紙の面内弾性定数の坪量依存性*

上 坂 鉄** 村 上 浩 二*** 今 村 力 造***

Dependence of In-Plane Elastic Moduli of Paper on Basis Weight

by

Tetsu UESAKA, Koji MURAKAMI and Rikizo IMAMURA

(Faculty of Agriculture, Kyoto University, Kyoto)

Mechanical properties of paper are closely related to the geometric factors of fiber assemblages such as the number of fibers, fiber length distribution, fiber weight distribution, etc., which describe the network structure of paper as well as the single fiber properties. In the present paper, the dependence of in-plane elastic moduli of handsheets made from softwood and hardwood bleached kraft pulps on the basis weight which is associated with the number of fibers per unit area, N_f , has been studied.

Two independent in-plane elastic moduli, Young's modulus E_{xy} and Poisson's ratio ν_{xy} were determined by use of a biaxial tensile tester of Bistron type⁶⁾ that was modified for testing paper.

The results obtained are summarized as follows;

(1) The dependence of Young's modulus, E_{xy} on the basis weight is caused by the associative effect of thickness T and $\bar{E}_{xy}$ (defined by E_{xy}/T), both of which depend on the basis weight.

(2) Since the Young's modulus of paper varies with thickness which can not be defined explicitly, the Young's modulus seems to be unsuitable as a mechanical constant.

(3) The newly defined $\bar{E}_{xy}$ is a linear function of the basis weight or N_f within the limit of this experiment but nonlinearity may appear for weights less than 20 g/m². The gradient in the linear region of $\bar{E}_{xy}$ - N_f relation for the softwood pulp is much larger than that for the hardwood pulp and this quantity may be used as a new characteristic value of paper.

(4) The Poisson's ratio for the hardwood pulp is slightly larger than that for the softwood pulp but both of them do not markedly change with the basis weight or N_f .

(Received Oct. 1, 1976)

1 緒 言

紙の力学的性質をとくにその繊維 network 構造に立脚して解明しようとする試みは現在まで数多く行われてきたが、未だ両者の関係を明確に説明するものは得られていない。その主要な理由として次の2点がある。第一は、紙は木材繊維の集合体で、極めて多くの繊維が2次元的にランダムに重量した密な network 構造をもつが、そのような構造を、繊維集団を特性づけるパラメータ、たとえば繊維本数、繊維長、繊維重量などによって定量的に表現することが極めて困難であることである。第二は、力学的性質に関してどのような物質定数あるいは物質関数を選択するか

の問題である。すなわち線形弾性域に限っても、通常の一軸引張試験では、紙の弾性特性を記述するに必要な独立な弾性定数を調べあげることができず、力学的性質の評価としては充分でない。

本研究では以上の問題点を考慮し、紙の力学的性質のより一般的な評価を行う目的でまず2軸引張試験機の試作を行った。ついで力学的性質として線形弾性域での挙動に着目し、手すきシートの二つの独立な面内弾性定数を2軸引張試験機を用いて測定しそれらの坪量依存性を検討した。ここで坪量を取りあげたのは、この量が一般に繊維集団のサイズを決定するものであり、紙の場合、密度などの他の量に比べ定義が明確かつ実験的にも正確に測定可能であること、さらに単位面積当りの繊維本数に対応づけることができる量で、network 構造を記述するために最も基本的な、また理論的にも興味深いパラメータであることによる。

2 実験および方法

* 本報を「紙の力学的性質とそのネットワーク構造 (第1報)」(Mechanical Properties of Paper and its Network Structure, I) とする。

原稿受理 昭和51年10月1日

** 学生会員 京都大学大学院 京都市左京区北白川追分町

*** 正 会 員 京都大学農学部 京都市左京区北白川追分町

Table I. Basic properties of handsheets.

