

유연 종이 식품 포장재의 개질 아크릴 에멀전 코팅 특성 및 재활용성 평가

이명호¹ · 조인석² · 이동철² · 이윤석^{1*}

¹연세대학교 패키징및물류학과

²골든팩키지 주식회사

The Evaluation of the Packaging Properties and Recyclability with Modified Acrylic Emulsion for Flexible Food Paper Coating

Myungho Lee¹, In Seok Cho², Dong Cheol Lee², and Youn Suk Lee^{1*}

¹Department of Packaging & Logistics, Yonsei University, Wonju 26493, Republic of Korea

²Golden package Inc., Gyeonggi-do 10010, Republic of Korea

Abstract The worldwide effects of COVID-19 have led to a surge in online shopping and contactless services. The consumption pattern has caused the issues such as the environmental pollution together with the increase of plastic waste. Reducing the reliance on the petroleum based plastic use for the package and replacing it with environmentally friendly material are the simple ways in order to solve those problems. Paper is an eco-friendly product with high recyclability as the food packaging materials but has still poor barrier properties. A barrier coating on surface of the paper can be achieved with the proper packaging materials featuring water, gas and grease barrier. Polyethylene (PE) or polypropylene (PP) coatings which are generally laminated or coated to paper are widely used in food packaging applications to protect products from moisture and provide water or grease resistance. However, recycling of packaging containing PE or PP matrix is limited and costly because those films are difficult to degrade in the environment. This study investigated the recyclability of modified acrylic emulsion coating papers compared to PE and PP polymer matrixes as well as their mechanical and gas barrier properties. The results showed that PE or modified acrylic emulsion coated papers had better mechanical properties compared to the uncoated paper as a control. PE or PP coating papers showed strong oil resistance property, achieving a kit rating of 12. Those papers also had a significantly higher percentage of screen reject during the recycling process than modified acrylic coated paper which had a screen rejection rate of 6.25%. In addition an uncoated paper had similar value of a screen rejection rate. It may suggest that modified acrylic emulsion coating paper can be more easily recycled than PE or PP coating papers. The overall results of the study found that modified acrylic emulsion coating paper would be a viable alternative to suggest a possible solution to an environmental problem as well as enhancing the weak mechanical and poor gas barrier properties of the paper against moisture.

Keywords barrier-coated paper, food packaging, mechanical properties, barrier properties, recyclability,

서 론

최근 세계적으로 COVID-19의 유행으로 사람들의 일상 생활과 행동의 많은 변화가 발생하였으며, 코로나의 여파로 각국의 봉쇄 조치 및 사회적 거리두기가 진행됨에 따라 소비자의 쇼핑 습관과 식습관에 큰 영향을 미쳤다¹⁻³⁾. 여러

국가에서 온라인 쇼핑 및 배달 서비스에 대한 수요가 15% 이상 증가하였으며, 2020년 환경부 발표 자료에 따르면 COVID-19 팬데믹 전후 국내 배달 음식 이용량은 2019년 대비 75.1%가 증가했으며, 택배 이용량은 19.8%로 소비자들의 소비 형태가 온라인 쇼핑 및 간편식, 배달 음식 등 비대면 소비를 위한 서비스 시장으로 크게 확대되고 변화하는 모습을 보여주었다^{1,4)}. 이러한 소비자들의 쇼핑 및 식습관의 변화로 인해 일회용 컵, 식품 포장 용기, 가정용 비닐 용품 등과 같은 일회용 성 제품의 사용량이 증가하였으며, 이러한 제품들은 사용 후 소각 및 매립되어 환경 및 사회적 문제를 초래하고 있다⁵⁾.

*Corresponding Author: Youn Suk Lee
Department of Packaging & Logistics, Yonsei University, Wonju 26493, Korea
Tel: +82-33-760-2395, Fax: +82-33-760-2395
E-mail: leeyouns@yonsei.ac.kr

특히, 온라인 쇼핑 및 배달 음식에 사용되는 포장재 및 일회용 제품은 주로 폴리에틸렌(Polyethylene; PE), 폴리프로필렌(Polypropylene; PP) 등과 같은 플라스틱 소재로 제작되며, 플라스틱은 다른 소재에 비해 높은 강도와 배리어 특성, 안정성 및 투명성 등이 우수하고 가벼운 무게와 저렴한 특징을 가지고 있어 다양한 분야에서 많이 이용되고 있다⁶⁾. 특히, 식품 포장에 사용되는 플라스틱의 경우 배리어 특성 개선을 위하여 단일소재가 아닌 여러 소재를 사용한 다층 구조를 사용하게 되며, 이러한 플라스틱은 수많은 이점과 동시에 소각 시 이산화탄소 및 메탄과 같은 온실가스를 배출하며, 석유 기반의 플라스틱은 생분해가 잘 이루어지지 않아 폐기 시 환경문제가 발생하고 있다⁷⁾. 이러한 문제에도 불구하고 전 세계적으로 연간 플라스틱 생산량은 3억 2천만 톤 이상으로 매년 플라스틱 폐기물이 발생하고 있으며, 국제적으로 환경친화성 및 재활용성에 대한 관심이 증가함에 따라 플라스틱 사용 규제 및 셀룰로오스, PLA, 등 생분해 및 환경친화성이 우수한 지속 가능 물질로 대체하려는 움직임을 보이고 있다⁸⁻¹⁰⁾.

종이는 생분해 및 재활용이 가능한 친환경 소재로 플라스틱 대체 소재로 각광받고 있으며, 플라스틱과 달리 환경에 미치는 영향이 적어 식품 산업, 건축, 의약품 등 다양한 분야에서 많이 사용되고 있다^{11,12)}. 그러나 셀룰로오스 섬유로 이루어진 종이는 수분 및 산소 차단에 취약하여 식품 용기 및 포장재 등으로 이용하기에 제한적이다. 종이의 내수성 및 내유성, 기체 차단성 등 다양한 특성을 부여하기 위해 주로 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리에틸렌테레프탈레이트 (Polyethylene terephthalate) 등 석유 기반 고분자를 코팅 (라미네이트 포함) 제조하거나 유리 및 금속 기반 소재를 같이 다층 코팅 처리하여 이용하고 있다¹³⁻¹⁵⁾. 코팅된 종이는 고분자 필름이 점착된 형태로 폐기 후 재활용 시 해리 공정에서 물에 녹지 않는 고분자 층으로 인하여 공정 효율 저하와 재펠드화 후 품질에 악영향을 미치며 특히, 국내에서는 코팅된 종이 폐기물 관련하여 별도의 분리수거 체계가 존재하지 않아 일반 폐지와 같이 수거되어 재활용 효율이 떨어지고 환경 및 경제적으로 문제가 발생하고 있다¹⁶⁻¹⁸⁾.

