定量分析による紙の均一性評価に関する 米国の新技術

サンライズ貿易㈱ 高田 容治

A Practical Formation Tester Based on Mass Variations

Yoshiharu Takada

Sunrise Trading Co., Ltd.

1. はじめに

紙の品質検査の最も一般的な試験方法は、光の透過を利用し視覚判断により良否を判別、あるいは更に5段階程度の等級の各々の標準紙を選択し、比較検査により大まかな等級分けをするというものである。人間の視覚判断に頼る結果、当然生じ得る個人誤差、環境誤差を改善するために、これに代用できる信頼性の高い装置の開発が急がされている。ここでは現在アメリカにおいて、すでに試作段階を終り実用化されているユニークな方法を紹介するが、その前にまず基本となる紙の組成原理について述べる。

2. 紙組成の定義

紙組成を定量的に定義する最初の研究は、1960年に Kallmes & Corte によって行われた。その研究発表によると、最も均一性の高い紙は、その総面積に渡って繊維 (Fiber) の分布がランダムであるという見解が示された。続いて60年中期に Dodson & Corte が、ランダムな紙の基礎重量 (Basis Weight) に関する数式を発表した。これは紙の一定面積のマス (あるいは基礎重量) の分布によって組成を定義づけるという最も論理的な出発点と言える。紙の外観、不透明度、有孔といった幾つかの特性が他のパラメータ (例えば濃度変化) に作用するが最終的にはすべての特性は紙の繊維分布状態に関連づけできる。マスの分布によって定義を行うにはまず差異の生じるエリアのサイズを定義づけることが必要となる。これは理論、実用の両面から要求される条件である。例えば $1/2'' \sim 1''$ といった比較的大きな面積にわたって差異を判断することは、サンプル上の条線や大きな毛くずが紙の外観を左右するという点から重要視される。紙が不均等にコーティ

Fig. 1 Lightweight, Randomly Formed Sheet

ングされたりサチュレートされ得るという点を考えると、mm単位の範囲での差異に焦点を合わせることもまた重要となる。更には印刷業界に及んでは、印字のサイズから考えて数 μm の範囲内の差異判別に関心が示されることも多い。Dodson & Corteの発表では、紙を単繊維の長さよりも十分に大きなエリアに分割した場合、個々のエリアでの基礎重量の分布を次の数式に示した。

$$\text{Var} (BW) = \frac{\lambda W}{l^2} \times (BW)$$

λ は繊維の長さ、 l は正方形に分割した紙の一辺の長さ、 W は繊維の長さ当りの質量 (g/cm), そして BW は紙の平均基礎重量である。ここで再確認されるべきことは Fig. 1 のようにランダムな紙に関してのみ考えられているということである。

ここで対象エリアを繊維の長さとはほぼ同じところまで縮めると、多くの繊維が各所でオーバーラップすることによりエリア対エリアの差異は著しく減少する。これを先の数式とあてはめて考えると次のようになる。

$$\text{Var}(BW) = \frac{\lambda W}{l^2} \times (\overline{BW}) \times K$$

この場合、 K は l の変化を補正するために与えられる数値である (Fig. 2 参照)。 l に関連して λ が減少すると K は急速に減少する。

その後 Corte はこの理論を証明する実験方法を開発し、理想的なランダム紙と 25 枚の実用紙との均一性の評価にそれを応用した。これらの紙の重量は 16~260 g.s.m であった。繊維を完全にランダムに配置するために約 15 ft の高さの漉桁によって事実上、無限希釈を保ちつつワイヤー上にファイバーを分布させた。次にこれらの紙のベータ放射線写真と、これらの複写写真が作成された。これらの放射線写真は、各用紙の真の質量変動を示した。更にこれらはジョイス・ローベルのマイクロ濃度計によって 1 mm^2 ペースで走査され、その出力は約 20 ウェイトレベルに分割された。各用紙について 2,500 のデータ点がとられ、コンピュータにより統計がとられた。この研究は幾つかの非常に興味深い結果を示した。まず手漉きで作成された紙の基礎重量の測定変動は、計算値と非常に良く合致し、理論の証明に役立った。しかしながら、機械によって漉かれた紙の基礎重量の変動は手漉き紙の変動よりはるかに大きかった。この割合は 1.33 から 13.45 に及び平均値は 4.37 となった。すなわち市販紙の 1 mm^2 内の基礎重量変化の 25~92.5% (平均 77%) は、むしろヘッドボックスやワイヤー等の機械的要因による過度の不均一性によるものであった。この方法は紙組成を厳密に監視する手段の基準を与えたものと評価できる。しかし残念ながら、この方法は品質管理部で日常的に使用するには、あまりに複雑、高価かつ時間がかかりすぎるといふ点がある (1 サンプルに約 3 時間を要する)。

