コート紙内部構造の解析手法の開発

日本製紙株式会社 技術研究所 近 藤 裕 介
ジョージア工科大学 サイラス エイダン

Development of Method for Analyzing Internal Properties of Coated Paper : Image Analysis Using X-ray Microtomography

Yusuke Kondo

Nippon Paper Industries Co., Ltd.

Cyrus K. Aidun

G. W. Woodruff School of Mechanical Engineering, Georgia Institute of Technology

近藤裕介

サイラス エイダン

This paper reports a technique, based on analysis of X-ray micro-tomography images to analyze the internal properties of coated paper through the thickness direction (ZD). The image analysis method for paper applications using μ CT have been developed by a few groups, but the method that can analyze these images to obtain the full range of properties in detail has not been presented before.

The internal properties include formation and fiber orientation distribution through the thickness direction (ZD), as well as ash and pore distribution in x-y-and z-directions. The image analysis technique involved many steps including axial conversion, filtering, binarization, skeletonization and alignment. The method is applied for analysis of two kinds of coated paper and the results provide interesting insight for papermaking.

Keywords : X-ray tomography, ash, formation, fiber orientation, distribution, image analysis, Z-direction, pore

分類 : Q₆ 紙板紙品質試験法, S₂ 塗工印刷用紙 (微塗工印刷用紙含む)

1. 緒 言

塗工紙において、原紙層の物性（地合、空隙、灰分、繊維配向等）は印刷品質や白紙品質に影響するため重要である。例えば、塗工紙のモットリングは塗工方式（ブレード、ゲートロール等）や塗料物性（粘度、保水性等）などの塗工因子だけでなく、塗工原紙の物性（地合ムラ、灰分ムラ）によっても影響を受ける。また、塗工紙の表裏差は原紙層の表裏差が原因であることも多く、原紙物性の厚さ方向分布（以下、Z方向分布と記述）の解析が重要となる。この様に、塗工紙の内部の原紙層の解析をすることは重要であり、本研究では製品の塗工紙から原紙層のZ方向分布を解析する手法の確立を検討した。また、近年はオンラインコーターが増加しており塗工原紙の入手および解析が困難になっていることから製品塗工紙からの分析が重要となっている。

2. X線マイクロトモグラフィー

X線マイクロトモグラフィーは、主として医療分野および電子機器分野で利用されてきた。この機器の利点は物体の内部構造を3次元で、前処理の必要がなく迅速且つ非破壊に解析できることである。欠点としては用紙解析に広く使用されている電子顕微鏡や共焦点型顕微鏡と比較して解像度が低いことが挙げられる。しかし、ここ数年で機器の解像度は飛躍的に向上しており、今後はさらに分析機器としての重要性が増加すると考えられる。

本研究で使用したSKYSCAN-xxxxの解像度は2~3 μ mであり、測定可能な物質の容積は2×2×2 mm³である。解像度については高ければ高いほど正確な測定が可能であることは当然であるが、一方で測定可能な容積も測定の再現性に影響するため非常に重要である。特に、用紙は測定した箇所によって坪量等の物性が大幅に変動するため、

測定容積はできる限り広範な方が好ましい。先に述べた様に X 線マイクロトモグラフィーは前処理の必要がなく、迅速な測定が可能であるため広範な測定が比較的容易で、電子顕微鏡・共焦点型顕微鏡よりも用紙の 3 次元解析には適していると考えられる。一方で、現状ではその解像度は電子顕微鏡や共焦点型顕微鏡よりも低く、表面の顔料形状等の観察には適していない。

SKYSCAN-xxxx の解像度は $2\sim 3\mu\text{m}$ で、直径が $10\mu\text{m}$ 程度の繊維を観察することは比較的容易であるが、 $2\mu\text{m}$ 未満の粒子も多く含まれる填料や顔料を観察することは難しい。本研究では、空隙、繊維、灰分の X 線吸収性が大幅に異なることを利用してその Z 方向の分布量を概算した。更に正確な測定をするためには高解像度タイプの X 線マイクロトモグラフィーを使用することが好ましい。