이러한 문제를 해결하기 위해 식품포장으로 석유 기반 고분자 대신 무독성이며 생분해가 가능한 폴리락트산 (Polylactic acid), 폴리하이드록시 알카노에이트 (Polyhydroxyalkanoate) 등과 같은 바이오 고분자나 키틴, 키토산, 알지네이트 등과 같은 친환경 고분자를 종이 코팅 재료로 사용하는 연구들이 이루어지고 있다^{17,18)}. 최근에는 폴리비닐알콜 (Polyvinyl alcohol), 개질 아크릴 에멀전(Modified acylic emulsion) 등과 같은 수용성 기반 배리어 코팅제를 적용하는 연구가 이루어지고 있으며, 코팅제를 적용한 종이는 고분자 필름 코팅 종지와 달리 해리 시 배리어 코팅층이 쉽게 분리 및 해리 후 스크린에 잔류하는 잔류물이 없어 효

율적인 재활용 공정을 보여준다¹⁹⁾. 이러한 해리 공정은 주로 알칼리 조건에서 이루어지고 물리적인 힘이 가해져서 분리되고 있으므로 수분이 있는 식품에서도 적용이 가능하며, 특히 식품과 접촉하는 포장 소재 합성수지는 정해진 재질 및 첨가물에 따른 안전관리가 되고 있다^{20,21)}.

이번 연구에서 개질 아크릴 에멀전으로 코팅 처리된 종이를 식품 포장으로 적용 가능성을 파악하기 위하여 현재 사용하고 있는 폴리에틸렌과 폴리프로필렌 코팅 처리 종지와 비교하여 물성과 배리어 특성, 내수성 등을 평가하였으며, 또한 재활용성 평가(해리성 테스트)를 통한 배리어 코팅별 종이의 재활용 특성을 분석하였다.

재료 및 방법

1. 실험재료

본 연구에서 식품 용기로 적용되고 있는 배리어 코팅 종이의 코팅 처리별 종이 포장재의 특성 분석을 위하여, 현재 상용화 제품으로 많이 사용되는 폴리에틸렌 및 폴리프로필렌, 그리고 아크릴 기반 소재가 코팅된 종이 샘플을 가지고 실험 평가를 수행하였다. 이와 함께 코팅 처리가 없는 종이를 대조군(control)으로 비교 평가하였으며, 코팅처리는 백색 크라프트지에 진행되었다. PE 코팅 종이는 크라프트지에 약 30 μm LDPE를 라미네이팅 처리를 하였으며, PP 코팅 종이는 크라프트지에 약 20 μm CPP를 라미네이팅 처리를 진행하였다. 아크릴 코팅 종이는 폴리메타크릴산 메틸 (Polymethyl methacrylate; PMMA) 기반의 코팅액을 코팅 처리한 종이를 사용하였으며, 모든 종이 샘플은 (주)골든팩키지(Golden package Inc., Gyeonggi-do, Korea)에서 공급받아 실험 평가에 사용하였다.

2. 코팅 종이의 두께 및 평량

각각의 코팅 처리된 종이의 두께는 디지털마이크로미터 (ABS Digimatic thickness gauge, Mitutoyo Co., Kawasaki, Japan)를 사용하였으며, 무작위로 샘플 시료의 두께를 10회 측정 후 평균값을 구하여 $\text{mean} \pm \text{SD}$ 로 나타내었다. 각 종이 샘플의 평량은 ISO 536²²⁾ 규격을 참고하여 진행하였으며, 100 × 100 mm²의 크기로 샘플을 재단 후 25 ± 1°C와 50 ± 2% 상대습도 조건의 항온항습기(HST-105MG HANBAEK Co. Ltd., Gyeonggi-do, Korea)에서 24시간 동안 조습 처리 후 시편의 무게를 측정하여 g/m²로 환산하였으며, 산출된 평량은 종이 무게와 코팅층 무게 모두를 포함하여 진행하였다.

3. 코팅 종이의 형태학적 분석

코팅 처리별 종이 실험 샘플의 표면과 코팅층 두께를 분석하기 위하여 형태학적 분석을 진행하였으며, 코팅 종이의

표면 및 단면의 형태학적 분석은 FESEM(Quanta FEG 250, FEI Co., Oregon, USA)을 사용하였다. SEM 분석 시 선명한 분석을 위해 Pt(Platinum) 코팅을 한 후 측정하였으며, 표면은 200x 배율, 단면은 1000x 배율로 측정을 진행하였다.

4. 코팅층의 소재별 화학적 분석

코팅 처리된 종이에서 코팅층 소재는 화학적 분석으로 진행하였다. 코팅 소재의 화학적 분석은 FT-IR(Spectrum 65, PerkinElmer Co., CT, USA)를 사용하였다. ATR(Attenuated total reflectance) mode로 측정하였으며, 4000-400 cm^{-1} 범위에서 16회 스캔 후 결과 값은 Transmittance (%)로 나타내었다.

5. 코팅 종이의 기계적 물성 분석

각각의 다른 코팅 소재로 처리된 종이의 물성 특성은 인장강도와 신장률, 파열강도 실험으로 평가하였다. 모든 실험 샘플은 시험 전 TAPPI 402 기준²³⁾에 따라 $25 \pm 1^\circ\text{C}$, $50 \pm 2\%$ 상대습도 조건에서 24시간 동안 전처리 사용하였다. 인장강도와 신장률은 TAPPI 494 규격²⁴⁾을 참고하여 측정하였으며, $150 \times 15 \text{ mm}^2$ 크기로 절단한 시료를 만능재료 시험기(QM100TC, QMESYS Co., Gyeonggi-do, Korea)에 장착하여 25 mm/min의 속도로 수직 압축강도를 10회 반복하여 측정하였다. 종이의 파열강도는 ISO 2758 규격²⁵⁾을 기준으로 측정하였으며, $100 \times 100 \text{ mm}^2$ 로 절단된 시편을 디지털식 파열강도 측정기(SJTM-003, Sejin Technology Co., Gyeonggi-do, Korea)를 사용하여 측정하였으며, 3회 반복 측정하였다. 모든 실험 결과는 평균값을 구하여 $\text{mean} \pm \text{SD}$ 로 나타내었다.

