찰된 합판의 표면과 접착층에서 열가소성수지가 단판 내부와 할렐부위로 침투하여 기계적 결합을 이룬 것으로 확인되었다.

ABSTRACT

This study was conducted to determine the adhesive performances of plywoods affected by layering direction and the amounts of thermoplastic films. The face and back layers of veneer were hardwood species (Mixed light hardwood) and core layer veneer was radiata pine (*Pinus radiata D. Don*). Thermoplastic film used as adhesive were polypropylene

¹ Date Received June 26, 2017, Date Accepted July 31, 2017

² 국립산림과학원 임산공학부. Department of Forest Products, National Institute of Forest Sciences, Seoul 02455, Republic of Korea

³ 한국임업진흥원. Korea Forestry Promotion Institute, Seoul 07570, Republic of Korea

[†] 교신저자(Corresponding author): 강은창(E-mail: ec0903@hanmail.net)

(PP) film and polyethylene (PE) film. Thermal analysis and tensile strength were investigated on each films. As a result, the melting temperature of PP and PE films were 163.4°C and 109.7°C, respectively, and the crystallization temperature were 98.9°C and 93.6°C, respectively. Tensile strength and elongation of each films appeared higher on the width direction than length direction. Considering the characteristics of the thermoplastic films, the test for the amount of film used was carried out by layering film to the target thickness on veneer. The effecting of layering direction of film on plywood manufacturing was conducted by laminating in the length and width directions of the film according to the grain direction of veneer. Tensile-shear strength of plywood in wet condition was satisfied with the quality standard (0.7 MPa) of KS F 3101 when the film was used over 0.05 mm of PP film and over 0.10 mm of PE film. Tensile-shear strength of plywood after cyclic boiling exceeded the KS standard when PP film was used 0.20 mm thickness. Furthermore, higher bonding strength was observed on a plywood made with width direction of film according to grain direction of veneer than that of length direction of film. Based on microscopic analysis of the surface and bonding line of plywood, interlocking between veneers by penetration of a thermoplastic film into inner and cracks were observed.

Keywords : thermoplastic film, layering, target thickness, direction, adhesive performance, plywood

1. 서 론

합판 제조에 주로 사용되고 있는 수지는 열경화성 수지로, 이 중 아미노계 수지가 가장 대표적이다. 그러나 아미노계 수지가 가수분해되면서 방출되는 유리폼알데하이드는 새집증후군 등의 문제를 발생시킨다고 알려져 있다. 이에 아미노계 수지의 저물비화, 생산조건 개선, 포착제 적용 등의 연구를 통하여 현재 많은 기술축적과 함께 해결방안을 도출시켜 적용하고 있다. 그러나 친환경 합판제품의 요구는 지속적으로 증가할 것이라 예상되며, 이에 따라 천연물계와 비폼알데하이드계 수지를 적용한 합판 연구가 진행되어 오고 있으며(Pizzi와 Walton, 1992; Wang 등, 2011; Zhang 등, 2013; Chen 등, 2013), 이와 함께 열가소성수지를 이용한 연구도 다양하게 수행되고 있다.

합판 제조용 접착제로써 고밀도 폴리에틸렌(High-density polyethylene, HDPE) 필름을 이용하여, 함수율 19.6%의 단판에 요소·멜라민·폼알데하이드 수지 접착제 또는 페놀·폼알데하이드 수지 접착제 등을 적정 도포량의 약 50% 정도의 양을 도포하고 1분간 열압하여 합판을 제조한 후 접착력을 측정하는 결과, KS규격의 기준(0.7 MPa)을 만족시켰다고 보고되어 있다(Han과 Lee, 1997). 그리고 저밀도 폴리에틸렌(Low-density

polyethylene, LDPE)과 포플러 단판을 이용하여 열압 조건과 접착성능과의 관계를 연구한 결과, 열압조건보다는 LDPE의 사용량이 접착성능에 영향을 준다고 보고되어 있다(Chang 등, 2009). 또 Polypropylene (PP) 필름으로 제조된 합판이 Polyethylene (PE) 필름과 요소·폼알데하이드 수지 접착제로 접착한 합판보다 물리적, 기계적 성질이 우수했다는 보고도 있었다(Song 등, 2017).

이와 함께 극성인 목재와 비극성인 플라스틱의 결합력을 높이기 위해서는 결합제가 필요하며, 결합제로 Maleic anhydride polypropylene (MAPP)을 목재에 처리하였을 경우에는 결합제의 산무수물과 목재의 수산기 간에 에스테르결합이 형성되어 물리적 성질이 향상되며, 그로 인하여 접착력이 개선되는 효과를 얻을 수 있다는 연구결과들도 있었다(Han과 Shiraishi, 1991; Yoon과 Park, 1998). 이와 유사하게 Maleic anhydride (MAH)와 HDPE를 반응시켜 PE-cg-MAH 분말을 제조하고, Masson pine 단판에 파라핀 처리 후 PE-cg-MAH 분말을 도포하여 적정 열압조건과 그에 따른 합판 물성을 조사한 결과, PE-cg-MAH 분말 3%를 단판에 처리한 후 열압온도 160~165°C에서 5분간 열압 했을 때, Type I 정도의 접착성능을 보였다고 보고되어 있다(Liang 등, 2011; Liang 등, 2012).

