

# 紙の表面ラフニング機構に関する研究(第3報) プレスドライイングによる紙の表面ラフニング抑制効果\*

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 (III) Effects of Press-Drying on Restraining Surface Roughening of Paper

*Kiyoshi Sasaki, Toshiharu Enomae and Fumihiko Onabe*

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

Press-drying, that is, a concurrent process of wet-pressing and drying is potential to restrain surface roughening because it provides strong interfiber bondings. Press-dried handsheets for thermo-mechanical pulp (TMP) and hardwood bleached kraft pulp (HBKP) were compared with calendered handsheets in terms of response to water treatment.

It was found that the water absorption rate was much lower for press-dried handsheets than calendered ones. This can be attributed to the structural differences as clearly shown by scanning electron micrographs, where fibers of press-dried sheets appeared intensively densified near the heated-side surface, while those of calendered sheets were transversely uniform in density. The dense structure peculiar to press-drying was considered to obstruct water penetration. Furthermore, press-drying effects on restraining surface roughening was confirmed by the result that even at the same level of water absorption, roughening of the press-dried sheets was much lower than that of the calendered sheets for TMP. In contrast, effects of press-drying on restraining surface roughening were not so striking for HBKP, probably because of some degree of its irreversibility observed even for the calendered sheet. Consequently, it was considered that water was allowed to penetrate through small intra- and interfiber pores gradually and that hornification of the fiber walls caused by heat and pressure in press-drying prevented fibers from swelling that would lead to surface roughening.

**Keywords :** Calendering, Press-drying, Smoothness, Surface roughening, Water absorbency

---

\*本報告の一部は, 第47回日本木材学会大会(1997年, 高知)および第65回紙パルプ研究発表会(1998年, 東京)で発表した。

## 1. 緒言

紙の表面ラフニングの原因として著者らはこれまで内部応力の解放について論じ、乾燥張力によって生成する面内方向の内部応力の解放はラフニングの主要因ではなくむしろ紙のマクロな変形を引き起こし<sup>1)</sup>、カレンダーリング、ウェットプレスなどの厚さ方向に作用する処理では面外(厚さ)方向に内部応力を生成し、それが解放されるときにラフニングを引き起こす<sup>2)</sup>ことを報告した。本報ではラフニングを抑える手段について検討することにする。Skowronski<sup>3)</sup>の報告および Aspler<sup>4)</sup>らの総説によれば、表面ラフニングを引き起こしやすい紙の要素として、繊維間結合の弱さが指摘されている。繊維間結合を強くすることは必然的にラフニングを抑える手段となる。その一つとしてここではプレスドライン<sup>5,6)</sup>に着目した。プレス工程は全抄紙工程の中で叩解過程とともに繊維間結合を生み出す工程として重要であるが、通常はプレスから乾燥工程に移る段階で紙匹は弛緩してしまい、プレス効果の一部は失われていく。これを改善する方法がプレスドラインである。これは、乾燥工程中に同時に圧力を保持することにより、繊維間の密着を保ち、それによる繊維間結合を増加させる働きを持つ。

本研究では、手すき紙を調製して実際にプレスドライン処理を行うことによりどの程度紙の表面ラフニングを抑えることができるかを検討した。また、プレスドライン処理とカレンダーリング処理はシート構造をそれぞれどのように変えるかについても併せて検討した。

## 2. 実験

### 2.1 試料

#### 2.1.1 LBKP の手すき紙

広葉樹のさらしクラフトパルプ(以下 LBKP, 図表中では HBKP と記述)を PFI ミルで 5000 回叩解し、以下のような方法で a.~h. の 8 種類の手すき紙を調製した。坪量 49~52 g/m<sup>2</sup>。

- a. 標準条件(JIS P 8222)で抄紙を行った。ただし、ウェットプレスは圧力 340 kPa, 時間 5 分, 1 回の条件で行い、リング乾燥を行った。記号 D。
- b. 標準条件でウェットプレスの段階まで抄紙を行った後、プレスドライン処理を行った。金属プレートに貼り付いた湿紙状態の試料を図 1 のようにテスト用ホットプレス(株)太平製作所製 P20-B 型)に挟み、水分約 61%, ろ紙 3 枚、温度 180, 圧力 3.0 MPa, 時間 40 秒の条件で圧縮した。吸水試験にはろ紙 5 枚で行った試料を使用した。記号 P。
- c. a.の方法で調製した手すき紙を再度水に浸漬し、b.の条件(ただし、水分約 50%)でプレスドライン処理を行った。記号 DSP。
- d. 標準条件で抄紙を行った後、王研式平滑度が b.の試料に近くなるようにスーパーカレンダーリング処理を行った。装置はラボ用スーパーカレンダー(由利ロール機械(株)製 MSC-07)を用い、処理条件は、温度 25, 線圧 52 kN/m, 通紙速度 5 m/min, 4 回通紙

とした。記号 DC。

- e. ~ h. a. ~ d. の試料をそれぞれ水に約 10 秒浸漬し, 自由乾燥した。記号は順に, DS, PS, DSPS, DCS。

### 2.1.2 TMP の手すき紙

さらしサーモメカニカルパルプ (以下 TMP, 日本製紙(株)製 スブルース・パイン配合 ろ水度 100 ml CSF) を用い, 以下のような方法で a. ~ c. の 3 種類の手すき紙を調製した。

- a. 2.1.1 a. と同様に標準条件で抄紙を行った。坪量 64 ~ 68 g/m<sup>2</sup>。記号 D。  
 b. 2.1.1 b. と同様にプレスドライン処理を行った。処理条件は, 水分約 66 %, ろ紙 5 枚, 温度 180 °C, 圧力 2.7 MPa, 時間 120 秒とした。坪量 60 g/m<sup>2</sup>。記号 P。  
 c. 2.1.1 d. と同様にスーパーカレンダリング処理を行った。処理条件は, 温度 70 °C, 線圧 206 kN/m, 通紙速度 5 m/min, 4 回通紙とした。坪量 65 ~ 67 g/m<sup>2</sup>。記号 DC。

## 2.2 測定

### 2.2.1 プレスドライン処理によるシート物性変化および面内内部応力への影響

- a. 厚さ, 王研式平滑度, 光沢度 (85°), 透気抵抗度を測定した。厚さと坪量から密度を計算した。マイクロメータ式厚さ計 (高橋製作所製), 王研式平滑度計および透気度計 (旭精工(株)製 水柱式), 光沢度計 (ミノルタ(株)製 GM-268) を用いた。  
 b. LBKP 試料について, 引張応力緩和試験を行い, 面内内部応力 (Kubát の内部応力測定法<sup>1)</sup>による) を測定した。幅 15 mm の短冊状の試験片を, 手すき紙の種類ごとに採取した。クロスパーティプの引張試験機 (株) エー・アンド・デイ製 オリエンテック UTM-100) を用い, 試験片を 10 mm/min の速度で引っ張った。引張開始時のスパンは 100 mm 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。比引張強さ, 引張破断伸び, 引張弾性率も測定した。  
 c. LBKP 試料について, 試料の表面粗さを中心線平均粗さ (2 次元触針式プロファイルのうち, 波長 256 μm 以下の粗さ成分について計算) として測定し, ラフニング量が処理方法によってどう異なるかを比較した。装置は触針式の表面粗さ測定器 (株) 小坂研究所製 SE-3) を用いた。各紙面内で王研式平滑度が 80 ~ 85 秒くらいになる部分について測定した。表面ラフニングは, ステージ上で水を滴下することにより起こし, 滴下前, 湿潤, 再乾燥後の 3 つの状態それぞれ表面プロファイルを測定した。中心線からの平均振幅である中心線平均粗さをプロファイルから計算し, 比較した。

