紙の地合について

宇都宮大学工学部 村 田 正 男

Paper Formation

Masao Murata

Utsunomiya University

1. は し が き

最近、再び、紙の地合問題が大きくとりあげられてきた背景として、次の二点があげられよう。現在、省資源及び公害規制の観点から、紙の軽量化すなわち、紙中の繊維分を減らす必要性に迫られている。紙中の繊維分を減らせば紙質は一般に低下する。他方、製品に対する要求は厳しく多岐にわたっており、それらの諸要求に応じて紙質の向上を図らねばならないのが現状である。従って、紙質の低下を招かずに抄紙原料の低減を図るためには、製紙に関する基礎研究、特に、地合の紙質に与える影響を明確化し、地合改良の基本対策を確立することが急務の課題とされている。

紙の地合とは、紙中で絡み合った繊維の分布状態を表わす総称であるが、同用語は業界内での慣習語に過ぎず、地合に関する規定は現在のところ何もない。地合の良否によって紙質が大きく左右されることは経験上よく知られた事実であるが、地合の良否は、現在でも、紙に光を当てて透かして見たときに肉眼で観察される繊維の分布状態に基づいて経験的に判定される場合が多い。従って、地合の紙質に与える影響の度合を定量的には握しようとするれば、まず紙の地合を紙中の物理量で定量化し、その上で紙質を左右する諸要因と地合との関係は何らかの手法に従って定量化しなければならぬ。

紙に対して要求される特性は、用途に応じてそれぞれ異なるため、地合の紙質に与える影響についても、使用目的に応じてそれぞれ系統だてて究明されねばならないことは言うまでもないが、それには膨大な時間と労力を必要とする。そこで、本文では、地合の数量化について概説するとともに、地合変動のパターン化について言及した。更に、地合の紙質に与える影響を系統的に究明する際の基礎手段として、地合をパター

ン化することの有用性を強調し、実証例を二、三紹介した。

2. 地 合 測 定

2.1 地合検出法の検討

視覚による地合判別の慣習にならい、光透過率と最も相関の高い紙中の物質質量で地合変動を数量化することとし、紙中の繊維分布を微小部分の坪量変動に置き換えて数量化することの妥当性を実証した¹⁾。紙中の坪量変動を精度よく検出するためには、光よりもむしろ β 線の方が優れている²⁾。 β 線源を用いて紙中の坪量変動を微小部分($25 \times 25 \mu\text{m} \sim 100 \times 100 \mu\text{m}$)まで検出できる検出方法は、現在のところ β 線プラスチックシート法に限られる。

β 線プラスチックシート法では、X線フィルムを現像し、その光学濃度変動から坪量変動を検出しているため、測定時に誤差が生じやすい。測定精度を左右する要因を究明し、要因除去の対策を検討した結果、測定精度は向上し、測定誤差は5%以下になることを確認した²⁾。

2.2 地合の数量化

坪量変動を一種の不規則信号とみなせば、各測定試料で検出される坪量変動はそれぞれエルゴード性不規則信号とみなされる。従って、紙中における繊維分布の状態を縦方向及び横方向に関して統計的には握するには、縦方向及び横方向の坪量変動について、それぞれのパワースペクトル密度を測定すればよい³⁾。

パワースペクトル密度の推定法としては、自己相関関数法による場合のほか、高速フーリエ変換法が一般によく用いられている⁴⁾。高速フーリエ変換法では、自己相関関数法に比べて計算時間が大幅に短縮される利点がある反面、適用範囲がかなりせばめられるところに難がある⁵⁾。

β 線プラスチックシート法での問題点は、検出される坪量変動の長さが、 β 線プラスチックシートの大きさに大きく左右されることである。解析すべきデータの長さが限定されると、パワースペクトル密度の推定に伴って生ずる推定誤差も、見過ごせないほど大きな場合が少なくない。従って β 線プラスチックシート法によって検出された坪量変動に対して、そのパワースペクトル密度を推定する場合には推定誤差の検討が必要であり、自己相関関数法による場合と高速フーリエ変換法による場合とに分けてそれぞれ検討されねばならない。

