



등록특허 10-2675730



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2024년06월17일

(11) 등록번호 10-2675730

(24) 등록일자 2024년06월12일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

D21H 27/34 (2015.01) D21H 19/10 (2006.01)

(52) CPC특허분류

D21H 27/34 (2013.01)

D21H 19/10 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2023-0192428

(22) 출원일자 2023년12월27일

심사청구일자 2023년12월27일

(56) 선행기술조사문헌

KR1020230098216 A

(뒷면에 계속)

(73) 특허권자

고려대학교 산학협력단

서울특별시 성북구 안암로 145, 고려대학교 (안암동5가)

주식회사 유상팩

충청남도 천안시 동남구 목천읍 도장1길 98

(72) 발명자

김정민

서울특별시 마포구 월드컵북로 235 성산시영아파트 10동 403호

류재영

충청남도 천안시 동남구 청당2길 118, 103동 708호 (청당동, 청당마을 벽산블루밍아파트)

(74) 대리인

이병진

전체 청구항 수 : 총 5 항

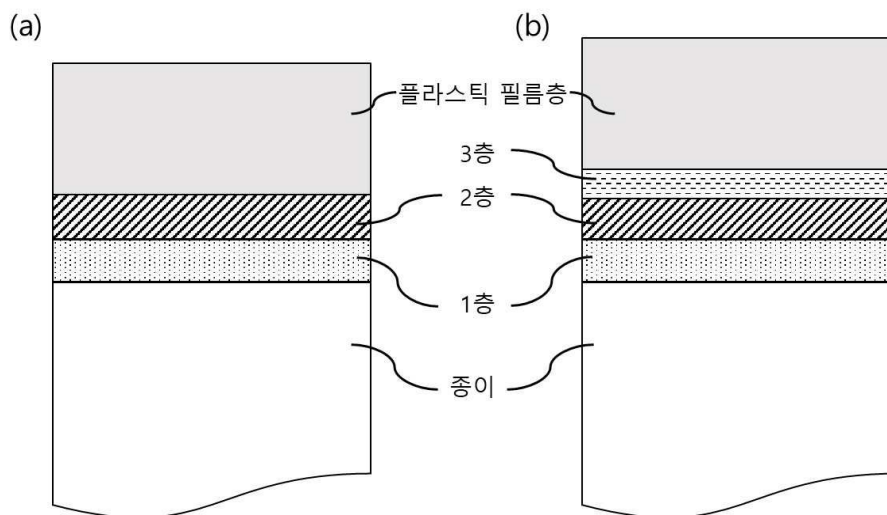
심사관 : 박혜준

(54) 발명의 명칭 일회용 식품 용기용 친환경 코팅 종이

(57) 요약

본 발명은 일회용 식품 용기에 사용되는 코팅 종이로서, 종이, 상기 종이의 표면에 형성되는 제1층의 수분리성 수용성 코팅층, 상기 제1층의 수분리성 수용성 코팅층 상에 형성되는 제2층의 난용성 수성 코팅층, 상기 제2층의 난용성 수성 코팅층 상에 형성되는 플라스틱 필름층으로 이루어지며, 플라스틱 필름층과 종이의 수분리성이 매우 뛰어나 식품 포장 용기 또는 종이컵과 같은 일회용 식품 용기에 적용할 때 재활용에 용이한 효과를 나타낸다.

대표도 - 도4



(56) 선행기술조사문헌
 KR1020050088082 A
 KR100271754 B1
 KR1020230153778 A
 JP2020130131 A1

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1545027640
과제번호	321044033HD050
부처명	농림축산식품부
과제관리(전문)기관명	농림식품기획기술평가원
연구사업명	고부가가치식품기술개발사업
연구과제명	식품포장 재활용 용이성 향상을 위한 유니소재 및 종이기반 식품용 포장소재 개발
및 제품화	
기 여 율	1/1
과제수행기관명	고려대학교산학협력단
연구기간	2021.04.01 ~ 2023.12.31

명세서

청구범위

청구항 1

일회용 식품 용기에 사용되는 코팅 종이로서,

종이;

상기 종이의 표면에 형성되는 제1층의 수분리성 수용성 코팅층;

상기 제1층의 수분리성 수용성 코팅층 상에 형성되는 제2층의 난용성 수성 코팅층;

상기 제2층의 난용성 수성 코팅층 상에 형성되는 플라스틱 필름층;

으로 이루어지며,

상기 제1층의 수분리성 수용성 코팅층은 알칼리 가용 수지(alkali-Soluble Resin; ASR)을 이용하여 수지보강 에멀전 중합방법(resin-fortified emulsion polymerization)에 의해 제조된 스티렌 아크릴 에멀전(styrene acrylic emulsion)을 포함하는 수성 코팅액을 사용하여 형성되며,

상기 제2층의 난용성 수성 코팅층은 유화중합법(emulsion polymerizations)으로 제조된 아크릴산 공중합체 에멀전(acrylic acid copolymer emulsion)을 포함하는 수성 코팅액을 사용하여 형성되며,

상기 수성 코팅액은 접착 보조제를 포함하며, 상기 접착 보조제는 산 변성 폴리올레핀 수지(acid-modified polyolefin resin)를 0.1 내지 1.2 중량% 함유하는 수성 에멀전인 것을 특징으로 하는 코팅 종이.

청구항 2

삭제

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 수성 코팅액은 상기 스티렌 아크릴 에멀전에 아세틸화녹말(acetylated starch, starch acetate) 또는 아세틸아디프산이녹말(acetylated distarch adipate)을 전체 고형분의 40 중량% 이하의 범위에서 혼합한 것을 특징으로 하는 코팅 종이.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 수성 코팅액의 도포량은 고형분 기준 5 내지 12g/m²인 것을 특징으로 하는 코팅 종이.

청구항 5

삭제

청구항 6

삭제

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 제2층의 난용성 수지 코팅층 상에 산 변성 폴리올레핀 수지를 0.7 내지 0.8 중량% 포함하는 수성 에멀전을 수성 코팅액으로 사용하여 제3층의 코팅층을 추가적으로 형성하는 것을 특징으로 하는 코팅 종이.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 플라스틱 필름층은 상기 코팅층 상에 압출코팅(extrusion coating) 또는 열라미네이션(thermal lamination)으로 형성되는 것을 특징으로 하는 코팅 종이.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 식품 포장 용기 또는 종이컵과 같은 일회용 식품 용기에 사용되는 코팅 종이에 관한 것으로서, 내면에 코팅된 플라스틱 필름층과 종이의 수분리성이 뛰어나 재활용에 용이한 일회용 식품 용기용 친환경 코팅 종이에 관한 것이다.