6. 코팅 종이의 차단 특성 분석

코팅 처리된 종이의 차단 특성 분석을 위하여 공기 투기도와 내수성, 내유성 평가를 진행하였다. 내수성은 Cobb 사이즈도 평가와 접촉각으로 평가하였다. 공기 투기도 분석은 TAPPI T 460 규격 기준²⁶⁾에 의거하여 공기 투기도 측정기(L&W air permeance tester, ABB Ltd., Zurich, Switzerland)를 통해 분석하였으며, Cobb 평가는 일정 시간 동안 단위 면적당 종이 시료가 흡수하는 물의 양을 측정하여 내수도를 평가하는 방법으로 TAPPI 441 규격²⁷⁾을 참조하여 측정하였다. $130 \times 130 \text{ mm}^2$ 크기로 절단된 시편 위에 내부 면적 100 cm^2 , 높이가 25 mm인 링 형태의 기구를 올려놓고 잠금장치(clamping force)로 물이 흘러나가지 못하도록 단단히 고정시킨 후 100 mL의 증류수를 붓고 300초 동안 종이 가 흡수한 액체의 양(g/m^2)을 식 (1)을 이용하여 나타내었다. 코팅 처리된 종이의 접촉각은 접촉각 측정기(SmartDrop, Femtobiomed Inc., Gyeonggi-do, Korea) 접촉각 측정 장

비를 사용하였으며, 약 10 μL 의 증류수를 각각의 코팅 처리된 종이 표면에 떨어뜨린 후 샘플 표면에서 물방울의 접촉각($^\circ$)을 측정하였다. 코팅 처리된 종이의 내유성은 TAPPI T 559 기준 방법에 따라 평가하였다²⁸⁾. 등급에 따라 1번에서 12번까지 번호가 매겨진 오일 용액을 코팅된 종이 샘플 표면에 떨어뜨리고 15초 후 닦아낸 다음 오일 용액이 흡수되어 생긴 반점을 육안으로 확인하여 평가하였다.

*시험 면적이 100 m^2 인 장치의 고려

$$\text{Water absorption (g/m}^2\text{)} = (\text{Final weight} - \text{Initial weight}) \times 100 \quad (1)$$

7. 코팅 종이의 재활용성 평가

각각의 코팅 소재로 처리된 종이의 재활용성을 평가하기 위한 시험법인 UL2485 표준을 참고하여 평가를 진행하였다²⁹⁾. 전건 중량 24 g에 해당하는 샘플을 채취한 후, $30 \times 30 \text{ mm}^2$ 로 재단 후 물에 4시간 이상 침지시킨 다음 실험실용 해리기(L&W pulp Disintegrator, ABB Ltd., Zurich, Switzerland)를 사용하여 해리하였다. 해리된 샘플은 0.15 mm 슬릿이 부착된 섬머빌 스크린(Somerville screen)을 사용하여 정선처리를 하였으며, 슬릿을 통과하지 못한 잔류된 미해리분을 스크린 리젝트(Screen reject)로, 슬릿을 통과한 섬유 및 미세분을 스크린 업셉트(Screen accept)로 정의하였다. 따라서 정선 공정에서 통과하지 못한 미해리분을 리젝트율(Percent of reject)로 표시하였으며, 통과한 섬유 및 미세분을 펄프화 수율(Pulping yield)로 나타내었다. 스크린 리젝트율(Percent of reject)은 105°C 오븐에서 충분히 건조 후 정량하여 스크린 잔류 물질의 건조 중량값을 측정 후 식 (2)를 적용한 리젝트 값을 계산하였으며, 펄프화 수율(Pulping yield)과 리젝트율의 합은 100%로 식 (3)을 사용하여 계산하였다.

$$\text{Percent of reject (\%)} = \frac{\text{Dry weight of screen residue(g)}}{\text{Dry weight of sample(g)}} \times 100 \quad (2)$$

$$\text{Pulping yield (\%)} = \frac{\text{Dry weight of sample(g)} - \text{Dry weight of screen residue(g)}}{\text{Dry weight of sample(g)}} \times 100 \quad (3)$$

8. 통계처리

실험 결과의 통계 분석은 SPSS Version 17.0(SPSS Inc., IL, USA) program에 의해 Duncan's multiple range test로 유의수준 $p < 0.05$ 에서 유의성을 검증하였다.

결과 및 고찰

1. 코팅 종이의 특성

각각의 코팅 처리된 종이의 기본 특성을 두께와 평량 값

Table 1. Types of testing paper sheets

Types of the testing paper samples	Acronyms	Thickness (μm)	Grammage (g/m^2)
Paper without coating	Control	354.00 \pm 14.25	281.33 \pm 1.89
Polyethylene coated paper	PE	380.56 \pm 11.50	308.17 \pm 1.41
Polypropylene coated paper	PP	376.55 \pm 14.49	299.67 \pm 0.47
Modified Acryl emulsion coated paper	AC	363.00 \pm 7.51	298.67 \pm 1.25

으로 확인하였으며, 이를 Table 1에 나타내었다.

일반적으로 식품용으로 사용되는 종이 포장재는 다양한 포장 처리 조건 및 식품의 특성에 맞도록 내수성 및 내유성, 내열성 등 높은 차단성 및 물성 등을 요구하고 있다³⁰⁾. 이를 위하여 종이 원지는 보통 평량이 약 150-350 g/m^2 정도에 종이를 사용하며 PE나 PP 등의 고분자 필름을 약 50 μm 내외의 두께로 평량이 약 8-20 g/m^2 정도 종이에 코팅하여 사용하고 있다³¹⁾. 이번 연구에서 사용된 종이 시료에서도 유사한 평량과 코팅 두께를 보여주었는데, 대조군의 평량은 약 281.33 g/m^2 를 보여주었으며, PE 코팅 종이는 308.17 g/m^2 , PP 코팅 종이는 299.67 g/m^2 , 아크릴 코팅 종이는 298.67 g/m^2 로 코팅 처리 종이의 코팅 평량은 약 20 g/m^2 의 값을 보여주었다. 두께 평가에서 PE 코팅 종이 시료는 평균 380.56 μm 로 대조군과 약 26 μm 의 두께 차이를 보였으며, PP 코팅 처리 종지와 아크릴 코팅 처리 종지에서 또한 각각 평균 두께 376.55 μm 와 363.00 μm 로 대조군과 약 22 μm , 9 μm 의 차이를 보여주어 PE 코팅층이 가장 두꺼웠으며, 아크릴 코팅이 가장 얇은 코팅층을 보여주었다.

2. 코팅 처리별 종이의 형태학적 및 화학적 분석

형태학적 분석을 통하여 코팅 처리별 종이 시료의 표면

과 코팅 두께를 확인하였다. Fig. 1에 보여진 각 코팅 처리별 종이 시료의 단면 사진에서 대조군은 코팅층 없이 종이의 섬유조직이 전단된 단면을 확인할 수 있었다.

PE 코팅 종이에서는 PE 코팅층은 약 30 μm 의 두께를 보여주었으며, PP 코팅 종이 샘플은 약 20 μm 의 코팅층 두께를 보여주었다. 개질 아크릴 코팅 종이는 약 10 μm 의 코팅층 두께로 가장 얇은 코팅층을 보여주어 앞서 설명한 각 종이 시료의 두께 차이로 확인한 코팅층 두께와 유사한 결과를 보여주었다. 표면 분석에서 대조군은 종이의 섬유조직이 서로 엉켜있는 현상을 보였으며, PE 및 PP가 라미네이팅 된 종이의 표면에서는 라미네이팅 층으로 인하여 대조군에서 보인 섬유조직이 보이지 않았다. 개질 아크릴 코팅 된 종이에서는 앞서 말한 것과 같이 가장 얇은 코팅층을 가지고 있어, 표면에 희미하게 섬유조직이 엉켜있음을 확인할 수 있다.

