

제지공정 섬유상 원재료 및 공정 첨가제의 환경오염 부하 분석

김형진[†] · 신동욱

(2005년 5월 27일 접수: 2005년 8월 10일 채택)

The Analysis of Environmental Impact Load by Fibrous Raw Materials and Wet-end Additives in Papermaking Process

Hyoung Jin Kim[†] and Dong Uk Shin

(Received on May 27, 2005: Accepted on August 10, 2005)

ABSTRACT

It is generally known that paper industry is the second largest industry in the use of process water, and also have the highest environmental impact load in the contaminant sources. Paper is produced from the mixtures composed of 1% fibrous raw materials and 99% water. The optimum use of process water effects on the quality properties of paper and the environmental impact load of waste water treatment. In this research, the kinds of fibrous raw material & additives used in the paperboard production line were investigated, and the quantification of environmental loads and the environmental effects of process water on COD potential were evaluated. The NBDCODs were also analyzed from process water by the method of waste water treatment in paper mill and applied for the optimum use of recycling water, and zero effluent process.

In the fibrous raw materials, KOCC caused the highest COD potentials, and sack paper & UKP was comparatively low. The NBDCOD of KOCC largely reduced after biological treatment because of easily biodegradable properties, but AOCC contained non-biodegradable materials. In chemical additives, COD was high in turns of rosin>starch>deaeration agent>dye, NBDCOD greatly reduced in starch and deaeration agent. In the case of 2 kinds of paperboard product, the COD potentials was mainly high in starch, AOCC

• 본 연구는 2004 국민대학교 교내연구비 지원에 의하여 수행되었음.
• 국민대학교 임산공학과(Department of Forest Products, Kookmin University, Seoul 136-702, Korea)
† 주저자(Corresponding author) : E-mail: hjikim@kookmin.ac.kr

and KOCC.

Keywords : *senvironmental impact load, fibrous raw material, wet-end additives, COD, NBDCOD, papermaking process, paperboard*

1. 서론

우리나라의 지류 총생산량은 지속적인 경기침체 여부에도 불구하고 2004년말 기준 10,511천 톤으로서 전년도 총생산량 10,148천 톤 대비 소폭의 생산량 증가를 이룩하였으며 지난 10년간 지속적인 성장을 유지해 왔다. 그러나 세계 8위의 지류 생산량 규모에 비해 펄프 생산량은 534천 톤으로서 섬유상 원료의 자급율은 극히 낮은 실정이며 원료 수급 측면에서의 심각한 불균형을 초래하고 있는 실정이다.^{1~4)} 또한 제지 산업은 금속 산업 다음으로 다량의 용수를 사용하는 산업으로 분류되고 있으며 업종별 용, 폐수의 성상에 있어서 오염발생 부하가 가장 높은 특성을 지니고 있다.

종이제조 과정에서 공정수의 성상은 섬유상 주원료의 특성 못지않게 매우 중요한 공정 인자 중 하나로 간주된다.⁵⁾ 용수는 제지공정의 흐름계를 따라 섬유상 원료의 이송 및 초지계의 공정작용에 따른 희석, 농축, 습부용 공정 첨가제의 화학적 반응에 이르기 까지 필수불가결한 요소로 간주된다. 일반적으로 1%의 원료와 99%의 물이 혼합되어 최종제품으로 이루어지는 공정 특성을 지니고 있기 때문에 적절한 용수의 사용이 제품생산 및 품질 뿐만 아니라 폐수처리장의 환경부하를 가중시키는 결과를 초래하기도 한다.⁶⁾

최근 들어 물 부족 현상이 심화되고 있고 더불어 폐수배출기준 또한 강화되고 있는 실정으로서 우리나라 대부분의 제지공장은 공업용수 사용에 대한 부담과 방류수 배출에 대한 분담금을 부과하고 있으며, 이러한 현실이 장기간 침체국면을 벗어나지 못하고 있는 경제여건에 부가되어 제지산업에 진퇴양난의 위기로 작용할 수 있다고 예상된다. 그러므로 용수 사용량의 절감 및 공정용수와 방류수의 배출 오염부하를 절감할 수 있는 체계적인 공정관리 방안이 절실히 요구되고 있으며, 공정 최적화를 위

