

紙の表面ラフニング機構に関する研究(第1報) ラフニングに及ぼす面内内部応力の影響*

東京大学大学院農学生命科学研究科 佐々木 潔、江前 敏晴、尾鍋 史彦

Mechanism of Paper Surface Roughening (I) Influence of In-plane Internal Stress on Surface Roughening

Kiyoshi Sasaki, Toshiharu Enomae and Fumihiko Onabe

Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo



Surface roughening of paper is a phenomenon, which occurs when paper becomes wet in contact with moisture, water or aqueous liquid, and adversely affects print quality. Release of internal stress of paper was reported as one of the causes for surface roughening of paper. It is generally recognized that internal stress of paper is created in a sheet during drying under tension, and it is released when the sheet is wetted. However, there is anisotropy of created internal stress; in-plane stresses induced by drying tension and out-of-plane stresses. The contribution of in-plane internal stress to surface roughening was investigated. Machine-made sheets were subjected to cycles of calendering and soaking in water. In-plane internal stress of those samples was determined in terms of a rate of tensile stress relaxation to logarithmic time by Kubát's method. In-plane internal stress decreased remarkably by soaking, but did not change by calendering. Smoothness of the samples with intenser calendering conditions decreased more substantially by soaking in water. Reduction in smoothness of the samples after soaking depended on that before soaking, but not on the degree of reduction in internal stress. Consequently, release of in-plane internal stress could not be always a main cause for surface roughening on a printing-related smoothness scale, but may be responsible for deformation on a large scale.

Keywords : Calendering, Internal stress, Kubát's method, Smoothness, Surface roughening

1. 緒言

紙の表面ラフニングは、紙の表面が水蒸気、水または水を含む液体などに接触した際に、表面の粗さが増加し、光沢が失われる現象を指す。親水性材料である紙には避けられない

*本報告の一部は繊維学会年次大会（1996年、東京）で発表した。

現象であり、実際の印刷工程においてもオフセット印刷品質を損なうなど、実用において重要な問題である。

紙の表面ラフニング現象が起きる要因として、Skowronski¹⁾は図 1 に示すように、繊維壁内に水が拡散していくことによる膨潤、繊維間結合の破断²⁾、繊維形状が扁平なりボン状から円管状に復元すること^{3,4)}の他に、内部応力の解放を挙げている。表面ラフニングに關与する紙の内部応力は、面内 (xy 方向) 応力と面外 (z 方向) 応力の二つに分けることができる。面内応力は「シートの乾燥時に面方向に張力を加えたときに蓄えられる応力」と定義される。乾燥時に強い張力を与えて乾燥した紙は、収縮が抑制され大きい内部応力が蓄えられる。この内部応力は引張モードの応力緩和試験から測定することが Kubát⁵⁾により提唱されてきた。また、面外方向に作用するカレンダーリング処理によって紙表面は平滑になり、これは面外の内部応力が蓄えられる現象と考えられる⁶⁾。

Additon⁷⁾は、市販上質紙を相対湿度 97%の雰囲気下に 1 週間置いたところ、光沢の低下はわずかに見られたが、パーカープリントサーフ粗さでは有意な変化がないという結果を得た。一方 Kubát の方法により測定した面内内部応力は大きく低下した。これは、面内内部応力の低下とラフニングとは相関が低いことを示す一例であると考えられる。

本研究では、水への浸漬処理及びカレンダーリング処理を繰り返すことにより面内内部応力がどのように蓄えられ、また解放されるのかを、まず確認した。さらに、表面ラフニングを起こしたときに解放される面内内部応力の大きさとラフニング量との関連について明らかにした。

2. 理論

2.1 Kubát の内部応力測定法

Kubát の内部応力測定法は、ある応力 (そのサンプルに加えられた最大応力) まで引張した時点以後の応力の緩和速度 (時間の対数に対しての速度) は最大応力と直線関係にあり、これを最大応力軸上に外挿した点が内部応力を示すとする方法である。

これを図に示すと次ようになる。まず図 2 は引張応力緩和試験を行ったときに引張時間に対する応力の変化を縦軸にとったものであるが、最大荷重に達したとき、試料にひずみを与えるチャックの位置が固定され、以後ひずみは変化しない。この最大応力を初期応力あるいは断面積で除さなければ初期荷重と呼び、この応力 (荷重) に達した時間を時間 0 として応力 (荷重) が緩和していく挙動を応力 (荷重) - 緩和時間 (対数) の関係としてグラフに模式的に表したものが図 3 である。実際の実験結果のグラフは、浸漬処理などで断面積が変化するため、断面積で除していない荷重を縦軸にとった。以下“応力”の代わりに“荷重”を用いる。横軸の時間軸は対数で表示する。ごく初期の時間 (約 0.5 秒まで) の間を除いては荷重 - 緩和時間の対数は直線関係にあることがわかる。同一種類の試料に対しいくつかの初期荷重レベルを設定し、それぞれ荷重 - 緩和時間 (対数) の関係をプロットし、その時にできた直線の傾き (縦軸にとる) と初期荷重 (横軸にとる) との関係を

