

침엽수 미표백 크라프트펄프와 재생고지를 이용한 단층지와 이층지의 물성 연구

박 용*¹ · 이 학 래*¹

Properties of Single- and Two-layered Handsheets Formed with Sw-UKP and OCC

Yong Park*¹ and Hak Lae Lee*¹

ABSTRACT

Exploitation of the papermaking technology to reduce the strength loss that accompanies when using recycled papers as raw materials for papermaking is one of the most important issues imposed upon today's paper industry. Multi-layer sheet forming technology has been suggested as a way that provides some answers to this issue. In this study strength properties of single- and two-layer handsheets formed with recycled fiber and unbleached softwood kraft pulp have been examined to quantify the benefits when using two-layer sheet forming technology rather than a conventional single layer sheet forming process.

Single- and two-layer handsheets were made from 50% of OCC and 50% of Sw-UKP and their strength properties were evaluated. Also the strength properties made from Sw-UKP and OCC sheets were determined. A multihead, which can be attached on the top of hand-sheet former, was used to form two-layer sheets.

Maximum strength properties could be obtained in the freeness range of 500~300mL CSF for Sw-UKP. Most of the strength properties was reduced by 30~35% when 50% OCC was blended with UKP. Decrease of strength properties, however, could be reduced by employing a two-layer sheet forming method. Greater strengths could be obtained when UKP was positioned at the top layer of two layered sheets indicating greater UKP fines retention due to the filtration effect of the OCC layer formed prior to UKP layer contributed the strength improvement.

Two-layer sheet showed lower Scott internal bond strength than single layer sheet. By incorporating some of UKP fibers into OCC layer this reduction could be reduced.

1. 서론

최근들어 제지원료의 재활용을 통한 제지산업의

경제성 확보와 환경보호에 대한 관심이 높아지면서 재활용 섬유자원의 이용을 극대화함과 동시에 종이의 외양과 강도를 유지할 수 있는 방안이 대

*1 서울대학교 농업생명과학대학 임산공학과 (Department of Forest Products, College of Agriculture and Life Sciences, Seoul National University, Suwon, 441-744, Rep. of Korea).

한 연구가 관심을 모으고 있다. 특히 원료의 고지 의존도가 높은 라이너지나 골심지 분야에 있어서는 고지 활용율을 제고함과 동시에 품질을 최적화할 수 있도록 많은 노력을 기울여야 할 시점에 도달하였다고 믿어진다. 이를 위해서는 펄프 섬유의 재활용에 수반되어 나타나는 강도저하 현상을 극복하기 위한 기술 개발이 시급히 요청되고 있다. 재활용에 따라 발생하는 강도저하를 극복하기 위한 방안으로는 고지펄프에 함유된 불순물 제거공정을 강화하는 방안, 섬유분급과 고해처리 기술을 활용하는 방안, 다겹초지 혹은 다층초지 기술을 활용하는 방안 등이 제시된 바 있다.¹⁻³⁾

다겹지(multi-ply sheet) 초지방식이란 8~12%의 농도로 탈수된 지필을 서로 합지시키는 초지방식을 말하며, 다층지(multi-layer sheet) 초지방식이란 다중 채널 헤드박스를 이용하여 서로 다른 지료를 사출과 동시에 탈수하여 초지하는 방식, 혹은 일단 형성된 습지상에 새로운 지료를 사출하여 초지하는 방식을 말한다. 이러한 다겹지나 다층지 초지방식은 하나의 지필에 여러 종류의 펄프를 제품의 품질 요구특성에 알맞도록 적절히 위치시킴으로써 원료 활용을 최적화할 수 있다는 장점을 가지고 있다.⁴⁻⁶⁾ 다중 채널 헤드박스를 이용한 다층지는 주로 화장지 분야에 널리 이용되어 왔으나 최근들어 인쇄용지나 라이너지에도 적용되기 시작하고 있으며, 다수의 헤드박스를 이용한 다층초지 기술은 표면층에는 품질이 우수한 고지를, 이면층에는 혼합고지를 적용하는 이층지 제조방식 등을 통하여 산업용지 분야에 주로 응용되고 있다. 최근 유럽에서는 이러한 기술을 활용하여 고지 100%를 사용하여 품질이 우수한 테스트 라이너를 생산하고 있다.⁷⁾ 또 다층초지 기술을 응용할 경우 단층지에 비해 우수한 강도적 특성을 얻을 수 있으므로 고지 활용율을 증가시킬 수 있을 뿐만 아니라, 쌍망초지기를 사용할 경우에는

