

A study on the microstructure of eco-friendly cellulose-based materials with PP matrix and compatibilizer

Suk-hyun Lee[†] and Min-Seong Lee^{*}

Hanseo University, Seosan 31962, Korea

*REVATION Co., Ltd., Seoul 07788, Korea

(Received May 14, 2026)

(Revised June 9, 2026)

(Accepted June 15, 2026)

Abstract Composites with high cellulose content can reduce product quality and process stability by causing the sharkskin effect, characterized by surface roughness and wrinkle-like defects during extrusion molding. In this study, a composite material containing 50 wt% cellulose was used as a masterbatch and mixed with homopolymer polypropylene (homo PP, J800 and JC160) as the base resin and MAPP as a compatibilizer to improve the interfacial compatibility of cellulose-based fillers. The final cellulose content was adjusted to 20~40 wt%. The experimental results showed that surface defects were clearly reduced at cellulose contents of 20~30 wt%, and SEM observations confirmed a relatively continuous surface morphology. In contrast, defects reappeared at 40 wt%, accompanied by irregular surface roughness and localized agglomeration. These results confirm that controlling the cellulose content is effective in improving the extrusion molding quality and microstructural stability of eco-friendly composite materials for packaging containers.

Key words Cellulose-based composite, Eco-friendly packaging container, Extrusion molding, Surface defect, Sharkskin effect

친환경 셀룰로오스계 소재의 PP와 상용화제 첨가에 따른 미세구조 연구

이석현[†], 이민성^{*}

한서대학교, 서산, 31962

*리베이션(REVATION), 서울, 07788

(2026년 5월 14일 접수)

(2026년 6월 9일 심사완료)

(2026년 6월 15일 게재확정)

요약 고함량 셀룰로오스 복합소재는 압출 성형 과정에서 표면 거칠기 및 주름 형태의 sharkskin effect가 발생하여 제품 품질과 공정 안정성을 저하시킬 수 있다. 본 연구에서는 셀룰로오스 함량 50 wt% 복합소재를 마스터배치로 활용하고, 기재 수지인 호모폴리프로필렌(homo PP, J800 및 JC160)과 셀룰로오스계 필러의 계면 상용성 향상을 위한 상용화제 MAPP를 혼합하여 최종 셀룰로오스 함량을 20~40 wt%로 조절하였다. 실험 결과, 셀룰로오스 함량 20~30 wt% 조건에서는 표면 결함이 뚜렷하게 완화되었으며, SEM 관찰에서도 비교적 연속적인 표면 형상이 확인되었다. 반면, 40 wt% 조건에서는 결함이 다시 관찰되었고, 불규칙한 표면 거칠기와 국부적인 응집이 나타났다. 이를 통해 셀룰로오스 함량 조절이 친환경 포장용기용 복합소재의 압출 성형 품질 및 미세구조 안정성 개선에 유효함을 확인하였다.

1. 서론

기후 위기 대응과 탄소중립을 위한 전 세계적인 정책 강화 속에서, 산업 전반에 걸쳐 친환경 소재 개발의 중요성이 부각되고 있다[1]. 유럽연합 환경 총국(DG ENV)에서 발표한 EU policy framework on biobased, biodegradable

and compostable plastics(2022.11)에 따르면 화장품, 식품, 의약품 등의 포장재에 대해 일정 비율 이상의 생분해성 혹은 바이오 기반 소재를 적용하도록 하는 규제가 강화되고 있으며, 이를 충족하지 못할 경우 수출 제한 등의 실질적 조치가 시행되고 있다[2]. 이에 따라 화장품 포장용기 및 패키지 산업에서도 기존 석유계 플라스틱을 대체할 수 있는 친환경 소재에 대한 수요가 급격히 증가하고 있다. 특히, 이러한 규제 충족 및 친환경 인증 획득을 위해서는 셀룰로오스(cellulose)와 같은 천연 유래