さらにプロットする。これが図 4 である。この両者の関係は基本的には 2 本の直線からなる折れ線になる。原点を通る直線は弾性変形領域に対応し、後半の直線部分は塑性変形領域に対応する。塑性領域部分の直線を外挿し、初期荷重軸で交わった点の荷重はこの試料が持つ内部応力を示す。

3. 実験

3.1 引張応力緩和試験の手順

幅 15 mm (手すき紙の場合は 10 mm) の短冊状のサンプルを、種類ごとに数枚のシートから採取した。機械ずきの紙では、引張方向を MD 方向に合わせた。

クロスバータイプの引張試験機 (オリエンテック製 UTM-100) を用い、サンプルを一定速度で引張した。引張開始時のスパンは 100 mm とし、引張速度は 10 mm/min とした。伸びを固定してから 1 ~ 120 秒後までの範囲で応力緩和速度を計算した。

一種類の紙につき、10 ~ 30 レベルの異なる初期荷重で測定し、また引張緩和試験の前に引張破断試験を同条件で数回行い、平均破壊荷重を求めた。初期荷重は、0 ~ 破壊荷重の間でほぼ等間隔に区切った各値を指定した。

3.2 試料

3.2.1 水への浸漬時間が内部応力に及ぼす影響

機械ずき上質紙 (デンブンサイズプレス処理、坪量 85.8 g/m²) を用い、1 分間水に浸漬し再乾燥させた紙、16 日間水に浸漬し再乾燥させた紙と、全く浸漬しない紙で比較検討した。

3.2.2 ウェットプレス条件による内部応力の比較

円形の LBKP 手すき紙 (PFI ミルで 5000 回叩解、坪量 120 g/m²) を調製した。プレス時の条件を

- a. 圧力 49 kPa プレス時間 1 分 1 回
- b. 圧力 340 kPa プレス時間 5 分 1 回
- c. 圧力 690 kPa プレス時間 20 分 1 回

の 3 種類とした。

3.2.3 緊張乾燥と自由乾燥との違い

円形の LBKP 手すき紙 (PFI ミルで 5000 回叩解、坪量 120 g/m²) を調製し、緊張乾燥と自由乾燥の違いを検討した。緊張乾燥のサンプルは通常のリング乾燥で調製し、自由乾燥のサンプルは図 5 のように積み重ねて乾燥した。

3.2.4 カレンダーリングが内部応力に及ぼす効果

3.2.4.1 上質紙の内部応力とラフニング

市販上質紙 (王子製紙(株)製サンフラワー、坪量 63.9 g/m²) を用い、カレンダーリングを行い、カレンダーリング条件及び水への浸漬処理が内部応力と平滑度に及ぼす影響を調べた。

サンプルの処理は表 1 の条件で行った。水に浸漬した後のカレンダーリング (SC) は元の

紙(O)と同程度の平滑度となるようにし、浸漬後に強くカレンダーリングした試料(SC₊)はカレンダーリング処理のみの試料(C)と同程度の平滑度となるようにした。カレンダーリングは表2の条件で行った。表中のO→CとS→SC₊にはラボ用スーパーカレンダー(由利ロール機械(株)製 MSC-07)を、S→SCにはグロスカレンダー(熊谷理機工業(株)製)を用いた。

3.2.4.2 中質紙の内部応力とラフニング

カレンダーリング条件の異なる機械ずき中質紙(北越製紙、NBKP/GP/TMP = 15/40/45、坪量 73.6 g/m²)を用い、カレンダーリング条件及び水への浸漬処理が内部応力と平滑度に及ぼす影響を調べた。カレンダーリング条件は線圧 29 kN/m、49 kN/m、及び未カレンダー、の3種類とした。これらと、これらを水に1日浸漬、再乾燥したサンプルを調製した。

4. 結果と考察

4.1 水への浸漬時間が内部応力に及ぼす影響

図6に、初期荷重に対する応力緩和速度の関係を示す。両者の塑性変形領域での関係は、初期荷重が引張破壊荷重に近づくると直線関係から外れてくる。水に浸漬した場合は特にそれが顕著となる。内部応力の計算はこれらの点を除外して行った。水に浸漬 - 再乾燥した紙は、未浸漬の紙よりも面内内部応力が減少した。しかし、1分間浸漬した紙と16日間浸漬した紙の間には、面内内部応力の大きさに明確な違いは見られなかった。このことから、紙はわずかな時間でも水に浸漬 - 再乾燥すれば、伸びた状態で固定されていた繊維の緊張(内部応力)が解放されることが確認された。また、浸漬時間を長くすると引張強さが低下した。繊維間結合の切断によるものと考えられる。

4.2 抄紙時のプレス条件による内部応力

図7に、初期荷重に対する応力緩和速度の関係を示す。プレス時の条件を最も強い「690 kPa、20分」とした場合にだけ、49 kPa、及び340 kPa(標準圧力)の場合に比べ面内内部応力がわずかに上昇した。この結果から、プレス条件を強くした場合、繊維間結合強さが上昇し、面外方向に内部応力が増加していくが⁸⁾、面内方向ではかなり強い圧力でプレスした場合を除いては内部応力の増加は少なかったと考えられる。