Sample No.	NBKP					LBKP				
	N1	N2	N3	N4	N5	L1	L2	L3	L4	L5
Basis weight* (g/m ²)	22.3	33.6	60.9	85.2	116.4	22.4	38.0	57.9	80.0	118.3
Apparent density (g/cm ³)	0.539	0.639	0.824	0.759	0.804	0.659	0.729	0.774	0.816	0.838
C. S. F.** (ml)	443	443	469	446	440	373	373	389	385	371
Moisture content*** (%)	9.8	6.6	9.6	7.0	6.9	7.7	7.3	7.8	8.8	8.8

* Basis weight (air dried)

** Canadian standard freeness

*** Air dry base

2・1 試料の調製

供試した試料は北米産製紙用針葉樹パルプ(NBKP)および北海道産広葉樹パルプ(LBKP)で、JIS P-8209に従い、それぞれ坪量の異なる一連の手すきシートを調製した。ただし叩解は PFI ミルで 1000 回転、湿圧は 3.5 kg/cm² で実施した。湿シートは乾燥リングにはさみ30分間通風乾燥し、恒温恒湿下(20℃, 68% RH)で一週間調湿した後測定に供した。供試試料の若干の性質を Table I に示す。

2・2 平均繊維重量の測定

坪量を単位面積当りの繊維本数(後で定義する)に換算するには平均繊維重量(繊維 1 本当りの平均重量)を測定する必要がある。本研究では繊維粗度(coarseness)測定に用いられる Tappi Standard (T234-su-67)に準拠し、繊維本数は直接数える方法により行った。ただし LBKP には道管要素が含まれるが、本研究で供試した試料では道管要素の個数が木繊維のその 1/100 程度であり、したがってとくに区別せず木繊維として数えた。また本数測定と同時に繊維長分布も測定した。結果は NBKP および LBKP それぞれについて、平均繊維重量 17.3×10^{-8} g および 5.36×10^{-8} g、数平均繊維長 1.51 mm および 0.62 mm であった。

2・3 2軸引張試験機の試作

シート状材料は、川端らにより強調されているように、多軸(2あるいは3軸)応力状態で使用されることが多く、その力学的性質の評価には従来の1軸試験では不十分で、またその結果の解析も複雑な考慮を必要とする。そこで本研究では、より一般的な応力状態下での力学挙動を調べる目的で、坂口・川端らが開発した2軸引張試験機(Bistron type, Fig.1)に準じて紙用の2軸引張試験機の試作を試みた。坂口、川端らにより開発された試験機は、エラストマーなど大変形可能な物質の2軸引張試験のために製作されたもので、紙などの微小変形試験には、直交2方向の微小な変位制御、試料装着などに若干の問題がある。これらの点を改善するために試作試験機では、引張倍率を最大1.5倍にし、変位の電氣的検出感度を更に高めた。

Fig. 1. Schematic diagram of the biaxial tensile tester, Bistron type.⁵⁾

Fig. 2. Calibration curve for specimen strain, which is determined by measuring microscope.

Fig. 3. Stress-strain diagram for sheets from softwood bleached kraft pulp in strip biaxial tensile test, where the specimen is uniaxially stretched under the condition of constant width. X is the tensile direction and Y the restrained one. Rate of strain; 2.5%/min.

またチャック部分の工作精度を高めることにより力、変位の伝達を確実なものにし、正確なひずみ場が得られるように工夫した。Fig. 2 は、試料にゲージマークを付して、読取り顕微鏡により実測したひずみと移動バー変位の電気的出力との関係を示す。X, Y方向ともほぼ良好な直線関係を示す。

Fig. 3 は NBKP の一軸拘束一軸引張試験による応力-ひずみ曲線図を示す。ただし試料形状は 12×12 cm の正方形で、Xは引張方向、Yは拘束方向を表す。