한 단위공정의 연구 및 백수공정 폐쇄화를 위한 공정 첨가제 오염부하 절감방안에 대한 많은 연구가 이루어지고 있다.^{7~11)}

따라서 본 연구에서는 판지생산 공정에서의 섬유상 물질 및 공정 첨가제의 종류 및 이들에 대한 환경부하의 정량적 분석을 행하고자 하였으며, 이를 토대로 한 오염원의 기여도를 분석하고 발생폐수의 COD 및 방류수 COD의 환경영향 특성을 평가하고자 하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 공정 원, 부재료

2.1.1 펄프 및 폐지

섬유상 원료의 분석에 사용한 펄프 및 폐지는 국내 H사의 판지제조 공정에 사용하고 있는 현장 원료로서 미표백 크라프트펄프 및 국산폐지와 미국산 폐지를 분양받아 사용하였다. 국산 폐지는 등급에 따라 상급 골판지 폐지와 하급 혼합골판지 폐지 및 지대폐지 등을 사용하였으며, 미국산 폐지는 상급 골판지 폐지와 하급 골판지 폐지(Table 1)로 구분하여 사용하였다. H사의 판지제조공정은 국내산 골판지 폐지를 약 70% 정도 사용하였으며, 일부 고강도용 지종 및 판지의 표면층에 미국산 수입 골판지 폐지 및 미표백 크라프트를 사용하였다.

Table 1. Kinds of fibrous raw materials

| Fibrous materials | Property | Remark |
|-------------------|---------------------------|---------|
| KOCC | upper grade, classified | KOCC(U) |
| | lower grade, unclassified | KOCC(L) |
| AOCC | upper grade, classified | AOCC(U) |
| | lower grade, unclassified | AOCC(L) |
| Sack | sack waste | Sack |
| UKP | unbleached kraft pulp | UKP |

Table 2. Kinds of chemical additives

| Additives | Appearance | Additives | Appearance |
|----------------|--------------|----------------|------------|
| Rosin | liquid, 50% | Starch | powder |
| Alum | liquid, 7.5% | Deaeration | liquid |
| WSR (Anion) | liquid, 15% | Felt washing A | liquid |
| WSR (Cation) | liquid, 8% | Felt washing B | liquid |
| Retention aids | liquid, 10% | Dye | powder |
| Slime control | liquid | | |

2.1.2 공정 첨가제

습부용 공정 첨가제로서 사용한 chemicals은 판지제조 공정에서 사이즈 및 지력증강, 보류향상, 펄트 세척, 슬라임 조절 등에 사용하고 있는 것으로서, H사의 대표 생산지종 2종류에 주로 첨가하고 있는 약 10종류의 약품을 선택하여 분석하였다. 실험에 사용한 공정 첨가제의 종류 및 성상을 Table 2에 나타냈다.

2.2 원, 부재료의 환경분석

2.2.1 공시펄프 및 폐지의 COD 분석

판지제조공정에 이용하고 있는 미표백크라프트 펄프 및 국산폐지 3종류 (상급 KOCC, 하급 KOCC, 지대용 폐지), 수입폐지 2종류를 사용하여 섬유상 원료 자체가 지니고 있는 COD부하를 측정하였다. 섬유상 원료의 오염부하를 측정하기 위하여 Table 3에서와 같이 H사의 현장 펄핑 조건에 따라 실험실용 펄퍼를 이용하여 펄프 및 폐지의 repulping 처리를 행하였으며 Whatman GF/C Filter로 여과한 후 그 여액의 COD를 측정하였다. 펄퍼 희석수로는 백수가 가지고 있는 COD의 영향을 없애고 섬유상 원재료 자체가 유발하는 COD만을 측정하기 위하여 백수대신 증류수를 사용하였

Table 3. Repulping conditions of UKP and waste paper

| | |
|---------------------|------------|
| Puling temperature | 50°C, 30°C |
| Pulping time | 30 min |
| Pulping consistency | 5% |

다. 또한 Pulping시의 온도는 현장조건인 50°C와 온도에 의한 COD 변화를 측정하기 위해 비교 군으로 30°C를 선정하여 비교 실험을 행하였다. COD 측정은 HACH DR4000을 이용하여 Reactor Digestion Methods로 측정하였다.

2.2.2 공정 첨가제의 COD 측정

H사의 판지제조 공정에서는 공정 첨가제로서 사이즈제 및 제품 강도향상을 위한 지력제 및 보류제, 염료 등을 포함하여 약 10종의 약품을 사용하고 있었다.