4.3 緊張乾燥と自由乾燥との違い

図8に、初期荷重に対する応力緩和速度の関係を示す。自由乾燥した紙は、内部応力が非常に小さく、ほぼ0に近い値を示した。したがって、緊張乾燥時の張力が内部応力として蓄えられ、自由乾燥の場合は蓄えられないということが示唆された。これは Kubát³⁾の結果と一致する。

4.4 カレンダーリングが内部応力に及ぼす影響

4.4.1 上質紙の内部応力とラフニング

図9と図10に、機械ずき上質紙の場合の初期荷重に対する応力緩和速度の関係を示す。OとSの比較から、水への浸漬処理により面内内部応力は大きく減少したことがわかる。OとCの比較から、カレンダーリングを行うと面内内部応力は減少したが、後述の中質紙の結

果ではカレンダーリングによる変化がないことからカレンダーリング処理前後の搬送中に吸湿したことによる減少であると推測される。S、SC、SC₊の比較から、いったん浸漬処理を経ると、そのあとのカレンダーリングによる面内内部応力の変化はほとんどなかった。SS、SCS、CS、SC₊Sの比較から、浸漬処理の回数を増やしても面内内部応力の変化はなく、またカレンダーリング処理を前後に入れても影響はなかった。面内内部応力は最初の浸漬処理により大きく減少するが、二度目の浸漬処理ではほとんど変化がなかった。

表 3 に、浸漬処理前後の平滑度の測定結果を示す。事前の浸漬処理やカレンダーリング処理の強弱の履歴に関係なく、最後の浸漬処理直前の平滑度が高いと処理後の平滑度は高く、また減少率も大きかった。したがって、浸漬処理後の平滑度は処理前の平滑度だけによって決定されると考えられる。

4.4.2 中質紙の内部応力とラフニング

図 11 に、中質紙の場合の内部応力と表面粗さの関係を示す。カレンダーリング線圧の大きさにかかわらず面内内部応力はほぼ一定であり、水への浸漬処理によってどのカレンダーリング線圧の試料も同程度に面内内部応力が減少した。

4.4.3 内部応力の減少とラフニングの関係

図 12 に、機械ずきの上質紙と中質紙の面内内部応力と表面粗さの関係を示す。表面粗さは表面形状プロファイルの中心線平均粗さに対応するように王研式平滑度の 3 乗根の逆数で示してある⁹⁾。

上質紙で O と SC、C と SC₊をそれぞれ比較すると、浸漬処理の前は同程度の平滑度であり、また、浸漬処理による平滑度の低下に顕著な差が見られなかった。しかし、O や C の方がそれぞれの浸漬処理による面内内部応力の減少は大きかった。これは表面ラフニング量が面内内部応力の解放と相関がないことを示唆するものである。水への浸漬処理はいずれも面内内部応力を減少させるが、必ずしも面内内部応力の解放が表面ラフニングの主要因であるとは言えないことが分かった。面内の内部応力の解放は王研式の平滑度で表されるような印刷に影響を及ぼす平滑性のスケールではなくもっとマクロなシート全体の変形（コックリング）を引き起こす原因になっていると考えられる。

中質紙では、浸漬処理により表面粗さが上質紙よりも大きく上昇した。坪量が大いこともその理由であるが、機械パルプ繊維はカレンダーリングにより扁平化した後、浸漬処理により円管状の形態に戻ることが知られており¹⁰⁾、そのために上質紙よりもラフニングが顕著となる。一方面内内部応力はカレンダーリングによる変化はほとんどなく浸漬処理により大きく減少した。

5. 結論

紙の面内内部応力は、紙を緊張乾燥することによって繊維が伸びた状態で固定されて蓄えられ、水に浸漬すれば解放されることが確認された。

上質紙の面内内部応力は水への浸漬処理により減少した。しかし、浸漬処理を経た紙を

カレンダーリングすると平滑度は大きくなるが、面内内部応力は全く増加しなかった。また、浸漬処理後の平滑度は処理前の平滑度によって一義的に決定され、面内内部応力の減少量には依存しなかった。したがって、必ずしも面内内部応力の解放が表面ラフニングの主要因であるとは言えない。中質紙でも平滑度はカレンダーリングによって上昇したが、面内内部応力の変化がほとんど見られなかった。水に浸漬処理をすると、面内内部応力が減少し、表面粗さが上質紙よりも大幅に上昇した。表面ラフニングは、カレンダーリングなどの面外方向に作用する処理によって生じる応力の解放が原因となっており、乾燥張力によって生じる面内方向の内部応力が水への浸漬などによって解放されるときは、シート全体の大きな変形となって表れることが推測された。

謝辞

機械ずき中質紙を提供して頂いた北越製紙(株)の佐藤勤氏と金子正一郎氏、実験試料のカレンダーリング処理をして頂いた三井化学(株)の早野三郎氏に対し、感謝の意を申し上げます。