### 2.2.2 プレスドライン処理による吸水性の抑制効果と内部構造への影響

- a. 動的走査吸液計 (Dynamic Scanning Absorptometer 協和精工(株)製, 以下 DSA) によって吸水試験を行い, 初期吸水速度を求めた。  
 b. a. の試料の吸水箇所および非吸水箇所の表面粗さを中心線平均粗さとして測定し, 吸水量とラフニングの関係が処理によってどう異なるかを比較した。紙面内でも粗さの不均一性が見られるため, 吸水部分のごく近傍箇所を本来同じ表面粗さを持つ非吸水部分とみなして測定した。  
 c. a. の試料をカミソリの刃で切った 45° 断面を走査電子顕微鏡 (日立(株)製 S-4000) で観

察し、プレスドライン処理とカレンダーリング処理がシートのバルク構造に与える影響を比較した。

- d. TMP のプレスドライン処理試料について、集束イオンビーム ( Focused Ion Beam , セイコーインスツルメンツ(株)製 SMI-9800 , 以下 FIB ) によって紙面に対して垂直に一部を切除し、破壊のない平滑な断面を調製して観察した。なお、この手法の詳細については内村らが報告している<sup>7)</sup>。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 プレスドライン処理したシートの物性

表 1, 2 に、それぞれ LBKP 試料, TMP 試料の密度, 平滑度, 光沢度, 透気抵抗度の比較を示す。設定した条件でカレンダーリング処理, プレスドライン処理を行ったこれらの試料では、シート全体の密度は LBKP 試料ではほぼ等しく、TMP 試料ではカレンダーリング試料の方が大きいと言える。一方、平滑度および光沢度はプレスドライン処理試料の方が高かった。これは、加熱側の表層部では繊維が軟化することにより繊維同士が密着し、さらに平滑な金属面に沿った表面形状を形成したため平滑性が高くなったためと考えられる。また、平滑度の差以上にプレスドライン処理試料の方が透気抵抗度が高くなっているのは、高密度化した表層部の空隙量が大きく減少したためと考えられる。

水に浸漬 - 再乾燥した試料を比較 ( D DS , DC DCS , P PS ) すると、プレスドライン処理試料の方が密度および平滑度の減少は小さかったが、光沢度の減少率はほぼ同じで、透気抵抗度の低下は大きかった。これは、短い浸漬時間 ( 10 秒間 ) では加熱側の表層部が吸水を抑制したためにラフニングの程度を抑制したと考えられる。

プレスドライン処理の平滑化作用は TMP 試料の場合の方がはるかに大きかった。このことから、加熱側の表層部で起こる繊維の軟化の程度も TMP の方が大きいことが予測された。

#### 3.2 プレスドライン処理の面内内部応力への影響

表 3 に、LBKP 試料の面内内部応力, 比引張強さ, 引張破断伸び, 引張弾性率の比較を示す。カレンダーリング試料は標準条件の試料と比較して比引張強さが同程度でありながら引張弾性率が上昇しているが、これは厚さが低下したためである。プレスドライン処理試料の面内内部応力, 比引張強さ, 引張弾性率は上昇し、引張破断伸びは低下したので、プレスドライン処理は強度を上昇させているが、カレンダーリング試料には大きな変化は見られなかった。この結果から、プレスドライン処理は繊維間結合を強くすることが示唆された。

図 2, 3 に、LBKP 試料の初期荷重に対する応力緩和速度の関係を示す。プレスドライン処理試料の面内内部応力は通常のリック乾燥試料 ( D ) およびそのカレンダーリング試料 ( DC ) よりもはるかに大きかった。水への浸漬によりプレスドライン処理試料の面内内部応力は大きく解放され、試料 D および DC を水に浸漬した試料 ( DS および DCS ) よりもわずかに

高い面内内部応力を維持しているに過ぎない。このことから、プレスドライイング処理は繊維間結合を強くし面内内部応力を生成するが、水への浸漬によってその大部分が解放されることが示唆された。

### 3.3 プレスドライイング処理による吸水性の抑制効果と内部構造への影響

#### 3.3.1 プレスドライイング処理したシートの吸水性とラフニング抑制効果

図4に、DSAで測定した初期吸水速度曲線を示す。LBKP試料でもTMP試料でも、プレスドライイング試料(図4のP)では吸水速度がカレンダーリング試料(図4のDC)に比べはるかに小さかった。また、TMP試料ではLBKP試料より吸水速度が小さかった。TMP試料の場合は機械パルプ特有の自己サイズ効果<sup>8)</sup>の発現により吸水速度が小さくなったものと考えられる。

図5, 6に、それぞれLBKP試料, TMP試料の吸水量とラフニングとの関係を示す。TMP試料においてはカレンダーリング試料では吸水量の増加とともにラフニングも顕著になっていき、吸水量40 ml/m<sup>2</sup>では吸水前の2倍以上の粗さとなった。プレスドライイング試料では吸水量が増加してもラフニング量は増加せず、いずれの場合も粗さの増加は8%以下であった。

プレスドライイング処理が吸水速度を低下させたのは、表面化学的な特性(濡れ)が同じであっても高密度化したことによって構造的に吸水性が低下したためと考えた(3.1)。しかし同一の吸水量に対するラフニングの程度もプレスドライイング処理は低く抑えることができたと言える。扁平になった繊維が一部円管状の構造に復元することがラフニングのメカニズムとして考えられているが、プレスドライイング処理では表層で強く扁平化した繊維の細胞壁内およびルーメンでは水素結合が多く形成されたために、水に浸漬しても十分に膨潤せず、形状の復元が少なかったことが推測される。

一方、LBKP試料ではカレンダーリング試料のラフニング量もわずかであったため、相対的に見ればプレスドライイング処理のラフニング抑制効果はそれほど顕著ではない。しかし、プレスドライイング処理はラフニングを確実に抑えていることがわかる。

#### 3.3.2 試料内部の構造観察

写真1~4, 5~8に、それぞれTMP試料, LBKP試料の45°断面の走査電子顕微鏡写真を示す。順に、未処理のプレスドライイング試料, ラフニングを起こした(いったん水に浸漬し、常温で乾燥させた)プレスドライイング試料, 未処理のカレンダーリング試料, ラフニングを起こしたカレンダーリング試料である。

プレスドライイング試料は、表面層(加熱側)が強く潰されて融けたような状態になっており、ルーメンは完全に潰れている。内側の層にある繊維はルーメンが完全には潰れず、円管状の形態をわずかに残している。一方、カレンダーリング試料は、全ての層が均等に強く潰されており、ルーメンはほぼ完全に潰れた扁平な形状を呈していることがわかる。浸漬処理後と比較すると、カレンダーリング試料の繊維が全体的に少し円管状形態を回復しているのに対し、プレスドライイング試料の表層部は全く回復していない。プレスドライイング処理は、細胞壁内に水素結合を多く形成し角質化したため水は壁内を通過して拡散していく