[†]Corresponding author
E-mail: leefiaa@naver.com

바이오 필러의 함량을 높여야 하며, 이로 인해 친환경 소재 개발의 필요성이 더욱 강조되고 있다[3]. 이러한 산업 환경 변화에 대응하기 위해, 천연 유래 바이오 필러인 셀룰로스(cellulose) 및 리그노셀룰로스(lignocellulose)를 활용한 복합소재 개발이 주목받고 있다[4]. 셀룰로스는 풍부한 자원성과 생분해성, 기계적 강도 등의 이점을 가지나, 고분자 매트릭스와의 낮은 상용성 및 고함량 충전 시 가공성 저하 등의 한계를 내포한다. 반면, 리그노셀룰로스는 리그닌의 소수성과 셀룰로스의 섬유구조가 복합된 형태로, 비교적 우수한 혼화성을 보이며 복합소재용 필러로의 적용 가능성이 높다[5]. 고함량 셀룰로스 복합소재에서는 압출 성형 결함인 *sharkskin effect*가 발생하며, 이는 압출 성형 과정에서 발생할 수 있는 표면 결함 중 하나로, 상어의 피부처럼 거칠고 주름진 표면이 형성되는 현상을 말한다[6,7]. *Sharkskin effect*는 단순한 외관 불량에 그치지 않고, 압출 스트랜드의 표면 품질 저하, 후속 펠렛화 공정의 불안정성, 최종 포장용기 성형품의 외관 품질 저하로 이어질 수 있기 때문에 산업적 관점에서 중요한 결함이다. 특히 셀룰로스와 같은 친수성 바이오 필러가 비극성 PP 매트릭스에 고함량으로 첨가될 경우, 필러-매트릭스 간 계면 상용성 저하, 필러 응집, 용융 점도 증가 및 다이 출구에서의 국부 응력 집중이 발생할 수 있으며, 이는 압출 표면 불안정성을 유발하는 요인으로 작용한다. 또한 *sharkskin effect*는 다이 출구 부근에서의 용융체 유동 불안정성, 벽면 *slip*, 탄성 회복 및 국부 응력 집중과 관련된 압출 표면 불안정성으로 알려져 있다[7,8]. 기존 연구에서는 고충진 목재섬유 고분

자 복합재 및 실리카 충전 고무 복합재에서 *sharkskin* 및 *slip* 현상이 전단률, 충전제 함량, 계면 특성 및 공정 조건과 밀접하게 관련됨을 보고하였다[6,7]. 그러나 친환경 포장용기용 셀룰로스 기반 PP 복합소재에서 마스터 배치 희석 방식에 따른 셀룰로스 함량 변화와 압출 표면 결함 발생 경향을 비교한 연구는 아직 제한적이다.

따라서 본 연구에서는 셀룰로스 함량 50 wt%의 마스터배치를 기반으로 최종 셀룰로스 함량을 20~40 wt%로 조절하고, 기재인 PP 종류 및 상용화제인 MAPP 적용 조건에 따른 압출 표면 결함 발생 여부를 비교하여 친환경 포장용기용 복합소재의 안정적인 압출 공정 조건을 검토하고자 하였다.

2. 실험 방법

기존에 사용하는 셀룰로스 복합소재는 셀룰로스, 리그노셀룰로스, 실리카 코팅 셀룰로스와 유연제, 산화방지제, 윤활제 등을 첨가하여 제조되며, 최종 셀룰로스 함량 50 wt%를 유지하는 방식으로 제작된다. 기존 활용하고 있는 셀룰로스 복합소재 제조 공정은 Fig. 1에 나타내었고, 각 소재의 특성은 다음과 같다.

사용된 셀룰로스의 분자 구조, 분말 형상 및 SEM 이미지는 Fig. 2에 나타내었다.

본 연구에서 사용한 셀룰로스 파우더는 침엽수 자재로부터 추출된 마이크로 단위 입자 크기의 분말 소재이다. 셀룰로스는 추출, 분쇄 및 분급 공정을 거쳐 백색 분말

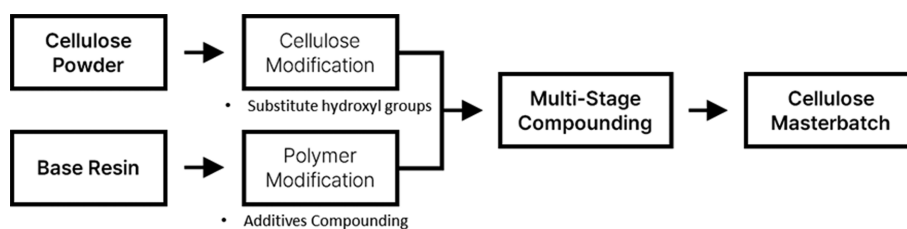


Fig. 1. Manufacturing process of a conventional composite with 50 wt% cellulose content.