引用文献

- 1) J. Skowronski : J. Pulp and Paper Science, 16 (3), J102-110 (1990)
- 2) J. Aspler and M. Béland : J. Pulp and Paper Science, 20 (1), J27-32 (1994)
- 3) T. Enomae and P. Lepoutre, : Nordic Pulp and Paper Research J., 13 (4), 280-284 (1998)
- 4) T. Enomae and P. Lepoutre, : "Mechanism and dynamics of the roughening of paper in contact with moisture", 4th International Symposium -Moisture and Creep Effects on Paper, Board and Containers-, Grenoble, France, 57 (1999)
- 5) F. Johanson and J. Kubát : Svensk Papperstidn., 67 (20), 822-832 (1964)
- 6) 江前敏晴, 佐々木潔, 尾鍋史彦 : 繊維学会予稿集、印刷中 (1999)
- 7) D. Additon : Ms. thesis, University of Maine, USA, 55 (1996)
- 8) T. Enomae, K. Sasaki, B. Kim and F. Onabe, : "Anisotropy of internal stress related to paper surface roughening", Proceedings of 1999 Tappi Advanced Coating Fundamentals Symposium, Tappi press, Atlanta, USA, in press (1999)
- 9) 江前敏晴, 尾鍋史彦 : 繊維学会誌, 53 (3), 86-95 (1997)
- 10) T. Forseth, K. Wiik and T. Helle : Nordic Pulp and Paper Research J., 12 (1), 67-71 (1997)

Table 1 Treatment of machine-made wood-free paper.

Sample name	Treatment	Target smoothness after calendering (s)
O	Original	40 (Measured value)
C	Calendered O	160
CS	Soaked and dried C	
S	Soaked and dried O	
SC	Calendered S	40 (Equivalent to O)
SC ₊	Calendered S	160 (Equivalent to C)
SS	Soaked and dried S	
SCS	Soaked and dried SC	
SC ₊ S	Soaked and dried SC ₊	

Table 2 Calendering conditions of machine-made wood-free paper.

Treatment	Roll type	Temperature ()	Linear pressure (kN/m)	Threading speed (m/min)	Threading times
O → C	metal and cotton	25	52	5	2
S → SC	metal and rubber	70	12	5	1
S → SC ₊	metal and cotton	25	59	5	1

Table 3 Changes in Bekk (Oken type) smoothness by soaking in water for machine-made wood-free paper with different calendering and soaking histories.

Sample Treatment	Smoothness		
	Before soaking, s	After soaking, s	Change, %
O	57	25	-57
C	151	33	-78
SC	41	21	-49
SC ₊	171	39	-77

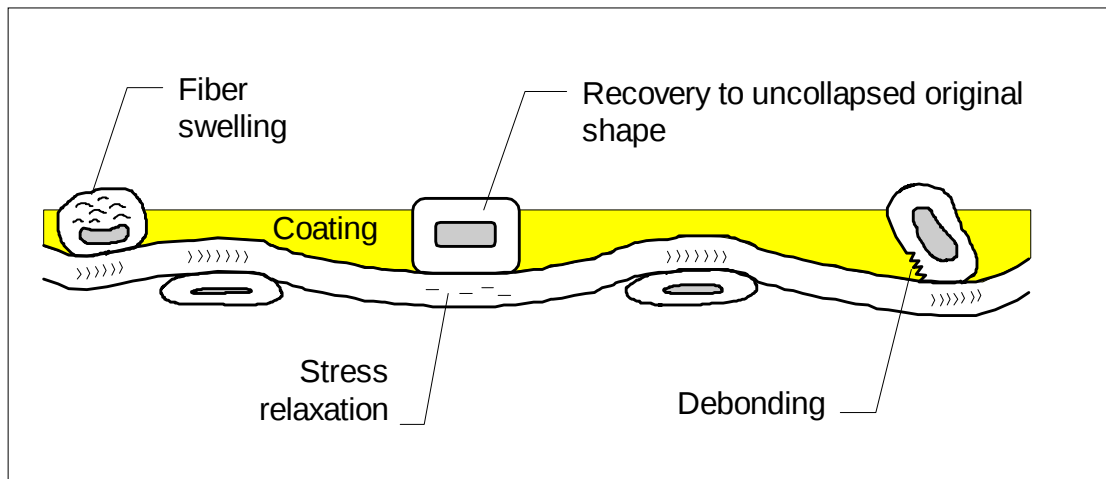


Fig. 1 Response of paper surface to water in coating (after Skowronski¹⁾).

