紙の地合測定について (第1報)

Measuring Methods of Paper Formation

Part 1. Beta-Radiography Method

宇都宮大学 工学部 村 田 正 男
 静岡県製紙工業試験場 中 田 幸 次 郎
 遠 藤 恭 延

Masao Murata

Faculty of Engineering, Utsunomiya Univ.

Kōjiro Nakata and Yasunobu Endō

Shizuoka Prefecture Pulp and Paper Industrial Research Institute.

One big advantage of using the β -rays in measuring paper formation, instead of light which has been commonly used, is that the distribution of basis weight in paper can be directly measured, not affected by the color or the density variation of paper. However, one of the disadvantages in this method is that the size of measuring spot must be set much larger than that in the light transmission method. So we have developed a new measuring method, using the β -rays within the safe activity to handle, in which the basis weight variation can be measured of such a small area of approximately $25 \times 25 \mu$ as not to be measured by the light transmission method. In this method the specimen is radiographed by the β -rays plastic sheets (poly-methyl methacrylate) containing Carbon 14; the transmission of the β -rays is photographed by Kodak "Crystalex" X-ray film; then the basis weight variation is measured by the optical density variation in the X-ray film. In this method paper formation can be measured within the measuring error of 4 to 5 % under careful operations. Some applications of this method are described.

1. は し が き

紙の地合とは、紙中の繊維分布の均一さを表わす総称である。したがって、地合の良否を数量的に評価するには、繊維構成の物理量で表示するのが、もっとも妥当のように思われる。

筆者はさきに⁽¹⁾、繊維分布の不均一さを微小部分の坪量変動に置き換えて数量化し、その変動係数を地合度と名づけた。

地合測定には、一般に可視光が用いられているが、光にかえて β 線を使用すると、紙の色、紙中の密度変動等の影響を受けることなく、直接紙中の坪量分布を測定できる利点がある。しかしながら、 β 線による測定においては、検出スポットの大きさを光学的方法の場合にくらべて、はるかに大きくせざるを得ないところに難点がある。

そこで、取扱い上危険のない範囲の β 線源（無資格でも使用可）を使用し、しかも、光学的方法でも検出できない微小部分の坪量変動まで検出できる新たな地合測定法を開発した。この方法は、 β 線プラスチックシートを用いて β 線を試料に照射し、その透過量をX線フィルムでとらえ、X線フィルムの光学濃度変動から、紙中の坪量変動を検出するものである。

本文は、 β 線プラスチックシートを使用する新たな

地合測定法について、測定精度、ならびに地合の数量化の諸点から検討を加え、さらにこの方法による地合測定の適用例を付記した。

2. 測定法の概要

β 線による地合測定器の一例を、第1図にブロックダイアグラムで示す⁽²⁾。この方法は、紙中の繊維分布を坪量の変動としてとらえるには、大変利便な方法であるが、検出スポットをせばめた場合、 β 線源を強くする必要があり、測定器としての安全確保の立場から検討を要する。

本文では、取扱い上危険のない範囲の β 線源を使用し、しかも光学的方法でも測定不可能な細部の坪量変動まで、検出できる新たな方法を考案した。その測定法を第2図に示す。この方法は、 β 線を試料に照射してその透過量をX線フィルムでとらえ、X線フィルムの光学濃度変動から、紙中の坪量分布を検出するものである。すなわち、物質を透過する β 線強度は物質と対数関係にあり、現像定着したX線フィルムの黒化度（真の光学濃度）と β 線強度とは、一般に直線関係にあることを利用した。

第2図に示した放射線プラスチックシートは、英国原子力公社製のもので、放射性同位元素¹⁴Cを含有するポリメタクリル酸メチルフィルムである。大きさは

第1図 β線による地合測定器のブロックダイアグラム

4×13 cm, 密度は 1.2 g/cm³ で, シートの放射能の強さは 20 μCi/g である。そのためシートを密閉することなく開放でも使用でき, 取り扱いが大変容易である。

つぎに, この方法による地合測定の手順を示そう。

第2図 β線プラスチックシートを用いる地合測定法

(1) 放射線プラスチック, 試料 (20°C のデシケータ中にて調整), X線フィルムを第2図のように密着してデシケータに入れ, 暗室 (20°C, 65% R.H.) にて第1

表にしたがい所定の時間照射する。(2) 照射後直ちにX線フィルムを液温 20±1°C で, 5±0.05min. 間現像し, 定着する。(3) 現像定着したX線フィルムの黒化度を, 光学濃度計で測定する。(4) X線フィルムにおける黒化度の変動を, 第3図にもとづき坪量変動に変換する。(5) 含水率2%として, 坪量変動から水分量を差し引く。