Fig. 2. Cellulose chain structure (left), cellulose powder (center), SEM image (right).



Fig. 3. Lignocellulose chain structure (left), lignocellulose powder (center), SEM image (right).

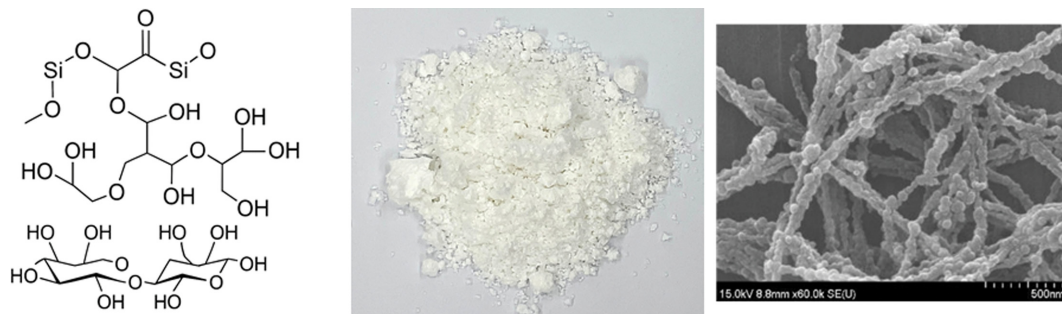


Fig. 4. Silica-coated cellulose chain structure (left), silica-coated cellulose powder (center), SEM image (right).

Table 1
Properties and grades of homo PP (J800, JC160)

		J800	JC160
Density	g/cm ³	-	0.9
Melt index	g/10 min	25	20
Tensile Strength at yield	MPa	36	39
Elongation at Break	%	500	100
Flexural Modulus	MPa	1,569	2,060
Izod impact	J/m	24.5	34
HDT @0.46MPa	°C	110	140

형태를 나타낸다. 용적 밀도는 200 g/L로 적용 시 부피 점유율이 비교적 큰 특성을 보이며, 진밀도는 1.2~1.5 g/cm³, 평균 입자 크기는 60 µm이다.

리그노셀룰로스의 구조, 분말 형상 및 SEM 이미지는 Fig. 3에 나타내었다.

리그노셀룰로스는 폐목재를 활용한 필러 소재로, 박피 처리 후 증해 공정을 통해 목재 섬유 간 결합력을 조절하고, 성분을 추출·건조·분쇄하여 제조된 분말을 사용하였다. 리그닌 성분으로 인해 짙은 갈색을 나타내며, 용적 밀도는 350 g/L로 셀룰로스 파우더에 비해 높은 편이다. 진밀도는 1.1 g/cm³, 평균 입자 크기는 40 µm이다.

실리카 코팅 셀룰로스(Silica-coated cellulose)의 구조, 분말 형상 및 SEM 이미지는 Fig. 4에 나타내었다. 실리카 코팅 셀룰로스는 셀룰로스 파우더의 친수성을 조절하고 고분자 매트릭스와의 혼화성을 향상시키기 위해 셀룰로스 섬유 표면에 실리카를 코팅한 개질 셀룰로스 소재이다. 해당 소재는 백색 분말 형태를 나타내며, 코팅으로

인해 용적 밀도는 60 g/L로 적용 부피가 비교적 큰 특성을 보인다. 실리카 코팅 섬유의 크기는 길이 100~150 µm, 두께 10~20 µm로 측정되었다.

셀룰로스 함량 50 wt%의 복합소재를 마스터배치(MB)로 지정하여, 추가 기재로서 homo PP(J800, JC160)와 상용화제(MAPP(DuPont Co., Fusabond))를 마스터배치에 첨가 배합하여 최종 셀룰로스 함량 20~40 wt%를 조절하여 복합소재를 제조하였다. J800과 JC160의 특성은 Table 1과 같다.