배경 기술

[0003] 우리나라에서 1년 동안 버려지는 종이 용기와 컵은 정확한 통계자료는 없으나 수백억 개로 추산되고 있다. 환경부와 일회용품 줄이기 협약을 맺은 프랜차이즈 커피전문점과 패스트푸드점 19개 업체의 일회용 컵 사용량만 하더라도 2022년 기준 10억 3천 590만여 개이다. 전국에서 사용되는 일회용 종이컵, 그리고 여기에 컵라면, 컵밥 종이 용기, 그리고 일회용 종이 트레이를 합친다면 수백억 개는 될 것으로 추산된다.

[0004] 이 종이용기와 종이컵들에는 내수성을 목적으로 내면에 폴리에틸렌(PE)이나 폴리프로필렌(PP) 등의 플라스틱 필름이 코팅되어 사용되고 있는데, 우유팩과 같이 양면 코팅이 아닌 단면 코팅되어 있기 때문에 생산자 책임 재활용제도(EPR : Extended Producer Responsibility)에 해당되지 않고 재활용 사각지대에 놓여있다.

[0005] 종이컵의 재활용율은 환경부 추산으로도 13%, 그리고 환경운동연합은 2021년 일회용 컵 재활용률이 5% 미만이라고 주장하고 있으며, 여기에 종이 용기나 트레이까지 포함한다면 실제 재활용율은 1% 수준이라는 주장이 나오고 있다.

[0006] 문제는 단면 코팅이든 양면 코팅이든 종이에 폴리에틸렌(PE)이나 폴리프로필렌(PP)등의 플라스틱 필름이 코팅되어 있으면, 재활용 공정에서 종기와 플라스틱 필름의 해리가 어려워 시간과 비용이 많이 들고, 펄프의 회수율이 떨어진다는 것이다. 따라서 제지 회사들은 플라스틱 필름이 코팅되어 있는 종이컵과 용기의 재활용에 난색을 표하고 있으며, 재활용 공정에서 보다 수분리가 잘되는 코팅기술이 요구되고 있다.

[0007] 플라스틱 필름이 코팅되어 있는 종이의 재활용을 서술하자면, 마지막 단계인 탈묵 공정을 제외하고 총 3단계로 요약할 수 있다. 1단계인 펄퍼에서의 해리 공정은 펄퍼에 파쇄된 폐지를 투입하고, 약 40~60℃에서 수산화나트륨 수용액에 침지시킨 후, 강력 교반하여 해리된 이물질질을 제거하며, 슬러리 상으로 가라앉은 섬유상의 펄프를 펄퍼 하부를 통해 회수한다. 2 단계는 이물질 제거 공정으로서 원심력을 이용하여 섬유상의 펄프에 비하여 무거운 이물질질을 슬리트 또는 스크린을 통해 제거한다. 3 단계는 분산 공정으로서 펄프 섬유에 붙어있는 코팅제 및 이물질 등을 강한 전단력으로 분쇄하여 극미세화시키거나 이를 제거하는 공정이다.

[0008] 종이에 압출 코팅된 플라스틱 필름은 비중이 낮아(0.9~0.92), 비중 분리등으로 제거되어야 하지만 압출 코팅시 종이의 섬유 사이에 스며들어 섬유와 결합하고 있기 때문에 완전한 분리가 어렵고, 종기와 함께 찌꺼기로 존재하는 경우가 많아 스크린이 막히는 등 제거에 어려움이 있으며, 이는 공정상의 어려움은 물론 펄프의 회수율을 떨어뜨리는 원인이 되고 있다.

[0009] 또 다른 문제는 재활용 펄프를 사용한 종이를 식품용기로서의 사용이 어렵다는 문제점이다. 재활용 펄프를 사용한 종이는 중금속등의 문제로 식품과 직접 접촉을 하지 못하도록 규정되어 있다. 버려지는 일회용 종이 용기는 다시 식품 용기로서 재활용되기 어려우며, 이것은 재활용 종이의 수요가 부재하다는 것을 의미한다.

[0010] 재활용한 종이를 종이 포장재중 가장 사용량이 많은 식품용기로서 재활용하여 사용하지 못한다면, 재활용 펄프

공정의 개선과 원가적인 문제가 해결된다고 하더라도 아무 소용이 없다. 식약처에서는 식품과의 접촉면인 내면에 재활용 종이와 아닌 플라스틱 필름 등으로 구성될 경우, 식품 포장재로서의 사용을 허용하는 방향으로 규정을 완화하고 있기 때문에, 식품 용기로서 재활용 종이를 사용하기 위해서는 폴리에틸렌(PE)이나 폴리프로필렌(PP)등의 플라스틱 필름으로 내면을 코팅하는 것이 재활용 수요 창출에 있어서 향후 긍정적인 것으로 판단되고 있다.

[0011] 이와 같은 문제점을 극복하기 위한 친환경 종이 용기에 대한 선행기술을 살펴보면, 재활용 공정에서 코팅된 플라스틱 필름을 제거하기 용이하도록 하기 위한 특허로서, 대한민국 등록특허공보 제10-2026231에는 폴리오레핀(PE, PP등) 수지에 다공성 무기충전제(탄산칼슘, 실리카, 세라믹 입자등)를 다량 혼합하여 코팅하는 방법이 제시되어 있으며, 기존 폴리오레핀 100% 압출코팅 종이에 비해 수분리성이 향상되어 펄프 회수율이 향상된다는 장점이 있으나, 압출코팅 원료 수지로서 기존과 동일한 폴리오레핀(PE, PP등)이 사용되기 때문에, 이들이 압출 코팅시 종이의 섬유와 달라붙어 떨어지지 않아 근본적인 해결책을 제시하고 있지 못하며, 무기 충전제를 많이 넣을 경우 종지와 코팅층 간의 층간 접착력이 부족하여 종지와 코팅층이 분리되는 문제점이 있다. 또한 혼합되는 무기 충전제는 코팅공정에서 압출 코팅기를 마모시키고, 사용시에는 식품과 직접 접촉하여 무기이온이 용출되는 문제점이 있다. 이들 무기 이온은 식품의 맛을 변화시킬 수 있으며, 다량 용출시 안전성에도 문제가 될 소지가 있다.

[0012] 종지와 무기충전제 혼합 폴리오레핀 압출코팅층 간의 층간 접착력 부족을 해결하기 위하여, 대한민국 등록특허공보 제 10-2006945호에서는 극성기 함유 폴리오레핀 수지를 첨가하는 방안이 제시되어 있으나, 위에 언급한 문제점의 근본적인 해결책이 되기는 어렵다고 판단된다.