割合はかなり低く、繊維間空隙を通過してゆっくりと紙層内部に吸水したことが考えられる。

写真 9, 10 に、TMP のプレスドライグ試料の FIB による断面の写真を示す。順に、未処理のプレスドライグ試料、ラフニングを起こした（いったん水に浸漬し、常温で乾燥させた）プレスドライグ試料である。それぞれ下側が加熱側である。カミソリの刃による切断面に比べて FIB による切断面破壊がないのが特長である。

未処理の試料は、走査電子顕微鏡写真で示したものと同様に、表面層が強く潰されて融けたような状態になっており、ルーメンは完全に潰れている。浸漬処理後の試料は、繊維は円管状形態を全く回復していない。この写真からも、プレスドライグ処理は、繊維の角質化を促し、吸水性を低下させたことが推測される。

### 3.4 プレスドライグ処理による面内内部応力と表面粗さの関係への影響

図 7 に、LBKP 試料の、触針式で測定した表面形状曲線から  $256\ \mu\text{m}$  以下の波長成分だけを取り出し計算した中心線平均粗さを示す。3 種類の処理の試料とも再乾燥後は処理前よりも粗くなることが認められたが、湿潤前の粗さを反映しており、プレスドライグ処理によるラフニング抑制効果は認められなかった。クラフトパルプ繊維は、機械パルプ繊維に比べて浸漬による繊維壁の膨潤のあと乾燥過程で収縮する可逆性のある程度持っている<sup>9,10)</sup>ので、 $256\ \mu\text{m}$  の波長のレベルでは再乾燥後に残る粗さに差が見られなかったものと考えられる。王研式などの空気漏洩式ではもう少し長い波長のレベルでの粗さを表現している<sup>11)</sup>ので粗さの増加に差が見られたことは前述通りである。また、プレスドライグ試料が既にその前に乾燥履歴を持っている場合（DSP）でも、湿潤 - 再乾燥過程での粗さの変化は同様であり、特徴的なラフニングは示さなかった。

図 8 に LBKP 試料の面内内部応力と王研式平滑度から計算した表面粗さの関係を示す。プレスドライグ試料の面内内部応力はカレンダーリング試料よりも大きく、水への浸漬により大きく解放されたが、ラフニングの程度は小さかった。このことから、プレスドライグ処理は水への浸漬 - 乾燥処理によって発生する表面ラフニングの程度をカレンダーリング試料より抑制したが、これは面内内部応力の解放とは相関がないことになる。既報<sup>7)</sup>で述べたように面内内部応力の解放はここでも表面ラフニングの主要因とは考えにくい。プレスドライグ試料でラフニングが抑えられた原因は吸水量が少なかったことおよび角質化により膨潤量が低下したことであると考えられる。

## 4. 結論

水に瞬間的に浸漬して乾燥させた後の平滑度の維持という点から見ると、プレスドライグ処理はカレンダーリング処理に比べ、吸水量を低く抑えることによって表面ラフニング抑制効果があると確認された。吸水量を同一にした場合でも、特に TMP のプレスドライグ試料に、明らかなラフニング抑制効果が確認された。熱と圧力の効果が及んだ表層付近では繊維が角質化したために繊維壁が膨潤しにくくなり、繊維が管状の形態を回復しなかったための効果であると考えられる。また吸水した水は主に繊維間の空隙を通過してゆっく

りと浸透していくと考えられる。

#### 謝辞

サーモメカニカルパルプを提供していただきました日本製紙(株)の内藤勉氏, 実験試料のカレンダーリング処理をしていただいた三井化学(株)(現 日本エイアンドエル(株))の早野三郎氏, 実験試料の FIB 加工を担当していただいたセイコーインスツルメンツ(株)の荒田誠一氏に, 感謝の意を申し上げます。

#### 引用文献

- 1) 佐々木潔, 江前敏晴, 尾鍋史彦: 紙パ技協誌, 53 (12), 95-101 (1999)
- 2) 佐々木潔, 江前敏晴, 尾鍋史彦, 金鳳庸: 紙パ技協誌, 印刷中 (2000)
- 3) J. Skowronski : Journal of Pulp and Paper Science, 16 (3), J102-110 (1990)
- 4) J. Aspler and M. Béland : Journal of Pulp and Paper Science, 20 (1), J27-32 (1994)
- 5) E. Retulainen, N. Merisalo, J. Lehtinen and H. Paulapuro : Pulp & Paper Canada, 99 (1), 53-58 (1998)
- 6) 木村実, 二宮清隆, 門屋卓: 紙パ技協誌, 39 (4), 45-52 (1985)
- 7) 内村浩美, 尾崎靖, 木村実: 繊維学会予稿集, G-92 (1998)
- 8) J. Aspler, S. Davis and M. Lyne : Tappi Journal, 67 (9), 128-131 (1984)
- 9) T. Enomae and P. Lepoutre : Proceedings of 4th International Symposium -Moisture and creep effects on paper, board and containers-, EFPG Grenoble, France, 57-58 (1999)
- 10) T. Enomae and P. Lepoutre : Nordic Pulp and Paper Research Journal, 13 (4), 280-284 (1998)
- 11) T. Enomae and F. Onabe : Sen'i Gakkaishi, 53 (3), 86-95 (1997)

Table 1 Sheet properties depending on papermaking process of HBKP handsheets.

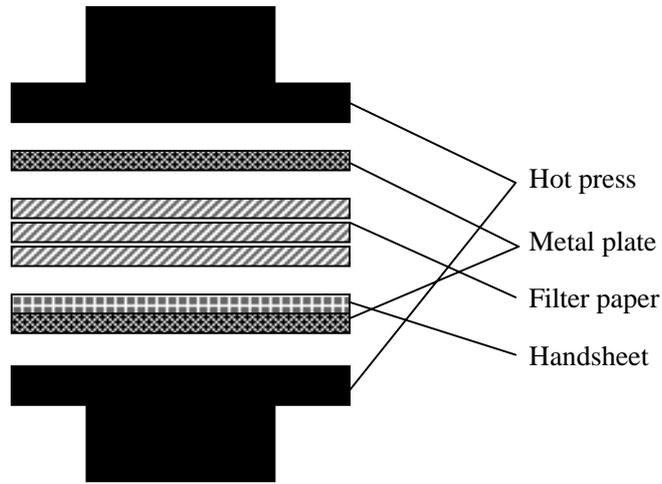
	Apparent density (g/cm <sup>3</sup> )		Oken smoothness (s)		Gloss (%)		Air resistance (s)	
	Average	95% confidence level	Average	95% confidence level	Average	95% confidence level	Average	95% confidence level
D	0.613	±0.007	29.5	±1.0	9.8	±0.6	4.2	±0.3
DS	0.602	±0.005	16.8	±0.5	5.9	±0.3	3.6	±0.2
P	0.822	±0.019	122.6	±11.1	21.8	±1.5	37.2	±7.5
PS	0.770	±0.025	67.0	±4.3	12.8	±1.0	19.0	±5.1
DSP	0.793	±0.035	74.1	±11.0	20.9	±4.0	11.9	±3.9
DSPS	0.710	±0.034	50.9	±8.3	11.1	±0.9	7.1	±2.4
DC	0.821	±0.007	107.3	±1.6	15.3	±0.5	10.8	±0.6
DCS	0.693	±0.006	32.3	±0.4	7.2	±0.3	5.0	±0.3

Table 2 Sheet properties depending on papermaking process of TMP handsheets.