초지속도 상승 및 지합 개선 효과도 얻을 수 있다.^{8,9)}

본 연구에서는 산업용지 생산시 고지 활용율을 극대화할 수 있는 기술의 하나로 다층초지 기술의 적용 가능성을 평가하고자 침엽수 미표백 크라프트펄프와 OCC를 이용하여 단층지와 이층지를 제조하고 이들의 제반 강도적 성질을 비교하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 재료

본 연구에서는 침엽수 미표백 크라프트펄프(unbleached kraft pulp: UKP)와 미국산 OCC(old corrugated container) 20%와 국산 OCC 80%로 제조된 라이너지를 각각 UKP 및 OCC 원료로 사용하였다.

UKP 펄프는 Valley beater를 이용하여 농도 1.57%의 조건에서 여수도가 600, 500, 400, 300, 200mL CSF가 되도록 고해한 다음 평량 100g/m²이 되도록 수초지하여 물성을 측정하였다. 또 고해된 UKP 지료의 평균섬유장은 Kajaani FS-100을 이용하여 측정하고 그 결과를 Table 1에 나타내었다.

OCC는 실험실용 고농도 펄퍼를 이용하여 농도 10%에서 30분간 해리한 후 폭 0.15mm인 슬릿형 Sommerville 플랫 스크린으로 처리하여 미해리분과 불순물을 제거하였다. C-stain으로 분석한 결과 OCC는 침엽수 미표백 크라프트펄프와 활엽수 반화학 펄프로 구성되어 있었으며 이 밖에 미세분과 이물질도 함유되어 있었다. OCC 지료의 평균섬유장, 회분함량, 여수도 및 비용적은 Table 2에 나타내었다.

Table 1. Fiber length of UKP

Freeness (mL CSF)	Weighted average fiber length (mm)	Arithmetic average fiber length (mm)
600	2.16	1.24
500	2.14	1.11
400	2.02	0.96
300	1.79	0.93
200	1.65	0.87

Table 2. Properties of OCC

Weighted average fiber length, mm	1.28
Ash content, %	4.13
Freeness, mL CSF	370
Bulk, cm ³ /g	1.80

2.2 방법

UKP와 OCC가 각각 50% 혼합초지된 단층지의 물성을 조사하기 위해 UKP를 여수도 550, 500, 450, 300 및 350mL CSF가 되도록 고해한 뒤 OCC 지료를 혼합하여 평량 100g/m²이 되도록 수초지하였다. 또 UKP와 OCC의 혼합비에 따른 단층지의 물성을 평가하기 위해 UKP의 고해도를 450mL CSF로 일정하게 유지시킨 지료에 해리된 OCC의 비율을 25%, 50%, 75%로 변화시켜 수초지하였다.

이층지는 다층초지용 멀티헤드^{10,11)}를 이용하여 제조하였다. 이층지 제조용 원료로는 고해도 550, 500, 450, 400, 350mL CSF의 UKP와 OCC를 이용하였다. 이층지는 먼저 OCC를 원형 수초지기 안에 분산시키고 곧 이어 수초지기 위에 멀티헤드를 장착한 다음, 멀티헤드에 물을 채우고 UKP 지료를 넣은 후 약 4초간 UKP가 멀티헤드 내에서 고르게 분산되도록 하고 탈수시키는 방법을 활용하였다. 따라서 이와 같이 제조된 이층지의 표면층은 UKP로 이면층은 OCC로 구성되었다. 이층지 제조시 두 펄프의 비율은 50:50이 되도록 하였으며, 평량은 100g/m²이 되도록 하였다. 또 이층지의 원료 조성에 따른 물성을 평가하기 위해 고해도 450mL CSF인 UKP에 OCC의 비율을 25%와 75%로 변화시킨 이층지를 위와 같은 방법으로 제조하였다.