本文で使用した光学濃度計は, ユニオン光学社製のマイクロフォートメータ FUR-S である。X線フィルムはコダック社製の Crystallex を使用し, 現像液ならびに定着液は, それぞれ指定のコダック社製品を用いた。また, 坪量への変換には FACOM 270-20 を使用した。

3. 測定精度

以上述べた地合測定において, 測定精度を低下させる主要因を列举すれば,

- (1) X線フィルムに塗布された感光乳剤中の銀粒子のばらつきによる影響
 - (2) 線源の強さの一様性
 - (3) β線照射時間の影響
 - (4) X線フィルムの現像ならびに黒化度測定による誤差
 - (5) 試料に含まれる水分の影響
- 等である。つぎに, 各要因の測定精度におよぼす影響について詳述しよう。

第3図 X線フィルムの黒化度と坪量の関係

3.1 要因(1)および(2)について

第4図は β 線による密着写真であり、本測定法による測定結果の一例を示したものである。この図からわ

(A) 上質紙 (70g/m²) (B) 新聞用紙 (56g/m²) (C) クラフト紙 (88g/m²)第4図 β 線による拡大写真 ($\times 3$)

かるように、 β 線を使用すると $100 \times 100 \mu$ 以下の微小部分まで識別可能となる。一方、X線フィルムにおける黒化度から紙中の坪量分布を検出する場合には、X線フィルムの表面に塗布された感光乳剤中の銀粒子のばらつきによる影響を考慮する必要がある。第5図は、X線フィルムのカブリ濃度を示したものであり、この図から、銀粒子のばらつきの影響をうけずに検出できるブロックサイズは、 $25 \times 25 \mu$ から $100 \times 100 \mu$ と推定される。

放射線プラスチックシート法のように、線源が面状の場合、線源の強さの一樣性が測定精度を大きく左右する。本文で使用したシートは、面状の線源として開発されたものであり、シートの全面にわたって線源の強さのばらつきは非常に少ない。文献〔3〕によれば、そのばらつきの大きさは、シートのはしの部分を含めても 3.5%，はしの部分を除けば 2%以下である。

3.2 要因(3)および(4)について

X線フィルムを用いて試料の β 線透過量を測定する場合、特に注意を要する点として、 β 線の照射時間、潜像退行、X線フィルムの経年変化、現像の条件、X線フィルムの濃度測定等があげられよう。

第3図(既述)は、 β 線の照射時間をパラメータとしたX線フィルムの黒化度と坪量との関係を示したものである。この図によれば、同じ坪量の場合でも、照射時間が長くなるにつれ、X線フィルムの黒化度は増大する。したがって、同じ黒化度の場合には、照射時間の長いものは坪量は大きく、たとえば70時間の場合に坪量 60 g/m^2 のものは、75時間では 65 g/m^2 、94時間では 81 g/m^2 となっている。本文の場合には、第1表のように照射時間を定め、そのばらつきを ± 3 分以内としたので、照射時間のばらつきによる影響は無視できる。

X線フィルムの写真濃度は、 β 線照射終了から現像までの期間が長びくにつれ、次第に低下する。この現象を潜像退行と称している。潜像の退行は、照射終了2時間後から始まるようである⁽⁴⁾。本文では、 β 線照射終了後直ちに現像を開始しているので、潜像の退行による黒化度の変化は無視できる。

X線フィルムの黒化度は、現像時間にも影響されるが、文献〔5〕に掲載された他社製品の特性から類推するとき、液温 $20 \pm 1^\circ \text{C}$ 、現像時間 $5 \pm 0.05 \text{ min}$ とすれば、液温の変動、現像時間のばらつきによって生ずるX線フィルムの黒化度の変動は、1%以下と考えられる。

X線フィルムの経年変化、現像液の現像能力の低下によって生ずる黒化度への影響も無視することはでき

第5図 X線フィルムのカブリ濃度変動と検出スポットの関係

ない。この影響の有無を調べるには、測定に使用したX線フィルムと同種同履歴のものをを用いて、坪量と黒化度の関係を測定し、第3図と照合すればよい。本文では、第3図に示した特性と比較して、黒化度で5%以上の誤差を生じた場合は、新しいX線フィルムと現