[0013] 한편으로, 다른 방법으로서 폴리오레핀 필름의 압출코팅을 하지 않고 종지에 수용성 코팅만을 행하여 펄프 해리 공정에서 폴리오레핀 필름의 제거공정이 필요없는 기술들이 제시되고 있다. 선행기술로서 대한민국 등록특허공보 제10-1639999호에서는 반응성 유화제, 아크릴계 단량체와 카복실산계 단량체, 다관능성 실리콘의 공중합체 라텍스를 사용하여, 기존의 폴리에틸렌(PE) 코팅된 종이컵 및 식품용기를 대체할 수 있는 수용성 코팅방법을 제시하고 있으며, 대한민국 등록특허공보 제 10-1737002호에서는 실리콘계 고분자 및 상기 아크릴계 고분자를 혼합한 코팅제를, 제10-1737004호와 제10-1752340호 및 제10-1836308호에서는 아크릴계 단량체와 실리콘계 단량체를 공중합한 에멀전을 폴리비닐알코올 콜로이드 수용액과 혼합하여 제조한 코팅액을 종지에 도포하여 코팅막을 형성하는 방법이 제안되고 있으나, 방습성이 부족하고, 열접착성이 부족하고, 또한 블로킹이 심해 종이컵 제조공정에서 어려움이 있다는 문제점이 있다. 이를 개선하기 위하여 대한민국 등록특허공보 제 10-2267634호에서는 아크릴계 고분자 수지와 탈크 등 피그먼트의 혼합 코팅제를 사용하는 것이 제안되어 있지만, 근본적인 문제의 해결이 어렵다고 판단된다.

[0014] 폴리오레핀 압출코팅 없이 수용성 코팅만으로 내수성과 용기(컵) 성형 가공성을 부여하고자 하는 다른 기술로서는, 대한민국 등록특허공보 제10-2261039호에서 아크릴산 에스테르계 모노머와 방향족 비닐계 모노머, 가교형 모노머를 혼합하여 만든 코팅제가 제안되고 있으며, 대한민국 등록특허공보 제10-2133438호에서는 수성 아크릴 수지 코팅액에 생분해 촉매를 혼합하여 종지에 코팅한 후 경화시키는 방법, 대한민국 공개특허공보 제10-2023-0141977호에서는 카복실산 변성 PVA를 주원료로 하고 금속 가교제를 포함한 수용성 코팅과 이를 개선한 방법으로 대한민국 공개특허공보 제10-2023-0152958호에서는 카복실산 변성 PVA를 주원료로 하되, 다른 코팅용액과 혼합되는 것을 방지하며, 저장 안정성을 향상시키고 가교 시간을 감소시킨 종이 용기용 코팅을 제안하고 있다.

[0015] 수용성 코팅 종지의 근본적인 문제인 용기(컵)성형 가공성을 향상시키기 위한 제안으로서는 대한민국 등록특허공보 제10-2393249호에서 종지에 두 번 코팅을 하는 방법이 제안되고 있는데, 이것은 종지와 닿는 제1 코팅층에 의해 열접착성 및 내수성이 부여되고, 제2코팅층에 의해 점착 저항성이 부여되는 더블 코팅 방법으로서, 코팅액으로서는 폴리오레핀 압출코팅 없이 수용성 코팅을 한다는 점에서 선행의 특허와 큰 차이가 없다.

[0016] 상기 언급한 내용을 요약하자면, 기존의 폴리오레핀 코팅 종이컵 및 종이용기의 재활용성을 향상시키는 방법으로는 크게 두 가지 방향이 있는데, 첫째는 압출코팅되는 폴리오레핀(PE, PP) 수지에 무기물질을 섞어 압출코팅을 행하여, 수분리성을 향상시키는 방법이 있으며, 두 번째로는 폴리오레핀(PE, PP) 수지를 압출코팅하지 않고, 종지에 수용성 코팅만을 하여 가교 및 경화를 시킴으로써 종이 표면에 내수성 필름막을 설치하는 방법으로 요약된다.

[0017] 첫 번째의 경우, 전술한 바와 같이 압출 코팅시 플라스틱 수지가 종지의 섬유 사이로 스며들어 결합하기 때문에 재활용시 펄프 회수 공정에서 코팅층과 종지의 완전 분리가 어렵고, 무기물질의 양을 늘리면 재활용 수율은 어느 정도 좋아지나 반면에 종지와 코팅층 간의 접착력이 나빠지는 문제점이 있다. 또한 코팅층에 함유된 다량의

무기물이 식품으로 이행될 가능성도 있다.

[0018] 두 번째의 경우 수용성 코팅이라는 근본적인 문제로 인해, 열접착성이 나쁘고 블로킹 문제로 종이컵이나 용기 성형 가공시 어려움이 있으며, 종이컵 내면의 코팅층이 전면에 걸쳐 직접 식품과 접촉하는 관계로, 뜨거운 물등을 담았을 시 종이컵의 코팅면에서 커피등 내용물로 코팅 물질의 전이량이 많을 수 있다는 문제점이 있다. 코팅액이 근본적으로는 수용성 물질이기 때문에 가교나 경화를 시킨다 하더라도 남아있는 저분자 물질이 물에 용해되기 쉽기 때문이다.

[0019] 따라서, 본 발명에서는 이러한 두가지 방향과는 다른 방법을 개발하여, 기존의 문제점을 해결하고자 한다.

선행기술문헌

특허문헌

[0021] (특허문헌 0001) 대한민국 등록특허공보 제 10-1639999호
(특허문헌 0002) 대한민국 등록특허공보 제 10-1737002호
(특허문헌 0003) 대한민국 등록특허공보 제 10-1737004호
(특허문헌 0004) 대한민국 등록특허공보 제 10-1752340호
(특허문헌 0005) 대한민국 등록특허공보 제 10-1836308호
(특허문헌 0006) 대한민국 등록특허공보 제 10-2026231호
(특허문헌 0007) 대한민국 등록특허공보 제 10-2006945호
(특허문헌 0008) 대한민국 등록특허공보 제 10-2133438호
(특허문헌 0009) 대한민국 등록특허공보 제 10-2261039호
(특허문헌 0010) 대한민국 등록특허공보 제 10-2267634호
(특허문헌 0011) 대한민국 등록특허공보 제 10-2393249호
(특허문헌 0012) 대한민국 공개특허공보 제 10-2022-0117609호
(특허문헌 0013) 대한민국 공개특허공보 제 10-2023-0141977호
(특허문헌 0014) 대한민국 등록특허공보 제 10-2023-0152958호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0022] 본 발명은 종래기술의 문제점을 감안하여 안출된 것으로서, 종이 기재상에 수성 코팅층을 다층으로 설치하고, 그 위에 플라스틱 필름(PE, PP, PET등)을 적층함으로써, 상기 수성 코팅층이 재활용 시 펄프 회수 공정에서 쉽게 수분리가 일어나는 제1층과 층간 접착강도를 우수하게 유지할 수 있는 제2층의 수성 코팅층을 설치하여, 상기 제2층이 상기 제1층 및 상기 플라스틱 필름과 우수한 층간 접착강도를 유지할 수 있게 하는 적층한 일회용 식품 용기용 친환경 코팅 종이를 제공하는 것을 그 목적으로 한다.