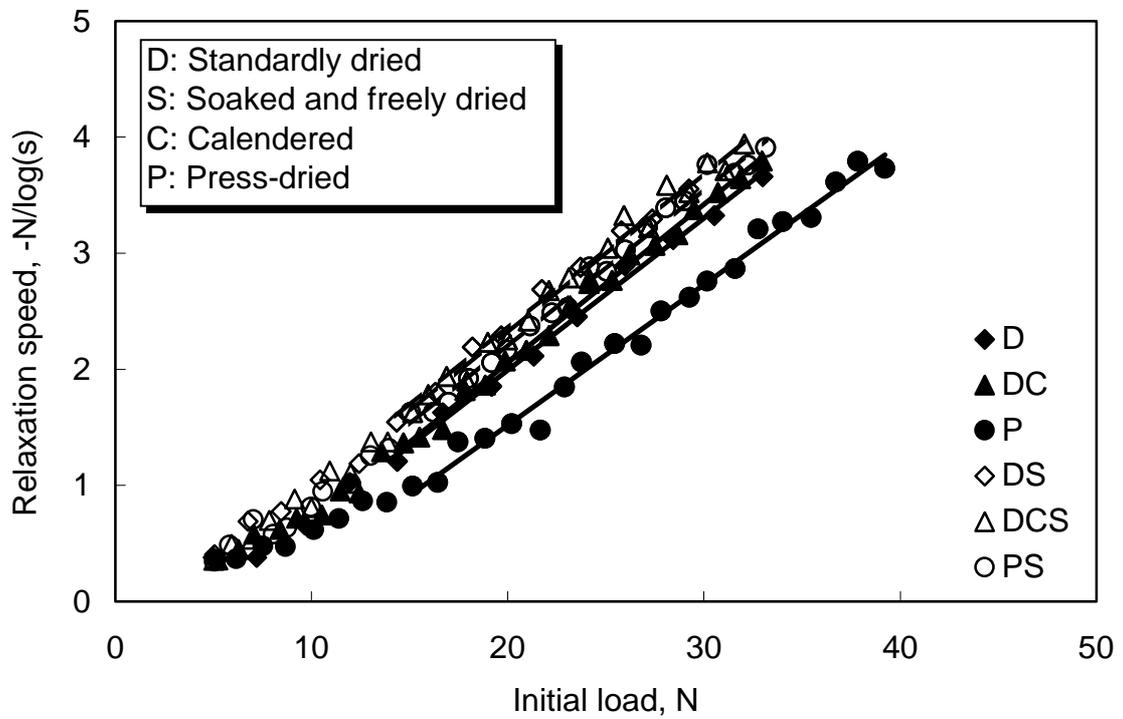
	Apparent density (g/cm <sup>3</sup> )		Oken smoothness (s)		Gloss (%)		Air resistance (s)	
	Average	95% confidence level	Average	95% confidence level	Average	95% confidence level	Average	95% confidence level
D	0.414	±0.006	18.9	±1.3	6.1	±0.3	31.1	±2.4
P	0.804	±0.012	1464	±200	41.7	±3.4	3067	±315
DC	0.949	±0.022	975	±27	30.9	±1.1	1162	±51

Table 3 Mechanical properties depending on papermaking process of HBKP handsheets.

	Internal stress (N)	Tensile index (Nm/g)	Stretch at break (%)	Modulus of elasticity (GPa)	
	Average	Average	Average	Average	95% confidence level
D	4.8	47	3.0	3.57	±0.15
DS	2.5	39	3.4	2.73	±0.11
P	7.5	54	2.2	5.52	±0.14
PS	3.8	46	2.5	4.04	±0.13
DSP	7.9	54	2.1	5.24	±0.14
DSPS	3.7	42	2.6	3.70	±0.15
DC	4.9	46	2.8	4.55	±0.12
DCS	3.1	46	3.6	3.36	±0.12



**Fig. 1** Stacking of a set of a handsheet and filter papers in press-drying.



**Fig. 2** Press-drying effect in Kubat's plot of HBKP handsheets (Compared with calendering).

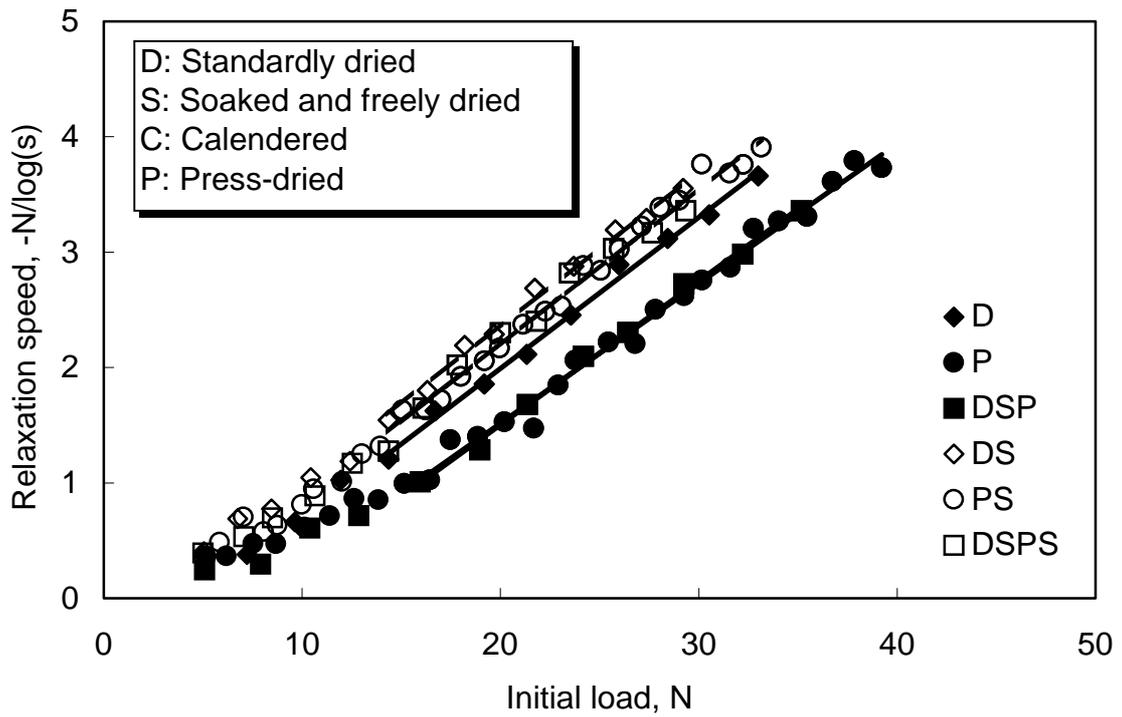


Fig. 3 Press-drying effect in Kubat's plot of HBKP handsheets (Influence of drying history).