第1表 坪量とβ線照射時間との関係

坪 (g/m ²) 量	照 射 時 間 (時 間)
20	24
60	75
80	90 ~ 100
140	360

像液を用いて測定をやりなおすこととした。この方式にしたがえば、X線フィルムの経年変化ならびに現像液の現像能力の低下によって生ずる誤差を、3~4%以下におさえることができる。

X線フィルムの黒化度を測定するには、フィルム濃度から、カブリ濃度ならびにフィルムベースの不透明度の分を差し引いて黒化度の零点を定める必要がある。本文では、β線未照射部分(X線フィルムの大ききは放射線プラスチックシートの大きさより大きい)の濃度をランダムに数十点とって平均し、その平均濃度を零点とすることにより、零点調整による誤差を2~3%以下におさえている。また、使用した光学濃度計

FUR-Sは、濃度0~4の範囲で直線性がよく、誤差5%以下のものである⁽⁶⁾。

3.3 要因(4)について

第6図は、デシケータ中における測定試料の含水率を示したものである。同図によれば、各試料の含水率は1~3%である。紙の繊維と水分のβ線吸収率はほぼ等しい。そこで、X線フィルムの黒化度に対応して得られる坪量の測定値から、含水率2%として水分量を差し引いておけば、坪量測定における水分の影響を、1%以下におさえることができる。

3.4 測定誤差の検討

第3図からわかるように、X線フィルムの黒化度 Y と試料の坪量 W g/m²との間には、つぎの関係が成立する。

$$W = -a(\log_e Y - b) \dots \dots \dots (1)$$

$$a > 0, \quad b > 0$$

黒化度の測定誤差は3.1から3.3を総合すると、10%以下と考えられる。いま、黒化度 Y が $Y' = (1 + \alpha)Y$, $\alpha = \pm 0.15, \pm 0.1, \pm 0.05$ にかわったとき、坪量 W g/m²が W' g/m²になったとすれば、(1)式より

$$\frac{|W - W'|}{W} = \frac{a|\log_e Y - \log_e Y'|}{W} \dots \dots \dots (2)$$

が成立する。

いま、β線の照射時間が70時間の場合を例にとれ

第6図 デシケーター中の紙の含水率

第2表 各坪量における α と坪量測定誤差との関係

坪量(g/m ²)	$\alpha = -0.15$	$\alpha = -0.1$	$\alpha = -0.05$	$\alpha = 0.15$	$\alpha = 0.1$	$\alpha = 0.05$
	%	%	%	%	%	%
20	24.5	15.8	7.72	21.0	14.3	7.34
30	16.3	10.5	5.15	14.0	9.56	4.90
40	12.2	7.90	3.86	10.5	7.17	3.87
50	9.81	6.32	3.09	8.41	5.74	2.94
60	8.30	5.27	2.57	7.01	4.78	2.45
70	7.10	4.51	2.21	6.01	4.10	2.10
80	6.13	3.95	1.93	5.28	3.59	1.84
90	5.45	3.51	1.72	4.68	3.19	1.63
100	4.91	3.16	1.54	4.21	2.87	1.47
110	4.46	2.87	1.40	3.82	2.61	1.34
120	4.07	2.63	1.28	3.51	2.39	1.22

注: 坪量測定誤差の算出は(3)式にもとづく

ば, $\alpha=30.1$ であるから(2)式より

$$\frac{|W-W'|}{W} = \frac{30.1 |\log_e Y - \log_e Y'|}{W} \dots\dots\dots(3)$$

を得る。

第2表は、黒化度の測定誤差と $|W-W'|/W$ との関係を示したものである。同表からわかるように、黒化度の測定誤差が10%でも、坪量の小さい試料を除けば測定誤差は小さい。

第3表は地合測定の実測例を示したもので、上述の検討結果をよく実証している。

4. 地合の数量化

坪量変動の大きさと、ブロックの分布状態とから地合の良否は判定される。変動の大きさは標準偏差で示され、ブロックの分布状態は周波数分析によって数量化されている。周波数分析には、周波数分析器を使用

する場合と、時系列解析による場合とがある。周波数分析器は、入力周波数帯域に制限があり、使用上工夫を要する。これに対して、時系列解析による場合は、坪量の分布状態の如何を問わず、いつでも同じ手法でデータを処理しているが、その妥当性を検討する必要がある。

つぎに、 β 線プラスチックシート法による坪量変動の測定結果について、時系列解析の立場から検討を加えてみよう。

β 線プラスチックシート法による地合測定では、紙中の坪量分布は、一般に指数分布で近似され、地合がよくなるにつれ正規分布に近づく。その一例を第7図および第8図に示す。