Table 1. Species, Thickness, and Moisture Content of Veneers

Species	Thickness of veneer (mm)	MC (%)
MLH ^a	1.0	6.5
Radiata pine	2.0	6.2

^a Mixed Light Hardwood

이와 같이 열가소성수지 필름을 이용하여 합판용 접착제로서 열경화성수지를 대체하기 위한 연구가 이루어져 왔다. 이는 열가소성수지를 이용하여 필름 형태로 제조할 수 있으며, 그에 따른 생산성, 작업성 등을 고려할 때 합판에 적용하기 용이하다는 장점이 있어 가능한 연구로 판단된다. 그러나 필름형태로 생산된 열가소성수지의 특성에 관한 부분도 고려해야 할 점이다. 열가소성수지 필름의 제조방법으로는 캘린더법, 용액제막법, 용융제막법 등이 있으며, 이 중 일반적인 상용 필름의 제조방법은 용융제막법의 하나인 인플레이션법을 사용하고 있다. 인플레이션법은 열가소성수지를 용융시켜 원통형으로 압출한 후 공기를 주입해 연신시켜 필름을 만든다고 한다(Ito, 1991; Jeong, 2009). 이때 공기주입량과 생산속도에 따라 필름의 좌우 길이방향과 폭방향으로 각각 연신되어, 즉 물리적 변형이 발생하여 필름으로 제조되며, 이때 각 방향별로 필름의 팽창비율이 달라질 수 있다. 필름의 팽창비율이 달라진다는 것은 길이방향 부위와 폭방향 부위에 있어 필름의 강도 및 신장성이 다르게 나타날 수 있다는 것을 의미한다. 즉, 필름형태의 열가소성수지는 제조과정 중 물리적인 변화로 그에 따른 물성이 다르게 나타날 수 있다는 것이다. Tabatabaei 등(2009)은 연신방향에 따라 인장강도가 다르게 나타나며, 열가소성수지의 종류에 따라라도 그 결과는 다르다고 하였다. 따라서 이러한 특성을 가진 필름을 단판 접착에 이용할 경우, 필름의 길이방향과 폭방향에 따라 접착성능이 상이할 가능성이 있다고 판단된다.

이에 본 연구에서는 필름형태의 열가소성수지를 이용하여, 그 사용량과 필름의 폭방향과 길이방향에 따른 합판의 접착성능을 알아보고자 하였다. 이를 위하여 먼저 준비된 PP와 PE 필름의 열적, 물리적 특

성을 조사하였다. 그리고 각 필름의 특성을 고려하여, 각 단판 상에 준비된 각각의 필름을 목표두께별로 적층하여 필름 사용량에 따른 접착성능을 조사해 보고, 또 필름의 적층방향에 따른 접착성능 변화를 비교해 보고자 하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 공시재료

2.1.1. 공시단판

합판을 구성하는 단판은 A사로부터 분양받아 사용하였다. 분양받은 단판은 2종으로, 표판과 이판용인 열대산 활엽수 잡목(Mixed light hardwood, MLH) 단판과 심판용인 라디에타파인(*Pinus Radiata D. Don*) 단판이었다. 각 단판은 건조처리 된 것으로, 함수율은 표판과 이판이 6.5%였으며, 심판은 6.2%로 측정되었다. 단판두께는 표판과 이판이 1.0 mm, 심판이 2.0 mm였다(Table 1). 준비된 각 단판은 230 mm × 230 mm로 재단한 후 합판 제조에 사용하였다(Table 2).

2.1.2. 열가소성수지 필름

열가소성수지 필름은 상용화된 PP와 PE 필름을 구매하여 사용하였다. 필름 두께는 PP 필름이 0.060 ± 0.005 mm, PE 필름이 0.040 ± 0.010 mm로 측정되었다. PP 필름과 PE 필름의 밀도는 필름의 면적과 두께로 체적을 계산하고, 필름의 실제 무게를 측정하여 체적으로 나누어 산출하였다. 이와 같이 산출된 필름의 밀도는 Table 3에 나타낸 바와 같다. 밀도 측정 시, 각 필름의 면적은 단판의 크기와 동일하게 230 mm × 230 mm로 재단하여 측정하였다.

Table 2. Assembly of Veneers in Plywood Manufacturing

Composition	Species of veneer	Thickness of veneer (mm)	Ratio of thickness (%)
Face	MLH ^a	1.0	22
Core	Radiata pine	2.0	56
Back	MLH	1.0	22
Thickness of plywood		4.6	100

^a Mixed Light Hardwood

Table 3. Thickness and Density of Thermoplastic Films

Film	Thickness (mm)	Density (g/cm ³)	
		Range	Ave.
PP	0.060 ± 0.005	0.82~0.93	0.88
PE	0.04 ± 0.01	0.80~0.91	0.84

Table 4. Composition of Adhesive Mixture

Formulation	Composition (parts)	Amount (g)	Ratio (%)
UF (Solid content 50%, E1 grade)	100.0	60.0	53.2
MUF (Solid content 50%, E1 grade)		40.0	35.6
Wheat flour (Solid content 98%, powder)	10.0	10.0	8.9
NH ₄ Cl (Solid content 98%, powder)	2.5	2.5	2.2
UF + MUF Glue		112.5	100.0

2.1.3. 요소 · 폼알데하이드 수지-멜라민 · 요소
· 폼알데하이드 수지 혼용접착제

접착성능을 비교하기 위하여 E1 등급의 상용수지인 요소 · 폼알데하이드(UF) 수지 접착제와 멜라민 · 요소 · 폼알데하이드(MUF) 수지 접착제를 B사로부터 분양받아 사용하였다. 각 접착제는 합판 생산 공장에서 적용되고 있는 비율에 따라 UF 수지 접착제와 MUF 수지 접착제를 각각 60 : 40의 비율로 혼합하여 5분간 교반하였다. 혼용접착제(UF + MUF)는 고형분이 약 50.0%, 점도는 120 cP, pH는 8.3이었다. 준비된 UF + MUF 100부에 증량제(소맥분)를 혼용접착제 대비 10부를 투입한 후 5분간 교반하였다. 그리고 분말형 경화제(NH₄Cl)를 혼용접착제 대비 2.5부를 첨가한 후 10분간 교반하여 합판 제조에 사용하였다(Table 4).

2.2. 실험방법

2.2.1. PP와 PE 필름의 물성

2.2.1.1. 열분석

PP와 PE 필름의 용융온도와 결정화온도를 알아보고자 열분석을 실시하였다. 열분석은 Differential scanning calorimeter (DSC)로 하였으며, DSC는 TA Instrument사의 Q-10 모델이었다. 먼저 알루미늄 펜에 각 필름으로부터 시료 1.3 mg씩을 채취하여 각각 투입한 후 밀봉하여 시험을 하였다. 열분석의 온도 범위는 30~200℃로 하였으며, 승온과 감온속도는 10℃/min로 실시하였다.

2.2.1.2. 인장강도 및 연신율

필름 가공 중, 필름의 길이방향과 폭방향을 기준으로 각 방향의 연신정도에 따라 인장강도는 상이할

Table 5. Spread Volume of Thermoplastic Films depends on Target Thickness

Classification		Target thickness of layered films (mm)		
		0.05	0.10	0.20
Spread volume (g / (23 × 23) cm ²)	PP film	2.83	5.70	11.35
	PE film	3.37	9.34	19.20

것이라 판단되었다. 이에 필름형태로 가공된 각 열가소성수지의 인장강도를 알아보고자 하였다. 인장강도 시험은 구매한 각 필름을 길이방향과 폭방향으로 구분하여 인장강도를 측정하였다. 시험편의 크기는 방향별로 길이 200 mm, 폭 10 mm로 각각 재단하여 사용하였다. 재단된 각 시험편은 만능재료시험기(Tinius olsen, H-50K)를 이용하여 인장강도와 연신율을 측정하였다. 이때 측정조건은 최대하중 500 N, 시험편 길이 50 mm, 하중속도 10 mm/min로 실시하였다.