이층지의 초지방식에 따른 물성을 비교하기 위해 UKP를 표면층에 위치시키는 방법, OCC를 표면층에 위치시키는 방법, 그리고 표면층에 UKP를 25% 적용하고 이면층에 UKP 25%와 OCC 50% 혼합하는 방법을 이용하여 초지하고 이들의 물성을 평가하였다.

초지된 종이는 온도 23℃, 관계습도 50%로 유지되는 항온항습실에서 24시간 조습처리한 후 인장강도, 신장률, TEA(tensile energy absorption), 파열강도, 인열강도, zero-span 인장강도

및 Scott 내부결합강도를 측정하였다.

이층지의 층간 분리특성을 평가하기 위하여 UKP와 OCC를 각각 푸른색 염료(direct sky blue 5B)와 붉은색 염료(direct fast red 5B)로 염색하고, 염색된 섬유로 이층지를 초지하여 그 단면을 광학현미경으로 확인하였다. 그 결과 본 연구에 사용한 이층지 제조방법은 매우 효과적임이 확인되었다. 또 염색된 UKP와 OCC 섬유를 이용하여 멀티헤드가 장착된 수초지기로 제조한 이층지의 Scott 내부결합강도를 측정 후 분리된 양면을 현미경으로 관찰한 결과 경계층에서 주로 파괴가 발생한다는 것을 확인할 수 있었으며, 부분적으로는 OCC 층에서도 분리가 발생함을 알 수 있었다.

3. 결과 및 고찰

3.1 단층지의 물성

3.1.1 UKP 단층지

UKP의 고해도에 따른 열단장, 신장률 및 인장에너지흡수(TEA)를 측정하고 이를 Fig. 1에 나타내었다. 여기에서 보는 것과 같이 UKP로 제조된 단층지의 열단장은 여수도가 감소함에 따라 증가하여, 여수도 300mL CSF에서 최고치를 나타내었으며, 여수도 값이 이보다 낮아질 경우 다시 감소하였다. 또 신장률은 여수도가 500mL CSF에서 최대값을 나타낸 후 고해도가 증가함에 따라서 지속적으로 감소하였다. 인장강도와 신장률의 복합작용으로 발생하는 TEA는 여수도 300~500mL CSF에서 높게 나타났다.

고해에 의해 섬유에 내부 및 외부피브릴화가 발생하고 미세분 함량이 증가함에 따라 섬유간 결합이 증대되므로 여수도가 300mL CSF까지 저하되면 고해에 수반되어 발생하는 섬유 자체의 손상에도 불구하고 인장강도가 증가하였으나, 고해가 더욱 진행되어 여수도가 300mL CSF보다 낮아지면 인장강도가 감소하였다. 이는 여수도가 300mL CSF보다 낮아질 경우에는 고해에 의한 섬유간 결합 증진효과에 비하여 섬유 자체의 손상이 더욱 크게 발생하기 때문이라고 생각된다.

UKP의 여수도에 따른 zero-span 인장강도와 Scott 내부결합강도는 Fig. 2에 도시하였다. 여

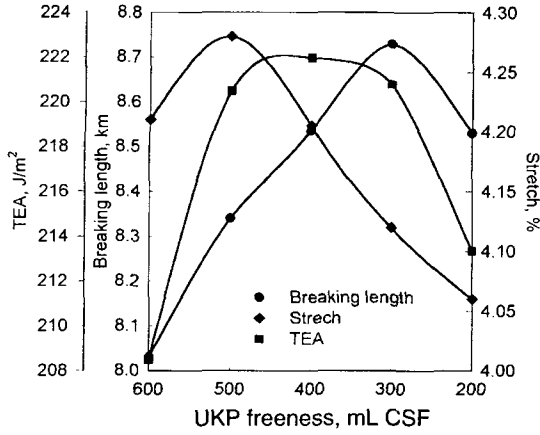


Fig. 1. Effects of freeness of UKP on breaking length, stretch, and TEA.

기에서 보는 것과 같이 zero-span 인장강도는 UKP 여수도 600~200mL CSF 구간에서 계속적으로 감소하였으며, 내부결합강도는 이와 반대로 여수도가 감소할수록 지속적으로 증가하였다.