坪量変動を1つの時系列としてとらえた場合、この時系列は定常過程と考えられるから、坪量分布が正規分布の場合には、正規定常過程とみなされる。一般に正規定常過程は、変動の平

第3表 β 線法による坪量の実測例

絶乾重量(g/m ²)	実測値(g/m ²)	誤差(%)
60.8	58.7	3.45
58.3	60.0	2.91
59.1	58.0	1.86
58.7	57.9	1.36
59.0	58.1	1.52

均值、標準偏差ならびに正規化された自己相関関数を示すことにより一意に決定される。したがって坪量変動を表示するには、平均値、地合度(標準偏差/平均値)⁽⁷⁾ならびに正規化された自己相関関数 $\rho(\tau)$ (あるいは、 $\rho(\tau)$ のフーリエ変換であるスペクトル密度)を示せばよいことになる⁽⁸⁾。この場合、変動の大きさを表わすのは地合度であり、周波数分析に相当するのがスペクトル密度である。

第7図 β 線による坪量分布の実測例(I) 第8図 β 線による坪量分布の実測例(II)

第9図 自己相関関数の分類

$$\rho(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T \{x(t) - m\} \{x(t+\tau) - m\} dt / \rho(0)^2$$

$x(t)$: 定常時系列, m : 平均値

坪量分布が正規分布以外の非対称分布をなす場合,
その自己相関関係 $\rho(\tau)$ は

$$\rho(\tau) = \rho_1(\tau) + K \dots \dots \dots (4)$$

$$\rho_1(\tau) \rightarrow 0, (\tau \rightarrow \infty), K = \text{const.}$$

の形となる。第9図は、坪量分布が正規分布の場合と、それ以外の場合とについて、それぞれの自己相関関数を図示したものである。一般に、 $\rho(\tau)$ に対応してスペクトル密度 $S(\omega)$ が存在するのは、 $\rho(\tau) \rightarrow 0, (\tau \rightarrow \infty)$ の場合であり、(4)式で表わされる $\rho(\tau)$ に対しては、スペクトル密度は存在しない。したがって、(4)式で表わされる $\rho(\tau)$ に対しては、 $\rho_1(\tau)$ のスペクトル

密度を求めなければならない。

5. 適用例

第10図は、PFI ミルを用いて10%濃度で叩解した場合の叩解度と地合の関係を示したものである。この図からわかるように、叩解度をあげるにより、未叩解のものより坪量変動ははげしくなる。変動部分の多くがブロックサイズ 0.5 mm 以下のため、光学的方法による地合測定では検出できない現象である。また、この現象は、叩解現象解明への大きな手掛りとなるものであり、この意味からも、同図は β 線プラスチック

シート法の有用性を実証した一例といえることができる。

このほか、絶縁紙の地合測定にこの方法を適用し、油浸紙（クラフト紙）における油中コロナ開始電圧算出の基礎とした⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。

第10図 β 線による坪量変動の実測例
未晒クラフトパルプ、80メッシュ手抄シート

6. む す び

β 線プラスチックシート法による新たな地合測定法

について、測定誤差、地合の数量化ならびに適用法の諸点から検討を加えた結果、つぎのような結論を得た。

1. β 線の照射時間のばらつきを ± 0.3 min 以内、現像液の液温 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ で現像時間を 5 ± 0.05 min とし、 β 線照射後直ちに現像を開始すれば、測定誤差4～5パーセント以下で地合を測定することができる。
2. 坪量分布が正規分布以外の場合、地合の数量化にあたっては、自己相関関数から直流分を差し引いて、スペクトル密度を求める必要がある。
3. β 線プラスチックシート法は絶縁紙破壊機構、(電氣的)の究明、叩解の地合に与える影響等微細な坪量変動を問題とする基礎研究に適している。

文 献

- (1) 土田・半田・門屋・村田：紙パ技協誌 21, 6, 343 (1967)
- (2) V. Balodio 他：パ訳文特集 31号 490 (1968)
- (3) P. A. Tydeman: The Paper Maker 42 (June 1967)
- (4) 伊藤岳郎編：アイソトープ測定技術 地人書店 (昭37)
- (5) 同上
- (6) 加藤孝治：菱光技報 7, 77, 6 (昭45)
- (7) 文献(1)に同じ
- (8) 河田敬義：確率論 pp. 330—331 共立出版 (昭27)
- (9) 村田・中谷：昭和45年電気四学会東海支部連合大会 p. 66
- (10) 村田・中谷：同上 p. 301
- (11) 村田・中谷：同上 p. 302

(原稿受付 昭46. 7. 31)