2.2.2. 접착성능 시험용 합판 제조

열가소성수지의 특성에 따른 필름의 적정 사용량 및 적층 방향별 접착성능을 알아보기 위하여, 먼저 각 열가소성수지 필름의 목표 두께에 따라 합판을 제조하고, 또 단판의 목리방향을 기준으로 필름의 길이방향과 폭방향으로 각각 적층한 합판을 제조하여 접착성능을 측정해 보고자 하였다. 이를 위하여 본 연구에서는 기존의 합판 제조 공정과는 다른 공정을 거쳤다. Fig. 1에 나타낸 바와 같이 열경화성수지를 이용하는 기존의 공정은 접착제 도포공정, 냉압공정, 열압공정 순으로 진행되나, 열가소성수지의 경우에는 단판 및 필름 적층공정, 열압공정, 냉압공정 순으로 진행하였다. 이와 같은 공정 진행은 열가소성수지의 특성을 고려한 것으로 열압공정과 냉압공정의 순서를 다르게 한 것이 큰 차이점이라 하겠다.

이상의 제조공정을 기준으로 준비된 단판과 열가소성수지 필름을 이용하여 3매 합판을 제조하였다. 먼저 필름의 적정 사용량을 알아보기 위하여 단판 및 필름의 적층공정 중 필름의 목표두께를 달리하여 각 단판 상에 필름을 적층하였다. 즉, 이판 위에 각 필름을 목표두께로 적층한 후, 심판을 이판의 목리방향과 직교로 적층하였다. 그리고 심판 위에 동일한 목표두

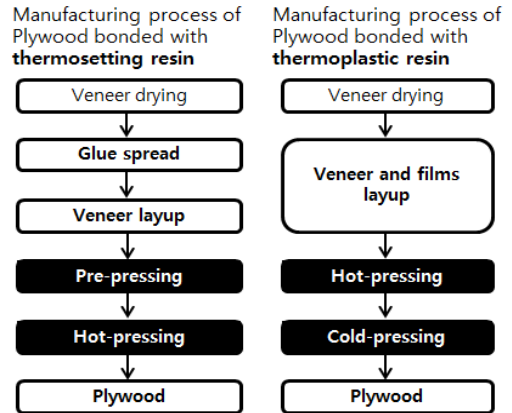


Fig. 1. Plywood manufacturing processes by different resins.

께의 필름을 적층한 후 표판을 이판의 목리방향과 동일하게 하였다. 이때 필름의 방향에 대해서는 고려하지 않았다. 필름의 목표두께는 0.05 mm, 0.10 mm, 0.20 mm로 설정하였고, 목표두께에 따른 열가소성수지 필름별 중량은 Table 5에 나타낸 바와 같다.

필름의 적층 방향별 접착성능 시험에서, 필름의 적층방법은 각 단판의 목리방향을 기준으로 각 필름의 길이방향과 폭방향으로 구분하여 적용하였다. Fig. 2에 나타낸 바와 같이 이판용 단판 위에 필름을 이판의 목리방향을 기준으로 필름의 길이방향과 폭방향을 조합하여 각각 적층하였다. 그리고 심판을 이판용 단판의 목리방향과 직교하도록 적층하고, 다시 필름을 심판의 목리방향을 반영하여 각 방향별로 적층한 후 표판을 이판의 목리방향과 동일하게 적층하여 구성하였다. 이때 적용된 필름의 두께는 앞서 실시한 목표두께별 시험 결과를 반영하여 적층하였다.

준비된 각 시험편은 열압과 냉압공정을 거쳐 합판으로 제조되었다. 열압 시의 온도는 열분석을 통하여

Table 6. Press Conditions of Plywood Manufacturing by Resin Types

Resin Type	Prepress			Hot-press			Cold-press		
	Temp. (°C)	Time (min)	Pressure (kgf/cm ²)	Temp. (°C)	Time (min)	Pressure (kgf/cm ²)	Temp. (°C)	Time (min)	Pressure (kgf/cm ²)
Thermo-plastic	PP film	-	-	180	4	10	RT ^a	5	10
	PE film	-	-	140	4	10	RT	5	10
Thermo-setting	UF + MUF	RT	30	120	2.5	10	-	-	-

^a RT: Room temperature

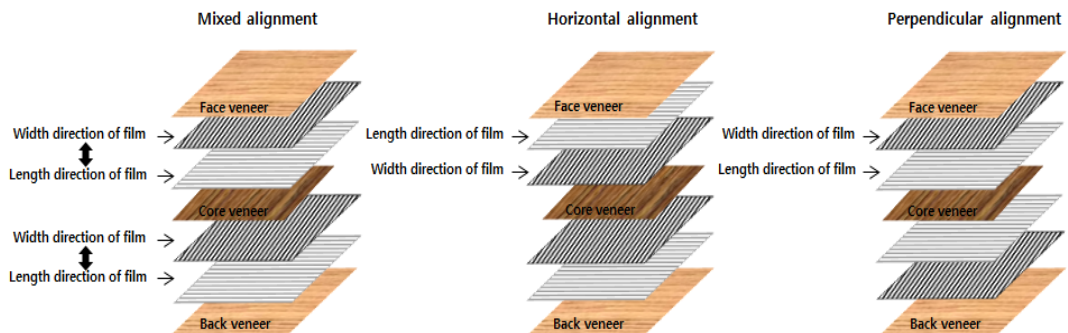


Fig. 2. Assembly of veneers and thermoplastic film.

열은 용융 종료온도(Off-set temperature)와 각 단판의 열전도도를 고려하여 각 필름별로 다르게 설정하였다(Table 6). 열압시간은 60 s/mm로 동일하게 처리하였으며, 압력은 10 kgf/cm²를 기준으로 하였다. 냉압공정에서 온도는 실온이었으며, 압력 10 kgf/cm²로 5분간 실시하였다.