코팅 처리별 종이 시료의 FT-IR 그래프는 Fig. 2에 나타내었다. 대조군의 FT-IR 곡선에서 -OH그룹인 3391 cm^{-1} 을 확인하였으며, C-H그룹인 2906 cm^{-1} 와 1373 cm^{-1} 에서 피크를 보였다. 또한 셀룰로오스 사슬에 존재하는 C=O그룹인 1061 cm^{-1} 를 확인하였다. 이러한 피크는 종이의 주된 성분인 셀룰로오스와 유사한 피크 특성을 보여주었다³²⁾. PE 코팅된 종이에서는 2919 cm^{-1} 과 2850 cm^{-1} 부분에서 C-H그룹

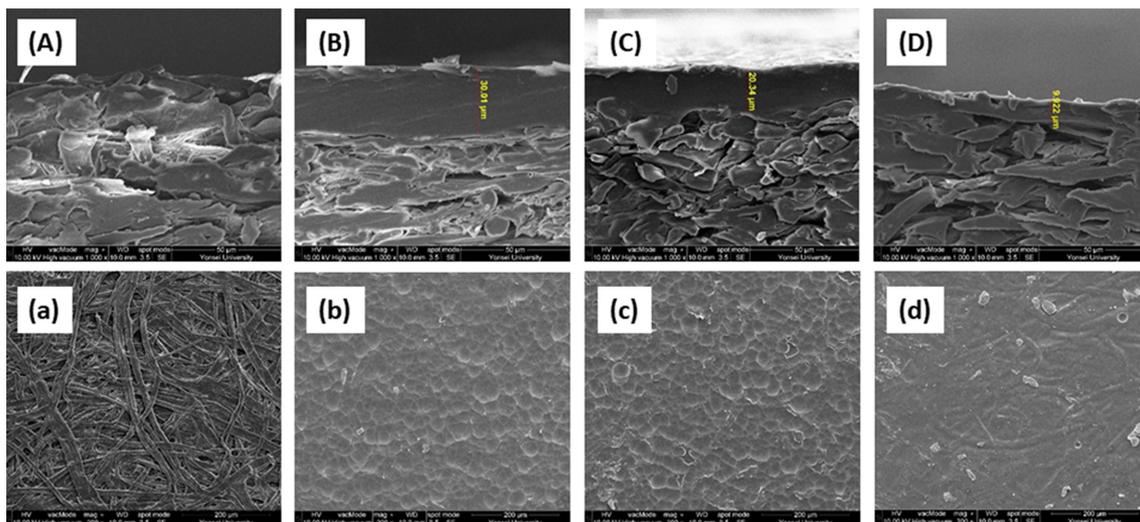


Fig. 1. SEM images of barrier coated paper samples. Capital letters indicated cross section image of samples and lowercase surface image of samples. (A; Control, B; PE, C; PP, D; AC)

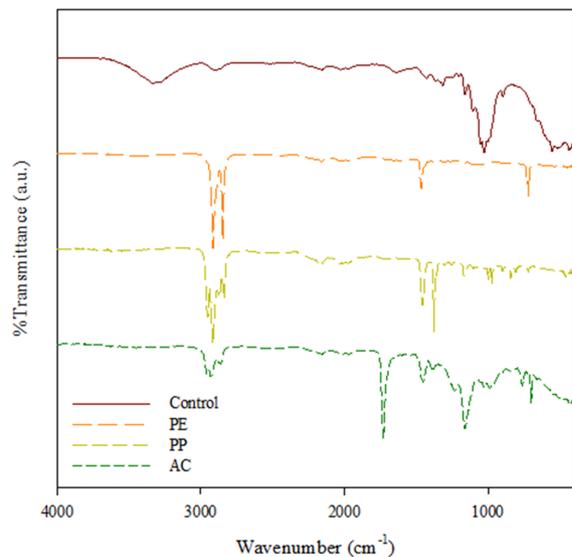


Fig. 2. FT-IR spectra of the respective coated paper samples.

과 CH_2 그룹 피크가 나타났으며, 1470 cm^{-1} 과 730 cm^{-1} 에서 CH_2 그룹으로 PE의 고유 피크와 동일한 결과를 보여주었다^{33,34}. PP 코팅 종이에서 또한 2950 cm^{-1} , 2918 cm^{-1} , 2836 cm^{-1} 에서 C-H 그룹 피크, 1456 cm^{-1} 에서 CH_2 그룹, 1376 cm^{-1} 에서 CH_3 그룹 피크를 보여주어 PE의 고유 피크와 동일한 결과를 보여주었다³⁵. 개질 아크릴 코팅 종이는 코팅제로 사용된 폴리메타크릴산 메틸의 고유 특성 피크인 CH_3 그룹 2994 cm^{-1} , 2951 cm^{-1} 이 나타났으며, 1730 cm^{-1} 에서 C=O 그룹, 1240 cm^{-1} 에서 C-O 그룹 피크를 보여주었다^{36,37}. 이러한 결과를 통해 각각의 종이 시료에서 고분자 코팅이 이루어진 것을 확인하였다.

3. 코팅 처리별 종이의 기계적 물성 분석

코팅 처리별 종이의 기계적 물성은 Table 2에 나타내었다.

대조군의 인장강도는 2.90 kgf/mm^2 를 보였으며, PE 코팅 종이는 4.09 kgf/mm^2 로 대조군에 비해 증가하였다. PP 코팅 종이는 2.79 kgf/mm^2 로 가장 낮은 인장강도를 보였으나 대조군과 유의적 차이는 보이지 않았다. 이런 결과는 라미네이팅 처리시 압착, 압력 및 건조 온도 조건 처리로 인하