판지의 층간결합 향상 및 지력증강을 목적으로 일부 지종에 첨가하는 전분(Starch)을 제외하고 대부분 지종에 첨가하는 공정첨가제의 약품 종류는 거의 유사했으나, 단 지종 및 요구되는 제품물성에 따라 투입량에 차이가 있었다.

공정 첨가제의 경우 약품 자체가 지니는 COD 부하가 매우 높아 측정이 불가능하기 때문에 증류수를 사용하여 일정 배수로 희석 (Table 4) 한 후 3회 반복 측정하여 평균값을 취했다.

2.3 원, 부재료의 NBDCOD 분석

분석에 사용한 섬유상 원재료 및 공정 첨가제의 NBDCOD(Non-Bio Degradable COD)는 H사의 현장 폐수처리 공정조건을 모사하기 위하여 현장 반송용 오니를 이용하여 실험실적으로 행하였으며 실험조건은 Table 5와 같다.

2.4 COD 기여도 분석

공정현황 및 원부재료 분석결과를 토대로 H사의 판지공정라인 지종 A와 지종 B의 Input source별

Table 4. COD measurement conditions of chemical additives

| Additives | Measurement conditions |
|----------------|--|
| Rosin | measured from dilute solution of 5% with distilled water at storage basis of 100% |
| Alum | directly measured from storage solution |
| WSR (Anion) | measured from dilute solution of 15% with distilled water at storage basis of 100% |
| WSR (Cation) | measured from dilute solution of 15% with distilled water at storage basis of 100% |
| Retention aids | measured from 100 times dilution at the storage solution |
| Slime control | directly measured from storage solution |
| Starch | measured from 4% slurry of |
| Felt washing A | measured from 20~30 times dilution at the storage solution |
| Felt washing B | measured from 20~30 times dilution at the storage solution |
| Deaeration | measured from 20~30 times dilution at the storage solution |

Table 5. Experimental conditions of NBDCOD measurement

| Class | | Conditions |
|------------------|-----------|------------------------------------|
| NBDCOD treatment | Operation | Batch operation with active sludge |
| | MLSS | 2,000~2,500 ppm |
| | DO | above 3 ppm |
| | Temp., °C | 27~32 |
| | HRT, hr | 24 |

COD 기여도를 분석하였다. 기여도 분석은 아래의 식에서와 같이 단위 투입량 대비 유발 COD양과 투입량을 이용하여 COD 유발량을 계산한 다음 COD 유발총량 대비 각 Input source의 COD 유발량 Portion을 COD 기여도 백분율(%)로 표시하였다.

$COD\ Contribution\ Rate(\%) =$

$$\frac{COD\ portion\ of\ Input\ sources}{Total\ COD\ portion} \times 100$$

3. 결과 및 고찰

3.1 펄프 및 폐지가 유발하는 COD 및 NBDCOD의 특성

H사의 판지생산공정에 사용하는 6종의 미표백 크라프트 펄프 및 국내산골판지 폐지(KOCC), 수입골판지 폐지(AOCC), 지대용 폐지에서 유발하는 섬유상 원료의 환경부하 정량화와 이들이 공정용수에 미치는 영향을 알아보기 위하여 Table 2의 조건에 따라 repulping을 실시한 후 여액에 대한 COD 및 NBDCOD를 측정하였으며, 그 결과를 Fig. 1~4에 나타냈다.

Fig. 1의 결과에서와 같이 천연펄프 및 폐지의 종류 및 성상에 따라 섬유원이 유발하는 COD 부하는 골판지원단 제조과정에서 투입된 전분 호액 등의 영향에 의해 골판지 폐지에서 높게 나타났다. 그 중 국내산 골판지 폐지가 가장 높은 COD 부하를 나타냈고, 수입 골판지 폐지는 국내산 골판지 폐지보다는 상대적으로 낮았지만 펄프 및 지대용 폐지보다는 높은 특성을 보였으며, 천연펄프의 COD

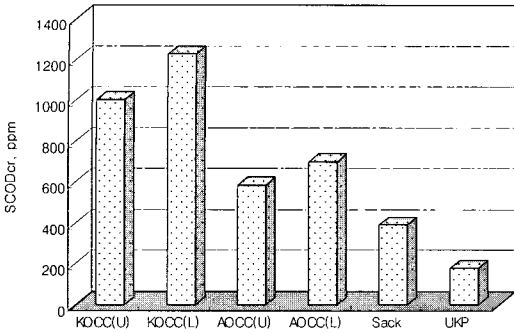


Fig. 1. The induced COD load of fibrous raw materials.