3. マイクロ濃度計によるアプローチ

Corte がベータ放射線方式を用いて行った測定と同等の結果を、光を使用したマイクロ濃度計によって得ようという活動は 1970 年に開始された。最初に当目的用に選択された装置はフォトメトリックス社の EDP (Equivalent Density Pattern) 走査顕微鏡と呼ばれる物で、当時月面写真の解析を行うために NASA の技術を導入して完成された。この装置は、1 in 直径までのサンプルを 15~20 in 直径のコリメートされた

Fig. 2 Correction Factor K as a Function of L/l

光線によって走査する機能を持っていたが、特にサンプル走査にちょうどレコード盤動作のような回転方式を採用した点とファクシミリ放電記録紙に先端 25μ 径のタングステンペンを使用し、超微小点で濃度に比例した濃淡をトレースする方式を採用した点がユニークであった。光源からの光路線上のみで透過された光をコレクトし、繊維によって光路をはずれた光は測定されない仕組みになっていた。次にフォトマル信号は電子的に 16 段階の濃度等級に分割され、ターンテーブル上の記録紙上に等濃度輪郭線パターンとして放電記録された。

この装置を使用した他の具体的な理由は次の通りであった。

① 200 mmφ のファクシミリ記録紙に 300 万点のデータポイントで連続トーン画像並びに等濃度輪郭線を作成する機能をもち、且つこの所要時間はわずか 10 分間である。

② 2~200 $\mu\phi$ までの 8 段階の口径でサンプルを走査でき、光学系は固定されているためポジション精度が高くかつ再現性の高い永久保存のパターンが作成できる。

③ 濃度測定範囲が $0 \sim 4 D$ と広く、最低レベルは $0.02 D$ まで測定可能である。

④ NBS に準じた感度と絶対キャリブレーションの精度を有し、またサンプルのすべての点の位置について全く歪曲なくパターン作成できる。

以上のような理由から選択されたこの装置が、果たしてベータ光線と同じように紙を読取るかどうか、すなわちベータ放射線写真でとったと同じようなレベルで輪郭線図を作成できるかどうかを判断するための実験がまず行われた。この実験は #42 のサックペーパーとその放射線写真に対し、同じ紙を EDP 走査顕微鏡

写真 1

によって測定したパターンを比較するという単純且つ明快な方法で行われた。その結果、紙の光学特性と放射線写真には基本的には大きな差があるにもかかわらず、比較した2種のパターンは細部に渡ってほとんど完全に一致した。確認のために更に数10回の実験を行った結果、この装置は平らな紙の真の質量分布状態を測定すると断言するに至った。もちろん、例えば、すかし模様のように人工的に光学的濃度変化要素が加えられた場合、厳密には正確ではないが、結果は極めて有用であった。しかしながら、以上の結果得られた情報は定量的な値を示すものではなく、従ってその価値は限定されていた。

4. マイクロ濃度計による定量分析

1976年初期に、前述のEDP走査顕微鏡は新型のステージと出力機構をつけて改良された。この装置はQ (Quantification) ステージシステムと呼ばれる。このQステージ・システムは高速フォトメーターとも呼べるが、組成の均一性を高感度で測定する能力を備えている。すなわち、70 mmφのサンプルを90秒で全面走査し、100,000点の濃度あるいは基礎重量を測定し、その分布をプロットする。偏差 (variance)、非対称性 (skewness) 等のファクターに関する統計学的

写真 2

なデータは、ヒューレットパッカード 9815 A 計算機を連結して行うことができる。このシステムは主に4つの構成部品から成り立っているが、それぞれの機能を説明する。

4.1 スキャナー (写真1参照)