여 종이 섬유가 치밀한 구조를 형성하게 되므로, 두께가 얇아지게 되고 PP 코팅 또한 $20\text{ }\mu\text{m}$ 로 얇은 두께로 코팅되어 대조군과 유의적 차이를 보이지 않은 것으로 판단된다³⁸. 개질 아크릴 코팅 종이에서 5.98 kgf/mm^2 로 가장 높은 인장강도를 보였으며, 신장률은 인장강도와 반대로 대조군과 PP 코팅 종이에서 각각 5.31%와 5.19%로 높은 신장률을 보였으나 유의적인 차이는 없었으며, 개질 아크릴 코팅 종이에서 3.59%, PE 코팅 종이에서 2.65%로 신장률이 대조군에 비해 감소하는 경향을 보여주었다. 이 현상은 화학 구조적으로 아크릴 코팅에 사용된 PMMA의 극성기인 에스터기(-COOR)가 셀룰로오스의 -OH 그룹과 수소결합을 하여 물성이 증가한 것으로 판단된다. 파열강도 평가에서는 대조군은 약 543.07 kPa 로 가장 낮은 파열강도를 보여주었으며, 다음으로 PP 코팅 종이가 643.90 kPa , PE 코팅 종이는 712.44 kPa , 개질 아크릴 코팅 종이가 993.00 kPa 로 가장 높은 파열강도를 보여주었다. 이러한 코팅 처리에 따른 물성 개선은 Ramos 등³⁹과 Kim 등⁴⁰에서 보여준 연구와 유사한 결과를 보여주었다. Ramos 등은 카르복시메틸(Carboxylmethyl)과 자일렌(Xylene)을 합성한 코팅액을 도공 처리한 종이의 물성을 평가하여 인장강도, 인열강도 및 파열강도에서 코팅 처리를 하지 않은 대조군에 비해 개선된 결과를 확인하였다. 배리어 코팅을 처리한 종이 시료는 인장강도와 파열강도에서 개선을 보여주었으나, PP 코팅 종이에서는 파열강도 외에 물성 개선을 확인할 수 없었다.

4. 코팅 처리별 종이의 차단 특성 분석

코팅 처리별 종이의 공기 투기도, 접촉각, Cobb 사이즈도, 내유도 측정 결과를 Table 3에 나타내었다.

공기 투기도는 대조군에서 평균 $2.24\text{ }\mu\text{m/Pa}\cdot\text{s}$ 로 가장 높은 투기도를 보여주었으며, 코팅 처리된 종이 시료에서는 모두 $0.003\text{ }\mu\text{m/Pa}\cdot\text{s}$ 이하의 최고 측정값을 보여주었다⁴¹. 코팅 종이 시료별 Cobb 사이즈도 평가에서 대조군은 평균 43.77 g/m^2 로 가장 높은 흡수 특성을 보여주었다. 개질 아크릴 코팅 종이에서는 2.80 g/m^2 로 다음으로 높은 흡수 특성을 보였으나, 가장 낮은 흡수 특성을 보인 PE 코팅 종지와 PP 코팅 종지와 유의적인 차이는 발생하지 않았다. 배리어 코팅 처리된 종이에서 낮은 수분 흡수 특성을 보여주었는데 이는 Lee 등 연구에서도 유사한 결과를 가짐을

Table 2. Mechanical properties of barrier coated paper samples. Different lowercase indicated statistical significance ($p < 0.05$) for each sampling data

Coated paper samples	Tensile strength (kgf/mm^2)	Elongation (%)	Burst strength (kPa)
Control	2.90 ± 0.08^a	5.31 ± 0.26^c	543.07 ± 22.81^a
PE	4.09 ± 0.13^b	2.65 ± 0.17^a	712.44 ± 11.07^c
PP	2.79 ± 0.16^a	5.19 ± 0.32^c	643.90 ± 17.40^b
AC	5.98 ± 0.16^c	3.59 ± 0.15^b	993.00 ± 7.52^d

Table 3. Barrier properties of barrier coated paper samples. Different lowercase indicated statistical significance ($p < 0.05$) for each sampling data

Coated paper samples	Air permeance ($\mu\text{m}/\text{Pa}\cdot\text{s}$)	Cobb ₃₀₀ value (g/m^2)	Contact angle ($^\circ$)	Kit rating
Control	2.24±0.02	43.77±2.82 ^b	122.63±1.66 ^b	0
PE	< 0.003	0.43±0.06 ^a	95.27±3.89 ^a	12
PP	< 0.003	0.40±0.08 ^a	100.13±2.94 ^a	12
AC	< 0.003	2.80±0.16 ^a	96.00±0.59 ^a	5

보여주었다. Lee 등¹⁰⁾ 연구에서 식품용으로 사용되는 열가소성 수지 코팅 종이와 개질 아크릴 에멀전 코팅 종이의 Cobb 사이즈도 평가에서 각각 $1\text{g}/\text{m}^2$ 와 $3\text{g}/\text{m}^2$ 로 유사한 값을 보여주었다. 접촉각 특성은 대조군에서 가장 높은 122.63° 가 나왔으며, PP 코팅 종이는 100.13° , PE 코팅 종이는 95.28° , 개질 아크릴 코팅 종이는 96° 로 대조군을 제외하고 배리어 코팅 종이 시료는 모두 유의적 차이가 발생하지 않았으며, 낮은 접촉각을 보여주었다. 이는 각 고분자 필름의 표면 에너지가 유사하여 유의적 차이가 발생하지 않은 것으로 판단되며, Fig. 1에서 보였듯이 코팅 종이 시료에 비해 대조군에서 셀룰로오스 섬유조직으로 거친 표면에 의해서 좀 더 높은 접촉각을 보여준 것으로 판단된다^{42,43)}.

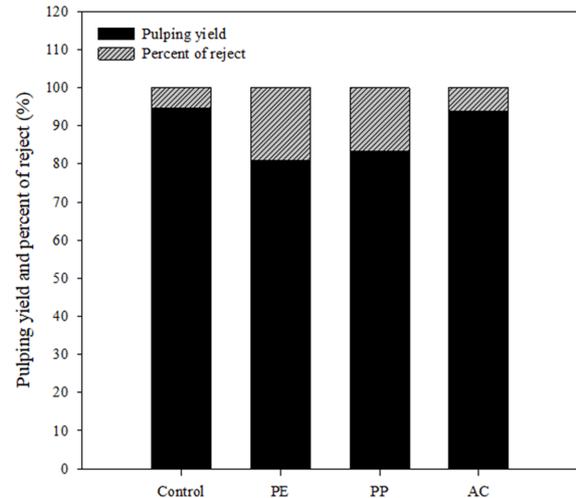
각 샘플의 내유 특성은 TAPPI T 559에 제시된 방법인 Kit test 결과로 Kit 등급이 12에 가까울수록 높은 내유성을 가지는 것을 의미하는데, 평가 결과 PE 코팅 종지와 PP 코팅 종이에서 최고 측정값인 12 등급을 나타내어 내유성이 높은 결과를 보여주었다. 대조군에서는 0 등급을 보여 주어 내유성이 없었으며, 개질 아크릴 코팅 종지는 5 등급을 값을 나타내어 PE, PP 코팅 종이보다 낮은 내유성을 보여주었다. 이는 배리어 코팅이 얇을수록 내유성이 감소한 결과를 보여준 Wang 등⁴⁴⁾ 연구와 유사하며, 아크릴 코팅의 두께가 얇아 다른 처리군에 비해 낮은 내유성을 보여준 것으로 판단된다.