[0023] 또한, 기존의 PE 코팅 종이와 동일한 품질을 나타내면서도, 물에 침지하면 제1층에서 박리가 일어나, 재활용 시 펄프 회수 공정에서 수분리가 용이하게 일어나도록 한 일회용 식품 용기용 친환경 코팅 종이를 제공하는 것을 그 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0025] 상기와 같은 과제를 해결하기 위한 본 발명의 코팅 종이는 일회용 식품 용기에 사용되는 것으로서, 종이, 상기 종이의 표면에 형성되는 제1층의 수분리성 수용성 코팅층, 상기 제1층의 수분리성 수용성 코팅층 상에 형성되는 제2층의 난용성 수성 코팅층, 상기 제2층의 난용성 수성 코팅층 상에 형성되는 플라스틱 필름층으로 이루어지는

것을 특징으로 한다.

- [0026] 이때, 상기 제1층의 수용성 코팅층은 알칼리 가용 수지(alkali-soluble resin;ASR)을 이용하여 수지보강 에멀전 중합법(resin-fortified emulsion polymerization)에 의해 제조된 수용성 스티렌 아크릴 에멀전(styrene acrylic emulsion)을 포함하는 수성 코팅액을 사용하여 형성될 수 있다.
- [0027] 또한, 상기 수성 코팅액은 상기 스티렌 아크릴 에멀전에 아세틸화녹말(acetylated starch, starch acetate) 또는 아세틸아디프산이녹말(acetylated distarch adipate)을 전체 고형분의 40 중량% 이하의 범위에서 혼합한 것일 수 있다.
- [0028] 또한, 상기 수성 코팅액의 도포량은 고형분 기준 5 내지 12g/m²일 수 있다.
- [0029] 또한, 상기 제2층의 난용성 수성 코팅층은 유화중합법(emulsion polymerization)에 의해 제조된 아크릴산 공중합체 에멀전(acrylic acid copolymer emulsion)을 포함하는 수성 코팅액을 사용하여 형성될 수 있다.
- [0030] 또한, 상기 수성 코팅액은 접착 보조제를 포함하며, 상기 접착 보조제는 산 변성 폴리올레핀 수지(acid-modified polyolefin resin)를 기반으로 하는 수성 에멀전일 수 있다.
- [0031] 또한, 상기 제2층의 난용성 수지 코팅층 상에 산 변성 폴리올레핀 수지를 0.7 내지 0.8 중량% 포함하는 수성 에멀전을 수성 코팅액으로 사용하여 3층의 코팅층을 추가적으로 형성할 수 있다.
- [0032] 또한, 상기 플라스틱 필름층은 상기 제2층의 난용성 수성 코팅층 상에 압출코팅(extrusion coating) 또는 열라미네이션(thermal lamination)으로 형성될 수 있다.

발명의 효과

- [0034] 본 발명의 일회용 식품 용기용 친환경 코팅 종이는 종이 기재상에 수성 코팅층을 다층으로 설치하고, 그 위에 플라스틱 필름(PE, PP, PET등)을 적층함으로써, 상기 수성 코팅층이 재활용 시 펄프 회수 공정에서 쉽게 수분리가 일어나는 제1층과 층간 접착강도를 우수하게 유지할 수 있는 제2층의 수성 코팅층을 설치하여, 상기 제2층이 상기 제1층 및 플라스틱 필름과 우수한 층간 접착강도를 유지할 수 있게 하는 적층할 수 있다.
- [0035] 또한, 기존의 PE 코팅 종이와 동일한 품질을 나타내면서도, 물에 침지하면 상기 제1층에서 박리가 일어나, 재활용 시 펄프 회수 공정에서 수분리가 용이하게 일어나도록 할 수 있다.
- [0036] 또한, 기존의 식품 포장 용기나 종이컵과 같은 일회용 식품 용기의 재활용 수율을 획기적으로 향상시킬 수 있을 뿐만 아니라, 재활용 종이에도 적용 가능하며, 압출코팅 또는 열 라미네이션(thermal lamination)으로도 필름을 적층할 수 있는 효과를 나타낸다.

도면의 간단한 설명

- [0038] 도 1은 본 발명의 코팅 종이의 적층 구조(a) 및 시제품의 단면을 관찰한 전자현미경 사진(b)이다.
- 도 2는 종이컵에 사용되는 종이의 플라스틱 필름 코팅 전 표면 사진이다.
- 도 3은 자판기용 종이컵(a), 컵라면용 종이컵(b), 및 전자레인지용 컵밥 용기(c)의 단면을 촬영한 사진이다.
- 도 4는 2층 코팅층(a) 및 3층 코팅층(b)을 적용한 경우 코팅 종이의 단면을 도시한 개념도이다.
- 도 5는 기존 PE 코팅 종이와 본 발명의 코팅 종이에 대한 수분리 시험결과를 관찰한 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0039] 이하, 본 발명의 바람직한 실시예에 따른 코팅 종이에 대하여 상세히 설명한다.
- [0041] 본 발명의 코팅 종이는 일회용 식품 용기에 사용되는 것으로서, 종이, 상기 종이의 표면에 형성되는 제1층 및 제2층으로 이루어진 수용성 코팅층, 상기 수용성 코팅층 상에 형성되는 플라스틱 필름으로 이루어지는 것을 특징으로 한다. 구체적으로, 도 1에 도시된 것과 같이, 종이의 표면 위에 제1층의 수용성 코팅층이 형성되는데, 상기 제1층은 수용성 코팅층으로 수분리가 일어날 수 있는 것이며, 제2층은 난용성 수성 코팅층으로서 플라스틱 필름과 종이 간의 가교를 위하여 형성되는 코팅층이다.
- [0042] 따라서 본 발명의 코팅 종이는 사용 후 펄프 회수 공정에서 수분리가 일어나며 플라스틱 필름층과 종이의 박리가 용이하기 때문에 재활용에 유리한 효과를 나타낸다. 뿐만 아니라, 사용 중에는 플라스틱 필름층과 종이의 접

착력을 유지할 수 있기 때문에 사용 중 플라스틱 필름층의 박리를 억제할 수 있게 된다.