대조군으로 UF + MUF로 접착한 합판은 앞서 언급한 규격과 동일하였으며, 접착제 도포량은 중판의 편면기준으로 150 g/m²을 도포하였다. 접착제 도포 후, 냉압은 실온에서 압력 10 kgf/cm²로 30분간 실시하였다. 열압은 120°C에서 10 kgf/cm²의 압력으로 37.5 s/mm로 처리하여 합판을 제조하였다.

2.2.3. 접착성능 시험

제조된 합판의 접착성능을 평가하기 위하여 Fig. 3에 나타난 것처럼, KS F 3101 (2016) 보통합판 7.2. 접착력 시험 중, 표리판의 두께를 고려하여 B형 시험편 제조방법으로 잘라서 준내수 인장 전단 접착력

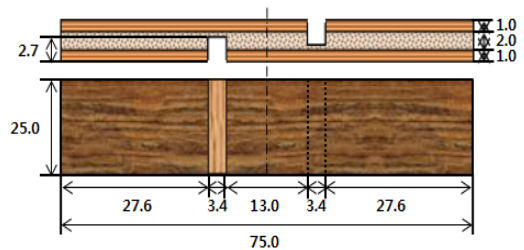


Fig. 3. B-type test specimen for tensile-shear strength by KS F 3101.

시험과 내수 인장 전단 접착력 시험을 실시하였다.

2.2.4. 합판 표면 및 접착층 관찰

제조된 합판의 표면 및 내부부의 열가소성수지의 침투현상을 살펴보고자 광학현미경(ZEISS, AXIO Zoom. V16)으로 10배의 배율과 20배의 배율로 합판 표면을 확인하였고, 내부 접착층을 확인하기 위하여 합판의 측면을 절단하고 마이크로톰으로 접착층을

Table 7. Thermal Properties of PP Film and PE Film

Film	Melting					Crystallization					ΔT^a ($^{\circ}\text{C}$)
	Onset temp. ($^{\circ}\text{C}$)	T_m ($^{\circ}\text{C}$)	ΔT_m ($^{\circ}\text{C}$)	ΔH_f (J/g)	$\Delta H/\text{time}$ ($\Delta H/\text{s}$)	Onset temp. ($^{\circ}\text{C}$)	T_c ($^{\circ}\text{C}$)	ΔT_c ($^{\circ}\text{C}$)	ΔH_c (J/g)	$\Delta H/\text{time}$ ($\Delta H/\text{s}$)	
PP	152.5	163.4	16.8	42.1	0.31	106.6	98.9	26.7	59.5	1.68	64.5
PE	98.2	109.7	30.8	51.5	0.24	99.9	93.6	45.6	84.8	1.55	16.1

^a $\Delta T = T_m - T_c$

균일하게 절삭하였다. 절삭된 시험편은 이온증착기를 이용하여 약 100 Å의 두께로 Au를 증착한 후, 시차주사전자현미경(SEM; COXEM, COX I EM-30)을 사용하여 20 kV의 가속전압 하에서 접착층을 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. PP와 PE 필름의 열적 특성

PP와 PE 필름의 DSC 분석결과를 Fig. 4에 나타내었다. PP 필름의 용융 시작온도는 152.5 $^{\circ}\text{C}$, 최고온도(T_m)는 163.4 $^{\circ}\text{C}$, 용융온도 범위(ΔT_m)는 16.8 $^{\circ}\text{C}$, 용융열(ΔH_f)은 42.1 J/g, 용융률($\Delta H_f/\text{time}$)이 0.31 $\Delta H/\text{s}$ 였으며, PE 필름의 용융 시작온도는 98.2 $^{\circ}\text{C}$, T_m 은 109.7 $^{\circ}\text{C}$, ΔT_m 은 30.8 $^{\circ}\text{C}$, ΔH_f 는 51.5 J/g, 시간당 용융률은 0.24 $\Delta H/\text{s}$ 로 나타났다. PE 필름에 비해 PP 필름의 T_m 은 53.7 $^{\circ}\text{C}$ 가 높았고, ΔT_m 과 ΔH_f 는 낮았다. 또 용융률은 PP 필름이 PE 필름보다 약 0.07 $\Delta H/\text{s}$ 이 낮았다. 이상의 결과로 볼 때 PP 필름이 PE 필름 보다는 높은 온도에서 용융이 되지만 완전히 용융되는데 소요되는 시간은 짧은 것으로 나타났다.

결정화온도는 Table 7에 나타낸 바와 같이, PP 필름의 결정화 시작온도가 106.6 $^{\circ}\text{C}$, T_c 가 98.9 $^{\circ}\text{C}$, ΔT_c 는 26.7 $^{\circ}\text{C}$, ΔH_c 가 59.5 J/g로 나타났다. 그리고 PE 필름은 결정화 시작온도가 99.9 $^{\circ}\text{C}$, T_c 가 93.6 $^{\circ}\text{C}$, ΔT_c 는 45.6 $^{\circ}\text{C}$, ΔH_c 가 84.8 J/g으로 측정되었다. 이러한 결과로 볼 때 PP 필름과 PE 필름의 결정화는 용융에 비해 비교적 유사한 온도에서 진행되나, PP 필름의 ΔT_c 가 PE 필름보다 18.9 $^{\circ}\text{C}$ 가 낮고, ΔH_c 가

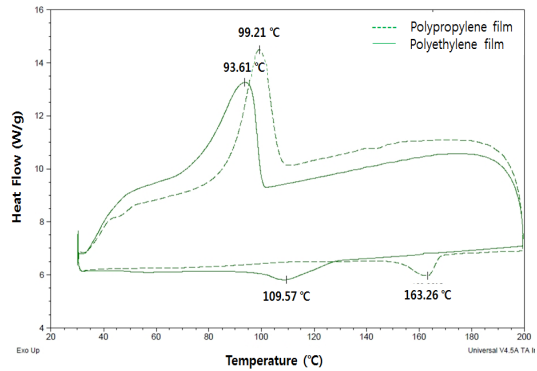


Fig. 4. Differential scanning calorimetric curves of thermoplastic films.