친환경 소재의 압출 성형 결합을 체계적으로 분석하기 위해, 셀룰로스 함량(20, 30, 40 wt%), 상용화제(MAPP) 적용 유무, 기재 종류(PP J800, JC160)를 달리한 총 6종의 배합비를 설계하였다. 이를 통해 셀룰로스 기반 복합소재의 압출 공정 중 표면 결함(Sharkskin effect 등) 및 가공성 저하 문제를 확인하고, 원인 분석과 개선 방향을 제시하고자 하였다. 배합비는 Table 2와 같다.

복합소재 제조공정은 Fig. 5와 같다.

Table 2
Formulation ratios with adjusted cellulose content based on masterbatch

Sample code	Formulation ratio(cellulose content)					Final cellulose content
CLD20	MB 40 %	+	PP(J800) 60 %			20 wt%
CLD30	MB 60 %	+	PP(J800) 40 %			30 wt%
CLB30	MB 60 %	+	PP(JC160) 40 %			30 wt%
CLB30A	MB 60 %	+	PP(JC160) 35 %	+	MAPP 5 %	30 wt%
CLD40	MB 80 %	+	PP(J800) 20 %			40 wt%
CLD40A	MB 80 %	+	PP(J800) 15 %	+	MAPP 5 %	40 wt%

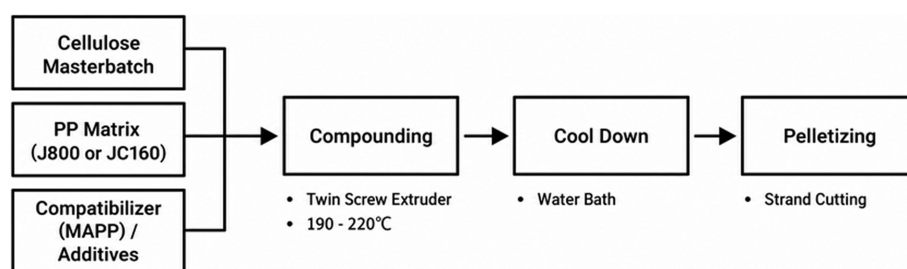


Fig. 5. Compounding process of cellulose masterbatch with PP matrix and compatibilizer (MAPP).

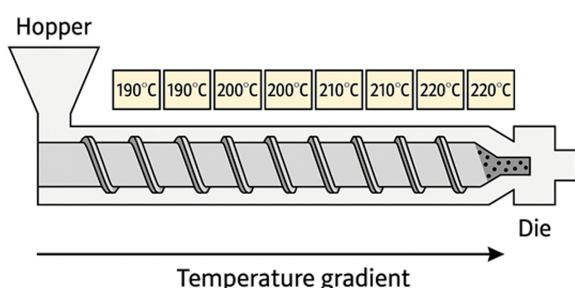


Fig. 6. Operating conditions of the twin-screw extruder.

80°C에서 사전 건조한 원료를 dry mixing한 후, co-rotating twin-screw extruder를 이용하여 복합소재를 제조하였다. 원료는 셀룰로스 함량 50 wt%의 마스터배치, 기재 수지인 호모폴리프로필렌(homo PP, J800 또는 JC160), 상용화제인 MAPP 및 기타 첨가제로 구성하였다. 사용 장비는 Thermo Fisher Scientific사의 Process 11 Parallel Twin-Screw Extruder이며, 스크류 길이(L)는 40 cm, 스크류 직경(D)은 1.9 cm, L/D ratio는 20이다. 배합비별 공정 조건을 설정하기 위해 원료 투입 속도,

스크류 회전 속도 및 펠렛타이저 회전 속도를 조절하였다. 압출 처리량은 투입 및 처리 속도에 따라 5~8 kg/hr 범위에서 수행하였다.

본 연구에서 적용한 이축 압출기의 온도 구배 및 운전 조건은 Fig. 6에 나타내었다.