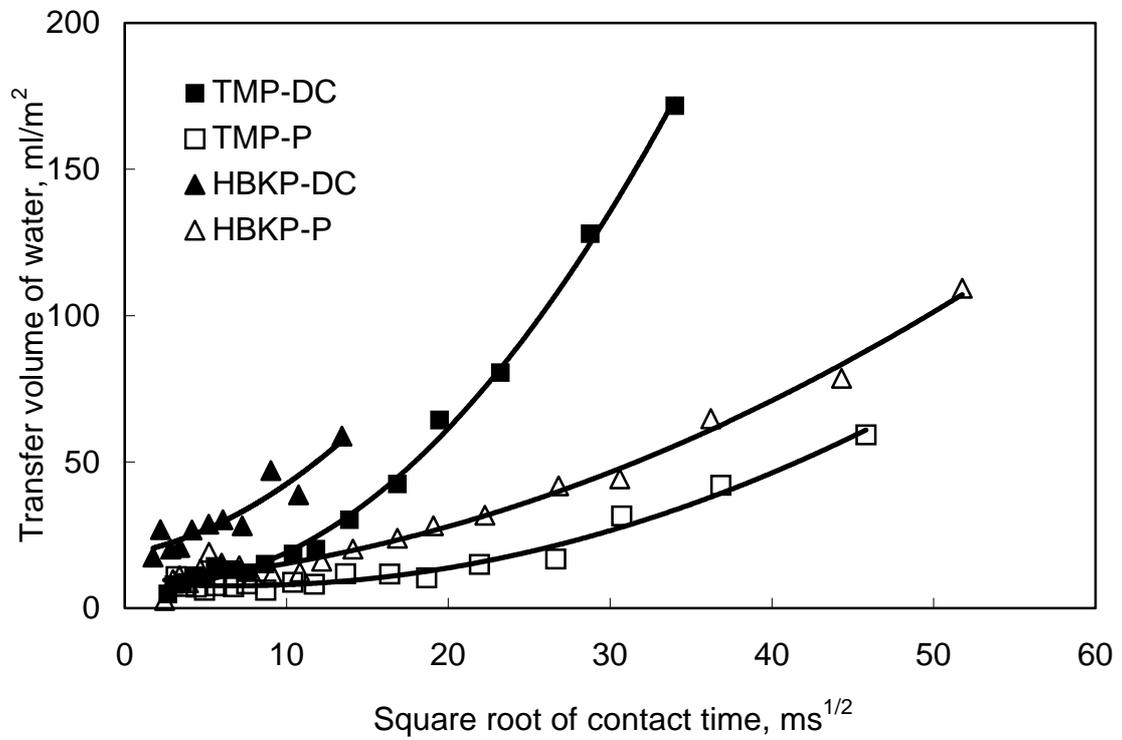


Fig. 4 Water absorbency of handsheets compared between calendering and press-drying.

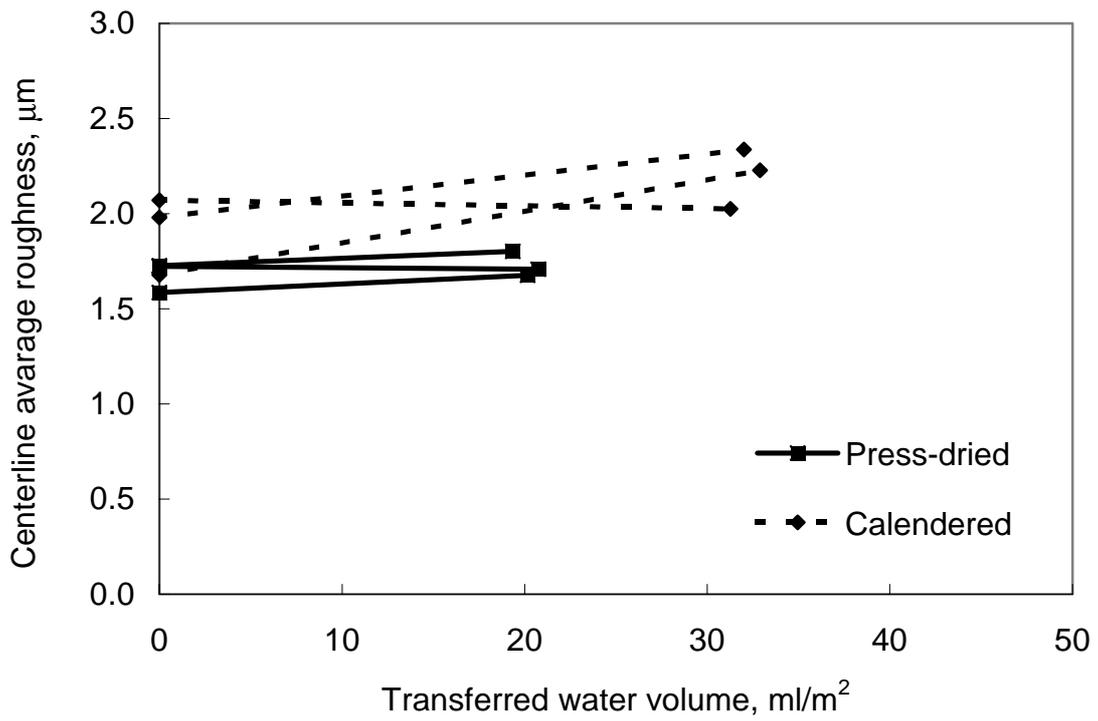


Fig. 5 Effect of paper making process on surface roughening of HBKP handsheets.

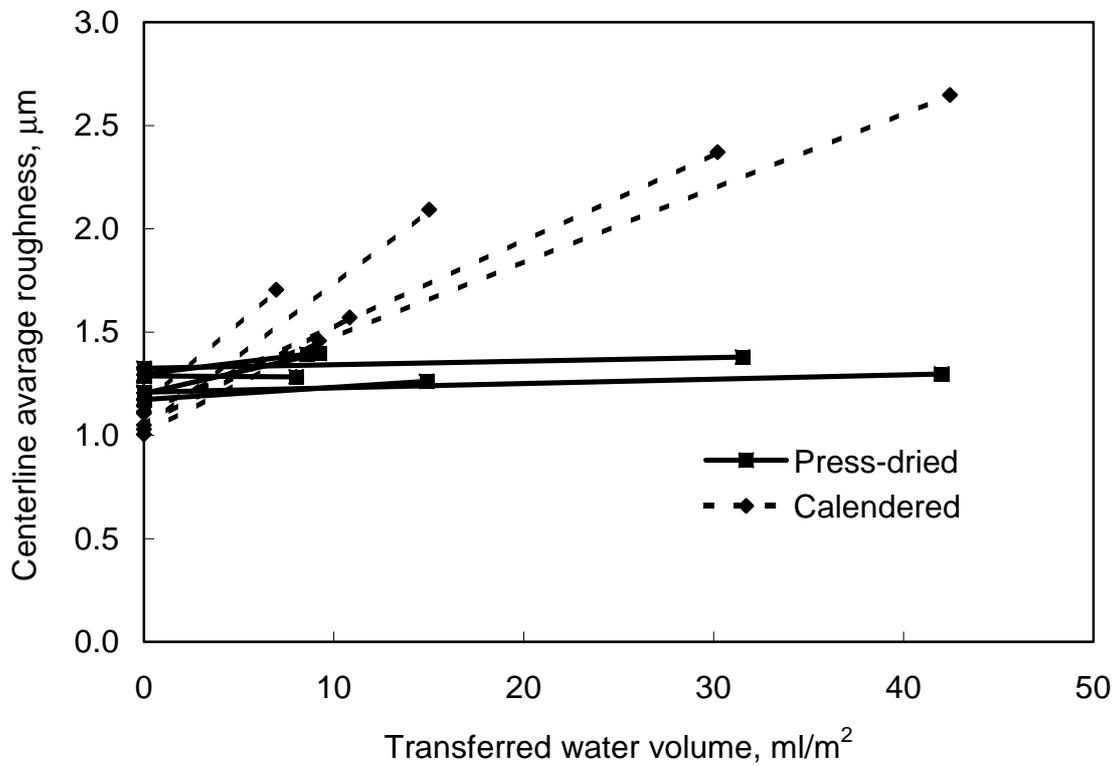


Fig. 6 Effect of paper making process on surface roughening of TMP handsheets.