5. 코팅 처리별 종이의 재활용성 평가

종이 샘플의 재활용성 평가 실험은 UL 2485 규격을 기반으로 섬머빌 스크린을 통한 해리성 평가로 진행하였다.

Fig. 3은 코팅 처리 없는 대조군의 리젝트율은 5.25%, 펄프화 수율은 94.75%로 모든 시료 중 미해리분이 가장 낮은 결과를 보여주었으며, 특히 스크린 리젝트 이미지에서도 대조군은 다른 시료에 비해 배리어 코팅층이 없어 미해리분 없이 모두 통과된 결과를 확인하였다. PE 코팅 종지와 PP 코팅 종지는 각각 19.04%, 16.57%로 높은 리젝트율을 보여주었으나, 개질 아크릴로 코팅 처리한 종지는 6.25%로 상대적으로 낮은 비율의 리젝트율을 나타내므로 코팅 종지의 재활용성 가능성을 보여줌을 확인할 수 있었다.

Fig. 4는 배리어 코팅 종이 시료별 섬머빌 스크린을 통한 정선 처리 이후의 스크린 리젝트 물질을 슬릿 상태 이미지

**Fig. 3.** Pulping yield and percent of reject of barrier coated paper samples.

와 미해리분을 필터 처리 후 이미지로 나타내었다. 스크린 리젝트 이미지에서 대조군 및 개질 아크릴 코팅 종지는 다른 샘플 시료와 비교하여 배리어 코팅층이 없어 미해리분 없이 모두 통과된 결과를 확인하였다. 또한 PE 및 PP 코팅 종지의 경우 배리어 코팅층이 작은 크기로 조각나 미분화되어 슬릿에 걸려진 모습을 보였다. Lee 등¹⁶⁾의 연구에 따르면 고분자 필름이 처리된 종지는 크게 종이와 코팅층이 온전히 분리되는 경우와 코팅층이 해리 시 발생하는 1-2 mm의 작은 크기로 미분화로 코팅층 대다수가 해리되어 잔류 미해리분이 거의 없는 경우로 분류되어 진다. 그러나 잔류 미해리분이 남아 있는 경우에 작은 크기로 미분화된 코팅층 조각들은 분급 및 제거가 어려워 재활용 공정 내 오염 유발이 가능하다고 보고하였다¹⁰⁾. 이러한 결과로 PE 코팅 종지와 PP 코팅 종지는 미분화된 코팅층 조각으로 재활용 시 어려움이 있을 것으로 판단된다. 개질 아크릴 코팅 종지는 93.75%의 재활용성으로 코팅 미처리 종이인 대조군과 비슷한 높은 값을 나타냈으며, 스크린 리젝트 이미지에서도 대조군과 유사하게 미해리분 없이 스크린을 거의 통과하는 것을 확인하였다. 이는 Lee 등¹⁰⁾에서 보여준 연구와 유사한 결과를 보여주었으며, 개질 아크릴 수지는 수해리성이 높아 코팅층의 대부분이 해리 및 분급되어 제거되

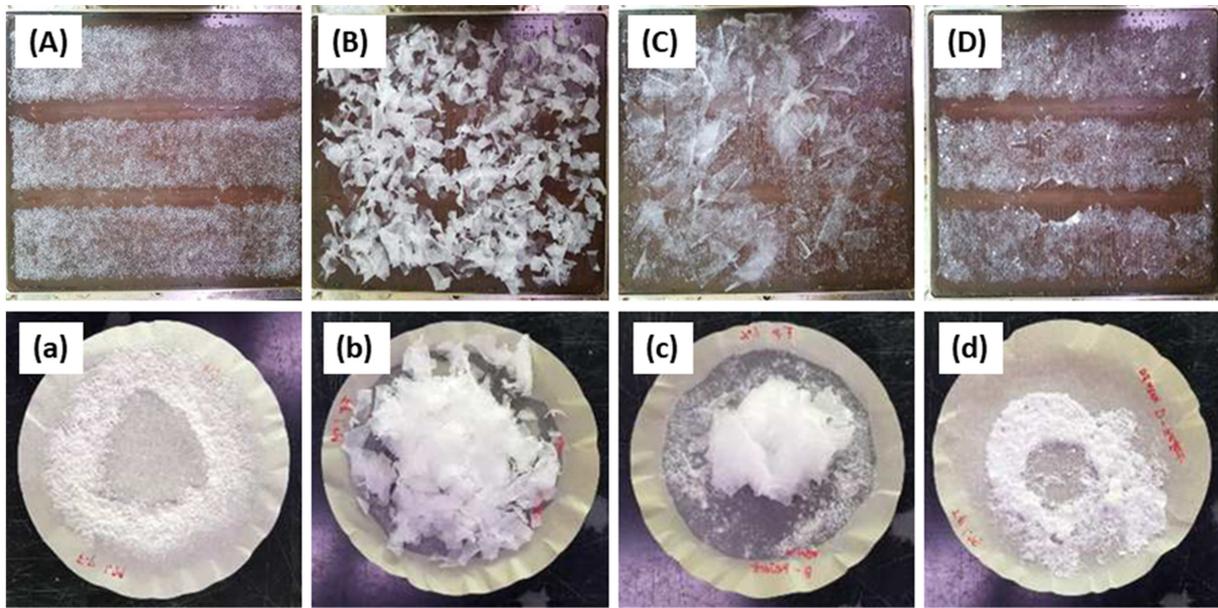


Fig. 4. Residues on the 0.15 mm slit of Somerville screen. Each capital letter indicated slit image of samples and lowercase letters for filtration image of samples. (A; Control, B; PE, C; PP, D; AC)

어 재활용성은 다른 배리어 코팅 종이에 비해 높을 것으로 판단된다. 결과적으로 대조군과 배리어 코팅 종이 시료 모두 대부분이 재활용 시 섬유상으로 해리되어 스크린 업셋트로 분류되고, 펄프화 수율은 80-90% 이상을 나타내었다. Seo³³⁾ 등에 따르면 일반적으로 식품용 종이 용기에서 섬유층은 전체 중량의 80%를 차지하며 본 연구의 분류 결과에 이에 부합하는 것으로 확인되었으나 PE 및 PP 코팅 종이는 해리 시 미해리분으로 인해 재활용에 어려움이 있다. 또한 개질 아크릴 코팅 종이는 미해리분이 거의 없어 재활용성이 높지만 추가적으로 해리하여 스크린 업셋트된 펄프 슬러리로 제조한 재활용지에 따른 종이의 품질변화에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다.