25.3 J/g 낮았으나 결정화율($\Delta H_c/\text{time}$)은 약 0.13 $\Delta H/\text{s}$ 정도 높아 비교적 빨리 결정화되는 수지임을 알 수 있었다.

3.2. PP와 PE 필름의 인장강도 및 연신율

PP 필름과 PE 필름의 폭과 길이 방향별 인장강도와 연신율을 각각 측정하여 Fig. 5에 나타내었다. PP 필름은 폭방향의 인장강도가 길이방향의 인장강도보다 약 3.7% 높게 나타났다. PE 필름의 경우에는 폭방향의 인장강도가 길이방향의 인장강도보다 약 212.5% 높은 결과를 보였다. PP 필름의 연신율은 폭방향이 길이방향보다 약 29.2%, PE 필름의 연신율은 폭방향이 길이방향보다 약 768.3% 높았다(Fig. 6). 그리고 인장강도와 연신율의 상관관계를 조사한 결과, R^2 값이 약 0.9988로 인장강도와 연신율이 유의성을 가지는 것으로 나타났다.

이와 관련하여 Jeong (2009)은 연신과정을 통하여

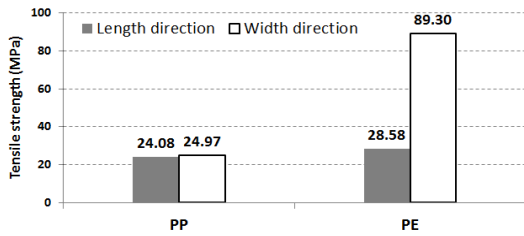


Fig. 5. Tensile strength of thermoplastic films according to direction.

필름으로 가공할 때 선상분자가 배향되어 방향성을 가질 경우 물성이 향상된다고 보고한 바 있다. 또한, 연신을 길이방향으로 할 때 길이방향의 인장강도가 폭방향보다 높게 나타났으며, PP 필름의 인장강도가 PE 필름의 인장강도보다 낮게 나타났다고 보고된 Tabatabaei 등(2009)의 연구결과와 유사한 결과를 보였다. 이러한 결과는 필름이 연신될 때 각 방향별로 팽창비가 서로 다르므로 그에 따른 배향정도의 차에 의해 나타난 결과라 판단된다.

이러한 결과를 바탕으로 팽창비가 다를 경우에는 밀도변화가 서로 다를 것이라고 판단되어 각 필름의 방향별로 밀도를 측정하였다. 그 결과, PP 필름의 폭방향은 0.88 g/cm^3 , 길이방향은 0.82 g/cm^3 로 측정되었다. PE 필름의 폭방향과 길이방향의 밀도는 각각 0.90 g/cm^3 과 0.81 g/cm^3 로 확인되었다. 이 결과로 볼 때, PP 필름이 PE 필름과 비교하여 각 방향별로 비교적 균일하게 연신이 이루어지는 것으로 나타났다.

3.3. PP와 PE 필름의 접착층 두께에 따른 접착성능

PP와 PE 필름의 용융온도와 단판의 열전이온도를 고려하여 PP 필름 접착 합판은 180°C , PE 필름 접착 합판은 140°C 에서 각각 열압하여 필름 두께별로 합판을 제조하였다. 각각 제조된 합판으로 준내수 인장 전단 접착력(이하 준내수 접착력)을 측정하고, PP 필름과 PE 필름 모두에서 적층 필름의 두께가 증가할수록 준내수 접착력도 증가하는 경향을 보였다. 그리고 KS F 3101 보통합판의 접착력 기준

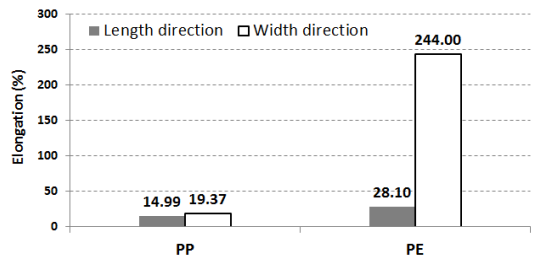


Fig. 6. Elongation of thermoplastic films according to direction.

(0.7 MPa)을 고려할 때, PP 필름으로 제조한 모든 합판의 접착력은 KS기준을 만족하였다. 그러나 PE 필름은 필름두께가 0.10 mm 이상일 때에 KS기준을 상회하였다.

이에 Han과 Lee (1997)는 단판에 HDPE 필름을 $7 \text{ g}/(30.3 \times 30.3) \text{ cm}^2$ (약 76 g/m^2) 사용하여 175°C 에서 5분간 열압 하였을 경우, 준내수 접착력 기준을 만족했다고 하였다. 또 Fang 등(2013)은 HDPE 필름 사용량을 61.6 g/m^2 로 하여 160°C 에서 8분간 열압 하였을 때, GB규격의 준내수 접착력 기준을 만족했다고 보고한 바 있다. 이와 함께 Chang 등(2009)은 LDPE를 이용하여 합판을 제조할 경우에 열압 온도와 시간보다 사용량이 접착성능에 더 영향을 미치며, 340 g/m^2 의 양으로 140°C 에서 3분간 열압 할 경우에 GB 규격의 Type II 조건을 충족한다고 보고하였다. 그리고 Song 등(2009)은 PP 필름을 이용한 합판 제조 조건으로 PP 필름을 150 g/m^2 을 사용하여 180°C 에서 0.9 MPa 의 압력으로 70 초/mm간 열압 하였을 때 준내수 접착성능이 가장 우수하였다고 보고한 바 있다.

따라서 PE 필름의 두께가 0.05 mm 일 때 접착성능이 저하되는 원인은 PE 필름의 사용량(약 64 g/m^2)이 적어, 열압 시에 필름이 용융되어 표판과 이판, 심판에 각각 침투되고, 이때 각 단판의 할렬과 갈림 등의 부위로 수지가 이동하여 다른 필름두께의 접착층과는 다르게 접착층이 균일하지 않아 준내수 접착력이 낮아진 것이라 판단된다(Fig. 7).

내수 인장 전단 접착력(이하 내수 접착력)에서는 PP 필름의 두께가 0.20 mm 일 때만 KS기준을 만족시켰으며, UF + MUF로 접착한 합판보다는 우수한 것

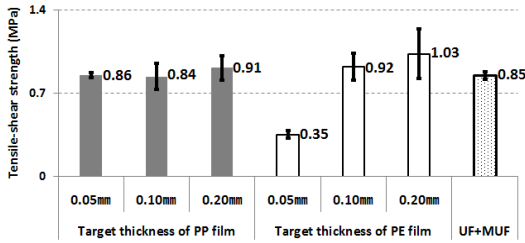


Fig. 7. Wet tensile-shear strength of plywoods bonded with different thermoplastic films depends on target thickness.