- [0043] 식품 포장 용기나 종이컵은 라면이나 커피와 같은 액체 식품을 담아야 하기 때문에, 통상적으로 100% 천연펄프(BKP; Bleached Kraft Paper)로 만든 종이에 폴리에틸렌(PE) 혹은 폴리프로필렌(PP)을 압출코팅(extrusion coating)으로 적층하여 내수성과 열접착성을 부여한 코팅 종이를 사용하고 있다.
- [0044] 상기 압출코팅의 과정에서 용융된 폴리에틸렌 또는 폴리프로필렌 수지는 종이 표면의 섬유 사이로 파고들어 섬유와 결합하기 때문에 코팅의 접착성은 우수하나, 사용 후 재활용 시 종기와 플라스틱 필름층의 분리가 어려운 문제점을 가지고 있다.
- [0045] 도 2는 종이컵에 사용되는 종이의 플라스틱 필름 코팅 전 표면 사진이다. 도 2와 같은 표면 구조를 가진 종이는 미세한 펄프 섬유로 구성되며, 각 섬유 사이의 공극으로 압출코팅시 용융된 플라스틱 수지가 스며들게 된다.
- [0046] 도 3(a)는 자판기용 종이컵, 도 3(b)는 컵라면용 종이컵, 도 3(c)는 전자레인지용 컵밥 용기의 단면을 촬영한 사진이다. 모두 압출코팅 시 용융된 플라스틱 수지가 미세 섬유 사이의 공극으로 스며들어 견고하게 결합되어 있음을 알 수 있다.
- [0047] 종이의 미세 섬유 사이로 스며든 플라스틱 필름층은 매우 견고하게 종기와 결합하고 있기 때문에, 물이나 알칼리 수에 담그거나 혹은 기계적인 힘으로 분리하고자 하여도 분리가 되기 어렵다. 오히려 결합력이 상대적으로 약한 종이 내의 섬유와 섬유 사이에서 분리가 일어나 종이의 일부는 플라스틱 필름에 남아있게 된다.
- [0048] 이러한 문제점을 개선하여 자동적으로 수분리가 일어날 수 있도록 하기 위하여, 압출 코팅 전 종이의 표면에 물에 용해되는 수용성 코팅층을 미리 설치하고, 그 위에 압출코팅을 실시할 수 있다. 이 경우, 종이 표면이 매끄러운 상태로 되기 때문에 압출코팅 시 플라스틱 수지가 종이의 섬유 사이로 스며들지 않게 되며, 코팅된 종이를 물에 담그면, 수용성 코팅층이 물에 녹아 자연스럽게 분리가 될 수 있다.
- [0049] 그러나 수용성 고분자에 종류, 코팅액의 점도에 따라 종이 섬유 사이에 스며드는 정도가 달라 만족할 만한 코팅 표면을 구현하기 어려우며, 종이 용기로 제조 시 일상적인 고습도 환경에서의 내수성 문제, 그리고 무엇보다 수용성 코팅층과 플라스틱 필름은 서로 용융상태의 친화성이 없기 때문에 두 층 사이의 만족할만한 층간 접착력을 구현하기 어렵다는 문제점이 있다.
- [0050] 따라서, 본 발명에서는 이러한 문제들을 다층 코팅으로 극복하고 있다.
- [0051] 우선, 종이 표면에 물에 잘 용해될 수 있는 제1층의 수분리성 수용성 코팅층을 형성한 후, 그 위에 제2층의 난용성 수성 코팅층을 형성한다. 상기 코팅층의 형성은 한 번의 작업으로 연속적으로 수행될 수 있으며, 그라비아 롤 코트 방식으로 수행될 수도 있다.
- [0052] 상기 제2층의 난용성 수성 코팅층을 형성한 후, 상기 코팅층 상에 압출코팅으로 플라스틱 필름층을 형성할 수 있다. 상기 플라스틱 필름층을 구성하는 플라스틱 필름으로는 폴리에틸렌(PE), 폴리프로필렌(PP), 또는 폴리에틸렌 테레프탈레이트(PET)를 사용할 수 있으며, 상기 폴리에틸렌 필름으로는 저밀도 폴리에틸렌(LDPE)을 사용하는 것이 바람직하다.
- [0053] 종이의 표면에 형성되는 제1층의 수분리성 수용성 코팅층은 수성 코팅액을 사용하여 형성되는데, 상기 수성 코팅액으로 물에 잘 용해되는 고분자인 폴리비닐알코올(PVOH), 폴리아크릴레이트(PAA), 녹말 유도체, 카르복시메틸셀룰로오스(CMC), 수성 아크릴 에멀전, 스티렌 아크릴 에멀전 등을 사용할 수 있다. 특히, 거친 표면인 종이에 균일한 코팅을 하기 위해서는 용액 상태의 수용성 고분자보다는 스티렌 아크릴 에멀전을 사용하는 것이 적절하다.
- [0054] 즉, 스티렌-아크릴산 공중합체(styrene-acrylic acid copolymer)와 같은 수지 보강 에멀전 수지(resin fortified emulsion)를 주 유화제로 사용하여, 스티렌(styrene), 메틸스티렌(methylstyrene), 부틸아크릴레이트(butyl acrylate) 등의 단량체로 구성된 알칼리 용해성 수지(alkali-soluble resin, ASR)를 기반으로 수지보강 에멀전 중합법(resin-fortified emulsion polymerization)에 의해 제조된 에멀전 용액을 사용할 수 있다. 수지 보강 에멀전 중합법은 중합 반응 중에 유화 중합 반응 혼합물에 수지를 첨가하여 반응시키는 중합법으로서, 상기 중합법을 이용하면 친수성의 알칼리 용해성 수지를 제조할 수 있다.
- [0055] 사용되는 알칼리 용해성 수지로는 폴리(스티렌/ α -메틸스티렌/아크릴산) 또는 폴리(부틸아크릴레이트/아크릴산)를 사용할 수 있다. 이들에 의해 공중합된 분자는 분자 내에 카르복실기(Carboxylic functional group)를 가지고 있어서, 알칼리수 내에서 중화반응에 의해 용해가 이루어질 수 있으며, 종이에 코팅 시 코팅면을 매끄럽게

할 뿐만 아니라 재활용 시 수분리성을 우수하게 해주는 역할을 하기 때문에 제1층을 형성하는 코팅액으로 적합하다.