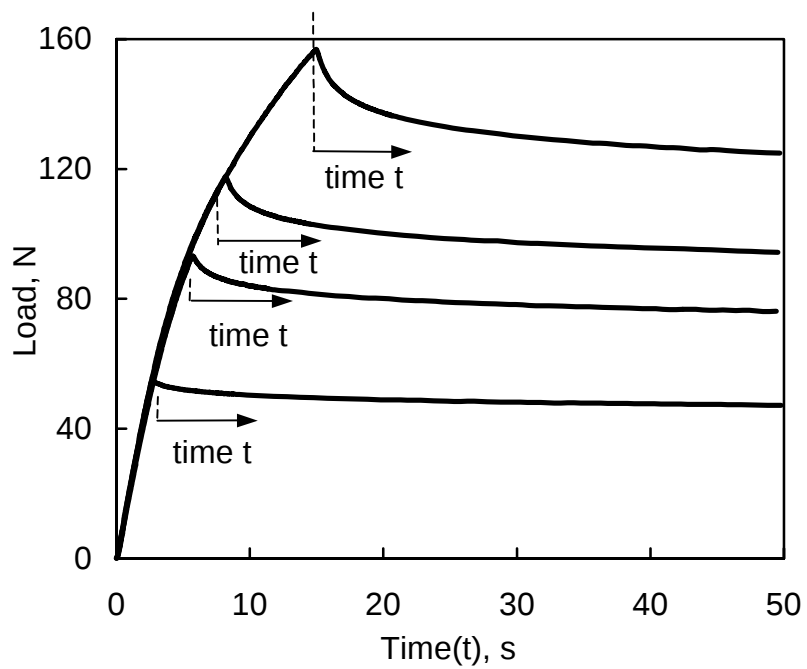


Fig. 2 Stress relaxation curves at different initial (maximum) loads.

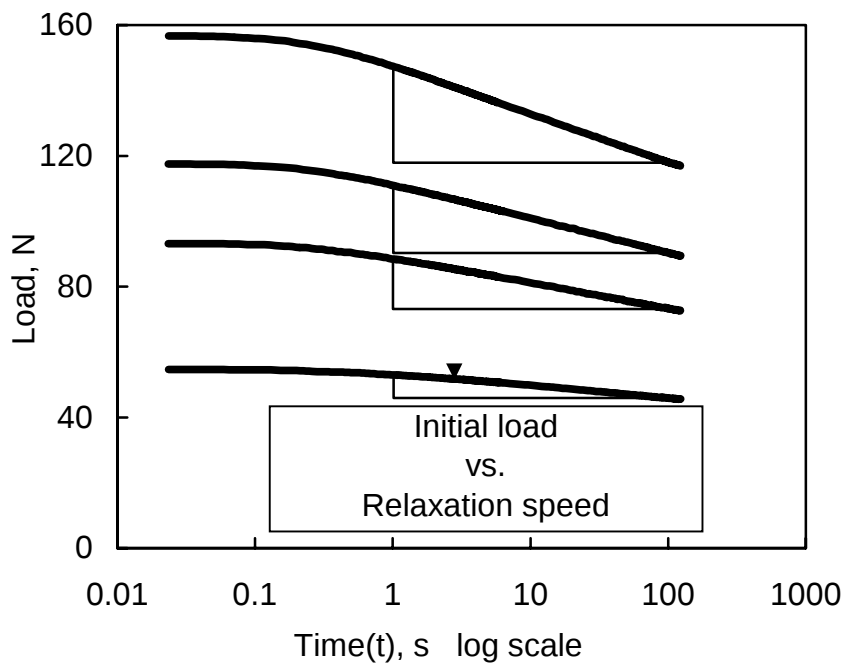


Fig. 3 Stress relaxation curves based on a log time scale.

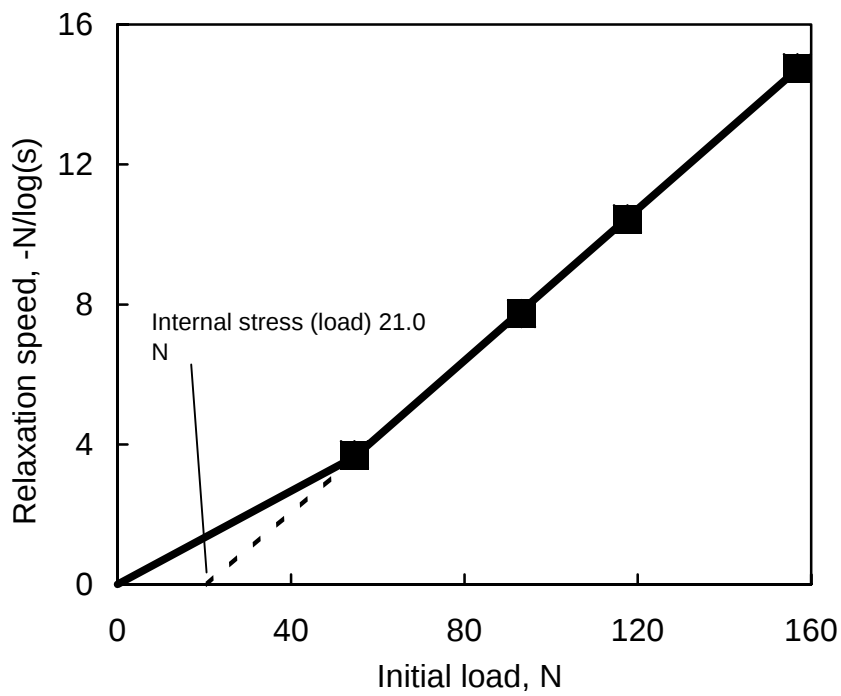


Fig. 4 Kubát's plot between relaxation speed and initial load.