UKP로 제조된 단층지의 파열지수는 여수도가 600mL CSF인 경우 7.3kPa · m²/g을 나타내었으나 여수도가 500 mL CSF로 낮아지면 급속히 8.7kPa · m²/g로 증가한 후 거의 일정하게 유지되었다. 인열강도는 Fig. 3에서 보는 것과 같이 UKP의 고해도가 높아질수록 감소하였다. 특히 여수도가 300mL CSF 이하로 낮아지면 인열강도는 급격히 저하되었다.

이는 고해에 따라 섬유장 감소와 섬유의 손상이 증가하지만 섬유간 결합은 증진되어 인열과괴시 섬유가 뽑히는 현상보다 절단되는 현상이 더욱 크게 나타난 때문으로 해석된다.¹²⁾ Fig. 3에서 보는 것과 같이 비용적 역시 인열강도와 같이 여수도가 낮아질수록 직선적으로 감소되었다.

3. 1. 2 OCC 단층지

OCC를 이용하여 제조된 평량 100g/m²인 종이의 강도적 특성은 Table 3에 나타내었다. 여기에서 보는 바와 같이 OCC 단층지의 열단장은 3.55km, 내부결합강도는 186.06kJ/m²로 UKP 단층지에 비해 크게 낮았다.

이는 재활용에 따라 발생하는 섬유의 각질화에

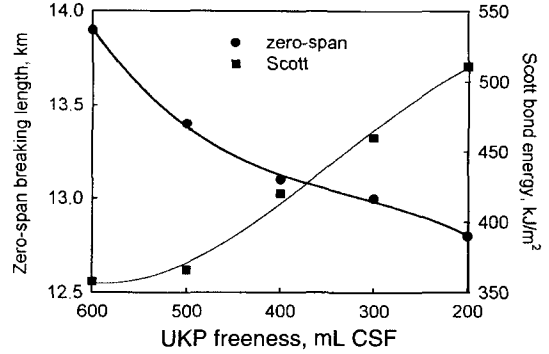


Fig. 2. Effects of freeness of UKP on zero-span breaking length and Scott internal bond energy.

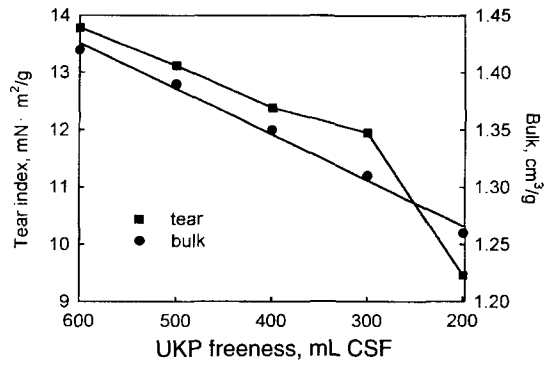


Fig. 3. Effect of freeness of UKP on tear strength and bulk.

Table 3. Strength properties of OCC sheets (100g/m²)

Breaking length, km	3.55
Stretch, %	3.40
TEA, J/m ²	80.67
Burst index, kPa · m ² /g	2.88
Tear index, mN · m ² /g	10.95
Zero-span breaking length, km	9.39
Scott internal bond, kJ/m ²	186.06

의해서 OCC 섬유의 유연성이 저하되었으며 재생 처리 과정에서도 섬유의 절단과 손상이 크게 발생하였기 때문이다.

3.2 단층지와 이층지의 물성 비교

3.2.1 인장강도, 신장률 및 TEA

앞에서 살펴본 UKP 단층지의 연구결과 및 다층지 제조시에는 침엽수 미표백 크라프트펄프의 고해도를 500~400 mL CSF 수준으로 조절하는 것이 적당하다는 보고^{4,5,13-15)}에 따라서 여수도 550, 500, 450, 400 및 350mL CSF인 UKP와 OCC를 각각 50% 사용하여 단층지와 이층지를 제조하고 이들의 물성을 비교하였다.

Fig. 4에서 보는 바와 같이 UKP와 OCC를 각각 50%씩 활용하여 초지한 단층지와 이층지 모두 UKP의 고해도가 높아질수록 열단장이 증가되었으나 UKP만으로 초지한 경우에 비해 크게 낮았으며, OCC만으로 초지된 경우보다는 높게 나타났다. 또 단층지보다 이층지의 열단장이 0.4~0.7km 높게 나타나 이층지가 단층지에 비해서 강도적 특성이 우수하다는 것을 알 수 있었다.