Figure 6에 나타낸 바와 같이, 배럴 온도는 호퍼부에서 노즐부 방향으로 190~220°C로 설정하였으며, 이는 상용 PP 압출 공정 조건을 기반으로 하였다. 압출 스크류 회전 속도는 200 rpm으로 고정하여 실험을 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

셀룰로스 함량을 20~40 wt%까지 조절하여 압출 성형한 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 20 wt% 및 30 wt% 조건에서는 압출 스트랜드 표면이 비교적 균일하게 형성되었으나, 40 wt% 조건에서는 표면 거칠기와 주름 형태의 결함이 뚜렷하게 관찰되었다. 이는 셀룰로스 함량 증가에 따라 압출 표면 불안정성이 증가할 수 있음을 보여

Table 3
Summary of extrusion processing results according to formulation conditions

Sample	Cellulose content	MAPP	Qualitative defect level	Observation of surface defect
CLD20	20 wt%	Not applied	0	No significant surface defect
CLD30	30 wt%	Not applied	1	Surface defects were reduced
CLB30	30 wt%	Not applied	1	Surface defects were reduced
CLB30A	30 wt%	Applied	1	Surface defects were reduced
CLD40	40 wt%	Not applied	4	Sharkskin effect occurred
CLD40A	40 wt%	Applied	4	Sharkskin effect occurred

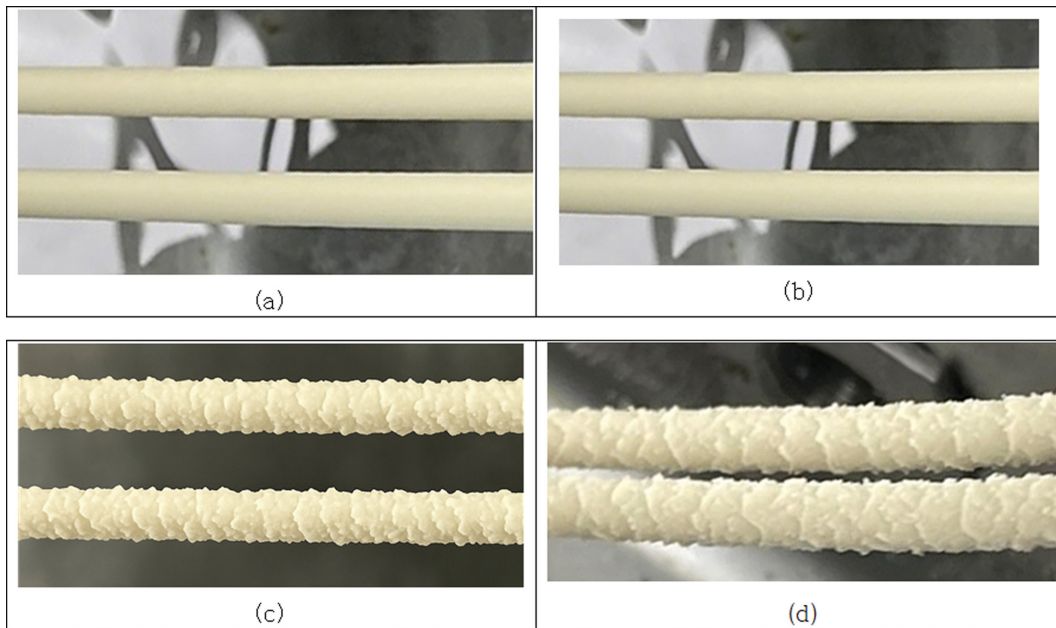


Fig. 7. Extruded strand morphology according to cellulose content: (a) 20 wt%, (b) 30 wt%, and (c, d) 40 wt% with sharkskin effect.