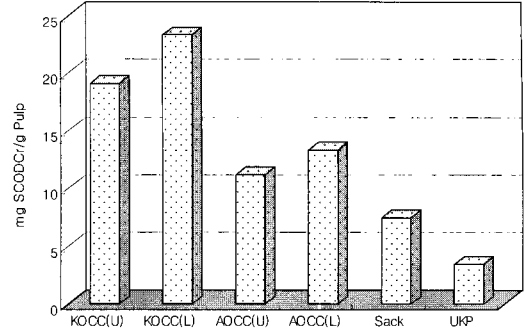


Fig. 4. The comparisons of Induced COD load per gram of pulp.

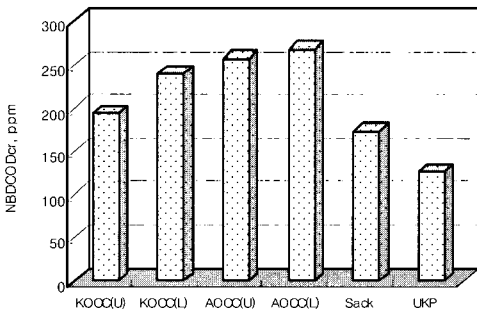


Fig. 2. The non-boidegradable COD load of fibrous raw materials.

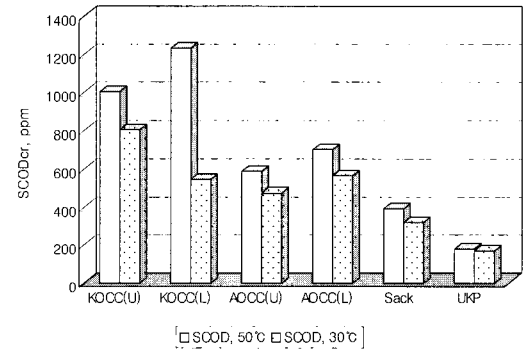


Fig. 5. The induced COD load of fibrous raw materials at different repulping temperature.

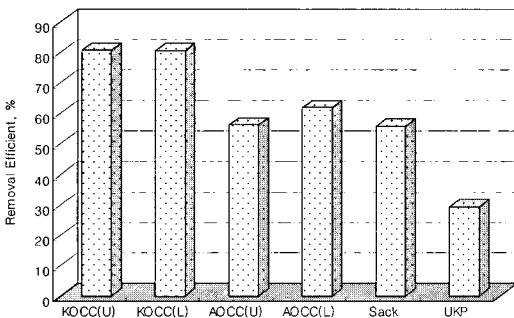


Fig. 3. The COD removal efficiency of fibrous raw materials by biological treatment.

부하가 가장 낮음을 알 수 있었다. Fig. 2는 동일한 6종의 섬유상 원료를 이용하여 H사의 현장 반송오니를 이용하여 24시간 동안 생물학적 처리공정을 실시한 후의 NBDCOD를 측정된 결과로서 국내산 골판지 폐지보다 수입 골판지 폐지가 최종 방류수

수질 특성에 영향을 미칠 수 있는 난분해성 COD가 훨씬 높게 나타나는 것을 확인하였다. 국내산 및 수입 골판지 폐지를 상급 및 하급의 품질 특성으로 비교하였을 경우 특히 상급 골판지 폐지보다는 하급 골판지 폐지가 보다 높은 난분해성 COD를 유발하는 것으로 나타났으며, 이는 미분급된 하급 골판지 폐지에 미생물 난분해성 물질이 많이 함유되었기 때문에 사료된다. 따라서 Fig. 3의 결과에서와 같이 섬유상 원료가 내재하고 있는 COD 부하는 국내산 골판지 폐지의 유발 COD 부하는 가장 높았지만 생물학적 처리공정을 거쳤을 때 제거 효율이 약 80% 정도로서 가장 높게 나타났으며 미표백 천연 크라프트 펄프의 경우 펄프 자체의 유발 COD 부하는 낮았지만 펄프 내에 잔존하는 잔류 리그닌 등의 난분해성 COD에 의해 제거 효율은 약 30%

정도로서 낮음을 알 수 있었다. 또한 Fig. 4는 이러한 실험결과를 근거로 펄프 및 폐지 단위사용량 당 유발 COD 효과를 분석하였을 때 국내산 골판지 폐지가 19~23 mg SCODCr/ g Pulp로서 가장 높았으며 특히 수입골판지 폐지에 비해 높은 특성을 나타냈다. 이러한 결과는 국내산 골판지폐지 원료의 사용량이 많을수록 높은 유기물 부하를 유발할 수 있다는 것을 의미한다.