2・4 面内弾性定数の決定法

A. R. Jones⁶⁾ は、紙の弾性異方性が微小変形弾性論からの予測によく従うことを報告しているが、本研究でも紙を巨視的に均質連続体と仮定し、微小変形域で一般化 Hooke の法則が成立するとして以下の方法で面内弾性定数を決定した。手すきシートではシート面内で弾性的に等方性を示す。よって直交座標系として面内に x , y , シート面に垂直に z 軸をとり、平面応力状態を仮定し、対称性を考慮すると、面内の応力およびひずみテンソルの成分の間には次の関係が存在する。

$$\begin{bmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_{xy} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} k_{11} & k_{12} & 0 \\ \cdot & k_{11} & 0 \\ \cdot & \cdot & k_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \varepsilon_{xy} \end{bmatrix} \quad (1)$$

$$k_{33} = (k_{11} - k_{12})/2$$

ここで、 σ_i , ε_i ($i=x, y, xy$) はそれぞれ応力および微小ひずみテンソルの成分である。独立な二つの面内の弾性定数成分 k_{11} , k_{12} を工学量であるヤング係数 E_{xy} , ポアソン比 ν_{xy} で表示すると、

$$k_{11} = \frac{E_{xy}}{1 - \nu_{xy}^2}, \quad k_{12} = \frac{E_{xy}\nu_{xy}}{1 - \nu_{xy}^2} \quad (2)$$

一軸拘束一軸引張試験 (strip biaxial test) では、引張方向を x , 拘束方向を y 方向にとると、 $\varepsilon_y = \varepsilon_{xy} = 0$ から、

$$\sigma_x = \frac{E_{xy}}{1 - \nu_{xy}^2} \varepsilon_x, \quad \sigma_y = \frac{E_{xy}\nu_{xy}}{1 - \nu_{xy}^2} \varepsilon_x \quad (3)$$

よって上式を E_{xy} , ν_{xy} について解くと、

$$E_{xy} = \frac{\sigma_x^2 - \sigma_y^2}{\sigma_x \varepsilon_x}, \quad \nu_{xy} = \frac{\sigma_y}{\sigma_x} \quad (4)$$

すなわち手すきシートについては、 E_{xy} , ν_{xy} を決定することにより面内の弾性特性を完全に記述することができる。機械すき紙についても、川端⁷⁾らが示しているように直交異方性平板として同様の試験で決定することができる。

3 結果と考察

3・1 面内ヤング係数の坪量依存性

紙の坪量変化は、一般に系の質的变化を伴わない単なる体積変化として受けとられており、力学的性質に関する研究においては従来ほとんど関心が払われてい

Fig. 4. Relationship between in-plane Young's modulus and basis weight.

ない。しかし紙が比較的大きな構造単位の集合体であることを考えれば、繊維集団の量的な変化が質的变化 (構造変化) を伴う可能性も存在する。例えば、Taylor⁸⁾らは音波伝ば速度法、一軸引張試験両者から面内ヤング係数を求め、坪量との関係を検討した結果、顕著な坪量依存性を報告している。Fig. 4 は一軸拘束一軸引張試験により求めたヤング係数の坪量による変化を示している。ヤング係数は NBKP, LBKP いずれも 60 g/m^2 前後の坪量まで急激に増大し、その後レベルオフする傾向にある。このような場合、坪量による厚さ変化が及ぼす効果として平面応力状態の仮定の成立が問題となる。しかし、本実験で用いた試料の厚さは高々 0.15 mm で、この影響はほとんど無視されるものとする。

今、この現象を材料固有のものと考えるならば、まず検討しなければならないのは力学定数として取った面内ヤング係数が明確に定義されたものかどうかという問題である。すなわち弾性率算出の際に用いられる厚さの値は、通常の紙では厚さ方向の寸法が繊維の径に対して充分大きいとは言えず、坪量変動と関連してシート面上各点で確率的に変動する。そのことから厚さの定義は測定法を規定することによってのみ与えられている。Fig. 5 は標準型紙厚計で測定した厚さと坪量との関係を示す。同様の結果は Taylor⁹⁾も得ているが、かれは低坪量域 (20 g/m^2 以下) で厚さが坪量の非線形関数であること、また測定法により厚さの坪

Fig. 5. Paper thickness measured by bulking caliper as a function of basis weight.