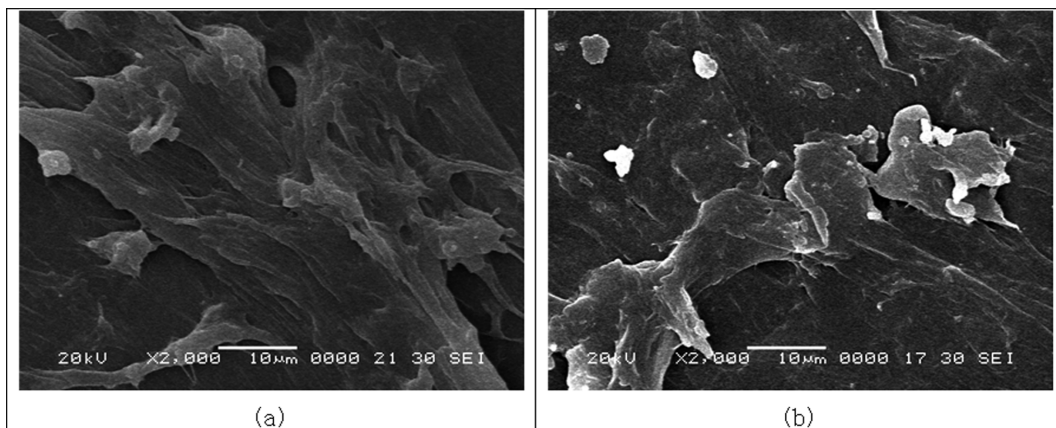


Fig. 8. SEM images of extruded strand surfaces at cellulose contents of 20~30 wt%: (a) 20 wt% cellulose (×2,000, scale bar = 10 μm) and (b) 30 wt% cellulose (×2,000, scale bar = 10 μm).

준다.

또한 배합 조건별 압출 성형 결과를 정리하면 Table 3과 같다.

Table 3의 정성적 결함 수준은 압출 스트랜드의 육안 및 이미지 관찰 결과를 바탕으로 분류하였다. 결함 수준은 0 = 뚜렷한 결함 없음, 1 = 미세한 표면 불균일, 4 = 심한 sharkskin 형태의 표면 거칠기로 구분하였다. 본 연구에서는 Ra 및 Rz와 같은 표면 조도값을 정량적으로 측정하지는 못하였으나, 배합 조건별 표면 결함의 상대적 심화 정도를 비교하기 위한 보조 지표로 정성 등급을 제시하였다. 또한 셀룰로스 함량에 따른 압출 스트랜드 표면의 미세구조를 확인하기 위해 SEM 관찰을 수행하였으며, 그 결과를 Fig. 8과 Fig. 9에 나타내었다.

Figure 8은 셀룰로스 함량 20 wt% 및 30 wt% 조건

에서 제조된 압출 스트랜드 표면의 SEM 관찰 결과를 나타낸다. 두 조건 모두에서 표면은 비교적 연속적이고 균일한 형태를 보였으며, 심한 주름형 균열이나 불연속적인 표면 파단은 뚜렷하게 관찰되지 않았다. 일부 미세한 요철과 분산된 입자상 구조는 관찰되었으나, 전반적으로 고분자 매트릭스가 연속적인 표면을 형성하고 있어 Fig. 7의 외관 관찰 결과와 동일하게 표면 결함이 비교적 완화된 상태를 확인할 수 있었다. 이는 셀룰로스 함량을 20~30 wt% 수준으로 조절할 경우 압출 스트랜드의 표면 안정성이 상대적으로 유지될 수 있음을 미세 구조 관점에서 뒷받침한다.

Figure 9는 셀룰로스 함량 40 wt% 조건에서 제조된 압출 스트랜드 표면의 SEM 관찰 결과를 나타낸다. 40 wt% 조건에서는 20~30 wt% 조건에 비해 표면의 연속

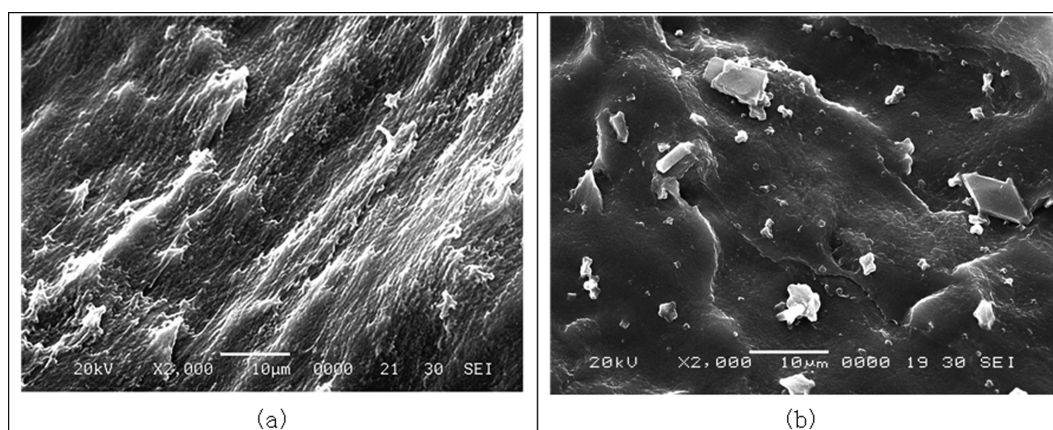


Fig. 9. SEM images of extruded strand surfaces at 40 wt% cellulose content: (a) roughened surface morphology ($\times 2,000$, scale bar = 10 μm) and (b) localized agglomeration and irregular fracture features in the defect region ($\times 2,000$, scale bar = 10 μm).