- [0056] 또한, 수분리성을 향상시키기 위해 상기 스티렌 아크릴 에멀전에 아세틸화 녹말(acetylated starch, starch acetate) 또는 아세틸아디프산이녹말(acetylated distarch adipate)의 용액을 혼합할 수 있다. 균일한 분산을 위해 첨가되는 상기 아세틸화 녹말 또는 아세틸아디프산이녹말의 함량은 전체 고형분의 50 중량%를 넘지 않는 것이 바람직하며, 보다 바람직하게는 30 내지 40중량%를 넘지 않는 것이 바람직하다.
- [0057] 또한, 상기 제1층의 수용성 코팅층을 코팅할 때 코팅액의 도포량은 고형분 기준 5 내지 12g/m²이 적당하며, 점도는 수성 코팅기에 따라 차이가 있지만 그라비아 롤 코팅 방식의 경우 2,000cps 수준이 적당하다. 코팅 설비는 수성 코팅후 충분하고 긴 열 건조 후드를 통과함으로써 빠른 시간 내에 건조가 이루어질 수 있도록 하는 것이 바람직하다.
- [0058] 또한, 제2층의 난용성 수성 코팅층은 상기 RFE 중합법을 적용하지 않고, 암모늄 또는 과산화이황산나트륨을 개시제로 하여 물과 유화제를 사용하는 유화중합법(emulsion polymerization)으로 제조된 경화형 아크릴산 공중합체 에멀전을 코팅액으로 사용하여 형성할 수 있다. 상기 아크릴산 공중합체 에멀전은 메틸메타크릴레이트(methyl methacrylate), 부틸아크릴레이트(butyl acrylate), 메타크릴산(methacrylic acid) 등을 단량체로 하는 공중합체 에멀전일 수 있다.
- [0059] 상기 단량체는 수성 아크릴 에멀전에서 가교제로서의 역할을 하기 때문에 코팅후 열풍 건조 시 충분히 경화가 일어나 물에 잘 용해되지 않으며, 라미네이팅이나 압출코팅 가공시 층간 접착력을 강화시켜 주는 역할을 한다. 따라서 2층의 난용성 수성 코팅층 형성을 위한 코팅액의 주성분으로서 적합하다.
- [0060] 그러나 코팅된 필름과의 충분한 층간 접착력을 구현하기에는 부족하기 때문에, 플라스틱 필름층과의 접착력 강화를 위하여, 산 변성 폴리올레핀 수지(acid-modified polyolefin resin)를 기반으로 한 수성 에멀전을 접착 보조제로서 첨가하는 것이 바람직하다.
- [0061] 상기 접착 보조제는 산 변성 폴리올레핀 수지, 가교제 및 아세틸렌 글리콜계 계면활성제를 포함하는 수성 분산체로서, 수용액 상태에서 산 변성 폴리올레핀 수지의 함량이 0.1 내지 1.2 중량%가 되도록 물로 희석하여 첨가할 수 있다.
- [0062] 상기 접착 보조제의 주원료로 사용되는 산 변성 폴리올레핀 수지는 폴리올레핀을 불포화 카르복실산으로 변성시킨 수지로서, 불포화 카르복실산, 올레핀 화합물, 아크릴산 또는 메타크릴산의 알킬에스테르로 구성되는 공중합 수지를 사용하는 것이 바람직하다.
- [0063] 상기 제2층의 난용성 수성 코팅층을 형성하기 위한 코팅액의 도포량은 고형분 기준 3 내지 7g/m²이 적당하며, 점도는 수성 코팅기에 따라 차이가 있지만 그라비아 롤 코팅 방식의 경우 2,000cps 수준이 적당하다. 제1층의 코팅과 마찬가지로 수성 코팅 후 충분하고 긴 열 건조 후드를 통과함으로써 빠른 시간내에 건조가 이루어 질 수 있도록 하는 것이 바람직하다.
- [0064] 본 발명의 코팅 종이에서 코팅층은 전술한 바와 같이 2층으로 구성할 수 있으나, 필요에 따라 3층으로 구성할 수도 있다. 즉, 도 4에서와 같이 종이 상에 제1층 코팅층 및 제2층 코팅층을 형성한 후 플라스틱 필름층을 형성하는 2층 코팅층을 적용할 수도 있고(도 4(a)), 종이 상에 제1층 및 제2층 코팅층을 형성한 후 제3층 코팅층을 추가로 형성하고 그 위에 플라스틱 필름층을 형성하는 3층 코팅층을 적용할 수도 있다(도 4(b)).
- [0065] 또한, 상기 코팅액에서 접착 보조제로서 사용되는 수성 에멀전을 분리시킨 후 이를 이용하여 3층의 코팅층을 형성할 수도 있다.
- [0066] 상기 접착 보조제의 주역할은 압출코팅이나 라미네이팅으로 적층되는 플라스틱 필름층과의 충분한 층간 접착력 확보이므로, 제2층 코팅층의 형성 후 제3층 코팅으로 분리하여 코팅하여도 무방하다. 이 경우 제3층 코팅층을 형성하는 수성 코팅액으로서, 산 변성 폴리올레핀 수지의 함량이 약 0.7 내지 0.8 중량%이 되는 희석된 수성 에멀전을 사용할 수 있으며, 도포량은 고형분 기준 1~1.4g/m²이 적당하다.
- [0067] 전술한 바와 같이 제1층과 제2층으로 구성되는 코팅층, 또는 제1층, 제2층, 및 제3층으로 구성되는 3층의 코팅층은 한 번의 수성코팅 공정으로 연속적으로 이루어질 수 있으며, 이렇게 제작된 수성코팅 종이는 폴리에틸렌(PE), 폴리프로필렌(PP), 폴리에틸렌 테레프탈레이트(PET)의 압출코팅뿐만 아니라 이들을 소재로 한 필름과 열라미네이션도 수행할 수 있다.

[0068] 또한, 수성 코팅층이 균일하고 공고하게 종이의 표면을 덮고 있기 때문에, 천연펄프를 사용한 종이 뿐만 아니라 재활용 펄프 섬유가 함유된 종이에도 무난히 압출코팅을 수행할 수 있다는 장점을 가진다.

[0069] 또한, 본 발명의 코팅 종이의 층간 접착강도는 플라스틱 필름층/수용성 코팅층 사이의 층간 접착강도 및 제1층/제2층 사이의 층간 접착강도, 수용성 코팅층/종이 사이의 층간 접착강도 모두 박리 불가인 것으로 나타났으며, 기존 PE 코팅 종지와 마찬가지로 종이층 내에서만 박리가 일어나는 수준이었다. 수분 차단성의 경우에는 본 발명의 코팅 종지가 기존 PE 코팅 종지보다 수분 차단성이 다소 양호한 것으로 나타났다. 이를 정리하면 표 1과 같다.

표 1

[0071]

항목	PE 코팅 종이	본 발명	비고
Paper/PE 박리강도 (kgf /15 μ m)	박리불가	박리불가	종이층내에서 박리
WVTR (g/m ² · 24hr)	22	18	40℃, 90%RH

[0073] 수분리성을 평가하기 위하여, 기존 종이컵 PE 원단(LDPE 30 μ m/Paper 250g/m²)과 본 발명의 종이 원단(LDPE 30 μ m/수용성 코팅/Paper 250g/m²)을 10×10cm²로 잘라 물에 넣고 20분 뒤 박리 상태를 조사하였다.

[0074] 실험 결과, 도 4에서와 같이 기존 종이컵 PE 원단은 PE 층과 종이 사이에 수분리가 일어나지 않았으며, 힘을 가해 억지로 박리할 경우 종이층 내에서 박리가 일어났다. 반면에, 본 발명의 코팅 종지의 경우 기계적인 힘을 가하지 않았음에도 불구하고 제1층의 수성 코팅층에서 박리가 일어나 수중에서 자연스럽게 필름과 종지가 박리된 것을 알 수 있었다. 이와 같은 코팅 종지를 펄프 회수 공정에 적용할 경우, 99.5% 이상의 펄프 회수율을 얻을 수 있는 것으로 확인되었다.