自己相関関数法による場合の測定条件として、その一例を示すと次のようになる⁶⁾。

(1) 測定条件

走査線の本数：10本（120mm）

τ_m ：50mm

サンプリング間隔：0.1mm

検出スポット：100×100 μ m

ウインドウ $D(\tau)$ ：ハミング

(2) パワースペクトル密度の推定限界

繊維フロックの波長：0.2mm以上～12mm以下
高速フーリエ変換法で得られるスペクトルは、あくまで線スペクトルであり、パワースペクトル密度は連続スペクトルであるところに対応のむずかしさがある。そこで、スペクトル解析の観点から両者の関係を明確化し、基礎実験を続けた。その結果、高速フーリエ変換法に従う場合、精度よく推定できる限界は、繊維フロックの波長で5mm以下と推察される⁷⁾。しかしながら、後述する地合のタイプ分けには、高速フーリエ変換法による場合でも、十分実用に供しうることを確認した⁸⁾。そこで、マイクロコンピュータを用いて高速フーリエ変換法に基づく地合判別器を試作した⁹⁾。

2.3 地合変動のパターン化¹⁰⁾¹¹⁾

紙中の地合変動要因を大別すると、繊維凝集に起因する場合と、微細繊維等繊維構成要素の一部脱落による場合の二つに分けられ、紙質に及ぼす地合の影響もそれぞれ大きく異なることが推察される。例えば、微細繊維が脱落すると、一般に、地合変動が増大するうえ、繊維間の結合状態も大きく変るため、紙質に与える影響については、地合変動による影響のほか、繊維間結合等の諸要因による影響についても同時に検討されねばならない。これに対して、繊維凝集に起因する地合変動では、たとえ地合の変動パターンは違っても同一叩解パルプが使用される限り、紙中の単繊維強度、繊維間結合強度等の平均特性については、一般にはほとんど変わらないものとみなされる。

繊維凝集に起因して生じた地合変動を大別すると、Ⅰ形、Ⅱ形、Ⅲ形の三つのタイプに分けられる。Ⅰ形とⅡ形では、Ⅱ形の方が紙中における繊維フロックの大きさも、坪量の変動量もそれぞれ増大している。しかしながら、肉眼で見る限り両者の差異は判然とは認められない。これに対して、Ⅱ形とⅢ形を比べて注目されることは、肉眼では大きな差異が認められるのに対し、同じ坪量の試料について両者を対比すると、各試料の最低値はいずれもほとんど変わらないことである。

3. 紙の引張り破壊特性に関する研究

3.1 概 説

紙の引張強さを左右する要因として従来あげられてきた主たる要因は、単繊維強度、繊維間の結合強度等であるが、単繊維強度と紙の強度を比べたとき、一般に単繊維強度の方が数倍も高いことに注目すれば、紙中の繊維分布を改良することによって、シートの引張り破壊特性を一段と高めることも十分可能なように思われる。定速引張り試験時の応力-ひずみ曲線について、引張強さ及び伸びの増大をはかるには、局部的な応力集中を緩和することが先決と考えられる。そこで、本研究では、定速引張り試験時の応力が紙中のいかなる部分に集中しやすいかを明らかにするため、応力が集中しやすい弱点部の繊維構成を微視的及び巨視的見地から明確化するとともに、弱点部除去の対策を検討した。

3.2 引張り破壊過程の微視的観察¹²⁾¹³⁾

近年、紙の引張り破壊についても、走査電子顕微鏡下の引張り装置を用いて、破壊に至るまでの過程を微視的に観察できるようになってきた。そのため、従来想像の域をでなかった紙の引張り破壊に関する諸現象が観察可能となり、現象解明の糸口として新たに得られた知見も少なくない。しかしながら、この引張り装置では、試料に荷重される応力の検出が全くできないため、破断の終了すら判定できず、折角破壊に至るまでの過程を微視的に観察しても、その結果を破壊現象の解明に十分役立てるところまでには至らないのが現状である。そこで、走査電子顕微鏡下の観察と応力-ひずみ曲線を対比するため、専用の応力検出器を試作した。