ここで、X 線マイクロトモグラフィーの原理を簡単に説明する。この機器は、線源、試料、受光部、コンピューター解析部で構成される (Fig.1)。まず、線源から X 線をサンプルに照射して、受光部で透過 X 線量を検出した後に受光曲線を得る。サンプルを約 1 度回転して、別の受光曲線を得た後に、サンプルをさらに 1 度回転して別の受光曲線を得る。この一連の動作 (回転、測定) を繰り返して X 線を 360 度全方向から照射し、得られる多数の受光曲線 (2D 情報) を数学的に処理して試料の 3 次元構造を構築する。紙の断面解析に関する例は既に幾つかの文献^{(1),(2),(4)}で報告されているが、本研究で検討したように、得られた全ての数百枚の断面画像に対して、迅速に用紙の Z 方向解析を実施した例は報告されておらず、解析の効率、再現性

が飛躍的に向上していると考えられる。

2.1 X 線の特性⁶⁾

本機器は X 線を物質に照射しその透過量から内部構造を解析している。ここで、X 線の透過性を簡単に説明する。物質を透過する X 線の強度は、原子量 (原子番号)、原子密度、厚さの 3 つに依存しており、次の式で表現される。

$$I/I_0 = \exp [-(\mu/\rho) x]$$

ここで、 I は受光部での強度、 I_0 は発光部での強度、 (μ/ρ) はその原子の質量減衰係数もしくは各原子の質量減衰係数の加算平均値を表している。ここで、 $x (= \rho t)$ は質量厚さ、 ρ は密度、 t は厚さである。受光強度は原子番号と対象となる物質の原子の密度に依存する。用紙は主に繊維、灰分、空隙から構成されており、灰分は繊維よりも重い原子が主成分で密度が高いために、受光強度は灰分の方が繊維よりも小さくなると考えられる。

なお、密度情報のみを得るためには機器の X 線電圧を 100 keV 以上として解析することが適していると考えられる。NIST の表⁶⁾を参照すると、X 線の加速電圧が 100 keV を超える領域では、X 線の透過量は元素番号の違いよりも密度の影響が支配的になるためである。

3. 画像解析手法の開発

開発した画像解析手法は多数のステップを含んでいる (Fig.2)。まず、画像解析に適した画像に予め変換する前処理部がある。この部分で、断面画像から水平方向の画像へ変換した後に、地合・灰分・空隙測定部、繊維配向測定部の各部で解析を実行する。

3.1 測定時間・画像処理時間

3.1.1 サンプルホルダーの検討

測定範囲は約 $2 \times 2 \times 2\text{ mm}^3$ の立方空間であり、用紙の様な直方体を積層的に解析することができるサンプルホルダーを開発することで、複数のサンプルを同時に測定でき、測定時間を大幅に低減することが可能となった。Fig.3 では、5 枚の紙試料を同時に測定することができるサンプルホルダーを使用した例を示している。

3.1.2 測定時間 (Table 1)

X 線マイクロトモグラフィーにより測定・再構築化に要する時間は約 1 時間であるが、サンプルホルダーの作成により、1 サンプルでは 10 分で測定できるようになった。

Fig. 1 Principal of X-ray micro tomography

Fig. 2 Flow chart of program

Fig.3 Sample holder

Table 1 Time to analyze a sample

	Process	Time (minutes)
1	Measurement time	10(60)
2	Preliminary analysis	20
3	Formation, Pore and Ash	3
4	Fiber orientation and MD/CD ratio	10

2~4) Laptop computer : Pentium 4 1.8 GHz, 512 MB

その後の画像解析に要する時間はおよそ 30~40 分であった。

3.1.3 前処理部（角度補正および軸変換）

本研究では用紙の 3 次元データを数百の断面画像として取り扱った。なお、紙表面に水平な画像群として得ることもできるが、用紙の様に厚さが薄い場合、測定機器へ紙表面に水平に用紙をセットすることは難しく傾斜の大きい画像しか得ることができず、傾斜補正処理が困難であった。そこで、断面画像群として得たあとに直平面補正を行い、水平画像へ変換する手法が最も簡単と考え、その手法を開発した。前処理部は、①直平面補正部、②断面画像群から水平画像群への変換、の 2 ステップがあり、Fig.4 に直平面補正する手法、Fig.5 に断面画像群から水平画像群へ変

