

침엽수 구조용재와 백합나무를 이용한 혼합CLT(Cross Laminated Timber)의 접착 특성 평가

Evaluation of Adhesive Characteristics of Mixed Cross Laminated Timber (CLT) Using Yellow Popular and Softwood Structural Lumbers

Keon-Ho KIM^{1,*} · Hyun-Mi Lee² · Min Lee²

¹Wood Industry Division, Forest Products and Industry Department, National Institute of Forest Science, Seoul 02455, Korea

²Wood Engineering Division, Forest Products and Industry Department, National Institute of Forest Science, Seoul 02455, Korea

초록 : 백합나무와 KS F 3020에서 제안한 국산 침엽수 구조용재를 이용한 혼합CLT의 접착제별 접착특성을 평가하기 위하여 삼음박리결과를 기반으로 접착제의 침투깊이와 접착층 두께를 분석하였다. 3종의 접착제와 2종의 외층재로 구분하여 5매 구성 구조용 직교 집성판을 제작하였다. 구조용 직교 집성판의 접착성능평가는 KS F 2081 구조용 직교 집성판에 의거하여 삼음박리성능을 평가하였다. 혼합CLT의 접착층 두께는 주사전자현미경으로 측정하였으며, 접착제의 층재 내부 침투깊이는 광학현미경으로 측정하였다. 혼합CLT의 삼음박리시험 결과 페놀레조시놀 접착제와 폴리우레탄 접착제를 적용한 경우 KS기준을 만족하였다. 층재 내 접착제의 침투경로는 낙엽송, 소나무의 경우 가도관으로, 백합나무 층재는 방사조직을 통해 도관으로 침투되는 것을 확인하였다. 접착제의 침투깊이는 같은 압제시간조건에서 페놀레조시놀접착제가 가장 크게 측정되었고, 접착층 두께는 폴리우레탄접착제의 경우 침투깊이와 반비례적인 경향을 보였다.

1. 서론

기후변화에 대한 심각성이 높아지고 있는 가운데 IPCC(Intergovernmental Panel on Climate Change; 2014)은 2010년 건물 부분의 직접배출량은 전 세계 온실가스 배출량의 6.4% 정도로 발표하였다. 건축분야에서 보편적으로 사용되고 있는 건축부재는 콘크리트와 철강이며, 이러한 건축부재는 생산시 대량으로 탄소를 배출한다(Li *et al.*, 2022). 반면, 목재는 자라면서 흡수한 탄소를 고정하여 건축부재로 사용시 탄소저장효과를 가진다(Singh *et al.*, 2022). 이러한 목재의 탄소저장효과로 인해 건축재료로서 세계적으로 기후변화 대응방안으로 관심을 받고 있다.

국내의 경우 목재는 오래전부터 한옥 등 친환경 건축재료로 널리 쓰여왔다. 원목의 직경과 형태에 따라 생산되는 제재목은 다양한 목조건축의 재료로 사용되어진다. 대경재는 주로 제재되어 기둥과 서까래와 같은 구조재로 사용되어져 왔다. 그러나 중소경재의 경우, 대부분 파쇄되어 펄프용 또는 목질판상재용으로 대부분 사용되고 구조재로써 활용도가 낮았다. 1900년대 이후 제조기술발달로 인해 중소경재를 이용한 공학목재가 개발되면서 구조용 적층재료로 사용되기 시작하였다. 현재 공학목재는 건축분야와 비건축분야에서 친환경 재료로 주목 받아 사용되고 있다. 대표적인 공학목재로는 구조용 집성재와 구조용 직교 집성판(Cross Laminated Timber, CLT)이 있으며, 이러한 공학목재들은 치수안정성과 가공용이성이 좋아 다양한 모양, 다양한 크기로 제작이 가능한 장점을 가진다. 이에 따라, CLT에 대한 물리적 특성 및 건축소재로써 활용하기 위한 설계값들이 연구뿐만 아니라 다양한 소재를 복합 적용한 하이브리드 CLT 제조도 연구되었다(Choi *et al.*, 2020, 2021; Fugimoto *et al.*, 2021; Gong *et al.*, 2021; Jung *et al.*, 2020; Lee *et al.*, 2022; Song and Kim, 2023; Trisatya *et al.*, 2023). 특히 건축구조재인 CLT는 높은 압축강도와 휨강도를 가지고 있으며 유럽과 북미를 중심으로 개발된 CLT 접합부 등 성능 연구를 기반으로 목조건축의 고층화를 가속화시켰다(Ahn *et al.*, 2021; Lee *et al.*, 2022)