故意に弱点部を設けた試料について、走査電子顕微鏡下の定速引張り試験を行い、応力-ひずみ曲線と対比した。実験結果によれば、応力-ひずみ曲線の立ち上り部分では、紙中の応力は比較的一様に分散しており、試料各部の変形は大差なく、いずれも同程度に変形されるとみなして差し支えない。次に、立ち上り区

間を過ぎ破壊に至るまでの区間で、応力は次第に弱点部に集中すると考えられるが、弱点部にクラックが入ると、その瞬間応力-ひずみ曲線は急激に下降する。従って、クラックが入った瞬間、試料は破壊すると考えて差し支えない。また、応力集中の範囲は、かなり局部的に限定されることが観察される。

3.3 引張り破壊に及ぼすパルプ叩解の影響¹²⁾¹⁹⁾

高濃度叩解紙と低濃度叩解紙（いずれも絶乾絶縁紙、NUKP 使用）の応力-ひずみ曲線を対比した結果によれば、伸びは前者の方が大きく、ヤング率及び断裂長は後者の方が大きい。

ヤング率は応力-ひずみ曲線の立ち上がりこう配で評価される。応力-ひずみ曲線の立ち上がり部分は、紙中における応力分布が比較的均一に分散している部分であり、従って、ヤング率に及ぼす紙の不均一性の影響はほとんど無視できよう。

さて、叩解程度のほぼ同じ低濃度叩解紙と高濃度叩解紙について、紙中の繊維間の結合状態を比較すると、両者の間にはかなり大きな差異が認められる¹³⁾。低濃度叩解では、繊維の外皮が塊状をなしてはく離されるため、低濃度叩解紙における繊維間結合は、互にはく離された部分が密着し合い、OH 結合することによって強固な結びつきになっている。これに対して、繊維間の摩擦を利用する高濃度叩解では、繊維表面が一面毛羽立ち状態になる割合が多く、それらが互に絡み合って高濃度叩解紙を形成している。従って、低濃度叩解紙のヤング率が高濃度叩解紙のヤング率に比べて高い値を示すのは、両者の繊維間結合を比べたとき、低濃度叩解紙の方が結合面積が広く、結合強度が強固なためと推察される。

次に、伸びを左右する要因を究明するため、低濃度叩解紙と高濃度叩解紙について、引張り破壊時の破断面を対比した。低濃度叩解紙では、破壊された箇所と破壊されない箇所が判然と区別でき、応力がある特定箇所に集中しやすいことが示唆されるのに対し、高濃度叩解では、繊維間結合が一様に破壊されている。換言すれば、低濃度叩解紙では、叩解が進むにつれ繊維は互に密着して板状となるが、板状部分相互の境界面には間隙が生じやすく、引張り破壊時の応力は板状部分相互の境界面に集中しやすい。これに対して、高濃度叩解紙では、破断面の繊維間結合が一様に破壊されており、この現象は弱点部に集中する応力が低濃度叩解紙に比べてはるかに広い範囲に分散されるためと推察される。高濃度叩解では、繊維の絡み合いが比較的均一であり、低濃度叩解紙ほどには密着部分と間隙部分の区別が判然としないことが、応力緩和を誘起する

最大の要因とみなされる。

以上の考察結果を総合すると、ヤング率及び伸びを大きく左右する要因として、ヤング率については繊維間結合の強さ（結合面積と結合強度）による影響を、伸びについては繊維間結合の均一性による影響を、それぞれあげることができよう。また、この観点に立って低濃度叩解紙に内在する板状部分相互の境界面間隙を取り除くとき、ヤング率は低濃度叩解紙のヤング率を保ちつつ、しかも同時に伸びについては高濃度叩解紙の伸びに十分近づけることも可能なように思われ、混合叩解紙の有用性が示唆される。

なお、混合叩解紙の有用性を実証する具体例については、論文 19) で二、三紹介した。

3.4 引張り破壊に及ぼす地合の影響¹⁴⁾

紙質（引張り破壊と伸び）に及ぼす地合の影響については、地合の悪化に伴って弱点部も増えるため、紙質の低下を招くことは自明であり、当然の結果と従来一般に考えられてきた。しかしながら、筆者らの実験によれば、地合の変動パターンのいかんによっては、地合の変動量が増大しても、必ずしも紙質の低下を招くとは限らないことを実証し、地合変動をパターン化することによって弱点部解明の手掛りとした¹¹⁾。