換する手法を記載した。

4. 評 価

4.1 試 料

試料は同一の原紙（灰分約 15%）で塗工量のみが異なる 2 種類の両面塗工紙を使用した。塗工量はそれぞれ片面 6 g/m^2 と 12 g/m^2 である。Photo.1 に塗工層、Photo.2 に原紙層の観察画像の一例を示す。Photo.1 では、黒い所が塗工層（X 線が透過しにくい物質ほど黒くなる。）で、塗工層中の繊維は顔料よりも X 線が透過し易いため相対的に白くなっている映っている。Photo.2 では、黒い所が填料、それよりも若干薄いところが繊維、空隙は X 線が完全に透過するため白くなっている。この様に、塗工層中の繊維や、原紙層中の填料を観察することが可能である。

4.2 地合・灰分・空隙

Z 方向の地合分布を Fig.6 に示す（地合は輝度の標準偏差で示した）。原紙が同一であるために、2 種類のコート紙の原紙層の地合はほぼ同じであった。本手法を用いることにより従来の地合計では難しかった製品塗工紙から原紙層の地合を測定することができるようになった。塗工紙のモットリングの要因解析等に有用と考えている。

次に、原紙層の空隙・繊維・灰分の分布状態を解析するため、2 値化値（空隙-繊維間、繊維-顔料間）を決定した。Fig.7 に塗工層と原紙層の輝度分布を示すが、顔料が主成分である塗工層は原紙層よりも X 線の吸収量が多いこと

Fig.4 Image analysis steps for sectional alignment

Fig. 5 Conversion from cross-sectional images to sliced images

Photo. 1 Image of coated layer

Photo. 2 Image of base paper

が分かる。2 値化値は原紙の灰分が 15% となるように決定した。この 2 値化値を用いて Z 方向の灰分分布および細孔分布を算出した結果を Fig. 8, Fig. 9 に示す。この用紙はオントップ式の抄紙機で抄造されており、塗工前の原紙の灰分は F 面が W 面よりも多い。塗工後の原紙層の灰分は W 面の方が F 面よりも多い結果（細孔は W 面の方が F 面より少ない結果）が得られていることから、塗工時に W 面側の塗料が深く浸透した可能性が考えられた。本手法により塗料の浸透性が評価できる可能性が示唆された。

4.3 繊維配向測定（原紙層）

4.3.1 フィルター処理

まず、繊維（Fig. 10）を鮮明にするために移動平均手法による 2 次元の低周波カットフィルターを使用した。このフィルターの効果を Fig. 11, Fig. 12 に示す。単純に 2 値

化した画像（Fig. 12）よりもフィルター処理後に 2 値化処理（Fig. 11）することにより繊維の輪郭が鮮明になっている。

4.3.2 細線化、配向角測定

繊維の中心線を抽出するための細線化処理は小野らの手法⁷⁾を用いた。この処理によって、アスペクト比の低い物質は除去され、アスペクト比の高い繊維などの物質が残る。Fig. 13 中の緑色の線は細線化処理後のラインである。その後、繊維配向角を計算するために、いくつかのセグメントに分けた後に直線近似を行う。上記処理を、全繊維の全てのセグメントについて長さ平均で実施して平均値を代表値とした。例えば、Fig. 13 の赤丸の繊維については、3 つのセグメントに分けて（Fig. 14 参照）、それぞれのセグメントに対して近似曲線を作成したのち、垂直線（抄紙機の流れ方向）からの角度を繊維配向角として計算している。MD/CD 比は、単純な計算式（ドットが垂直方向に接触している個数/水平方向に接触している個数）で算出した。

Fig. 6 Formation

Fig. 7 Gray level histogram

Fig. 8 Z-Ash distribution

Fig. 9 Z-Pore distribution

Fig. 10 Original image

Fig. 11 Binarization

Fig. 12 Filtering and binarization

Fig. 13 Skeltonization

Fig. 14 Segmented skeletonized fiber

4.3.3 繊維配向角測定の測定結果

MD/CD 比と繊維配向角の評価結果を示す。MD/CD 比は中央で最大となり (Fig. 15), 表層に近づくにつれて小さくなった。繊維配向角は全層に渡り右方向を向いており (Fig. 16), W 面に近づくにつれて値が大きくなった。本研究により塗工原紙の繊維配向が解析できる可能性が示唆された。