성이 저하되고, 불규칙한 거칠기, 국부적인 응집 구조 및 파단형 표면 형상이 보다 뚜렷하게 관찰되었다. 특히 표면 일부 영역에서는 미세한 표면 불균일과 응집체 주변의 불규칙한 형상이 나타나, 고함량 셀룰로스 조건에서 계면 불균일성과 용융 유동 불안정성이 증가할 가능성을 시사한다. 이러한 SEM 관찰 결과는 Fig. 7에서 관찰된 40 wt% 조건의 외관상 sharkskin 형태 표면 결함과 일치하며, 고함량 셀룰로스 조건에서 표면 결함이 심화됨을 미세구조 관점에서 뒷받침한다.

MAPP는 비극성 PP 매트릭스와 극성을 갖는 셀룰로스에 필러 간의 결합 및 분산성을 향상시키기 위한 상용화제로 적용되었다[9,10]. CLB30과 CLB30A, CLD40과 CLD40A를 비교한 결과, MAPP 적용 조건에서도 40 wt%의 고함량 셀룰로스 조건에서는 표면 결함을 완전히 억제하지 못하였다. 이는 고함량 필러 조건에서 셀룰로스 입자 간 응집 및 물리적 얽힘이 증가하여, MAPP에 의한 PP 매트릭스와 셀룰로스에 필러 간의 결합·분산 개선 효과보다 용융 흐름 불안정성이 더 크게 작용했기 때문으로 판단된다. 다만 본 연구에서는 MAPP의 maleic anhydride graft ratio, FT-IR 분석 및 필러 분산성에 대한 정량적 평가는 수행하지 않았으므로, MAPP의 상용화 효과에 대한 정량적 평가는 후속 연구에서 보완할 필요가 있다.

본 연구에서는 압출 스트랜드의 외관 및 SEM 표면 이미지를 중심으로 결함 발생 여부를 관찰하였다. 셀룰로스 함량이 증가함에 따라 40 wt% 조건에서 표면 거칠기와 불규칙한 주름 형태가 뚜렷하게 나타났으며, 펠렛 색상도 상대적으로 짙어지는 경향을 보였다. 다만 내부 기공 및 필러 분산 상태에 대한 정량적 분석은 수행하지 않았으므로, 이에 대해서는 향후 단면 SEM 관찰, 표면 조도 분석 및 분산성 평가를 통해 추가 검증이 필요하다.

또한, 이러한 결과는 Pashazadeh et al.이 보고한 고함량 목재섬유 복합재(WPC) 압출 시 표면 찢어짐(sharkskin) 현상과 일치하며, 고충전 조건에서 셀룰로스 간 상호작용 및 점도 차이가 공정 안정성을 저해할 수 있음을 지지한다[6]. 더불어 Gansen et al.은 silica-filled Styrene-Butadiene Rubber (SBR) compounds의 압출 과정에서 충전재 함량 및 전단 조건에 따라 slip 및 sharkskin melt instability가 발생할 수 있음을 보고하였다[7]. 따라서 본 연구에서 관찰된 셀룰로스 복합재의 sharkskin 현상은 고충전 필러 복합재에서 나타나는 압출 표면 불안정성과 유사한 경향을 보인다. 이러한 결과는 셀룰로스 기반 복합소재의 압출 공정 개선 및 소재 개발을 위한 기초 자료로 활용될 수 있다. 본 연구의 결과는 셀룰로스 함량과 표면 결함 발생 경향 사이의 정성적 상관성을 제시하는 데 의의가 있으며, 향후 capillary rheometer, torque rheometer 및 압출 압력 모니터링을 통해 sharkskin 발생 메커니즘을 정량적으로 규명할 필요가 있다.