絶縁紙（NUKP を使用）を対象に、定速引張り試験時の応力集中について検討した結果、応力は試料縁端部の低坪量部分に集中しやすいことを確認した^{14・3)}。

さて、紙の引張り破壊に及ぼす地合の影響を究明するにあたっては、同一叩解パルプを使用し、繊維の凝集状態のみを異にするパルプ懸濁液から数種の地合変動パターンを作成することが、最も望ましい試料作成法と思われる。そこで、セツリングタイムのみを異にする手すき絶縁紙について、地合変動を測定し、定速引張り試験を行った。地合変動を大別すると、Ⅰ形、Ⅱ形、Ⅲ形の三つのタイプに分けられうることを確認した。また応力-ひずみ曲線において、立ち上がり部分の特性は、セツリングタイムに関係なく、ほぼ同一とみなされる。これは、この区間での応力-ひずみ曲線が試料の不均一性に影響されることなく試料における単繊維強度、繊維間結合強度等の平均特性にのみ大きく左右されるためと推察される。これに対して、この区間を過ぎると、応力-ひずみ曲線は次第に地合変動の影響を受け始める。この現象は、この区間を過ぎたあたりから、応力が紙中の特定部分に集中し始めるためと推察される。さて得られる応力-ひずみ曲線において注目されるのは、Ⅰ形とⅡ形では大きな差異が見出されるのに対し、Ⅱ形とⅢ形の間にはほとんど差異が認められないことである。他方、地合変動を対比

図 1 電気絶縁紙に関する地合改良の手順

すると、既に述べたように、I形とII形では、II形の方が紙中における繊維ブロックの大きさも、坪量の変動量もそれぞれ増大している。しかしながら、肉眼で見える限り両者の差異は判然とは認められない。これに対して、II形とIII形を比注目されることは、肉眼では大きな差異が認められるのに対し、同じ坪量の試料について両者を対比すると、各試料の最低値はいずれもほとんど変わらないことである。従って、定速引張り試験時の応力集中の度合は、紙中における平均坪量と最低坪量との偏差状態に大きく左右され、その偏差状態が変わらない限り、紙中の繊維ブロックの大きさにはほとんど影響されないことが、応力-ひずみ曲線から示唆される。

4. 絶縁紙の地合改良に関する研究 (図1)

電力ケーブルの起高圧化に伴い、新しい電気材料開発のための基礎研究及び各種の実用化試験が、現在盛んに行われている。超高電圧用として実用に供されている電力ケーブルは、いずれも OF タイプ (油浸タイプ) 又は POF タイプ (P: パイプ, OF: 油浸) であるため、これらのケーブルに使用される電気材料に対しては、(1)絶縁耐力が高く誘電特性が優れていること、(2)耐油性に優れ耐熱性が高いこと、(3)製造コストが低く価格面から考えても十分実用に供し得ること、等の諸特性が強く要求されている。

さて、誘電損にのみ着目すれば、油浸紙よりもはるかに優れた高分子絶縁材料はいくらも容易に見出されるが、それらの多くは耐油性、耐熱性の諸点で難点が多く、また、ケーブル絶縁材料として理想的と言われる Tenax (合成絶縁紙) では、コストが高すぎ、とても実用には供し得ない。上記の(1)項から(3)項に述べた諸点を総合すると、誘電損に多少難点があるものの油浸紙にかわる信頼性の高い絶縁材料を見出すことは現在のところ至難であり、電気絶縁材料としての油浸紙は、性能、経済性の諸点から、ますますその重要性を増してきた。

油浸紙に関しては、従来、送電電圧が昇圧されるたびに誘電特性の改善と電氣的及び機械的特性を高めるための研究が、主としてパルプ改良の観点から数多く行われてきた。電力ケーブルの許容温度上昇に占める油浸紙誘電損の影響は、ケーブルの超高電圧化に伴い急激に上昇する。例えば、275 kV ケーブルでは、許容温度上昇の 60% 以上を油浸紙誘電損により占められている。そのため、超高電圧電力ケーブルでは、油浸紙の誘電損を特に低減させる必要から、紙中の繊維分を減らす傾向にあるが、紙中の繊維分を減らせば、油浸紙の電氣的及び機械的破壊特性は一般に低下する。従って、油浸紙において、誘電損の低減を図り、しかも同時に、電氣的及び機械的破壊特性を高めようとするれば、絶縁紙の抄造にあたって高度の技術が要求され