5. ま と め

コート紙内部の原紙物性を解析できる画像解析手法を開発した。この手法の有利な点は断面セクション等の前処理が必要なく非破壊で迅速に測定できることや、コート紙等の用紙に限らず、様々な製品の解析にも応用できると考えられる。

References

- 1) Alan R. Dickson : Appita J. peer reviewed, p 292-295, Jun (2000)
- 2) Amit Goel, Manolis T., Shuiyuan H., Shri R., Doeung C. and Bandaru V. Ramarao: Tappi J. p 95-100, May (2001)
- 3) Donald L. Gibson, Ross T. Gray and George C. Simon: Tappi proceedings coating/papermakers conf., Book 1, May (1998)
- 4) E. J. Samuelsen, O. W. Gregersen, P. J. Houen, T. Helle, C. Raven and A. Snigirev: Journal of pulp & paper science, p 50-53, No. 2, Vol. 27, Feb. (2001)

Fig. 15 MD/CD ratio

Fig. 16 Fiber Orientation Angle

- 5) Erkki Alarousu, Leszek K., Jukka H. and Risto M. : "Optical coherence tomography device for paper characterization", website
- 6) J. H. Hubbell and S. M. Seltzer: "tables of X-ray mass attenuation coefficients and mass energy-absorption coefficients" website <http://physics.nist.gov>
- 7) Katumasa Ono, Chang Park and Cyrus Aidun: "A New Technique for the Fiber Orientation Measurement Using Image Analysis", Institute of Paper Science Technology Internal Publication
- 8) Mark E. Brezinski and James G. Fujimoto: IEEE Journal of selected topics in quantum electronics, p 1185-1199, No. 4, Vol. 5, July/August (1999)
- 9) Shuiyuan Huang, Amit G., Shri R., Bandaru V. R. and Doeung choi : Appita J. p 230-234, No 3, Vol. 55, May (2002)

(受理: '06.11.14)

JAPAN TAPPI Journal accepts scientific papers written either in Japanese or in English. We, JAPAN TAPPI, translate them into the other of the two languages (Japanese into English and English into Japanese) and print them in addition to the originals under the permission of the authors. We believe that this service of translation will help our subscribers to find and understand the scientific value of the original paper more clearly, and will contribute to the development of science and technology in the paper industry.

- Regarding figures and tables, refer to the original article in Japanese.
- The copy right of the translated version belongs to JAPAN TAPPI.
- If there is any inconsistency between the two versions, the original is always true.
- JAPAN TAPPI is not responsible to any outcomes based on the translated version.

1. Introduction

Physical properties of base paper such as sheet formation, porosity, ash content and fiber orientation make a great influence of final coated paper quality. For example, print mottle of coated paper is influenced not only by coating method (blade coater or roll applied coater) and coating color properties (viscosity and/or water retention) but also by the sheet formation of base paper that is pulp and ash distribution occurred in papermaking process. In many cases, especially for light weighted coated paper base paper with two-sideness makes the coated paper with two-sideness and it is very important to analyze the base paper of coated paper along thickness direction (described as z-direction). This paper reports new technique for analyzing base paper of final coated paper product along z-direction. As many coaters are on-line with the papermaking machine in these days, it becomes more difficult to get the base paper of coated paper. In this view, the method to analyze the base paper of final coated paper product is more meaningful.

2. X-ray micro tomography

X-ray micro tomography has been developed mostly for medical and electronic applications. The advantage is to analyze the internal structure of sample in three dimensions without any pretreatment and destroying it. The disadvantage is relatively lower resolution compared with other methods such as Scanning Electron Microscope and Confocal Laser Microscope. SKYSCAN-xxx used in this paper has 2–3 μm resolution and the analyzing volume is $2 \times 2 \times 2 \text{ m}^3$. As new micro tomography machines with higher resolution are released recently, the X-ray micro tomography can analyze the sample in detail.