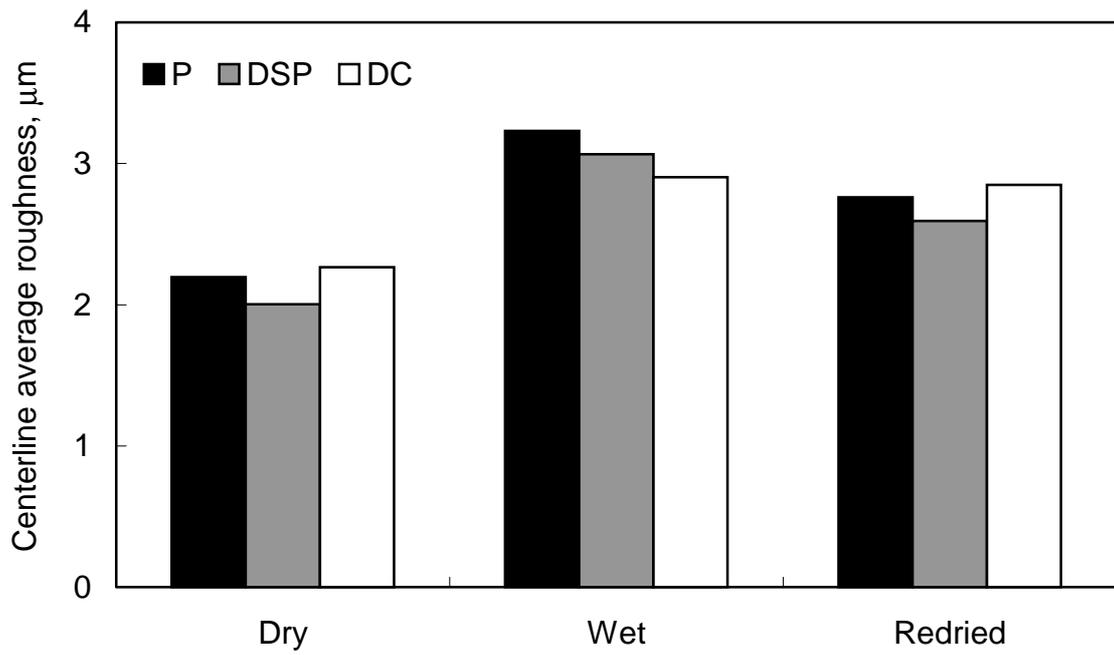


Fig. 7 Change in centerline average roughness (Ra) in dry, wet and redried states.

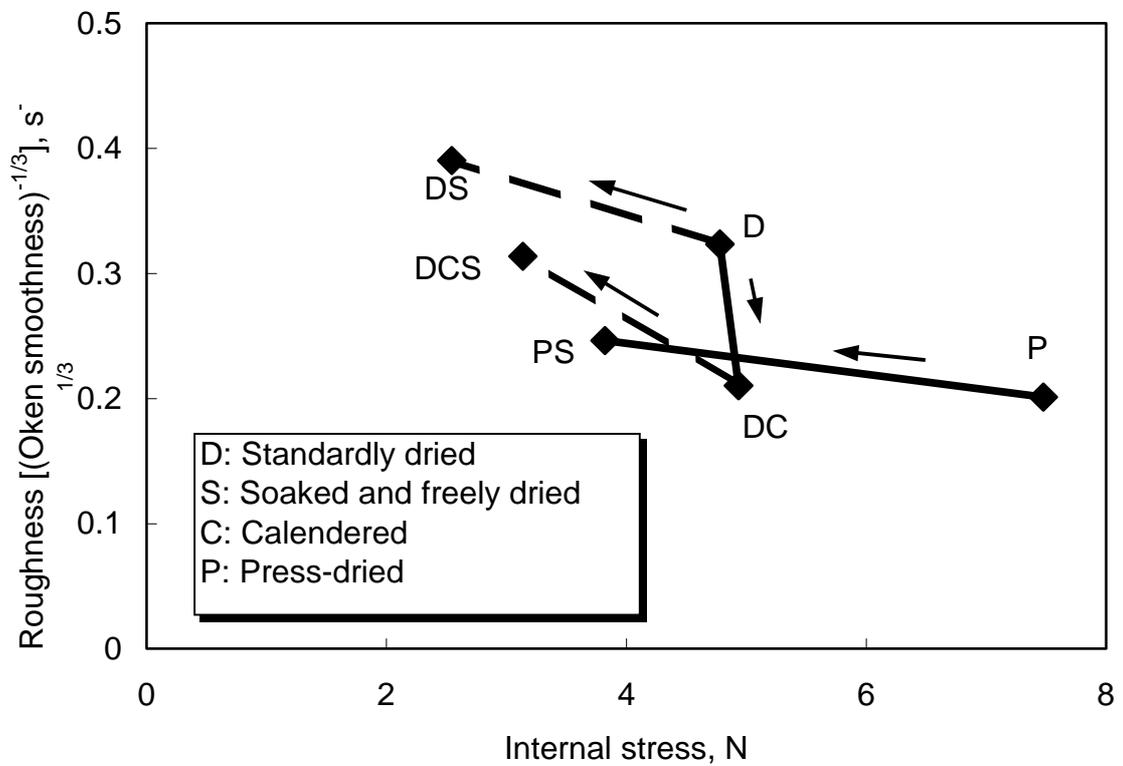


Fig. 8 Relationship between decrease in internal stress and increase in roughness for press-dried handsheets.