4. 결 론

본 연구는 친환경 포장용기에 적용 가능한 셀룰로스 기반 복합소재의 압출 성형 시 발생하는 표면 결함 현상을 분석하고, 이를 저감하기 위한 마스터배치 기반 공정 조건을 검토하였다. 기존에 사용되던 셀룰로스 함량 50 wt% 복합소재를 마스터배치로 활용하고, 기재 수지인 homo PP(J800, JC160)와 상용화제인 MAPP를 첨가·배합하여 셀룰로스 함량 20~40 wt% 수준의 복합소재를 제조하였다. 실험 결과, 셀룰로스 함량 20~30 wt% 조건에서는 압출 스트랜드 표면 결함이 비교적 완화되었으며, 40 wt% 조건에서는 표면 거칠기와 주름 형태의 sharkskin effect가 다시 뚜렷하게 관찰되었다. 또한 SEM 관찰 결

과, 20~30 wt% 조건에서는 비교적 연속적인 표면 형상이 확인된 반면, 40 wt% 조건에서는 불규칙한 표면 거칠기, 국부적인 응집 구조 및 파단형 표면 형상이 관찰되었다. 이를 통해 셀룰로스 함량 증가는 압출 표면 불안정성을 심화시킬 수 있으며, 셀룰로스 함량 조절이 표면 결함 저감에 중요한 공정 변수임을 확인하였다. 다만 본 연구는 압출 스트랜드의 외관 및 SEM 이미지를 관찰을 중심으로 표면 결함을 평가하였기 때문에, sharkskin effect의 발생 메커니즘을 정량적으로 규명하는 데에는 한계가 있다.

감사의 글

“이 논문은 2026년도 한서대학교 교내연구과제 지원사업에 의하여 연구되었음”.

References

- [1] M. Zhang, R. Liu and H. Sun, “Achieving carbon-neutral economies through circular economy, digitalization, and energy transition”, *Scientific Reports* 15 (2025) 13779.
- [2] European Commission, “EU policy framework on biobased, biodegradable and compostable plastics”, COM (2022) 682 final (European Commission, Brussels, 2022).
- [3] J.M. Lee, “Market trends in U.S. cosmetics and beauty packaging containers”, *The Monthly Packaging World* 323 (2020) 48.
- [4] S.H. Kim, Y.J. Kwon, Y. Sharma, M. Shon, S. Cho, K.Y. Baek and K.Y. Cho, “Nanocellulose-based polymer composites with their properties and applications”, *Applied Chemistry for Engineering* 34 (2023) 221.
- [5] S.J. Hong, A. Lee, S.H. Ju, Y.E. Shin and T.H. Park, “Enhanced properties of nano-cellulose and biodegradable polymer composites”, *Composites Research* 36 (2023) 126.
- [6] S. Pashazadeh, R. Ghanbari, M. Bek, A. Aulova, T. Moberg, A. Brolin and R. Kádár, “Mapping surface defects in highly-filled wood fiber polymer composite extrusion from inline spectral analysis”, *Composites Science and Technology* 242 (2023) 110133.
- [7] A. Gansen, M. Řehoř, C. Sill, P. Políńska, S. Westermann, J. Dheur, J.S. Hale and J. Baller, “Experimental separation of the onset of slip and sharkskin melt instabilities during the extrusion of silica-filled, styrene-butadiene rubber compounds”, *Rheologica Acta* 62 (2023) 15.
- [8] S. Varchanis, D. Pettas, Y. Dimakopoulos and J. Tsamopoulos, “Origin of the sharkskin instability: nonlinear dynamics”, *Physical Review Letters* 127 (2021) 088001.
- [9] T.J. Keener, R.K. Stuart and T.K. Brown, “Maleated coupling agents for natural fibre composites”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35 (2004) 357.
- [10] P.H.P.M. da Silveira, M.C.C. dos Santos, Y.S. Chaves, M.P. Ribeiro, B.Z. Marchi, S.N. Monteiro, A.V. Gomes, N.L.C.O. Tapanes, P.S.C. Pereira and D.C. Bastos, “Characterization of thermo-mechanical and chemical properties of polypropylene/hemp fiber biocomposites: Impact of maleic anhydride compatibilizer and fiber content”, *Polymers* 15 (2023) 3271.