국내 임목축적량은 침엽수림이 가장 많고, 활엽수림, 혼효림 순으로 보고하고 있으며, 구조용재료는 KS F 3020(2018)에

따라 침엽수가 주로 사용되고 있다(2023 산림임업통계연보). 활엽수는 생장특성과 세포조직 등에 따라 구조용재보다 바이오에너지로 대부분 사용되고 있으며, 최근 탄소저장효과를 고려하여 활엽수 소재의 고부가가치화, 장기이용화 연구가 증가하고 있다. 백합나무는 활엽수이지만 속성수로서 1990년대 미국에서부터 꾸준히 구조용재로서 이용가능성 연구가 지속적으로 수행되어 왔으며, 국내에서도 백합나무의 생장특성을 고려하여 이중 수종과 결합하여 혼합CLT 제조 연구가 진행되어 왔다(Galih *et al.*, 2020; Park *et al.*, 2020; Song and Kim, 2022; Yang *et al.*, 2021).

구조용 집성재와 CLT를 제조할 때 주로 사용되는 접착제는 내수성을 가진 레졸형 페놀수지, 폴리우레탄 수지가 있으며 모두 상온경화형이다. 구조용재에 주로 사용된 접착제는 페놀레조시놀 접착제이나 환경친화성과 인체친화성에 대한 사회적 관심이 증대되면서 폼알데하이드 방출량이 낮은 접착제를 선호하게 되었다. 제품의 생산성과 높은 접착성능을 위하여 개발된 일액형 폴리우레탄 접착제는 고분자 폴리이소시아네이트계 접착제로 목재의 하이드록실기와 쉽게 반응하고 내수성이 아주 뛰어나 이미 유럽등에서 집성재, CLT를 제조할 때 많이 사용된다(Park, 2014). CLT의 접착성능은 층재표면과 접착제의 접착정도, 접착제 자체의 응집력, 층재 내 접착제 침투깊이, 사용환경조건 등이 다양한 변수로 작용한다. 목재 내 접착제의 침투정도는 수종, 접착제의 종류, 압제압력, 압제시간, 온도, 함수율, 접착제 수분량 등에 따라 다르다(Li *et al.*, 2021; River *et al.*, 1991; Rowell, 2012). 활엽수의 경우 도관과 조재의 경우 얇은 세포벽으로 접착제의 침투가 용이하나 목섬유와 만재로 인해 접착성능이 저해된다고 보고하였다. 따라서, 접착제의 침투경로를 이해하기위한 연구도 지속적으로 연구하고 있으며, 주사전자현미경(scanning electron microscopy) 등 현미경적 분석이 대표적이다. Jakes(2019)는 정확한 침투과정을 이해하기위해 X-ray computed tomography를 활용하였다. 그리고 CLT의 접착성능은 박리율, 전단강도와 목파율로 평가하며, CLT의 국제표준인 ISO 16696-1:2019는 ISO 20152-1:2010을 기반으로 접착제의 성능측정방법과 품질기준을 제시하고 있다.

본연구는 서로 다른 수종(낙엽송, 소나무, 백합나무)을 이용하여 혼합CLT를 제조하여 접착성능을 평가하고 실제 현미경과 주사전자현미경을 활용하여 접착제의 층재 침투깊이와 접착층 두께를 측정하여, 접착성능과 접착제 침투 특성의 상호관계를 분석하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 공시재료

2.1.1. CLT제조용 층재

층재의 수종은 혼합CLT의 종류에 따라 구분하였다. 낙엽송 혼합CLT는 외층재와 중층재로 낙엽송(*Larix kaempferi* (Lamb.) Carrière)을, 내층재로 백합나무(*Liriodendron tulipifera* L.)를 사용하였다. 소나무 혼합CLT는 외층재와 중층재로 소나무(*Pinus densiflora* Siebold & Zucc.)를, 내층재로 백합나무를 사용하였다. 낙엽송과 소나무 층재는 모두 경기도, 강원도에서 40년산 이상 자란 나무로부터 제재하였으며 경기도 여주 목재유통센터에서 구입하였다. 백합나무 층재는 국립산림과학원 어천시험림(화성시)과 수원시에서 자란 27년산 목재이다. 사용한 낙엽송의 평균 비중과 함수율은 0.54%, 10.50%였고 소나무는 각각 0.42%, 11.2% 백합나무는 0.51%, 11.50%인 층재를 사용하였다. 층재의 크기는 100(b) × 500(l) × 25(h) mm였다.