当システムのスキャナーは三眼鏡筒式顕微鏡 (ほとんどのメーカーの顕微鏡でもかまわない) の載物台の代りにとりつけられるQステージを意味する。当ステージ上に設置されたサンプルは、ステージが回転とリニア移動を同時に行うことによって全面を走査され、その面積は70 mmφである。ステージは主に3つの部分から成り立つ。まず小さなサブステージが2枚のガラス板にサンドイッチされたサンプルを100 rpmで回転させる。このサブステージをサポートしているメインステージが、90秒の走査時間内にサンプルをゆっくりリニア移動させる。両方のステージともユニバーサルマウントによって顕微鏡に取り付けられている。当システムに要求される照明及び光学系は顕微鏡自身によって供給される。次に照明されたサンプルのイメージはアパチャーを経由してフォトチューブから光学ファイバーによってシステムコントローラー内のフォトマルにリレーされる。通常使用される走査アパチャーはサンプル面で1~2mmである。顕微鏡のField Diaphragmを絞ることによってフレアや散乱光は最小限度におさえられ、照明されるエリアと最終的な走査アパチャーとのサイズは同一となる。対物レンズは通常1.2×程度の低倍率の物が使用され、この種のレンズの絞りは種々のサンプルの基礎重量に対して十分な調整機能を有する。照明には長期間の安定性を考慮すると50~100 Wのタングステンハロゲンランプを使用するのが望ましい。

4.2 システムコントローラー (写真2参照)

このコンパクトなユニットは9枚のPCボードと3

写真 3

個のパワーサプライを内蔵し、システム動作に必要なすべての電子系を備えている。このユニットが行う主な機能は次の通りである。不透明度 (opacity) を光学濃度に変換する。90 秒の走査によってサンプル全体に均一に 100,000 点のプロットを行い、その濃度値を読み取る。これらの点をあらかじめ定めた、64 段階までの濃度レベルに分解する。各々のレベルに分解された点のすべてをメモリーに記憶させる。最終的にこれらのデータを輪郭線プロッターに作画、又はヒストグラム・プロッターかプログラム方式の計算機に記録させる。実際の操作に要求されるのは、濃度レベルの段階数をボタンによって設定することと、対物レンズの絞り又はランプ電圧の調整をして大体のベースレベルをセットする作業だけで、あとはスタートボタンを押すことによって自動的に作画又はヒストグラムの作成が開始される。

4.3 輪郭線プロッター (写真 3 参照)

前述の EDP 走査顕微鏡と同じく、この輪郭線プロッターは、コントローラーによってレベル分割されたサンプル上の濃度分布の状態をそのまま 200 mmφ のファクシミリ記録紙にタングステンペンによって放電記録する装置である。この場合 1 枚の記録を作成するのに要する時間は 5 分間である。

4.4 ヒストグラム・プロッター (写真 4 参照)

これは通常のチャートレコーダーで、横軸に 64 段階までの分割された濃度レベル、縦軸にそれぞれのレベルの全体エリアに対する % エリアをとる。絶対濃度のプロット又は紙の基礎重量のプロットを行うためのキャリブレーション機能も有する。縦軸のフルスケールは通常 25% に設定される。

以上の説明で理解頂いたように当システムは幾つかのユニークな特長を備えているが、それでは実際にこのシステムを使用した結果はどうなったかを次に述べ

写真 4

Fig. 3 Sack Paper & Beta-Radiograph

る。最初の実験は以前に EDP 走査顕微鏡で行ったと同様に #42 のサックペーパーとそのベータ放射線写真に対して行われた。その結果が Fig. 3 である。

その結果、以前と同様に当システムは予期していた通りベータ放射線写真と同等のマナーで紙を読み取っていることが判明した。次にバキュームクリーナー用紙と前述の Corte の方法で作成された手漉紙との比較を輪郭線プロットとヒストグラムプロット両方によって行った。その結果が Fig. 4 である。手漉紙の基礎重量は 10 段階に、市販紙の基礎重量は 27 段階に分割された。これら 2 本の曲線のそれぞれのピークは高さ 50 及び 16 単位であった。従ってヒストグラムの高さ対幅の割合を基礎にする組成指数は 5.0 及び 0.32 をそれぞれ示し、15.6 の比率となった (各ヒストグラムを作成するに要する合計所要時間は約 3 分間であった)。この結果は非常に興味深いものではあるが、現