Photo 1 SEM image of press-dried TMP sheet. Top side was

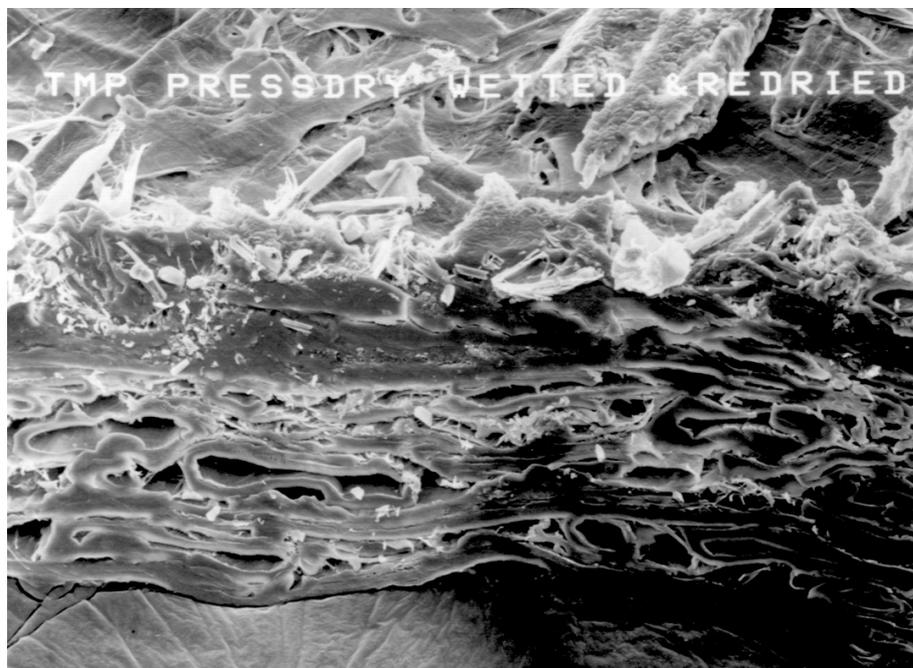


Photo 2 SEM image of press-dried TMP sheet wetted and redried. Top side was heated.

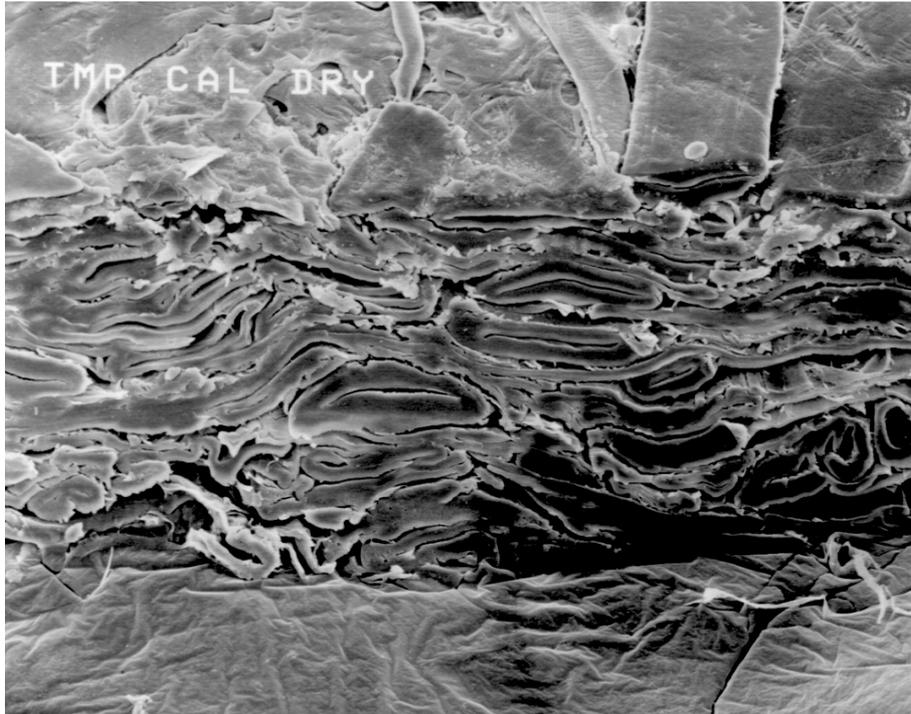


Photo 3 SEM image of calendered TMP sheet.



Photo 4 SEM image of calendered TMP sheet wetted and redried.

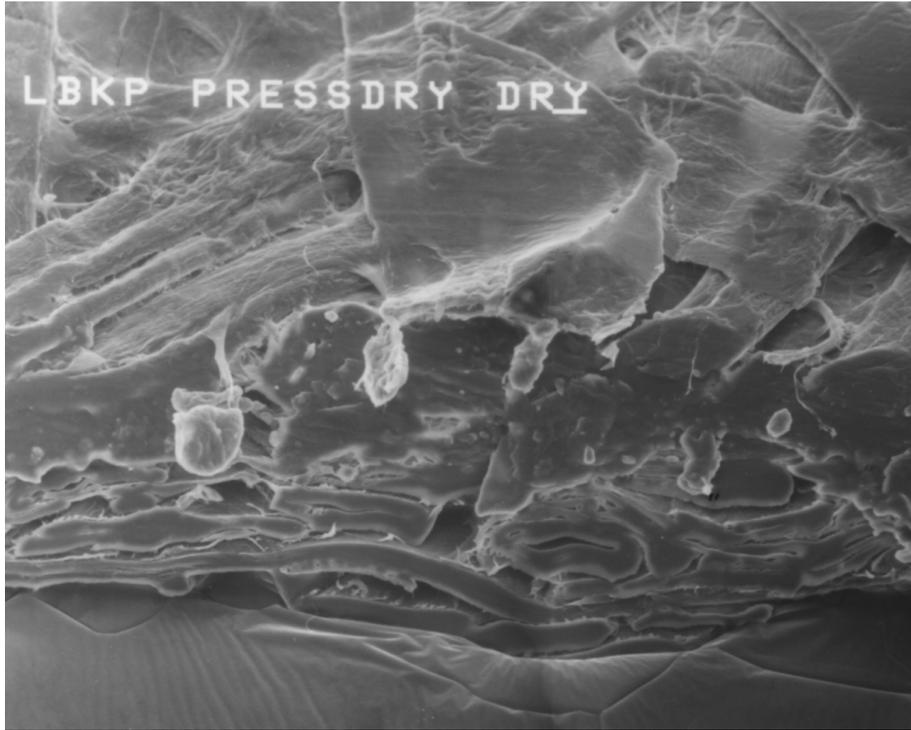


Photo 5 SEM image of press-dried HBKP sheet. Top side was heated.

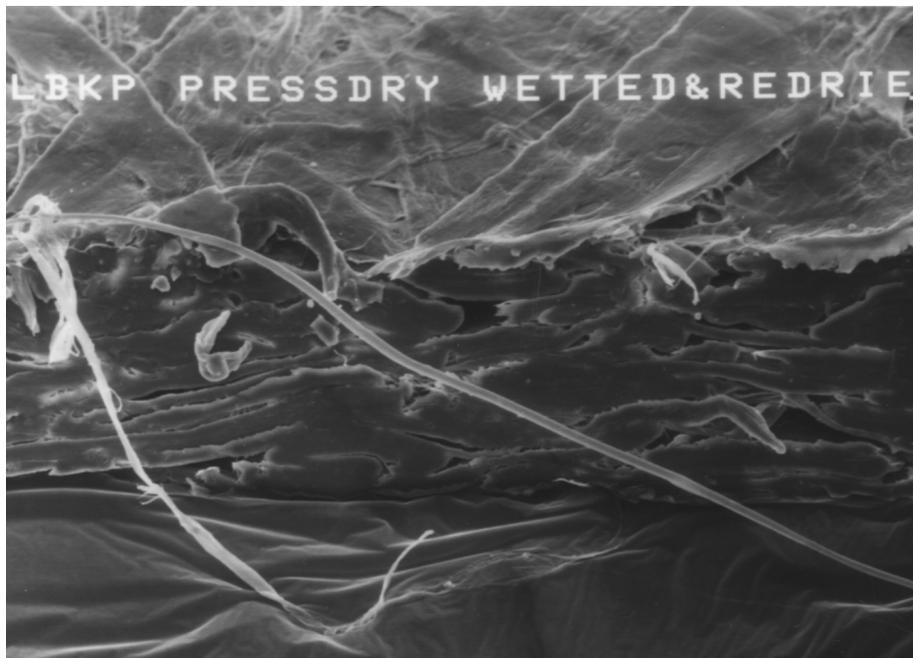


Photo 6 SEM image of press-dried HBKP sheet wetted and redried. Top side was heated.