量依存性は変化し、とくに Mercury Caliper による測定では比例関係を示すことも報告している。このように実験的に測定される厚さの値は、シート面上各点における厚さの確率変動の形式に敏感に影響されると考えられ、また定義があいまいであることも考慮すると、ヤング率からその影響を分離する必要がある。そこで本研究では、以後次式で定義される量で検討を進める。

$$\bar{E}_{xy} \equiv \bar{E}_{xy} t \quad (5)$$

ここで t は厚さを表す。(5)式で定義される $\bar{E}_{xy}$ は、紙の2次元 network ¹³⁾⁴⁾ モデルから導かれる可能性をもつ量である。Fig. 6 は $\bar{E}_{xy}$ と坪量との関係を示す。さきのヤング係数 E_{xy} と異なり、 $\bar{E}_{xy}$ は実験坪量域で直線的に増大する。もしこれが原点を通る直線ならば、裂断長と同様に $\bar{E}_{xy}$ を厚さのかわりに坪量で除すことにより規格化することが考えられる。しかし Taylor ⁸⁾ らの結果にもみられるように、仮に線形域を低坪量側に外そうしても原点を通らず坪量軸をわずかに切る傾向がある。このことは、もし力学試験における寸法効果などが存在しないとすれば、 $\bar{E}_{xy}$ はかなり小さな坪量域で非線形関数になることが予期され、さきの坪量による $\bar{E}_{xy}$ の規格化も充分大きな坪量域を除いて可能ではないことを意味する。

Fig. 6. $\bar{E}_{xy}$ defined in eq. (5) plotted against basis weight.

3・2 面内ポアソン比の坪量依存性

Fig. 7 は面内ポアソン比と坪量との関係を示す。LBKP は NBKP よりわずかに高く、それぞれ0.24, 0.20前後の値を示している。坪量に対する挙動はわずかに減少するような傾向をみせているが、ヤング係数に比べばらつきが大きく顕著ではない。

このことは一つにポアソン比は無次元量であり、ヤング係数と異なり厚さのような幾何学因子の坪量依存性の影響を受けない量であることによっている。

3・3 面内弾性定数とネットワークパラメータとの関係

前節までに述べた坪量依存性は、紙構造の力学的性質に及ぼす影響に関する情報をいくつか含んでいると考えられるが、構造パラメータの関数としてはあらわ

Fig. 7. Relationship between in-plane Poisson's ratio and basis weight.

に表現されていない。そこで本節では繊維集合体の構造を特性づける最も基本的なパラメータの一つである、単位面積当りの繊維本数に対する面内弾性定数の依存性を考察する。従来この量はしばしば用いられているにもかかわらずあまり明確に定義されていない。

ここでは Kallmes ¹⁰⁾ らの取り扱いに対応させる意味で次のように定義しておく。すなわちシート面上の1点Pのまわりに微小な面積片 $4S$ を考え、その中に存在する繊維中心点の数を $4N$ とすると点P近傍の繊維の集合状態は、

$$\lim_{4S \rightarrow 0} \frac{4N}{4S} = \underline{N}_e \quad (6)$$

で表されるであろう。しかし $\underline{N}_e$ は一般に点Pに依存する確率変数で、デルタ型関数となる。そこで $\underline{N}_e$ をある領域 D で積分した量、

$$\underline{n}_D = \int_D \underline{N}_e dS \quad (7)$$

を用いて、その期待値、 $E\{\underline{n}_D\}$ を領域 D の面積 S_D で除すと、

$$N_f = \frac{E\{\underline{n}_D\}}{S_D} \quad (8)$$

N_f はいわゆる単位面積当りの繊維本数に近い量である。 N_f は一般に領域の位置、面積によって異なるが、ここでは N_f が領域の位置によらない(定常)と仮定し、また領域の面積を 12×12 cm にとった量について検討する。なお N_f は繊維寸法より充分大きな領域面積を取れば、面積によらずほとんど一定とみなされる。

Fig. 8 は、 $\bar{E}_{xy}$ を N_f に対しプロットしたものである。坪量依存性の結果から予想されるように、実験坪量域で $\bar{E}_{xy}$ は N_f の線形関数で、NBKP および LBKP それぞれについて線形回帰した結果次の実験式を得た。

$$\left. \begin{aligned} \text{NBKP } \bar{E}_{xy} &= 1.357 \times 10^{-2} N_f - 18.33 \\ \text{LBKP } \bar{E}_{xy} &= 0.313 \times 10^{-2} N_f - 3.44 \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

回帰式の傾きは、針、広葉樹パルプの顕著な差にみられるように、繊維形態、繊維の力学定数の関数と考えられ、新たな力学的特性値として期待される。また理論的にもその内容を調べる必要がある。もう一つの

Fig. 8. $\bar{E}_{xy}$ as a function of number of fibers per unit area, N_f calculated from basis weight. The solid lines represent regression line.