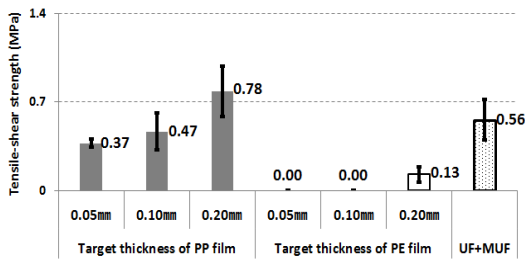


Fig. 8. Cyclic boil tensile-shear strength of plywoods bonded with different thermoplastic films depends on target thickness.

으로 나타났다(Fig. 8). 그리고 PE 필름은 각 두께별 합판 모두에서 KS기준에 미달하였다. 이에 Han과 Lee (1997)는 HDPE 필름을 약 76 g/m²로 하고 175°C, 5분간 열압 하였을 경우에 내수 접착력 기준에 미달했으며, 필름의 사용량을 증가시켰을 때는 KS기준을 만족시켰다고 보고하였다. 그러나 본 연구에서는 필름두께가 0.10 mm와 0.20 mm에서의 내수 접착력의 결과와는 다르게 나타났다. 이는 KS F 3101 보통합판의 내수 인장 전단 접착력 시험방법의 전처리 조건에 따라 처리할 경우, 각 열가소성수지의 열에 의한 열화와 단판의 치수변형 등이 복합적으로 영향을 미쳐 내수 접착성능을 저하시킨 것이라 판단된다.

3.4. 열가소성수지 필름의 적층방향별 접착성능

열가소성수지 필름의 적층 방향별 합판의 접착은 3.3.의 결과를 반영하여 필름두께 0.20 mm를 기준으

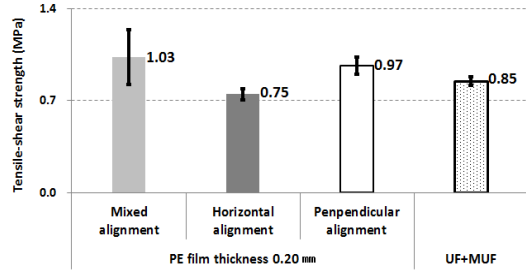


Fig. 9. Wet tensile-shear strength of plywoods bonded with PE films according to direction.

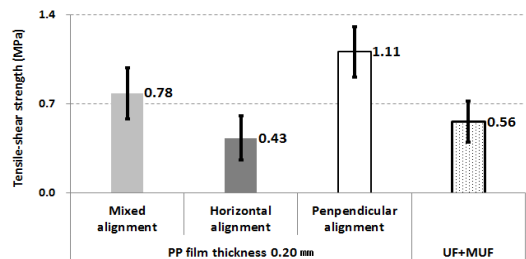








Fig. 10. Cyclic boil tensile-shear strength of plywoods bonded with PP films according to direction.

로 하였다. 접착성능 평가는 각 필름의 접착성능을 고려하여, PE 필름은 준내수 접착력을, PP 필름은 내수 접착력 시험을 실시하였다. 그 결과, PE 필름으로 접착한 합판의 필름 방향별 준내수 접착력은 KS기준을 각각 만족시켰다. 각 방향별로 비교할 때, 폭방향으로 적층한 합판의 준내수 접착력이 길이방향으로 접착한 합판보다 약 28.7% 높은 결과를 보였다. 그리고 길이방향과 폭방향을 혼합 적층하여 접착한 경우에는 준내수 접착력이 1.03 MPa로 가장 우수한 것으로 나타났다(Fig. 9). PP 필름을 이용한 합판의 적층 방향별 내수 접착력은 적층방향을 폭방향으로 접착한 합판의 내수접착력은 1.11 MPa로 길이방향의 접착력보다 약 157.5% 높았으며, 이 또한 UF + MUF로 제조한 합판보다 높은 결과를 보였다(Fig. 10).

이는 앞서 3.2.에서 설명한 것처럼, 길이방향의 필름은 연신작용으로 인장강도, 연신율, 밀도가 낮아진 반면 폭방향의 필름은 인장강도, 연신율, 밀도가 길이방향보다 높았기 때문인 것으로 판단된다. 따라

Table 8. Plywood Samples for Tensile-shear Strength Test

Thickness of film (mm)	Plywood samples	
	PP film	PE film
0.05		
0.10		
0.20		

서 각 방향별 필름이 용융되어 단판의 목리방향을 따라 내부로 침투할 경우, 단판 내부로 침투한 열가소성수지의 양과 각 방향별 필름의 성능에 따라 기계적 결합 성능과 인장에 의한 박리현상이 다르게 나타나고, 그 결과 적정량의 필름을 밀도와 인장강도가 높은 방향으로 적층시킨 후 용융온도에 따라 가열할 경우, 열가소성수지 필름의 방향별 특성과 밀도에 의해 침투량의 차이로 접착성능이 증가하는 것으로 판단된다.

3.5. 합판 표면 및 접착층 관찰

각 열가소성수지 필름으로 접착된 합판의 판면과 접착층을 관찰하였다. 먼저 합판의 판면을 관찰한 결과, Fig. 11에 나타난 바와 같이 각 합판의 표판과 이판에서 열가소성수지가 관찰되었다. 이는 열압 중 용융된 열가소성수지가 표판과 이판의 조직 및 활렬부위로 침투된 후 냉압공정을 통하여 결정화되어 나타난 것이다. 이와 함께 각 합판의 접착층을 관찰한 결과, Table 8에 나타난 바와 같이 0.20 mm의 PE 필름을 사용하여 제조한 합판의 접착시험용 시험편 측면

부에서 필름이 침투되어 나타난 심판 갈림이 확인되었다. 이러한 현상은 필름두께, 즉 사용량이 19.2 g/(23 × 23) cm²로 단위면적을 m²로 환산했을 때 약 392 g/m²로 일반 수지의 도포량 보다 과량에 해당한다. 따라서 과량의 열가소성수지가 열압과정 중에 용융되어 단판의 목리방향을 따라 발생한 활렬부위로 침투하여 단판을 좌우로 분리시켜 밀어낸 후 그 틈을 따라 열가소성수지가 이동하여 나타난 갈림현상이라 판단된다.