る。低密度高気密度の脱イオン水洗紙の開発はその一例である。

絶縁紙の抄造にあたっては、現在でも抄紙技術者の勘と経験にたよる部分が多く、高度に熟練した技術と長い経験とが強く要求されている。しかしながら、絶縁紙に対する二つの相反する要求を満たすためには、すなわち、(1)紙中の繊維分を減らし、(2)油浸紙の電氣的及び機械的破壊特性の向上を図るためには、技術者の勘に加えて、絶縁紙改良のための系統だてた研究こそが必要であり、油浸紙の破壊特性を左右する絶縁紙弱点部の繊維構成を明らかにし、弱点部除去の対策を系統だてて究明することが急務と思われる。

以上が本研究を始めた背景であるが、絶縁紙の地合変動をパターン化して、油浸紙のインパルス絶縁破壊及び交流短時間絶縁破壊に及ぼす絶縁紙不均一性の影響を究明することにより、油浸紙の破壊特性を大きく左右する絶縁紙弱点部の繊維構成を解明し、合わせて絶縁紙改良の基礎を得んとするのが本研究の主たる目的である。

本研究の概要をフローチャートで示すと図1のようである。

参考文献

- 1) 土田, 半田, 門屋, 村田: 紙のワイヤマークおよび地合の測定と検討 (第2報). 紙パ技協誌, **21** (昭和42年1月).
- 2) (2.1) 村田, 中田: 紙の地合測定について. 第28回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和46年6月).
- (2.2) 村田, 中田: 絶縁紙の地合測定について. 昭和45年電気四学会東海支部連大 (昭和45年).
- (2.3) 村田, 中田, 遠藤: 紙の地合測定について (第1報). 紙パ技協誌, **26** (昭和47年1月).
- (2.4) 村田, 中田: 紙の地合測定について (第2報). 紙パ技協誌, **26** (昭和47年2月).
- 3) 茅, 佐藤, 宮川: 不規則信号論と動特性推定. コロナ社 (昭和48年).
- 4) E. Oran Brigham: The Fast Fourier Transform, Prentice-Hall, Inc., 1974.
- 5) 同上, p. 140-146.
- 6) 村田, 中田, 斉藤, 土田, 横山: 電気絶縁紙の地合測定. 電気学会論文誌A, **98** (昭和53年1月).
- 7) 村田, 他: 電気学会論文誌投稿予定.
- 8) 中田, 村田, 斉藤: マイクロコンピュータを用いた地合判別器の試作. 第41回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和52年11月).
- 9) (9.1) 7) に同じ.
- (9.2) 8) に同じ.
- 10) 村田, 中田: 紙の地合と物性. 第2回パルプ紙シンポジウム (木材学会) (昭和50年11月).
- 11) 村田, 中田, 遠藤, 大場, 土田, 稲留: パルプの叩解に関する研究 (第5報). 第34回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和49年6月).
- 12) (12.1) 村田, 中田, 門屋: 引張力をうける応力集中について. 第18回材料研究連合講演会 (昭和49年9月).
- (12.2) 村田, 中田, 遠藤: パルプ叩解に関する研究 (第3報). 第31回研究発表会 (紙パルプ技術協会).
- (12.3) 中田, 遠藤, 村田: パルプ叩解に関する研究 (第4報). 第33回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和48年11月).
- (12.4) 中田, 村田: 叩解方法と物性. 第3回パルプ紙シンポジウム (木材学会) (昭和51年4月).
- 13) 村田, 中田, 遠藤: パルプの叩解に関する研究. 紙パ技協誌, **26** (昭和47年).
- 14) (14.1) 村田: 紙の引張り破壊について. 第35回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和49年11月).
- (14.2) 村田, 中田: 絶縁紙の機械的強度におよぼす地合の影響 (第1報).
- (14.3) 村田, 中田, 栗原, 横松: 同上 (第2報).
- (14.4) 村田, 中田, 栗原, 横松: 同上 (第3報).
- (14.2~(14.4) 昭和48年電気四学会全大 (昭和48年).
- 15) (15.1) 村田, 斉藤: パワースペクトル密度による地合判別と抄紙条件. 第38回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和51年6月).
- (15.2) M. Murata, K. Nakata and A. Yokoyama: "Quantitative Estimation of Paper Formation and Its Effect on Oil-Impregnated Paper" in 1975 Annual Report Conference Electrical Insulation and Dielectric Phenomena Nat. Acad. Sci, Washington, D. C., 1978, p. 449-456.
- (15.3) 電気学会論文誌A, **98** (6) に同じ.
- 16) (16.1) M. Murata: "Paper Making Conditions and Breakdown in Oil-Impregnated Paper" in 1974 Annual Report Conference Electrical Insulation and Dielectric Phenomena Nat. Acad. Sci., Washington, D. C., 1975, p. 507-514.