2.1.2 접착제

낙엽송/백합나무, 소나무/백합나무 혼합CLT의 접착특성을 알아보기 위해 접착제별 접착시험편을 제조하였다. 첫번째 접착제는 일액형 접착제로 속경화성이자 친환경접착제로 알려져 있는 유럽에서 주로 사용하는 폴리우레탄 접착제(OTTOCOLL G10)이다. 해당 접착제는 주로 CLT 자동화 생산 시설에서 사용된다. 그러나 외부 공기와 수분에 노출된 접착제는 경화가 진행되기 때문에 지속적으로 사용하지 않을 경우 경화로 인한 분사 노즐 막힘과 같은 문제가 발생할 가능성이 높은 단점이 있다(Song and Kim, 2022). 따라서 Table 1과 같이 접착제 특성을 가진 경화시간이 다른 폴리우레탄 접착제를 적용하였다. 두번째 접착제는 일반적으로 구조용집성재에 적용되는 페놀 레조시놀계 접착제(PRX350BT/PR-1HSE, Aica Kogyo)로 내구성과 내수성이 높은 접착제로 알려져있다. 그러나 경화시간이 다른 접착제에 비해 길어 CLT 제조 생산성을 저하시키는 요인으로 작용한다. 세번째 접착제는 수성 고분자 이소시아네이트계 접착제(AUX-500/AUH-8, 일본)는 폼알데하이드가 포함되지 않아 친환경 접착제로 분류되며 주로 가구용 등에 사용된다. 또한, 접착력이 우수하여 도포량이 낮은 장점을 가지고 있다.

2.2. 혼합CLT 제조 및 실험방법

2.2.1. 혼합CLT 제조 방법

CLT 적층용 접착제에 따른 혼합CLT의 접착특성을 확인하기 위하여 5매 직교 적층 CLT를 제조하였다. 혼합CLT의 접착제 침투특성을 확인하기 위하여 낙엽송, 백합나무로 구성된 혼합CLT(LY type)와 소나무, 백합나무로 구성된 혼합CLT(RY type)로 구분하여 제조하였다. 접착제 도포량은 200 g/m^2 으로 일면 도포하였으며, 압제압력은 유압프레스(200 ton capacity, Angeon Hydraulic Machinery, Gimpo, Korea)를 사용하여 1 MPa로 적용하였다. 폴리우레탄 접착제의 경우 경화시 발포하는 특성으로 인해 압제시간과 일정한 압제압력이 중요하다. 따라서 폴리우레탄 접착제를 적용한 CLT는 접착제 침투 정도에 미치는 영향을 알아보기 위해 압제시간을 1시간, 4시간 적용하여 제작하였다. 혼합CLT의 크기는 가로 500 mm, 세로 500 mm, 두께 125 mm로 제작하였으며 제작후 일주일간 실온에 양생하였다(Fig. 1).

2.3. 삶음 박리 시험 방법

CLT의 접착성능 기준은 각 나라마다 차이가 있으며, 삶음 박리 성능은 품질을 결정하는 중요한 성능 중 하나이다. 접착제별 혼합CLT의 내수성능을 알아보기 위해 본 시험에서는 KS F 2081 구조용 직교 집성판에 의거하여 삶음 박리 시험을 진행하였다. 제작된 혼합CLT를 Fig. 1(b)와 같이 가로 $100 \times$ 세로 $100 \times$ 두께 125 mm의 크기로 다시 재단하였으며, 제작된 시험편 중 24개를 사용하였다. 삶음 박리 시험은 시험편을 끓는 물에 4시간 동안 침지시키고 다시 상온(10°C – 25°C)의 물속에 1시간 침지시킨 후 $70 \pm 3^\circ\text{C}$ 의 항온 건조기 안에 넣어 질량이 시험전 질량의 100%–110%의 범위가 되도록 건조한 후에 박리율을 측정하였다. 시험편의 4측면에 측정된 접착층 내 박리길이는 3 mm 이상인 것으로 한정하여 측정하였으며, 건조나 용이 등에 의한 목재의 갈라짐은 측정에서 제외하였다. 박리율은 식 (1)과 같이 산정하였다.

$$\text{Average boiling water delamination (\%)} = \frac{L_D}{L_G} \times 100 \quad (1)$$

L_D : CLT의 4개의 Edge면 접착층 내 박리길이의 합.