Fig. 5는 6 종류의 섬유상 원료를 이용하여 repulping 처리 시 펄퍼 해리수의 온도를 50°C와 30°C로 달리하여 해리하였을 경우 온도 특성에 따른 유발 COD의 특성을 나타낸 것으로서 30°C 보다는 50°C의 높은 온도에서 repulping 처리를 행할 경우 COD 부하가 높게 나타났다. 이는 펄퍼 해리수

의 온도가 높을수록 펄프섬유의 표면이나 세포벽 내에 잔존하고 있던 COD 유발 가능성의 유기물질이 고온에서 보다 쉽게 용해되어 다량 용출되어 나온 결과로 사료된다.

3.2 공정 첨가제에 의한 COD load 및 NBDCOD의 특성

공정 첨가제에 의한 COD load 및 NBDCOD의 특성을 평가하기 위하여 H사의 주요 공정 첨가제 9 종류를 분석하였으며, 그 결과를 Table 6 및 7에 나타냈다.

Table 6에서와 같이 공정첨가제의 제품 입고 시 자체의 유발 COD 부하는 매우 높은 값을 보였으며, Rosin, 전분, 탈기제, 염료 등의 순으로 COD 부하

Table 6. The induced COD load of chemical additives

| Additives | CODcr, ppm | mg CODcr/g Chemical |
|----------------|------------|---------------------|
| Rosin | 1,179,000 | 1,155.7 |
| Alum | 60 | 0.06 |
| WSR (Anion) | 170,000 | 166.6 |
| WSR (Cation) | 95,000 | 93.1 |
| Retention aids | 131,000 | 128.4 |
| Slime control | 7,490 | 7.5 |
| Starch | 880,000 | 862.6 |
| Felt washing A | 42,000 | 41.2 |
| Felt washing B | 128,000 | 125.5 |
| Deaeration | 781,000 | 765.5 |
| Dye | 708,000 | 694.0 |

Table 7. The non-biodegradable COD load of chemical additives

| Additives | Addition amount, ppm | CODcr potential, ppm | NBDCODcr, ppm | mg NBDCODcr/g Chemical |
|----------------|----------------------|----------------------|---------------|------------------------|
| Rosin | 500 | 589 | 296 | 591.7 |
| WSR (Anion) | 1500 | 255 | 228 | 151.8 |
| WSR (Cation) | 800 | 76 | 64 | 79.9 |
| Retention aids | 150 | 20 | 9 | 60.0 |
| Slime control | 5 | 1 | 3 | 200.0 |
| Starch | 150 | 132 | 3 | 20.0 |
| Felt washing A | 10 | 2 | 0.1 | 10.0 |
| Felt washing B | 10 | 7 | 0.3 | 30.0 |
| Deaeration | 15 | 12 | 1 | 66.7 |
| Dye | 150 | 106 | 56 | 373.3 |

에 악영향을 미치는 것으로 나타났다. 또한 이들 첨가제를 공정 반송오니를 이용하여 생분해 처리를 행하였을 경우 NBDCOD 특성(Table 7)은 생분해성이 우수한 전분과 탈기제 등은 비교적 낮은 부하를 초래하는 것을 알 수 있었다. 반면 낮은 COD 값을 나타낸 슬라임 조절제의 경우 NBDCOD 측정 과정에서 활성오니의 COD 분해 능력을 저하시켜 NBDCOD 값이 증가하는 것을 알 수 있었다.

이와 같이 판지제조 공정에 사용하고 있는 섬유상 물질 및 비섬유상 첨가제를 분석한 결과 섬유상 원재료 보다는 비섬유상 첨가제의 환경부하가 매우 높은 특성을 지니고 있었다. 따라서 동일한 종류의 첨가제라 하더라도 오염부하가 상대적으로 낮은 chemical을 선택하여 공정의 효율성을 높이는 것이 바람직하다고 사료된다.