이는 전술한 바와 같이 이층지의 표면층은 UKP로, 이면층은 OCC로 구성하였기 때문에 표면층 UKP의 미세분 보류도가 OCC 이면층에 의한 여과작용에 의해 증가되었을 뿐 아니라 OCC에 함유된 이물질에 의한 결합 발생 요인이 감소된 때문이라 생각된다. 이층지 라이너보드에 관해 연구한 Page⁷⁾는 단층지에 비해 이층지의 강도적 성질이 향상되는 원인은 미세분 함량이 이층지에서 더 높기 때문이라고 밝힌 바 있다. 또

본 실험에 사용된 OCC에는 이물질이 함유되어 있어 OCC만으로 초지할 경우 지층의 한 부분에 전체 두께 방향에 걸쳐 결합을 나타내는 경우도 있었다. 하지만 이층지를 제조할 경우에는 표면층에 위치한 UKP에 의해 이러한 결합이 발생하는 것을 방지할 수 있었다.

Fig. 1에서 본 바와 같이 UKP만으로 초지한 종이는 여수도가 500mL CSF 이하로 낮아지면 신장률이 감소하였지만 OCC가 혼합되면 UKP의 고해도가 400mL CSF에 도달할 때까지 신장률이 증가하였다. 이는 OCC가 UKP에 비해 섬유간 결합력이 낮은 때문이라 생각된다. 그 결과 Fig. 5에서 보는 것과 같이 TEA는 UKP의 여수도가 400mL CSF에 도달할 때까지 증가한 다음 약간 감소하는 경향을 보였다.

3.2.2 Zero-span 인장강도 및 내부결합강도

OCC와 고해도 450mL CSF인 UKP를 50:50 비율로 혼합 초지한 단층지와 이층지의 zero-span 인장강도는 단층지보다 이층지가 높게 나타났다(Fig. 6).

이층지의 내부결합강도는 표면층과 이면층의 펄프 종류가 다르므로 Scott 내부결합강도 측정시 경계층 주변에서 분리되어 단층지의 내부결합강도보다 낮게 나타났다(Fig. 7). 하지만 OCC만으로 초지한 종이에 비해서는 높은 내부결합강도를 나타내었다. 이는 UKP 섬유간에 형성되는 결합력이 가장 크며, UKP와 OCC 섬유간 결합

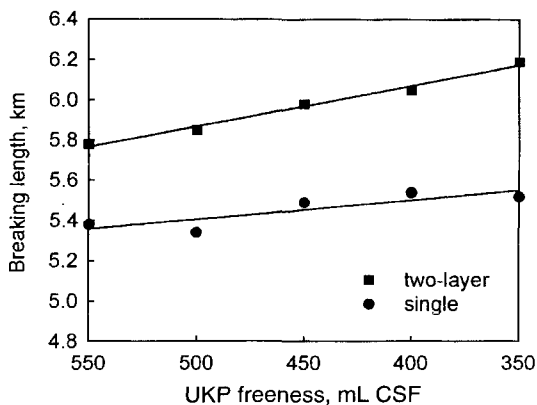


Fig. 4. Breaking length of single- and two-layer sheets.

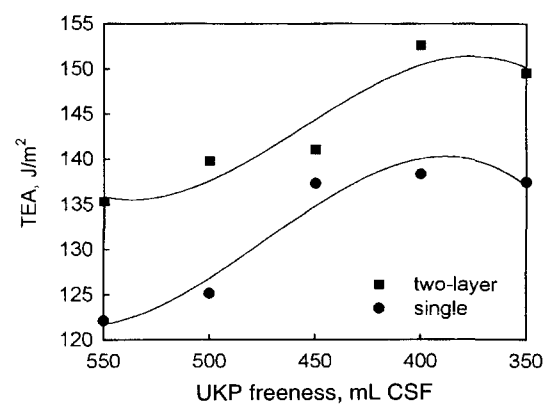


Fig. 5. TEA of single- and two-layer sheets.