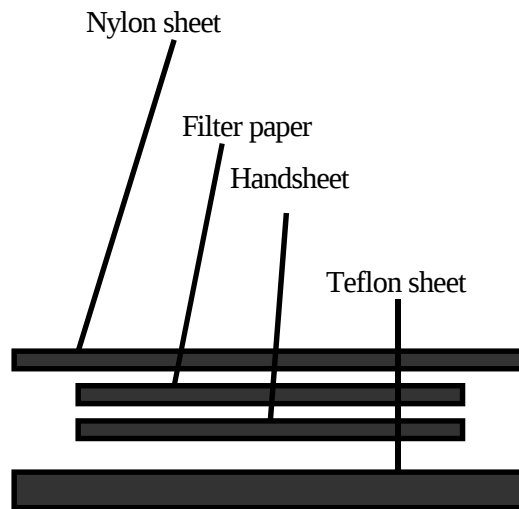


Fig. 5 Free drying method of handsheets.

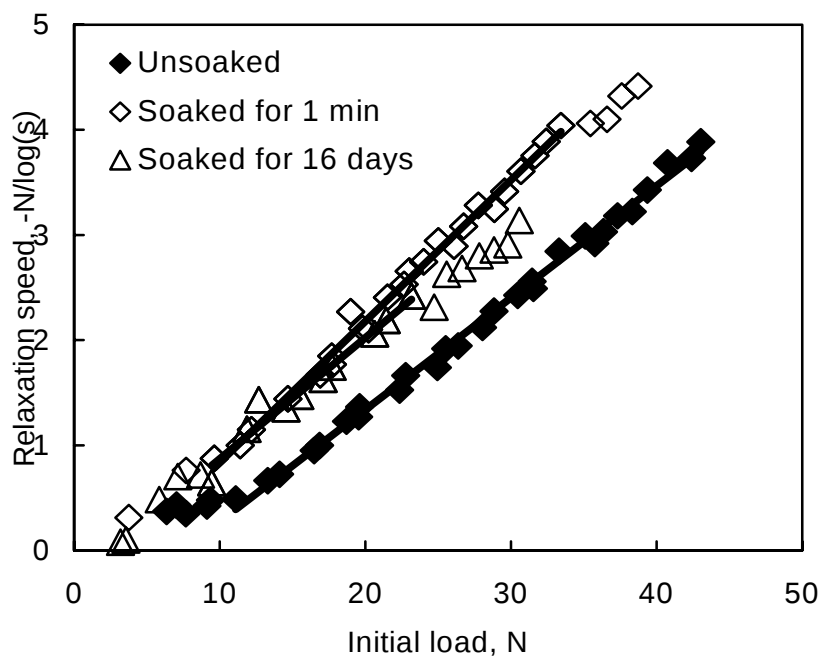


Fig. 6 Kubát's plot of wood-free paper for different periods of soaking time.

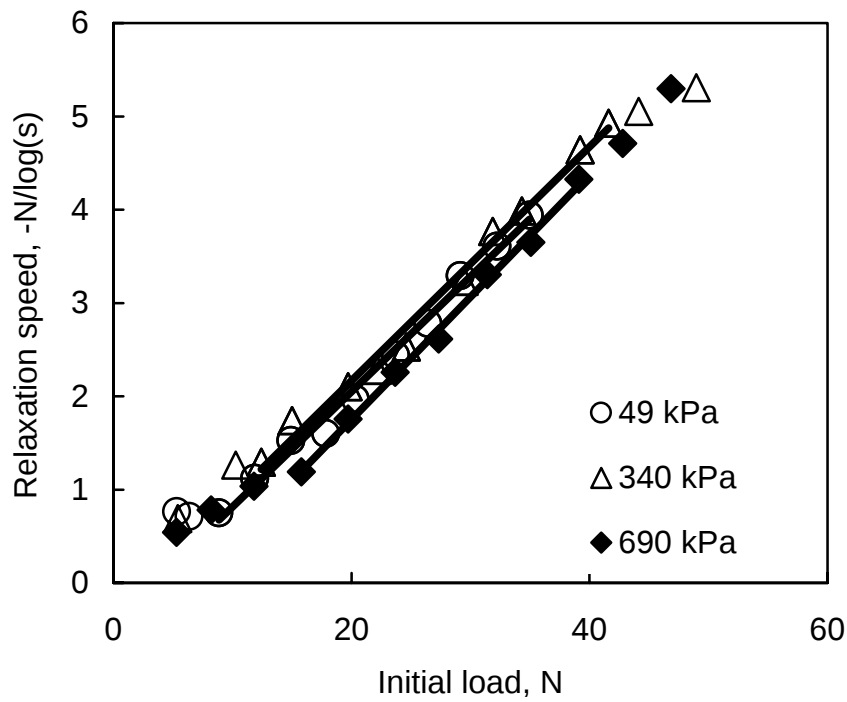


Fig. 7 Kubát's plot of handsheets under different wet-pressing conditions.