요 약

최근 소비자들의 소비 형태가 온라인 쇼핑 및 간편식, 배달 음식 등 비대면 소비를 위한 서비스 시장이 크게 확대됨에 따라 플라스틱 일회용 제품의 소비가 급증하게 되면서, 사용한 플라스틱 폐기물에 의한 여러 환경오염 문제들이 발생하고 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해 국제적으로 플라스틱 사용을 줄이고, 환경친화성 및 재활용성이 높은 지속 가능 물질로 대체하려는 움직임을 보이고 있다. 본 연구에서는 재활용성이 높은 종이에 다양한 종류의 배리어 코팅을 적용한 종이 시료의 물성과 배리어 특성 및 재활용성 등을 평가하여 실제로 식품용으로 사용되는 종이의 코팅층 종류와 이에 따른 물성 및 배리어성 개선 효과 및 재활용성에 미치는 영향을 확인하고자 하였다. 배리어 코팅

종류는 PE와 PP, 개질 아크릴 코팅이 된 종이 시료를 사용하였으며, 코팅 처리하지 않은 종이를 대조군으로 하여 평가를 진행하였다. 형태학적 분석을 통해 PE의 코팅층은 약 30 μm , PP는 약 20, 개질 아크릴은 10 μm 의 코팅층 두께를 보여주었으며, 섬유조직 형태를 보여주던 대조군의 표면과 달리 배리어 코팅 종이는 코팅층으로 인하여 매끈한 표면 형태를 보여주었다. 기계적 물성 평가에서는 PE 코팅 종지와 개질 아크릴 코팅 종지에서 대조군이 비해 인장강도와 파열강도에서 개선되는 결과를 보여주었으며, PP 코팅 종지에서는 파열강도 외에 대조군과 유의적 차이를 보여주지 않았다. 공기 투기도 평가로 배리어 코팅층이 없는 대조군에서 약 2.24 $\mu\text{m}/\text{Pa}\cdot\text{s}$ 로 가장 높은 투기도 값을 보여주었으며, 배리어 코팅 종지의 경우 모두 0.003 $\mu\text{m}/\text{Pa}\cdot\text{s}$ 이하의 상대적으로 낮은 투기도 값을 보여주었다. 또한 Cobb 사이즈도 대조군에서 약 43.77 g/m^2 로 가장 높은 흡수 특성을 보였으며, 배리어 코팅 종이 시료에서는 2.80 g/m^2 이하의 흡수 특성을 보여주었다. 이는 이미 내수성 및 기계 차단 특성을 가진 고분자의 특성으로 종이의 차단 특성도 개선된 것으로 판단된다. 내유성 평가에서도 PE 코팅 종지와 PP 코팅 종지에서 최고 측정값인 12 등급으로 내유성이 높은 특징을 보여주었으며, 개질 아크릴 코팅 종지는 5 등급으로 PE, PP 코팅 종이 보다 상대적으로 낮은 내유성을 보여준 하였으며, 대조군은 0 등급으로 내유성이 없는 모습을 보여주었다. 코팅 처리별 종지의 재활용성 평가에서 대조군의 리젝트율은 5.25%로 모든 시료 중 미해리분이 가장 낮은 모습을 보여주었으며, PE 코팅 종지와 PP 코팅 종지는 각각 19.04%, 16.57%로 리젝트율이 증가함을 나타

냈다. 상대적으로 높은 리젝트율 값은 PE 코팅 종지와 PP 코팅 종지는 해리 시 코팅 층이 작은 크기로 조각나 미분화되어 슬릿에 걸러지는 것으로 확인하였으며, 이는 미해리분으로 인해 재활용에 어려움이 발생할 것으로 판단된다. 개질 아크릴 코팅 종지의 리젝트율은 6.25%로 대조군과 유사하게 미해리분 없이 스크린을 거의 통과되는 현상을 보여주었다. 이 결과는 개질 아크릴 수지의 수해리성이 높아 발생한 것으로 판단된다. PE 및 PP 코팅 종지에 비교하여 개질 아크릴 코팅 종이 재활용성 평가에서 더 효율적인 결과를 가짐을 나타내며, 추가 해리되어 스크린 업셋된 펄프 슬러리를 사용하여 제조한 재활용지에 대한 종지의 품질 변화는 향후 보강 연구가 필요할 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 2023년도 중소벤처기업부의 기술개발사업 지원에 의한 연구로 진행된 것으로 이에 감사드립니다. (S3144751)