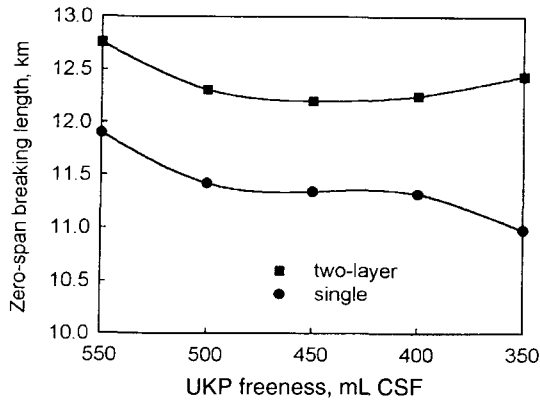


Fig. 6. Zero-span breaking length of single- and two-layer sheets.

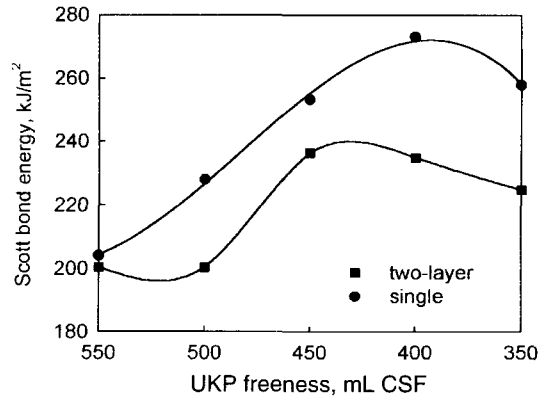


Fig. 7. Scott bond energy of single- and two-layer sheets.

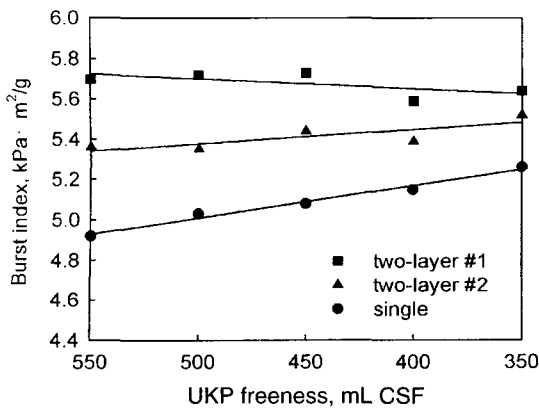


Fig. 8. Burst strength of single- and two-layer sheets.

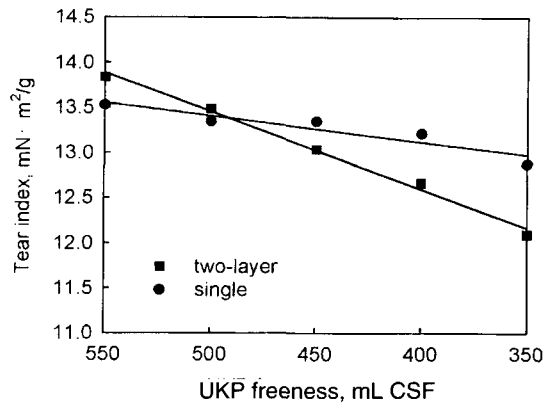


Fig. 9. Tear strength of single- and two-layer sheets.

력, OCC 섬유간 결합력순으로 결합력이 저하된다는 것을 보여 주고 있다.

UKP와 OCC로 혼합초지된 단층지의 zero-span 인장강도는 UKP만으로 초지한 경우에 비해 13% 저하되었으나, 내부결합강도는 32% 감소하여 큰 차이를 나타냈다. 이는 OCC의 혼합에 따라 발생하는 인장강도의 감소는 주로 섬유간 결합력의 감소에 기인함을 시사하고 있다.

3.2.3 파열강도

UKP:OCC를 50:50 비율로 제조한 단층지와 이층지의 파열강도는 Fig. 8에 나타내었다. 여기에서 볼 수 있는 바와 같이 단층지보다는 이층지

의 파열강도가 7~16% 높게 나타났다. 또 이층지라도 파열강도 측정시 시편 장착방향에 따라서 강도가 다르게 나타났다. 즉, Fig. 8에서 보는 것과 같이 이층지의 UKP층이 파열강도 측정기의 고무 다이아프램과 접하도록 시편을 장착한 경우 (two-layer #1)의 파열강도가 반대의 경우에 비해서 높았다.