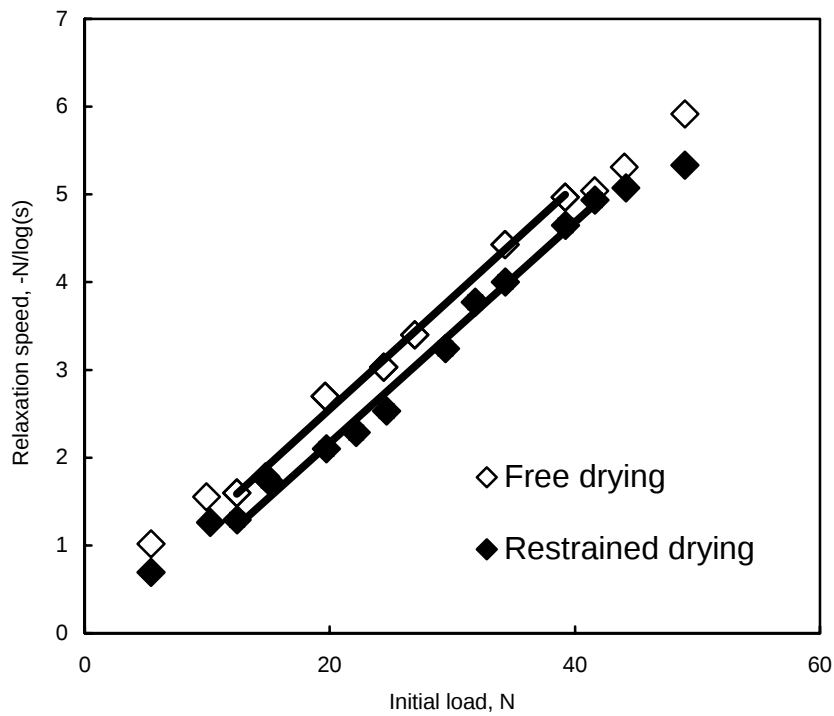


Fig. 8 Kubát's plot of handsheets compared between free drying and restrained drying.

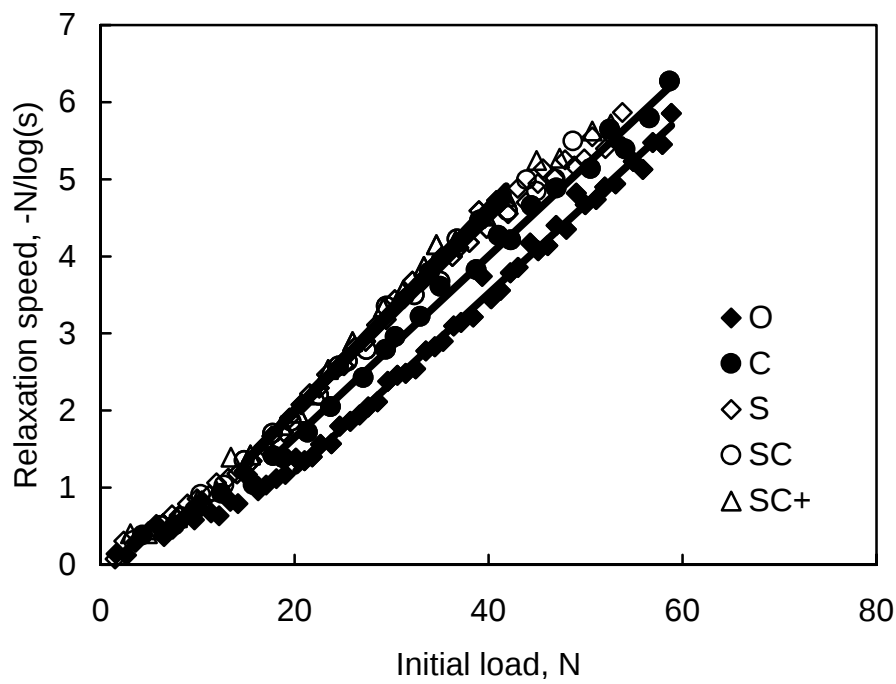


Fig. 9 Kubát's plot of wood-free paper under different conditions of calendering and soaking.