참고문헌

- De Oliveira, W. Q., De Azeredo, H. M. C., Neri-Numa, I. A., and Pastore, G. M. 2021. Food packaging wastes amid the COVID-19 pandemic: Trends and challenges. *Trends Food Sci. Technol.* 116(1): 1195-1199.
- Ammar, A., Brach, M., Trabelsi, K., Chtourou, H., Boukhris, O., and Masmoudi, L. al. 2020. Effects of COVID-19 home confinement on eating behaviour and physical activity: Results of the ECLB-COVID19 international online survey. *Nutrients.* 12(6): 1583.
- Sheth, J. 2020. Impact of Covid-19 on consumer behavior: Will the old habits return or die? *J. Bus Res.* 117(1): 280-283.
- Resource Circulation Policy Division. 2020. Press release: Establishment of plastic lifecycle reduction and recycling measures. Ministry of environment, Seoul, Korea, pp. 1-10.
- Defruyt, S. 2019. Towards a new plastics economy. *Field Actions Sci. Rep.* 19(1): 78-81.
- Ibrahim, I. D., Hamam, Y., Sadiku, E. R., Ndambuki, J. M., Kupolati, W. K., Jamiru, T., Eze, A. A., and Snyman, J. 2022. Need for sustainable packaging: An overview. *Polymers (Basel).* 14(20): 4430.
- Mujtaba, M., Lipponen, J., Ojanen, M., Puttonen, S., and Vaitinen, H. 2022. Trends and challenges in the development of bio-based barrier coating materials for paper/cardboard food packaging; a review. *Sci Total Environ.* 851(1): 158328.
- Luzi, F., Torre, L., Kenny, J. M., and Puglia, D. 2019. Bio- and fossil-based polymeric blends and nanocomposites for packaging: Structure-property relationship. *Materials.* 12(3): 471.
- Paletta, A., Leal Filho, W., Balogun, A. L., Foschi, E., and Bonoli, A. 2019. Barriers and challenges to plastics valorisation in the context of a circular economy: Case studies from Italy. *J. Clean. Prod.* 241(1): 118149.
- Lee, J. M., Lee, Y. J., Son, Y. B., Kim, J. H., and Kim, J. H. 2022. Analysis of feasibility and reliability of the circulation screen test method for evaluation of recyclability of paper packaging materials. *J. Korea TAPPI.* 54(5): 66-77.
- Oloyede, O. O., and Lignou, S. 2021. Sustainable paper-based packaging: A consumer's perspective. *Foods.* 10(5): 1035.
- Oh, J., Shin, S. H., Kwon, S. J., Cho, A. R., Kim, S. J., Lee, Y. J., Jo, H., and Han, J. 2012. Evaluating safety of recycled and non-recycled paper-based box for food packaging. *Korean J. Packag. Sci. Tech.* 18(1): 27-32.
- Yu, H. K., Joo, M., Woo, J. H., Oh, J. Y., and Lim, H. S. 2021. A Study on the characteristics of paper-based packaging materials with bioplastics for Roasted Coffee Beans. *Korean J. Packag. Sci. Tech.* 27(1): 17-23.
- Kopacic, S., Walzl, A., Zankel, A., Leitner, E., and Bauer, W. 2018. Alginate and chitosan as a functional barrier for paper-based packaging materials. *Coatings.* 8(7): 235.
- De Feo, G., Ferrara, C., and Minichini, F. 2022. Comparison between the perceived and actual environmental sustainability of beverage packagings in glass, plastic, and aluminium. *J. Clean. Prod.* 333(1): 130158.
- Lee, K. S., Lee, C. W., Han, M. H., and Ryu, J. Y. 2020. Comparison of pulping characteristics of barrier coated papers by image evaluation. *J. Korea TAPPI.* 52(6): 94-102.
- Khwalidia, K., Arab-Tehrany, E., and Desobry, S. 2010. Biopolymer coatings on paper packaging materials. *Compr. Rev. Food Sci. Food Saf.* 9(1): 82-91.
- Korea Recycling Service Agency. 2015. Analysis of improvement of cartons recycling, Ministry of Environment, Seoul, Korea, pp. 1-16.
- Bakker, S., Kloos, J., Metselaar, G. A., Esteves, A. C. C., and Schenning, A. P. 2022. About Gas Barrier Performance and Recyclability of Waterborne Coatings on Paperboard. *Coatings.* 12(12): 1841.
- U.S. Food & Drug Administration. 2023. CFR - Code of Federal Regulations Title 21. Part 177 Indirect Food Additives: Polymers.
- Matloob, A., Ayub, H., Mohsin, M., Ambreen, S., Khan, F. A., Oranab, S., Rahim, A. Muhamad., Khalid, Waseem., Nayik, A. Gulzar., Ramniwas, Seema., and Ercisli, S. (2023). A Review on Edible Coatings and Films: Advances, Composition, Production Methods, and Safety Concerns. *ACS omega,* 8(32), 28932-28944.
- ISO 536. 2019. Paper and board - Determination of grammage.
- TAPPI T 402. 2021. Standard conditioning and testing atmospheres for paper, board, pulp handsheets, and related product.
- TAPPI T 494. 2022. Tensile properties of paper and paperboard (using constant rate of elongation apparatus).
- ISO 2758. 2014. Paper - Determination of bursting strength.
- TAPPI T 460. 2021. Air resistance of paper (Gurley method).
- TAPPI T 441. 2020. Water absorptiveness of sized (non-

- bibulous) paper, paperboard, and corrugated fiberboard (Cobb test).
28. Hubbe, M. A., and Pruszynski, P. 2020. Greaseproof paper products: A review emphasizing ecofriendly approaches. *Bio Resources*. 15(1): 1978-2004.
 29. UL 2485. 2018. Environmental Claim Validation Procedure (ECVP) for Recyclability of Paper-Based Products.
 30. Van der Harst, E., and Potting, J. 2013. A critical comparison of ten disposable cup LCAs. *Environ. Impact Assess Rev*. 43(1): 86-96.
 31. Triantafillopoulos, N., and Koukoulas, A. A. 2020. The future of single-use paper coffee cups: Current progress and outlook. *Bioresources*. 15(3): 7260-7287.
 32. Abderrahim, B., Abderrahman, E., Mohamed, A., Fatima, T., Abdesselam, T., and Krim, O. 2015. Kinetic thermal degradation of cellulose, polybutylene succinate and a green composite: comparative study. *World J. Environ. Eng*. 3(4): 95-110.
 33. Seo, J. H., Lee, D. J., Lee, M. K., and Ryu, J. Y., 2015. Evaluation of recyclability at varied blending ratios of gable top and aseptic brick carton, *J. Korea TAPPI*. 47(6): 123-129.
 34. Lee, H. S., Park, J. H., Yim, J. H., Seo, H. J., and Son, T. W., 2015. Preparation and properties of shape-stabilized phase change materials from UHMWPE and paraffin wax for latent heat storage, *Polym. (KOREA)*. 39(1): 23-32.
 35. Prabowo, I., Pratama, J. N., and Chalid, M. 2017. The effect of modified ijuk fibers to crystallinity of polypropylene composite. *IOP Conf. Ser., Mater. Sci. Eng.*, 223(1): 012020.
 36. Xiao, D., Chen, D., Zhou, Z., and Zhong, A. 2002. Three-group type mechanism in the curing behavior of polyacrylate and blocked toluene diisocyanate. *J. Appl. Polym. Sci*. 83(1): 112-120.
 37. Sugumaran, D., and Karim, K. J. A. 2017. Removal of copper (II) ion using chitosan-graft-poly (methyl methacrylate) as adsorbent. *Eproc. Chem*, 2(1): 1-11.
 38. Kim, E., and Won, J. 2002. Effect of pulp pressing conditions and drying temperature on dissociation characteristics and paper physical properties. 2002 Proceeding of Spring Conference of the Korea Technical Association of the Pulp and Paper Industry, Seoul, Korea, PP. 70-74.
 39. Ramos, A., Sousa, S., Evtuguin, D. V., and Gamelas, J. A. 2017. Functionalized xylans in the production of xylan-coated paper laminates. *React. Funct. Polym*. 117(1): 89-96.
 40. Kim, S. G., Jeong, K. M., and Lee, Y. K. 2020. Effective use of binder composition in functional coating (I): Flow characteristics of coating dispersion and properties of coated paper. *J. Korea TAPPI*. 52(4): 52-62.
 41. Lee, Y. J., Lim, D. G., Son, Y. B., Lee, J. M., Park, N. Y., and Kim, H. J. 2021. The evaluation of recyclability with the barrier properties of paper based packaging material. *J. Korea TAPPI*. 53(6): 157-165.
 42. Fenouillot, F., Cassagnau, P., and Majesté, J. C. 2009. Uneven distribution of nanoparticles in immiscible fluids: Morphology development in polymer blends. *Polymer*. 50(6): 1333-1350.
 43. Ruzi, M., Celik, N., and Onses, M. S. 2022. Superhydrophobic coatings for food packaging applications: A review. *Food Packag. Shelf Life*. 32(1): 100823.
 44. Wang, F. J., Wang, L. Q., Zhang, X. C., Ma, S. F., and Zhao, Z. C. 2022. Enhancement of oil resistance of cellulose packaging paper for food application by coating with materials derived from natural polymers. *J. Food Eng*, 332(1): 111039.
- 투고: 2023.09.07 / 심사완료: 2023.09.18 / 게재확정: 2023.10.17