3.2.4 인열강도

단층지와 이층지의 인열강도나 인장강도와 파열강도와 달리 UKP의 여수도가 500~450mL CSF에서 역전되어 단층지가 높은 경향을 보였다 (Fig. 9).

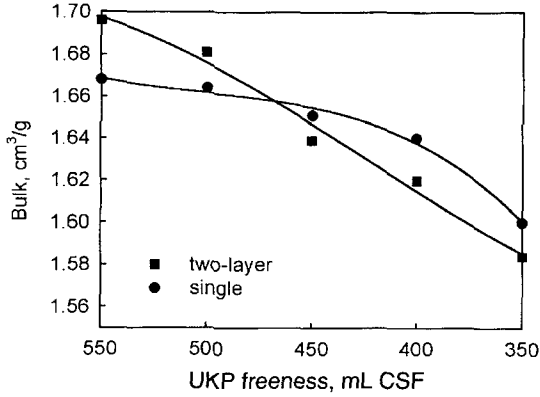


Fig. 10. Bulk of single- and two-layer sheets.

특히 인열강도는 UKP만으로 초지한 경우에 비해(Fig. 3) OCC가 50% 혼합된 경우 오히려 약간 높은 강도값을 보였다. 이러한 결과는 OCC가 혼합되면서 비용적이 UKP의 1.2배 정도로 증가했기 때문으로 생각된다(Fig. 3, Fig. 10). Fig. 10에서 보는 것과 같이 인열강도와 마찬가지로 UKP의 여수도가 470mL CSF 수준에서 단층지와 이층지의 비용적이 역전되었으며 이는 인열강도는 종이의 비용적과 특히 밀접한 관계를 갖는다는 사실을 보여주는 것으로 생각된다.

3.3 이층지의 구성에 따른 물성 변화

고해도가 450mL CSF인 UKP를 이층지의 이면층에 위치시키면 UKP를 표면층에 위치시킨 경우에 비하여 강도적 성질이 낮게 나타났다

(Table 4). 특히 인장강도, 파열강도, zero-span 인장강도는 단층지 수준으로 저하되었으며, 내부결합강도는 가장 크게 감소하였다.

한편, 이층지의 결점인 층간 결합강도를 증진시키기 위해 표면층은 UKP 25%만으로 구성하고 이면층에 OCC 50%와 UKP 25%를 균일하게 혼합하여 초지한 결과 Table 4에서 보는 것과 같이 층간 결합력을 개선할 수 있었다. 이는 같은 원료 구성비를 갖는 이층지라도 두 층간의 원료조성을 완만히 변화시키면 층간 결합력을 증가시킬 수 있다는 것을 보여주고 있다. 하지만 이 경우 인장강도는 단층지의 강도보다 오히려 낮게 나타났는데, 이는 주로 비용적이 1.71cm³/g으로 높아진 때문이라 생각된다.

3.4 OCC의 혼합비에 따른 단층지와 이층지의 물성

UKP와 OCC의 혼합비를 달리한 단층지와 이층지의 인장강도는 Fig. 11에서 보는 바와 같이 OCC의 함량이 높아짐에 따라 선형적으로 감소하였으나 전반적으로 이층지가 단층지보다 약 10% 정도 높은 강도를 나타내었다.

하지만 OCC 또는 UKP만으로 초지한 경우에는 단층지의 강도가 이층지의 강도보다 높게 나타났다. 이는 한 가지 원료를 이용하여 이층지 초지 방법으로 초지할 경우에는 초지시 농도가 낮아져 탈수과정에서 미세분의 유실이 증가하였기 때문이라고 생각된다. 이는 한 가지 원료로 초지된 이층지와 단층지의 결보기밀도를 측정할 결과 이층지에 비해 단층지의 밀도가 0.1g/cm³ 정도 높게

Table 4. Strength properties of two-layer sheets(100g/m²)