L_G : CLT의 4개의 Edge면 접착층 길이의 합.

CLT의 접착성능 기준은 KS F 2081에 의거하여 삶음 박리율 10% 이하로 규정하고 있다. 삶음박리시험 결과에 따라 성능개선을 위한 제조조건을 선택하였다.

2.4. 접착층의 현미경적 분석

2.4.1. 접착층 두께 측정

혼합CLT의 접착층 두께를 측정하기 위해 Table 2와 같이 현미경관찰용 시험편에서 샘플을 채취하여 실험을 진행하였다. 접착층 시험편은 주축층재와 약축층재의 접착층을 중심으로 제작하였다. 층재의 단면별 접착제의 침투과정을 살펴보고자 층재의 횡단면과 방사단면 또는 접선단면을 구분하여 제작하였다. 제작된 시험편을 마이크로톰(silding microtome)으로 확인하고자 하는 단면을 깨끗하게 절삭한 후에 gold 코팅 후 주사전자현미경(SEMCOX EM-30, COXEM, 20kV)으로 관찰하였다. 접착층 두께는 시험편별로 10회 측정 후 평균값을 산출하였다.

2.4.2. 접착제 침투 깊이 측정

현미경 관찰용 시험편은 제작된 혼합CLT의 정중앙에 위치한 시험편을 사용하였다. 혼합CLT의 접착제 종류에 따른 접착층 단면을 절삭하여 1% 사프란인 용액으로 염색한 뒤, 관찰하였다. 접착제 침투 정도를 확인하기 위해 Image j 프로그램을 이용하여 접착층으로 층재 횡단면 상 세포내에 침투된 접착제의 길이를 Fig. 2와 같이 20회 측정하여 평균값을 산출하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 혼합CLT 접착성능 비교

3.1.1. 접착제 종류에 따른 혼합CLT 박리율 비교

구조용 CLT로 사용하기 위해 KS 2081에 의거하여 접착제 종류 및 수종에 따른 혼합CLT의 삶음박리 성능을 평가하였

다. Alamsyah *et al.*(2007)은 층재의 수중에 따른 밀도와 습윤성, 접착제의 접착각에 따라 접착성능에 차이가 있다고 보고한 바 있다. 따라서 수중에 따라 층재 내 접착제가 침투하기 위해선 접착제의 특성도 매우 중요하다. 접착제 종류별로 압제압력 시간(4시간)을 동일하게 적용하여 접착한 LY형 혼합CLT의 박리성능은 Fig. 3과 같다. 페놀 레조시놀 접착제(PN)와 폴리우레탄 접착제(PU)로 접착한 낙엽송-백합나무 혼합CLT는 KS F 2081에서 제시한 CLT의 삶음박리율 기준인 10% 미만으로 품질기준을 만족하였지만, 수성 고분자 이소시아네이크계 접착제로 접착한 시험편은 품질기준을 만족하지 못하였다. 따라서, 본 실험에서 사용된 수성 고분자 이소시아네이크계 접착제는 혼합CLT 제조에 적합하지 않는 것으로 판단된다.

또한, 삶음 박리 시험 결과를 바탕으로 PU 접착제는 낙엽송-백합나무 혼합CLT보다 소나무-백합나무 혼합CLT에서 더 우수한 접착성능을 나타냈다. 이는 낙엽송층재가 침치 후 건조과정에서의 변형을 PU 접착제가 억제하지 못하였으나 상대적으로 비중이 낮은 소나무 층재의 변형을 억제한 것으로 사료된다. 따라서 본 실험에 사용된 PU 접착제는 소나무와 백합나무를 접착하는 데 다른 접착제보다 적합한 것으로 판단된다.

3.2. 접착층의 현미경적 비교

3.2.1. 접착층 두께 비교

접착제는 층재의 압제압력을 통해 세포내강으로 침투하게 된다. 접착제의 침투정도는 접착성능에 있어 매우 중요한 요소 중 하나이다. 접착제의 접착메커니즘은 목재표면과 접착제의 화학적 접착도 중요하지만 접착제가 세포내에 침투한 물리적 접착메커니즘도 중요한 인자로 작용한다. 침엽수 구조용재인 낙엽송과 소나무를 외층재로 사용하고 내층재로 백합나무를 사용할 경우 접착제의 침투정도를 파악하기 위하여 접착층을 기준으로 층재의 단면별 현미경 분석을 실시하였다. Fig. 4는 주사전자현미경으로 관찰한 접착층 두께의 사진이다. 낙엽송 및 소나무의 경우 가도관에 백합나무의 경우 도관에 접착제가 침투하는 것을 확인하였다.