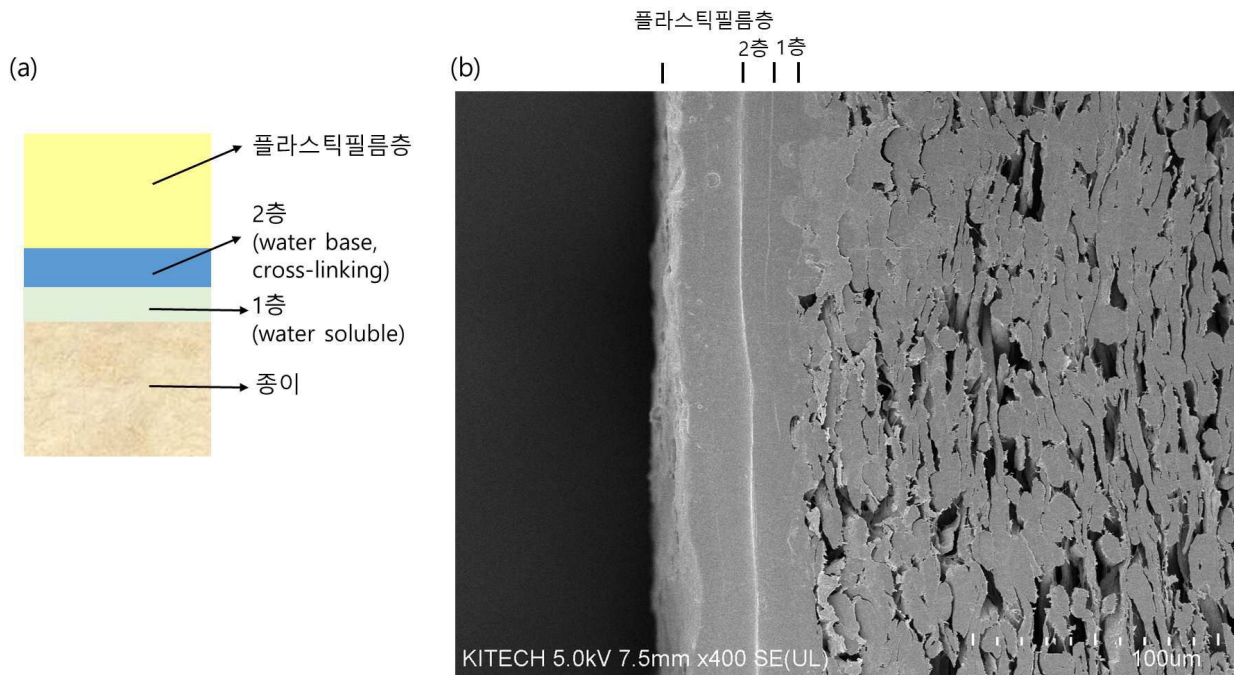
[0075] 본 발명은 코팅 종지는 기존의 폴리에틸렌 또는 폴리프로필렌 코팅 종지와 동등 이상의 층간 접착강도 및 내수성을 보유하면서도 재활용시 펄프 회수공정에서 별도의약품처리 없이도 쉽게 수분리가 가능하다는 장점을 갖기 때문에 재활용이 용이하며, 수분리가 용이하기 때문에 내외면에 양면 코팅된 종이 용기에 적용시 에도 펄프 회수 공정이 용이하며, 펄프의 재활용 수율이 99.5% 이상으로 기존의 폴리에틸렌 또는 폴리프로필렌 코팅 종이보다 우수하며, 펄프 섬유가 거의 부착되지 않은 상태로 코팅된 필름을 비중분리 할 수 있어 재활용이 용이하고, 수용성 코팅을 기반으로 하기 때문에 재활용 펄프가 함유된 종이에도 적용을 할 수 있어, 재활용 수요 창출에 도움이 될 수 있는 것으로 판단된다.

[0076] 따라서 본 발명의 코팅 종지는 광범위한 식품 포장재에 적용이 가능하며, 세부적으로는 음료나 커피에 사용되는 일회용 종이컵, 컵라면 용기, 컵밥 용기, 도시락용 종이 트레이, 진공 포장용 종이 트레이, 우유나 주스의 살균팩 등에 적용이 가능하며, 이들 포장재의 재활용 공정을 현저하게 용이하게 할 수 있는 것으로 파악되었다.

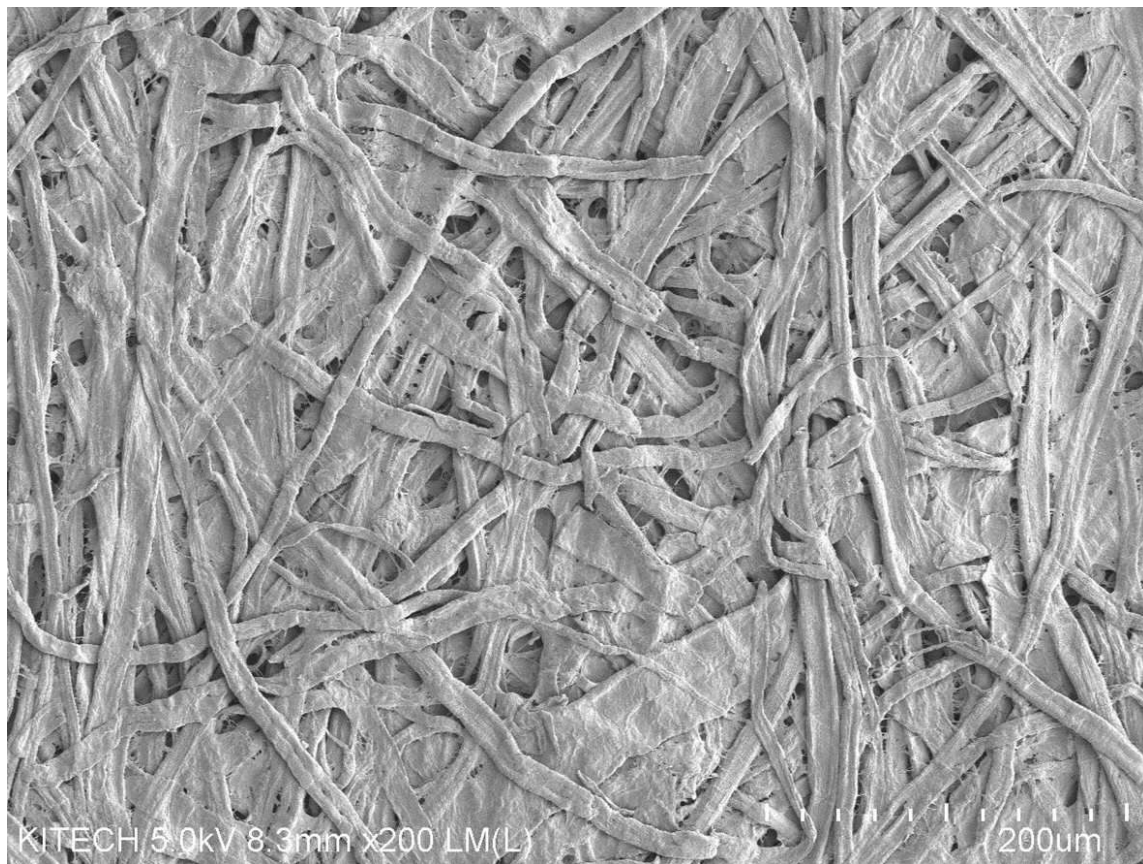
[0078] 본 발명은 상술한 특징의 바람직한 실시예에 한정되지 아니하며, 청구범위에서 청구하는 본 발명의 요지를 벗어남이 없이 해당 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 누구든지 다양한 변형실시가 가능한 것은 물론이고, 그와 같은 변경은 청구범위 기재의 범위 내에 있게 된다.