Sheet structure	Top:OCC 50%	Top:UKP 25%
	Bottom:UKP 50%	Bottom:UKP 25% OCC 50%
Strength properties		
Breaking length. km	5.57	5.37
Stretch, %	3.42	3.77
TEA. J/m²	128.33	136.89
Burst index. kPa · m²/g	5.00	5.60
Tear index. mN · m²/g	11.55	15.75
Zero-span breaking length. km	11.04	11.90
Scott internal bond. kJ/m²	209.79	248.00

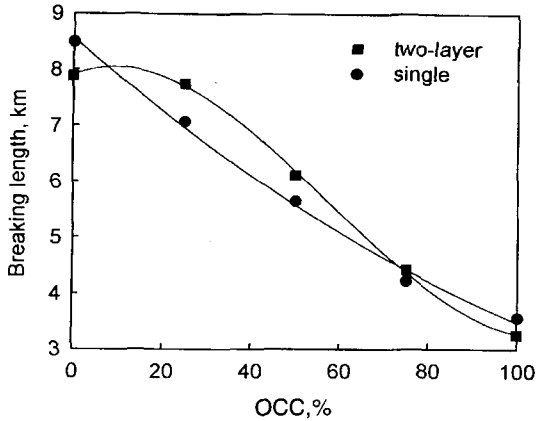


Fig. 11. Effects of OCC contents on breaking length.

나타났다는 사실에서도 확인할 수 있었다.

4. 결론

본 연구에서는 산업용지 생산 시 고지 활용율을 극대화할 수 있는 기술의 하나로 다층초지 기술의 적용 가능성을 평가하고자 침엽수 미표백 크라프트 펄프와 OCC를 이용하여 단층지와 이층지를 제조하고 이들의 제반 강도적 성질을 비교하였다.

그 결과 여수도가 450mL CSF인 UKP와 OCC를 50:50의 비율로 혼합하여 초지한 단층지에 비하여 UKP를 표면층에, OCC를 이면층에 위치시킨 이층지의 인장강도와 파열강도가 약 10% 높게 나타났다. 또 동일한 이층지라도 표면층에 UKP를, 이면층에 OCC를 위치시킨 경우 UKP 미세분 보류도가 증가하여 강도적 성질이 개선되었다. 하지만 내부결합강도와 인열강도는 단층지가 높게 나타났다.

이층지의 이면층에 일정량의 UKP를 OCC와 혼합 적용하면 이층지의 내부결합강도를 개선할 수 있었으나 이 경우 다른 강도적 성질들은 소폭 저하되었다.

UKP와 OCC의 혼용 비율을 변화시킨 경우

OCC의 함량이 높아질수록 직선적으로 강도가 저하되었으나 단층지에 비해 이층지의 강도가 높게 나타났다. 하지만 UKP 혹은 OCC만으로 초지한 종이의 경우 단층지의 강도가 이층지에 비해 우수하였다.

인용문헌

1. Defoe, R. J., Tappi J., 76(2):157(1993).
2. Ashburn, M. J., Appita 40(6):431(1987).
3. Koning, J.W. Jr. and Godshall, W.D., Tappi 58(9):146(1975).
4. Stöckmann, V.E., Tappi 57(10):108~110 (1974).
5. Erickson, L.D., Tappi 60(10):113~116 (1977).
6. Harwood, J. W., Tappi J., 73(5):115~122 (1990).
7. Page, R.E. and Hergert, R.E., Appita 42(1): 33~41(1989).
8. Mckinney, R.W.J., Wastepaper use in packaging papers, in "Technology of Paper Recycling", Blackie Academic & Professional, London, p. 251(1995).
9. Justus, E.J. and Gustafson, D.R., Tappi 57(8):89~92(1974).
10. Nanko, H., Japan Tappi 62(3):40~54 (1987).
11. 남기영. 단층지 및 다층지의 내부응력과 물성. 강원대 석사학위논문 (1994).
12. Lyne, M. B., Jackson, M., and Ranger, A. E., Tappi 55(6):924 (1972).
13. Jones, G.L. and Pet j, P.H., 1994 Papermakers Conference Proceedings", TAPPI Press, Atlanta, p. 275(1994).
14. Hamerstrand, G.E., Smith, H.E., Gordon, S. H., Schulte, M.I., and Russell, C.R., Tappi 60(1):131(1979).
15. Hatton, J.V. and Samkova, M., Tappi 55(1): 93(1972).