The resolution of X-ray micro tomography is very important to analyze the sample accurately, and also the measuring volume is very important. Especially for paper product, physical properties like basis weight and thickness varies in plane (x, y) or thickness (z) direction, and the large measuring volume is necessary to get the accurate data. As X-ray microtomography has the advantage described before, it would be suitable for analyzing three

dimensional structure of paper more than SEM and confocal laser beam microscope. Due to relatively lower resolution, it is less suitable for observing pigments in paper product compared with other methods.

As SKYSCAN-xxx has the resolution of 2–3 μm , it is able to observe fiber that is approximately 10 μm width, but it is difficult to observe pigment and filler that contain many small particles less than 2 μm . As void, fiber and ash have different specific x-ray absorption amount, we can analyze these amount.

The principle of X-ray micro tomography is as follows. The equipment consists of X-ray source, sample, detector and computer (Fig. 1). X-ray from the source radiates a sample, and X-ray passing through the sample is generated. After the sample is placed in the parallel X-ray beam, X-ray received at the detector depicts a curve specific to that position. Then, the sample rotates about one degree, and another curve specific to a new position is obtained. This procedure is repeated until the sample is radiated from all directions around (360 degree). Computing these two dimensional data, the sample is re-structured in three dimensions. Although several papers have been reported using by X-ray micro tomography to analyze the internal structure of paper in Z-direction^{1,2,4)}, the developed method to be able to analyze several hundreds of cross sectional images and compute the internal coated paper properties in z-direction very fast in this paper has not been reported before.

2.1 X-ray characteristics

X-ray micro tomography utilizes X-ray passing through characteristics. The X-ray intensity at detector depends on atom weight (atom number), atom density and the thickness, according to following equation.

$$I/I_0 = \exp[-(\mu/\rho) x]$$

I is the captured intensity, I_0 is the incident intensity and (μ/ρ) is mass attenuation coefficient. If the sample consists of several kinds of atom, the coefficient is the average of individual coefficients. $x (= \rho t)$ is mass thickness, ρ is density and t is thickness. The captured intensity depends on the atom number and atom density of the sample. Paper consists of fiber, ash and void (pore). Because ash has heavier atom than fiber and the ash density is higher

than fiber density, the captured intensity of the ash is smaller than that of fiber.

When you want to analyze the density of sample, it is better to operate X-ray micro tomography over 100 keV as X-ray voltage. According to NIST table⁶⁾, when X-ray accelerating voltage is over 100 keV, the captured intensity of X-ray is influenced by density of sample mostly.

3. Development of Image analysis method

The procedure we developed the image analysis consists of several steps (Fig. 2). The first step is the preliminary analysis. That is for converting cross-sectional images horizontal images that are parallel with paper surface. The second step is the measurement of formation, pore and ash. The last (third) step is for calculating fiber orientation.

3.1 Sample holder and Time to analyze paper

3.1.1 Sample holder

The equipment can analyze the cube sample with $2 \times 2 \times 2$ mm³. As paper sample is thinner than 2 mm, we make a sample holder that can pile up several papers with together. Using this holder can measure several samples at one measurement, and the measurement time for one sample can be several times faster. Fig. 3 shows five samples were scanned at one measurement.

3.1.2 Measurement time to analyze (Table 1)

The equipment needs approximately one hour to scan a sample and get the three dimensional data of sample. As the holder we made fixes the six samples, one sample is measured in about 10 minutes. The following analysis is executed in about 30–40 minutes.

3.1.3 Preliminary analysis (Alignment and axis conversion)

In this paper the three dimension structure of paper is represented as several hundreds of cross sectional images. It is possible to get series of images of horizontal plane along the paper surface. But a thin and soft material like paper cannot be set in the equipment along the surface. As the inclination of measuring plane images along the paper surface cannot be adjusted by the normal calibration procedure, once we get cross sectional images, calculated the inclination of all images, and calibrated the inclination by 2 dimensional plane alignment. The cross sectional aligned images were converted to series of horizontal plane images to z direction. The preliminary analysis consists of two procedures, alignment and axis conversion. Fig. 4 shows the process of alignment. Fig. 5 shows the conversion from the cross sectional images to the horizontal plane images.