도면

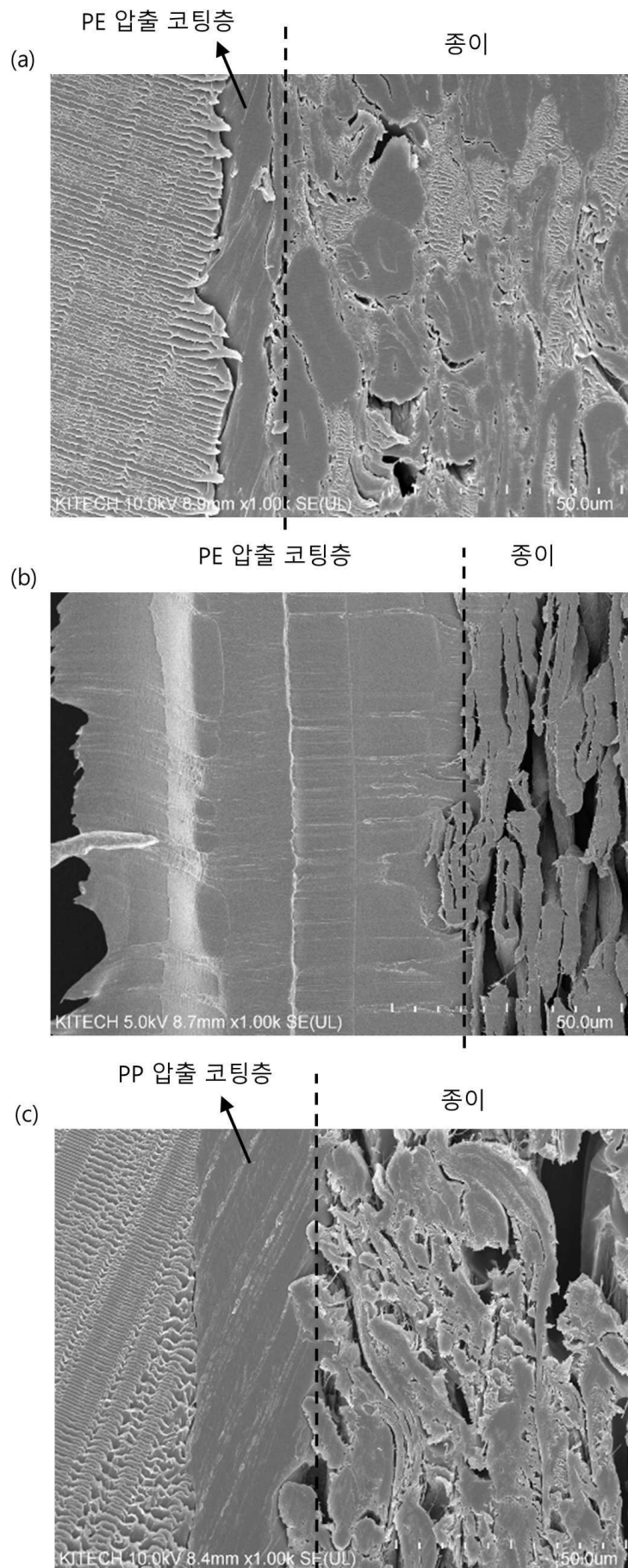
도면1



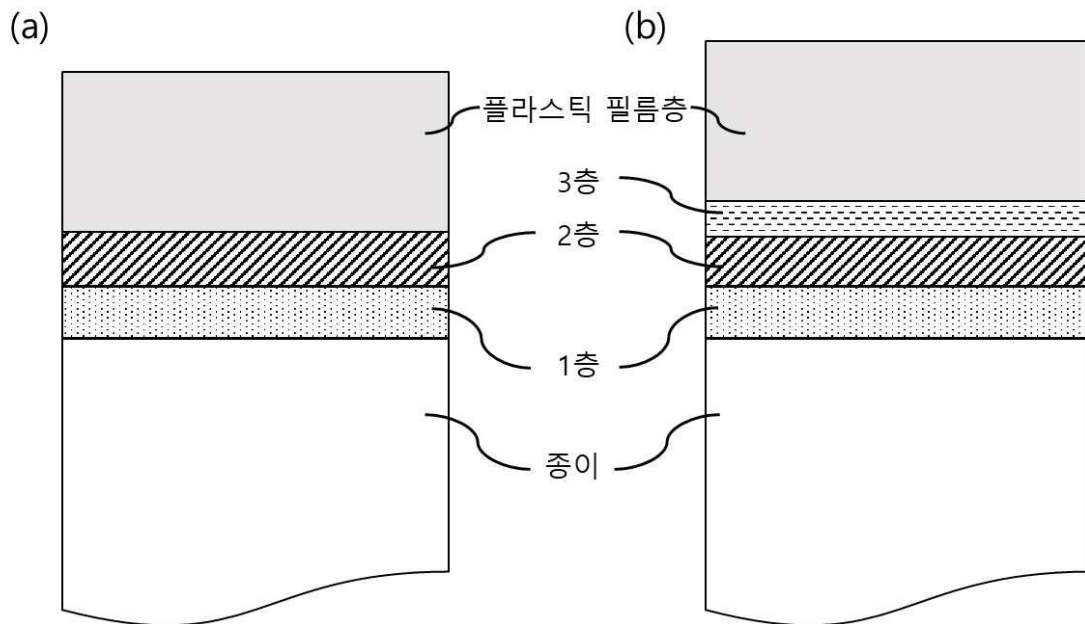
도면2



도면3



도면4



도면5