3.3 판지제조공정의 Input source별 COD 기여도 분석

H사의 대표 생산 지종 2종을 선정하여 Case A와 Case B로 구분한 후 각 지종 생산 시 투입되는 원부재료의 투입량에 따른 Input source별 COD 기여도를 분석하였으며, 그 결과를 Fig. 6~9 나타내었다.

Fig. 6 및 7은 판지 제조과정 Case A 지종의 Input source에 따른 COD 오염부하에 대한 기여도를 나타낸 것으로서 각종 섬유상 및 비섬유상 공정첨가제 중 Starch > AOCC > 지력증강제

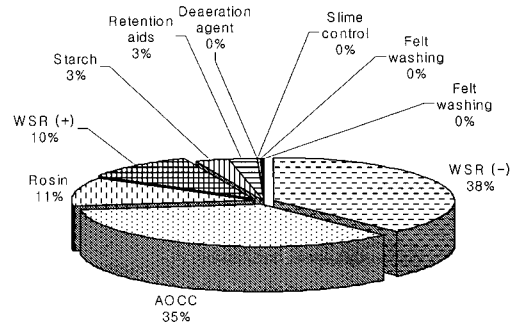


Fig. 7. The non-biodegradable COD portions of various input sources on example of paperboard case A.

(Anion) > Rosin > 지력증강제 (Cation)의 순으로 COD 유발 부하가 높은 것으로 나타났으며, 실질적으로 방류 수질에 영향을 미치는 난분해성 COD의 경우 지력증강제 (Anion) > AOCC > Rosin > 지력증강제 (Cation)의 순으로 높은 NBDCOD 값을 유발하는 것으로 나타났다.

그 중 지력증강제 (Anion type)가 전체 Input source가 유발하는 NBDCOD 총량 중 38%의 기여도를 보여주고 있으며, 공정에 사용하는 지력증강제의 Cation type 및 Anion type을 포함하면 약 48%로서 총 유발 오염부하량의 절반에 가까운 기여도를 나타냈다. 한편 섬유상 물질 중 단위 투입량 COD 부하는 낮지만 투입량이 많은 AOCC의 경우도 높은 COD 부하 기여도를 나타냈다.

또한 생분해성이 낮은 Rosin의 경우 단위 투입량은 적지만 최종 방류 수질에는 비교적 높은 영향을 미치는 것으로 나타났다.

또한 Fig. 8 및 9는 판지제조과정 Case B의 경우를 나타낸 것으로서 각종 섬유상 및 비섬유상 첨가제 중 KOCC > 지력증강제 (Anion) > Rosin > 지력증강제 (Cation) > 지대용 폐지 순으로 높은 COD 오염 부하를 유발하는 것으로 나타났으며, 이들에 대한 난분해성 COD의 경우 지력증강제 (Anion) > KOCC > 지력증강제 (Cation) > Rosin > 지대용 폐지의 순으로 높은 NBDCOD 부하를 유발하는 것으로 나타났다.

판지공정 Case B의 NBDCOD 결과는 Case A

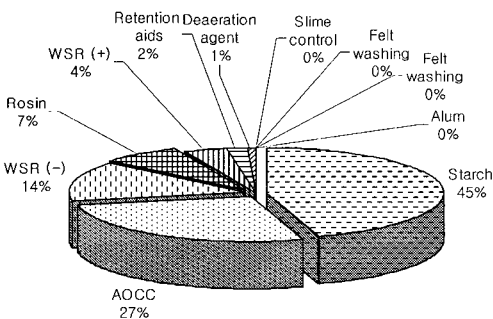


Fig. 6. The COD portions of various input sources on example of paperboard case A.

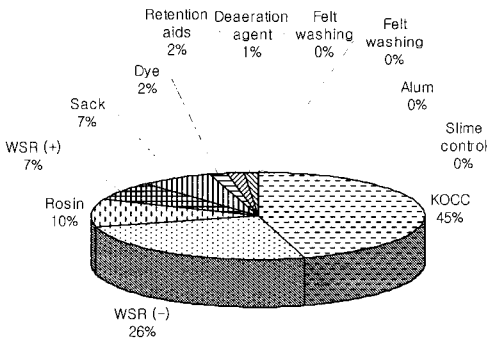


Fig. 8. The COD portions of various input sources on example of paperboard case B.