이를 SEM으로 관찰한 결과, Fig. 12(a)와 12(c)에 나타난 바와 같이 각 합판에서 접착층이 형성된 것을 관찰할 수 있었으며, Fig 12(b)와 12(d)에서 볼 수 있듯이 각 단판의 가도관, 도관 등에서 각 열가소성수지가 관찰되었다. 특히 Fig. 12(b)에서 심판의 활렬부위로 침투된 열가소성수지가 조직을 박리시켜 갈라진 틈으로 열가소성수지가 침투된 것을 관찰할 수 있었다. 이는 앞서 언급한 단판의 갈림현상의 원인이라 판단된다. 이에 대하여 Han과 Lee (1997)는 HDPE 필름이 단판의 이합과 방사조직에 침투하여 기계적 결합을 이루고 있다고 보고한 바 있고, Kolosick 등 (1992)도 PP를 용융시켜 단판에 처리했을 경우, 단판

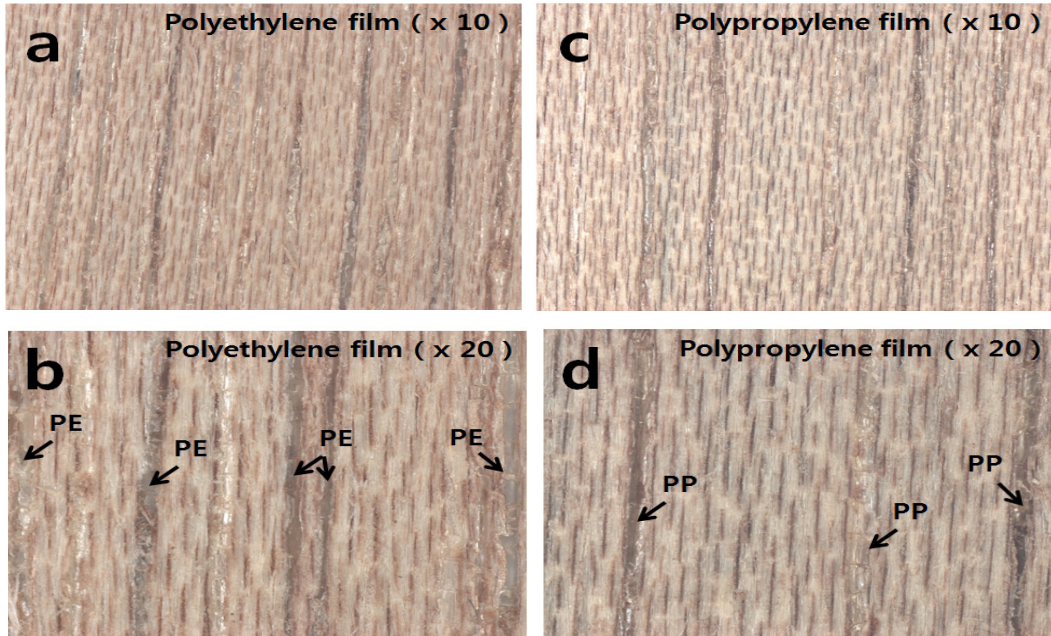


Fig. 11. Stereo-microscopic image of plywoods bonded with different thermoplastic films.

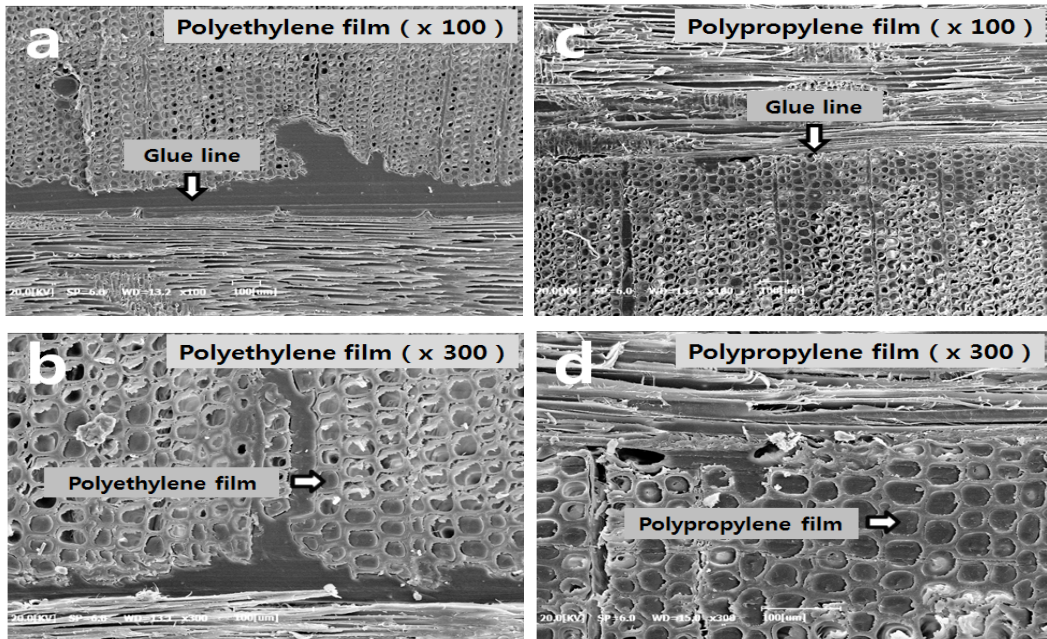


Fig. 12. Scanning electron microscopic image of plywoods bonded with different thermoplastic films.

내 세포간극 및 벽공에서 PP를 확인할 수 있었다고 보고한 바 있다.

따라서 이와 같은 결과는 열가소성수지가 가진 특성, 즉 열에 의해 용융되어 열 유동성을 가짐으로써 각 단판의 내부로 침투하게 되며, 이것이 냉각 후 결정화되어 기계적 결합으로 나타나는 것이라 할 수 있다. 이러한 투모효과가 합판의 접착성능에 영향을 주는 중요한 요인으로 작용한다는 것을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

합판 제조용 접착제로서 필름형태의 열가소성수지를 이용하여 열적 성질을 알아보고, 열가소성수지 필름의 사용량과 적층방향에 따른 합판의 접착성능을 비교해 보았다. 먼저 각 열가소성수지 필름의 열적 성질을 조사한 결과, PP 필름과 PE 필름의 용융온도는 163.4℃, 109.7℃였으며, 결정화온도는 98.9℃, 93.6℃로 나타났다. 각 필름별 인장강도와 신장률은 길이방향보다 폭방향이 비교적 큰 것으로 나타났다. 필름으로 접착한 합판의 접착성능은 필름의 두께가 증가할수록 접착력도 증가하는 경향을 보였다. 준내수 접착력은 PP 필름의 두께가 0.05 mm 이상, PE 필름은 0.10 mm 이상일 때 KS기준을 만족하였으며, 내수접착력은 PP 필름 두께가 0.20 mm일 때 KS기준을 만족하였다. 그리고 각 필름의 방향별 접착력은 단판의 목리방향을 기준으로 할 때, 필름의 길이방향으로 적층하는 것보다 폭방향으로 적층할 때 더 우수한 접착성능을 보였다. 그리고 표면과 접착층을 현미경으로 관찰한 결과, 열가소성수지 필름은 열에 의해 용융되어 단판 내부와 할렐부위로 침투하여 기계적 결합을 하는 것으로 나타났다.