PNLY시편과 WILY시편은 PULY시편과 비교하여 접착층 두께가 얇은 편이다. 또한, PU 접착제를 사용한 혼합CLT의 경우 접착층 두께는 압제압력시간에 따른 유의미한 차이는 나타나지 않았다. CLT 제조용 접착제로 사용할 경우 접착층의 두께기준은 BS ISO 16696-1:2019 Timber structures에서 판면 간 CLT의 접착층 두께는 0.2 mm, 층재 길이방향의 경우 0.3 mm 이하로 규정하고 있다. 접착제별 혼합CLT의 접착층 두께를 비교한 결과 다른 접착제에 비해 PU 접착제가 두께가 나타났으나 EN기준에는 모두 만족하였다(Table 3).

3.2.2. 접착제침투깊이 비교

광학현미경을 통해 혼합CLT의 층재 내에 접착제의 침투경로를 확인하였다. PN, WI 접착제는 다소 어둡고 붉은 색으로 확인되어 층재 내 세포와 구별이 가능하였다. PU 접착제의 경우 Fig. 5(c) and (d) 내 흰색 화살표와 같이 접착제를 확인할 수 있었다. 낙엽송, 소나무의 경우 가도관 내부에서 접착제가 발견되었다. 백합나무 세포 내 접착제의 침투경로는 방사조직 주변의 도관에 의한 것으로 사료된다. Kim *et al.*(2021)은 목재 내 접착침투과정에서 특수처리된 접착제를 사용하여 침엽수의 방사조직과 가도관 등으로 침투되는 것을 확인하였다고 보고하였다.

WI 접착제와 PN 접착제는 현미경으로 관찰하는 과정에서 세포의 염색정도가 접착제의 색깔에 영향을 주어 세포 내강이 작을 경우 구분이 어려웠다. 이를 명확하게 확인하기 위해 Confocal micrograph를 사용하거나 SEM, Fluorescence microscopy(Frihart, 2005)을 통해 침투과정을 확인할 수 있는 다양한 연구들이 진행되고 있다(Kamke and Lee, 2007; Singh *et al.*, 2008).

Table 4는 각 혼합CLT의 접착제 침투 길이는 나타냈다. 혼합CLT 접착층의 백합나무 층재 내 접착제 종류별 침투깊이를 비교한 결과 PN 접착제와 PU 접착제가 가장 많이 침투한 것으로 측정되었으며, PU 접착제의 경우 LY시편보다 RY시편이 더 많이 침투된 것을 확인하였다. 또한 압제시간의 경우 1시간이 4시간 시편보다 더 침투한 경향을 보였다. 경화속도가 빠른 PU접착제는 적절한 경화반응시간 이후 피착제에 침투하는 것이 어렵기 때문으로 사료된다. WI 접착제를 사용한 시험편의 경우 접착층이 같은 조건의 압제시간을 적용한 PU접착제와 비슷한 침투깊이를 보였으나 삶음박리성능 기준을 만족하지 않은 것으로 보아 접착제 자체의 내수성과 접착제 자체강도가 중요한 인자임을 확인할 수 있었다.

4. 결론

혼합CLT의 제조공정에서 사용되는 접착제 종류에 따라 접착성능 중 삶음박리성능을 평가하였으며, 접착제의 층재 내 침투깊이와 접착층 두께를 비교하였다. 광학현미경으로 층재 종류에 따라 접착제의 침투정도를 비교하고 주사전미경으로

접착층 두께를 비교한 결과는 다음과 같다.

1. 혼합CLT의 삶음박리시험 결과 페놀레조시놀 접착제와 폴리우레탄 접착제를 적용한 경우 품질성능 기준을 만족하였으며, 수중에 따른 폴리우레탄 접착제를 적용한 혼합CLT 시편 모두 품질성능 기준을 만족하였다.
2. 층재 내 접착제의 침투경로는 낙엽송, 소나무의 경우 가도판에서 발견되었으며, 백합나무 층재는 방사조직을 통해 도관으로 침투되는 것을 확인하였다.
3. 접착제의 침투깊이는 같은 압제시간 조건에서 페놀레조시놀접착제가 가장 크게 측정되었고, 접착층 두께는 폴리우레탄 접착제의 경우 침투깊이와 반비례적인 경향을 보였다.