4. Analysis

4.1 Samples

Two coated paper products that are coated with both sides are used and the ash amount of base papers are approximately 15%. One sample is coated on 6 g/m² per side and the other is on 12 g/m² per side.

Photo. 1 and Phot. 2 show the coated layer and the base paper of coated paper respectively. In these figures, materials that absorb X-ray more than other material are darker areas. In Photo. 1 coating colors are dark and fibers in the coated layer are lighter. In Photo. 2 dark areas are paper filler, less dark areas are fibers, and white areas are void (pore) with no x-ray absorption. It is easy to observe fibers in the coated layer and filler in the base paper by x-ray micro tomography.

4.2 Calculation of formation, ash and pore

In this paper we calculates the paper formation in Z-direction as standard deviation of brightness commonly used for paper formation. Fig. 6 shows the formations of coated paper in z-direction. As two coated papers are made by same base paper, the formations of the base paper layers in Z-direction are almost same lines. The base paper of coated paper product that conventional method cannot analyze can be measured by this method. The base paper formation of coated paper is very useful for resolving the problems, such as mottle of paper and print mottle.

In order to analyze distributions of pore, fiber and pigment in the base paper layer, binarization method is executed. Fig. 7 shows the frequency (voxel number) of the coated layer and that of the base paper. The coated layer which mostly consisted of pigment absorbed more X-ray than the base paper layer. Criterion for binarization is selected in such a way as simulating the ash content of the base paper to be 15%. Using this binarization number, Fig. 8 shows the ash distribution in the z-direction and Fig. 9 shows the pore distribution. As the base paper is made with on-top former that the dewatering amount of felt side is less than that of wire side, the felt side surface has more filler than wire side surface. In the analyzing result the ash amount in felt side of base paper layer is higher than the ash amount in the wire side. The pore in the wire side of the base paper is less than that in the felt side. We think that coating color on the wire side of base paper penetrated more than on the felt side. If measuring the base paper separately by this method it is possible to evaluate color penetration into base paper.

4.3 Fiber orientation of base paper

4.3.1 Filtering

To separate fibers (Fig. 10) from the images, the 2 dimensional filtering which can remove low frequency components is used. Fig. 11 and Fig. 12 show the effect. Fig. 11

is only done by the binarization. Fig. 12 is done by filtering and binarization. Fibers in Fig. 12 are more clearer shapes than in Fig. 11.

4.3.2 Skeltonization and orientation angle

For skeltonization which extracts center lines of fibers, the method by Ono⁷⁾ is used. This method removes low aspect ratio materials and remains high aspect ratio materials like fibers. Green lines in Fig. 13 represent the center lines of fibers after the skeltonization. To calculate fiber orientation, this executes the following steps. To explain this step, picks up one fiber and explains this step by using this fiber. This fiber is separated to several segments. Every segment is fitted to a line, and all angles of the fitted line are calculated. After that, the average orientation angle is calculated. This procedure is applied to every segment of all fibers. Then, all are averaged for each segment length. For example, the fiber encircled by red in Fig. 13 separates into three segments in Fig. 14. A fit line is calculated for every segment. The angle formed between the fit line and the vertical line, which is the machine direction on paper machine, is calculated as an orientation angle of the

segment. MD/CD ratio is calculated by a simple equation. That is : number of dots lining in the vertical direction / number of dots lining in the crossing direction.

4.3.3 Fiber orientation angle

Fig. 15 shows MD/CD ratio. It become an optimum in the center and is less than that at the both surfaces. Fiber orientation angle is in Fig. 16. It inclines to the right hand side in the whole z-direction. The inclination becomes larger toward the Wire side. This method demonstrates that the fiber orientation of base paper can analyzes by using the final coated product.

5. Conclusion

A new image analysis method for analyzing physical properties of base paper for final coated paper product by using X-ray micro tomography is developed. This method has many advantages such as without pre-treatment, without destructive sectioning, and analyzing very fast. It is considerable that this new image analysis method is very useful technique not only for paper applications but also for many kinds of products applications.