- (16.2) 村田, 他: 電気学会論文誌投稿予定.
- 17) (17.1) 村田, 中谷: 積層油浸紙としての絶縁紙に対する地合度の許容限界.
 (17.2) 村田, 中谷: 交流短時間破壊試験における油浸紙の油中コロナ開始電圧の測定.
 (17.3) 村田, 中谷: 油浸紙における油中コロナ開始電圧の算出について.
 (17.1)~(17.3) 昭和 45 年電気四学会東海支部連大 (昭和 45 年).
 (17.4) 村田, 中谷, 中田: 絶縁紙地合の数量化ならびに油浸紙の絶縁破壊と地合. 電気学会論文誌, **92-A** (昭和 47 年 5 月).
- 18) 村田, 中田: 電気絶縁紙の油中部分放電開始電圧に及ぼすパルプ叩解の効果. 電気学会論文誌, **95-A** (昭和 50 年 1 月).
- 19) M. Murata and K. Nakata: "Influence of the Fines of the Dielectric and Tensile Breakdown of Oil-Impregnated Paper", IEEE Transactions on Electrical Insulation EI-12, p. 90-96, 1977. This paper was reported at the 1976 IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Montreal, Canada.
- 20) (20.1) 村田, 斉藤, 中田: 地合制御の基礎的考察. 第 41 回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和 52 年 11 月).
 (20.2) M. Murata, M. Saitoh and K. Nakata: "Influence of Insulating Paper Formation on the Dielectric and Tensile Breakdown of Oil-Impregnated Paper" at 1978 IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Philadelphia, Pa., June 1978, B-6.
- 21) (21.1) 村田, 石黒, 横山: 長網抄紙機における坪量変動の要因分析(1). 紙パ技協誌, **29** (昭和 50 年 1 月).
 (21.2) 村田, 石黒, 横山: 長網抄紙機における坪量変動の要因分析(2). 紙パ技協誌, **29** (昭和 50 年 1 月).
 (21.3) 斉藤, 村田: 長網抄紙システムのデジタルシミュレーション. 第 38 回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和 51 年 6 月).
 (21.4) 斉藤, 村田: 長網抄紙機の坪量制御について. 第 41 回研究発表会 (紙パルプ技術協会) (昭和 52 年 11 月).
 (21.5) M. Murata and M. Saitoh: "Modeling of Fourdrinier Paper Making Machines and Basis Weight Control", IEEE Transactions on Automatic Control 投稿中 (再提出).

訂 正

紙パ技協誌 昭和 54 年 3 月号 会告 03 ページの「紙パルプ技術協会新年理事会記念撮影」の下欄の氏名説明を下記の通り訂正します。

後列左より 鳥海, 藤井(三宅代), 大野, 松崎, 大国, 伊藤(方), 八木(小柏代), 三宮, 早房
 (渡辺博代), 森, 椎橋
 中列左より 伊藤(恒), 柳沢, 高橋, 渋谷, 川合, 赤間, 伊東, 浜, 中野, 永野, 高島, 平松
 (大西常一代), 山北
 前列左より 片倉, 関(博), 片山, 井戸川, 太田, 高松, 川口, 小林, 山内, 堀, 大西(光),
 右田, 福田