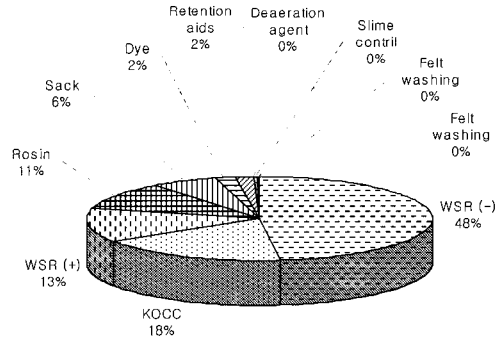


Fig. 9. The non-biodegradable COD portions of various input sources on example of paperboard case B.

의 분석결과에서 보여주었던 결과와 유사하였으며 지력증강제 (Anion type)가 전체 Input source가 유발하는 NBDCOD 총량 중 48%의 기여도를 보여주고 있으며, 공정에 사용하는 지력증강제의 Cation type 및 Anion type을 포함하면 61%로 총 유발 오염 부하량의 절반을 훨씬 초과하는 높은 기여도를 나타냈다. 한편 투입량이 많은 KOCC 및 지대용 폐지와 같은 섬유상 원재료들의 COD 기여도도 매우 높은 것으로 나타났다.

4. 결론

본 연구에서는 판지제조공정에 사용되는 각종 섬유상 물질 및 비섬유상 공정 첨가제가 지니는 COD 유발 부하 및 이들이 최종 방류수질에 영향을 미칠 수 있는 NBDCOD의 유발 부하를 분석하여, 향후 용수 부족 등에 의한 용수 재활용의 확대 및 무방류화 공정 등에 대비하기 위한 한 방법으로서 각종 원부재료가 야기할 수 있는 유발 부하의 기여도를 평가하고자 하였다.

각종 원부재료의 COD 부하 분석결과 원재료에서는 KOCC가 가장 높은 COD를 유발시켰으나 NBDCOD의 경우 AOCC(상급, 하급)가 가장 높은 오염부하를 나타냈다. 또한 공정 첨가제의 경우 Rosin, 전분, 탈기제, 염료 순으로 높은 COD 유발 부하를 나타냈으나, 생분해성이 우수한 전분과 탈

기제의 경우 NBDCOD는 낮은 특성을 나타냈다.

판지제조공정 조건에 따른 Case A 및 B 지중에 대한 COD 기여도를 분석한 결과 Starch, AOCC, KOCC 등이 높은 COD를 유발하는 것으로 나타났으나, 방류수질에 직접적으로 영향을 미치는 NBDCOD의 경우 Case A 및 B 모두 지력증강제 (Anion)가 가장 높은 오염 부하 기여도를 나타냈다. 따라서 폐수처리장 방류수의 유기물 부하를 줄이기 위해서는 지력증강제의 사용량 및 생분해성이 우수한 환경친화적인 약품으로의 대체 등을 고려하여야 할 것으로 판단된다.

사 사

이 연구는 2004 국민대학교 교내연구비 지원에 의하여 수행되었습니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

인용문헌

1. 제지산업 통계연보, 2003, 한국제지공업연합회, (2003).
2. 제지산업 통계연보, 2004, 한국제지공업연합회, (2004).
3. 펄프제지산업정보, 제164호, 한국제지공업연합회, (2002).
4. Proceedings of the 11th ASIAN Pulp and Paper Association Conference, Oct. 26~28, Jeju, (2004).

5. Springer, A. M., Industrial Environmental Control. Pulp and Paper Industry. Second Edition. Tappi Press, (1993).
6. Lindholm G. and Jantunen E., Treatment and reuse of process water in pulp and paper industry, steps towards effluent free operation, Tappi Papermaking Conference, (1996).
7. Gartz R., The zero effluent mill, The 18th International Mechanical Pulping Conference, Oslo, (1993).
8. Jantunen E., "The effluent free newsprint mill", Paper and Timber, Vol. 74(1), (1992).
9. Environmental Protection in the Pulp and Paper Industry. Royal Institute of Technology, Stockholm, Sweden, October, (1992).
10. Hyun Kyun Ahn and Hak Lae Lee, A study on the accumulation phenomena of oxidized starch in white water in closed fine papermaking process (Part 1), J. of Korea TAPPI, 36(3):15, (2004).
11. Hyun Kyun Ahn and Hak Lae Lee, A study on the accumulation phenomena of oxidized starch in white water in closed fine papermaking process (Part 2), J. of Korea TAPPI, 36(3):35, (2004).