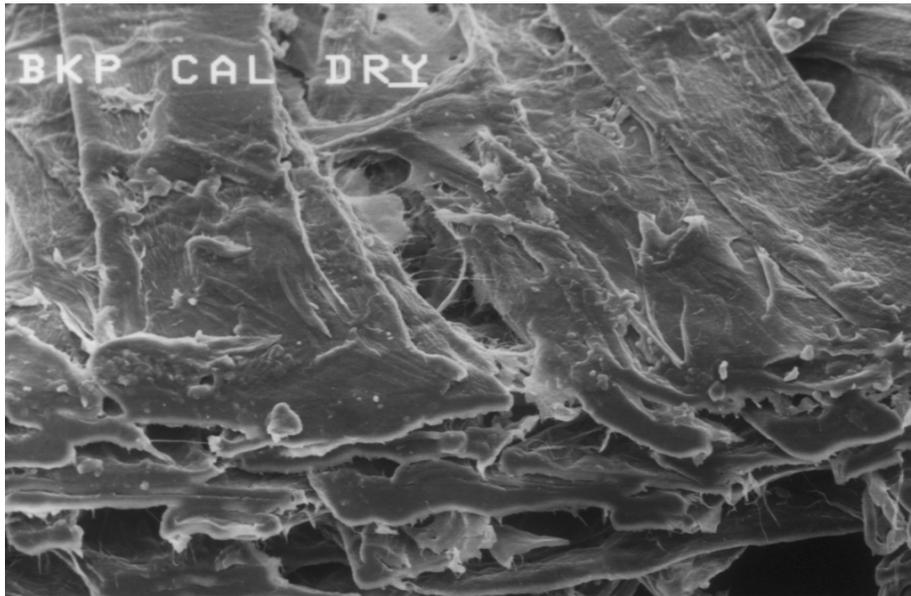


Photo 7 SEM image of calendered HBKP sheet.

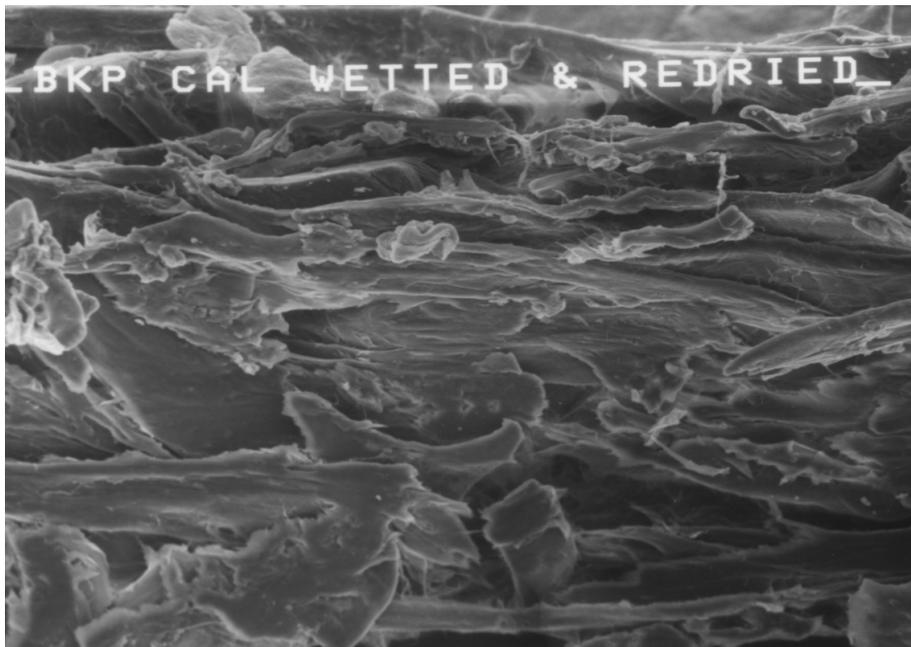


Photo 8 SEM image of calendered HBKP sheet wetted and redried.

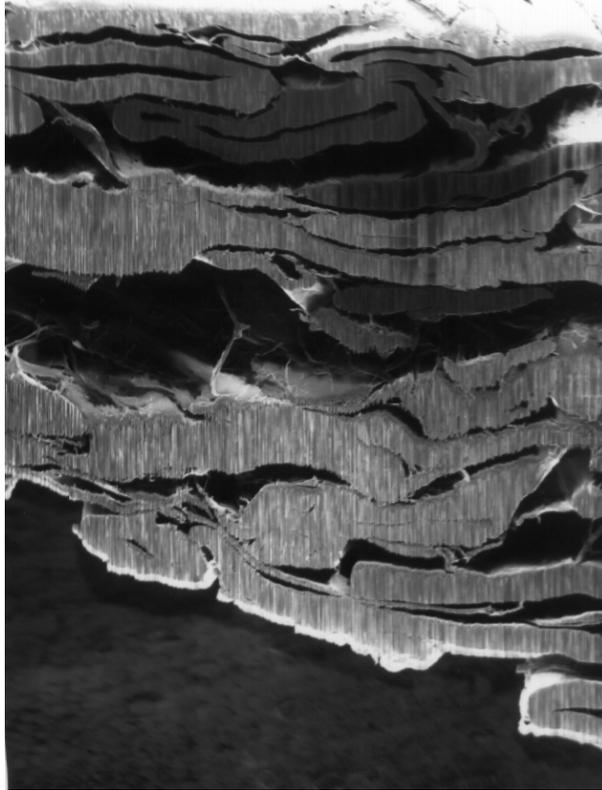


Photo 9 SEM image of press-dried TMP sheet cross-sectioned by FIB. Bottom was heated.

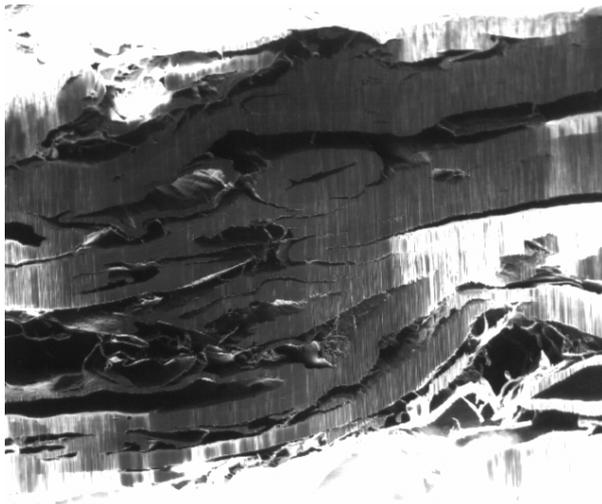


Photo 10 SEM image of press-dried TMP sheet wetted and redried then cross-sectioned by FIB. Bottom was heated.