따라서 열가소성수지 필름을 합판용 접착제로 사용할 경우, 합판 제조조건은 각 필름별 적정 용융온도를 바탕으로 필름의 사용량과 적층방향을 고려하여야 용도에 적합한 합판을 제조할 수 있을 것이라 판단된다. 그리고 본 연구를 바탕으로, 다층합판을 제조하기 위한 제조 조건 도출과 공정 상 제조시스템 개선이 열가소성수지를 합판용 접착제로 활용할

수 있는 방안이라 사료된다.

REFERENCES

- Chang, L., Wang, Z., Guo, W.J., Ren, Y.P. 2009. Study on hot-press process factors of wood/plastic composite plywood. *Wood Processing Machinery*. 6: 12-15.
- Chen, N., Lin, Q., Zeng, Q., Rao, J. 2013. Optimization of preparation conditions of soy flour adhesive for plywood by response surface methodology. *Industrial Crops and Products* 51: 267-273.
- Fang, L., Chang, L., Guo, W.J., Chen, Y.P., Wang, Z. 2013. Manufacture of environmentally friendly plywood bonded with plastic film. *Forest Products Journal* 63(7/8): 283-287.
- Fang, L., Chang, L., Guo, W.J., Ren, Y.P., Wang, Z. 2013. Preparation and characterization of wood-plastic plywood bonded with high density polyethylene film. *European Journal of Wood and Wood Products* 71: 739-746.
- Han, G.S., Shiraishi, N. 1991. Polypropylene as Hot-melt adhesives. *Mokuzai Gakkaishi* 37: 39-43.
- Han, K.S., Lee, H.H. 1997. Adhesion characteristics and anatomic scanning of plywood bonded by high density polyethylene. *Journal of the Korean Wood Science and Technology* 25(3): 16-23.
- Han, T.H., Kwon, J.H. 2009. Physical and mechanical properties of composite panel manufactured from wood particle and recycled polyethylene. *Journal of the Korean Wood Science and Technology* 37(4): 340-348.
- Ito, K. 1991. Extrusion molding. *Korea Plastic Moulding Information Center*: 99-107.
- Jeong, H. 2009. Overview of plastic film manufacturing technology. *The Monthly Packaging World* 196: 106-131.
- Kajaks, J., Reihmane, S., Grinbergs, U., Kalnins, K.

2012. Use of innovative environmentally friendly adhesives for wood veneer bond. *Proceedings of the Estonian Academy of Sciences* 61(3): 207-211.
- Kolosick, P.C., Myers, G.E., Koutsky, J.A. 1992. Polypropylene crystallization on maleated polypropylene-treated wood surfaces: Effects on interfacial adhesion in wood polypropylene composites. *Materials Research Society Symposium Proceedings* 266: 137-154.
- KS F 3101. 2016. Plywood. Korean Standards Association.
- KS M 1004. 2009. Wide Polyethylene Based Films for Agriculture. Korean Standards Association.
- Oh, Y.S. 1998. Use of polyethylene as an additive in plywood adhesive. *Journal of the Korean Wood Science and Technology* 26(1): 14-18.
- Okajima, S., Kurihara, K., Homma, K. 1967. Studies on the stretching of polypropylene film. I : Two-step biaxial stretching. *Journal of Applied Polymer Science* 11: 1703-1717.
- Ou, C.F. 2002. The crystallization characteristics of polypropylene and low ethylene content polypropylene copolymer with copolyesters. *European Polymer Journal* 38: 467-473.
- Park, B.D., Lim, K.P., Kim, Y.S. 1994. Mechanical properties of wood-fiber thermoplastic composites. *Journal of the Korean Wood Science and Technology* 22(2): 46-53.
- Pizzi, A., Walton, T. 1992. Non-emulsifiable, water-based, mixed diisocyanate adhesive systems for exterior plywood. *Holzforschung* 46(6): 541-547.
- Song, W., Wei, W., Ren, C., Zhang, S. 2016. Developing and evaluating composites based on plantation eucalyptus rotary-cut veneer and high-density polyethylene film as novel building materials. *BioResource* 11(2): 3318-3331.
- Song, W., Wei, W., Ren, C., Zhang, S. 2017. Utilization of polypropylene film as an adhesive to prepare formaldehyde-free, weather-resistance plywood-like composites: Process optimization, performance evaluation, and interface modification. *BioResource* 12(1): 228-254.
- Tabatabaei, S.H., Carreau, P.J., Ajjji, A. 2009. Microporous membranes obtained from PP/HDPE multilayer films by stretching. *Journal of Membrane Science* 345: 148-159.
- Tang, L., Zhang, Z.G., Qi, J., Zhao, J.R., Feng, Y. 2012. A new formaldehyde-free adhesive for plywood made by in-situ chlorinating grafting of MAH onto HDPE. *European Journal of Wood and Wood Products* 70: 377-379.
- Tang, L., Zhang, Z.G., Qi, J., Zhao, J.R., Feng, Y. 2011. The preparation and application of new formaldehyde-free adhesive for plywood. *International journal of adhesion & adhesives* 31: 507-512.
- Wang, W., Zhao, Z., Gao, Z., Guo, M. 2011. Whey protein-based water-resistant and environmentally safe adhesives for plywood. *BioResource* 6(3): 3339-3351.
- Yoon, H.U., Park, J.Y. 1998. Effects of process variables and MAPP coupling agent on properties of wood fiber-polypropylene fiber composite by turbulent air mixing. *Journal of the Korean Wood Science and Technology* 26(1): 76-86.
- Zhang, Y., Zhu, W., Lu, Y., Gao, Z., Gu, J. 2013. Water-resistant soybean adhesive for wood binder employing combinations of caustic degradation, nano-modification, and chemical crosslinking. *BioResource* 8(1): 1283-1291.