定数である切片は力学試験における寸法効果に該当する可能性も考えられるが、同時に材料的要因として繊維集団が力学的に有効なネットワークを形成する際の臨界の N_f 値の存在を示させていることも考えられる。この値は低坪量域での非線形性の尺度になりうるが、しかしその正確な決定は実験的に困難であろう。面内ポアソン比は前節の結果から予想されるように、坪量を N_f に変換しても本質的な変化はない。

4 結 言

手すきシートを供試し、二つの独立な面内弾性定数 E_{xy} , ν_{xy} を 2 軸引張試験機を用いて求め、主要なネットワークパラメータの一つである N_f (単位面積当りの繊維本数) に対する依存性を実験的に検討した。得られた結論は次のとおりである。

(1) 紙の面内ヤング係数の坪量依存性は、現象的には厚さ t と、 $\bar{E}_{xy} (= \bar{E}_{xy} t)$ 両者の坪量依存性の結合効果である。

(2) 通常の方法で算出する面内ヤング係数は、定義が不明りょうな厚さを含むため、力学的特性値としては不適当であろう。

(3) 実験的に測定される厚さは、実験坪量域では坪量の線形関数であったが、更に低坪量域では非線形になることが予期される。

(4) 新たに定義した $\bar{E}_{xy}$ は実験坪量域で坪量 (また N_f) の線形関数で、非線形性は低坪量域に限られるも

のと思われる。線形域での $\bar{E}_{xy}-N_f$ のこう配は、NBKP と LBKP で大きく異なり、新たな力学的特性値として期待される。

(5) 面内ポアソン比 ν_{xy} は、LBKP が NBKP に比べわずかに高かったが、坪量 (また N_f) に対する依存性は顕著でなかった。

以上の結果から線形域での $\bar{E}_{xy}-N_f$ こう配および ν_{xy} は、繊維ネットワーク構造に関する情報を多く含むと考えられ、今後その構造論的な内容を理論的に検討し、他のネットワークパラメータについてもその依存性を検討する予定である。

最後に、本研究を行うにあたり 2 軸引張試験に関し種々指導いただいた京都大学工学部高分子化学教室河合弘勉教授、川端季雄助教授、また 2 軸引張試験機試作に際し協力いただいた、岩本製作所の皆様に感謝の意を表します。

(昭和51年4月6日 第26回日本木材学会大会にて講演)

参 考 文 献

- 1) Van den Akker, "The Formation and Structure of Paper", Vol. 1, p.205 (1962) ed. by F. Bolam, Tech. Sect. Brit. Paper and Board Makers' Assoc., London
- 2) Onogi, S., and K. Sasaguri, Tappi, **44**, 874 (1961).
- 3) Perez, M., Tappi, **53**, 2237 (1970).
- 4) Sternstein, S.S., "Cellulose and Cellulose Derivatives", Vol. 5, Part 4, p.649 (1971) ed. by N.M. Bikales, and L. Segal, John Wiley & Sons, New York
- 5) 坂口一彦, 川端季雄, 河合弘勉, 裕 伸夫, 材料, **17**, 356 (1968).
- 6) Jones, A.R., Tappi, **51**, 203 (1968).
- 7) 坂口一彦, 川端季雄, 河合弘勉, 材料, **18**, 325 (1969).
- 8) Taylor, D.L., and J.K. Craver, "Consolidation of the Paper Web", Vol. 2, p.852 (1966) ed. by F. Bolam, Tech. Sect. Brit. Paper and Board Makers' Assoc., London
- 9) Taylor, D.L., Tappi, **47**, 165 (1964).
- 10) Kallmes, O., and H. Corte, Tappi, **43**, 737 (1960).