Fig. 4 Ideal Handsheet and Vacuum Cleaner Paper

Fig. 5 Cigarette Paper

実問題としてこれほどはっきり差のあるサンプルの差異判別にはあえて機械に頼る必要もない。

従って当装置の機能を最大限に認識するには、より高品質の紙の微小な差異判別を行ってみる必要がある。そのためにオリン社から提供された数種の煙草用紙に対する実験が行われた。このサンプルを選択した理由は、第一に多くの経験から等級づけされたサンプルが入手可能であったこと、第二にはこれらの煙草用紙は圧縮によって作成された高い密度をもつ非常に間隔のせまい組織を有しているからである。従ってこの用紙を実験対象として使用することによって当装置が5種の等級に表われる微小な差異要素を明確に判別できるかどうかを認識することができた。その結果が Fig. 5 及び Fig. 6 である。

これで分かるように各々のサンプルのヒストグラムプロットは視覚判断で判別されたと全く同様、且つより正確にそれぞれの1～5の等級を区別してくれた。ここでヒストグラムの高さ対幅の指数を計算してみると、5段階の紙に対する値は次のようになった。

視 覚 観 察	1	2	3	4	5
ヒストグラム	8.0	7.3	5.5	4.3	2.3

この結果と更に他のサンプルによる実験の結果、Q ステージシステムは定量的に組成を試験する装置として十分な機能を有しているとの結論に達した。さらに当装置の操作の簡単さと、所要時間を考えると品質管理の目的で日常的に利用するにも十分なことも明らか

Fig. 6 Histograms of Cigarette Paper

である。

5. む す び

特定の紙に対して当システムを使用する場合の走査アパチャーと濃度設定は現在のところ経験に頼るしかない。きめの粗い紙の場合はこれらの設定はそれほど厳密ではなく、通常2mmのスポットを使用すれば、

良い結果が得られる。これに対し良質の紙の場合は、アパチャーのサイズはより重要な意味をもってくる。アパチャーのサイズが大きくなると識別範囲が広がるが、硬調なマイクロストラクチャーが大きなサンプリングスポットによって総和されるので、濃度の分解能も高くなる。上質紙のほとんどは、0.005の濃度単位、あるいは透過1%以下を要求する。

概して言えることは、上質の紙は特性として左右均整のとれたヒストグラムを示し、濃度の分布状態は均一であるのに対し、質の低い紙は一般的に低濃度側に傾いた左右不均一のヒストグラムを示す。このことは、特に厚みの薄い部分やピンホールが正常な厚みのある部分よりも多いということを意味する。場合によってはピンホールの数が多いために、ヒストグラム上で非

常に低濃度（左端）な側にもう一つのピークを示すことも多い。最後に当システムは、紙というアプリケーションのみならず、印刷業界における印字又は印字を行うための金属活字そのものの不均一性や特性を解析する能力も有し、特にこの分野では長年に渡る実績をもっていることも述べておきたい。

参 考 文 献

- 1) O. Kallmes & H. Corte : Tappi, **43**, (1960) 737
- 2) H. Corte & K. Dodson : Das Papier, **23**, (1969) 381
- 3) H. Corte : Das Papier, **24**, (1970) 261
- 4) O. Kallmes : Paper Trade Journal, (1971) 154
- 5) C. Miller & O. Kallmes (1976)

当協会員日本化学会より「化学技術賞」受賞

受賞者 角 祐一郎氏 山陽国策パルプ（株）東京研究所主席研究員
農学博士

永田 誠氏 同社 主任研究員

岩見田 紘氏 同社 主任研究員

加藤善三郎氏 同社 技術本部主席調査役

中野 準三氏 東京大学教授（農学部）・農学博士
当協会理事

「業績」 高収率パルプ製造の研究と開発

上記は繊維を損傷せずにチップを解繊して、結束繊維を含まない強度及び白度の優れた高歩留りパルプの研究開発を行ったもので、工業的製造にも成功し、我が国の紙パルプ工業の発展に寄与した功績は多大であると認められ、4月2日慶応義塾大学日吉校舎において日本化学会より化学技術賞を受賞されました。