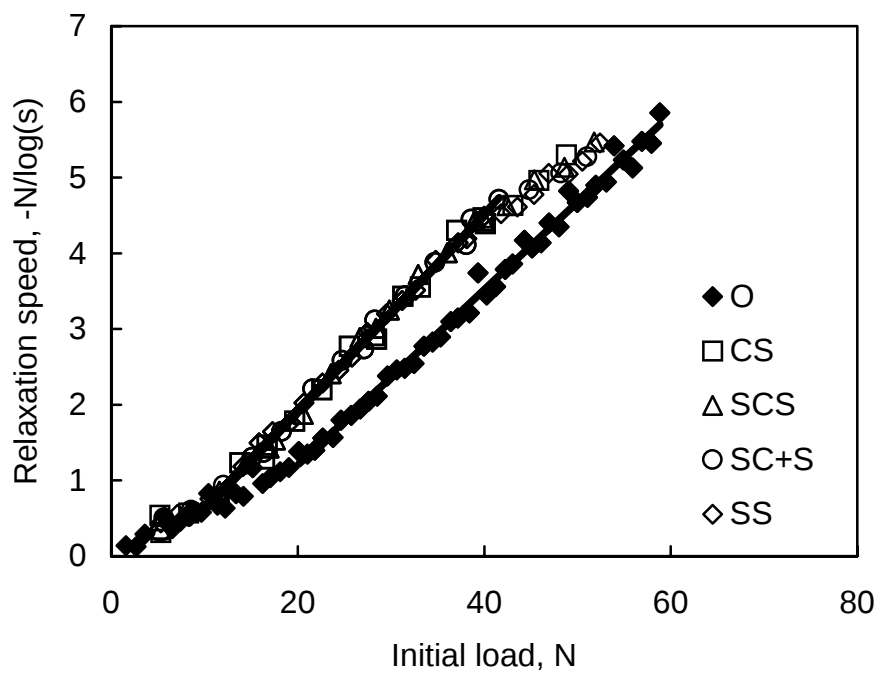


Fig. 10 Kubát's plot of wood-free paper under different conditions of calendering and soaking (continued).

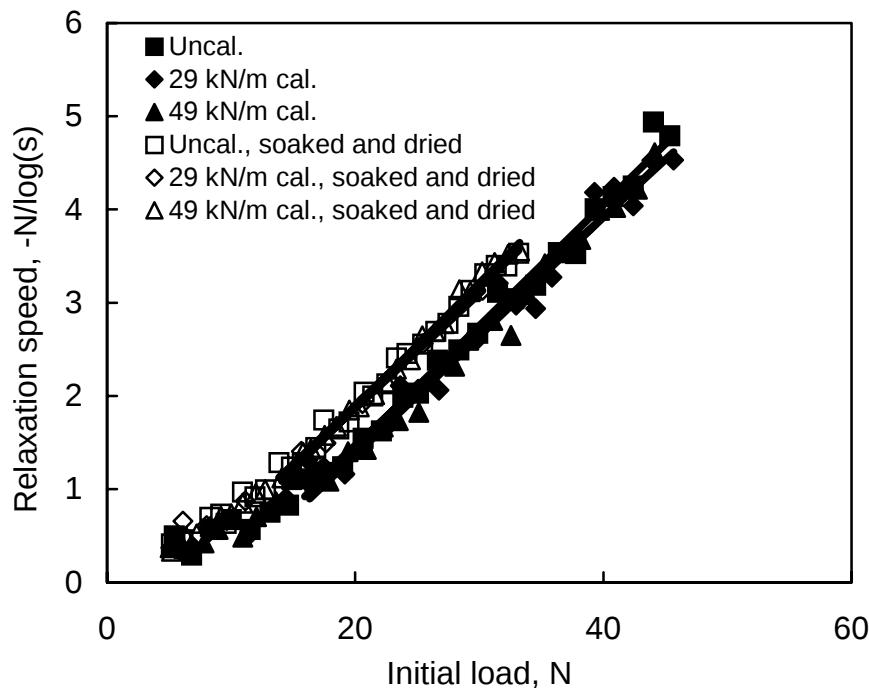


Fig. 11 Kubát's plot of wood-containing paper under different conditions of calendering and soaking.

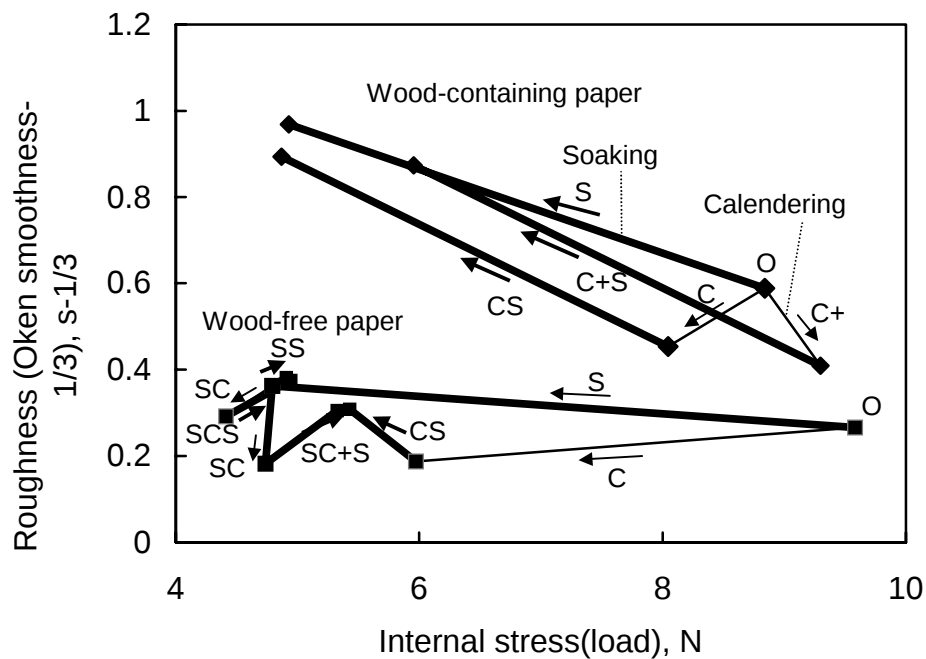


Fig. 12 Relationship between decrease in internal stress and increase in roughness for machine-made papers.