紙の伸縮安定性に及ぼす繊維形態の影響

山陽国策パルプ(株) 木島常明, 山川 功

Effect of Fiber Morphology on Dimensional Stability of Paper

Tsuneaki Kijima and Isao Yamakawa

Tokyo Research Laboratory, Sanyo-Kokusaku Pulp Co., Ltd.

Dimensional stability of papers made from several kinds of hardwood bleached sulfate pulps has been studied. These hardwoods are composed of various morphology of fibers. The densities of these hardwood are varied from 0.35 to 0.70 and dimension of fibers are 7.5 to 20 microns in diameter of lumen, 14 to 25 microns in width and 0.85 to 1.25 mm in length.

Pulps were prepared as follows. The chips of each species were put into a separated basket and were cooked together in a digester simultaneously. Unbleached pulps thus obtained were bleached respectively. Handsheets were made from pulps varying the degree of beating, and dimensional stability of the handsheets was measured. The results obtained are summarized as follows:

- 1) Density of wood was more related to diameter of lumen than to width of cell wall.
- 2) Shrinkage of the sheets during drying was different among the wood species and was related to flexibility and length of the fiber, respectively.
- 3) Moist- and wet-expansivity of the sheets was related poorly to density and light scattering coefficient, and was mostly affected by flexibility of the fiber in early stage of beating, however as beating was exceeded, it appeared to be more affected by length of the fiber. It was correlated to $L^3 \cdot W$, where L means length of the fiber and W means width of the cell wall.
- 4) Relation between strength or porosity of the sheets and expansivity differed very much depending on the wood species, but the paper prepared from the fiber which showed large figure of L^2/D (where L means length, D means width of fiber respectively) was rather stable in expansivity at the freeness where the same strength was obtained.

1. 緒言

一般市販の針葉樹パルプ、広葉樹パルプを用いた、シート乾燥時の収縮挙動、紙の伸縮安定性に及ぼす

解の影響などについてはすでに述べた通りである¹⁻³⁾。広葉樹材と同様に針葉樹材も樹種は多いが、パルプ原木として用いられるものは限られており、しかも、シート特性に影響する繊維形態の差異という観点からす

Table 1 Cooking and bleaching data of hardwoods

Wood species	Unbleached pulp				Bleached Pulp		
	Yield		Lignin (%)	Brightness (%)	Yield (%)	Brightness (%)	C. S. F (ml)
	Screened (%)	Total (%)					
Linden	55.9	56.2	3.1	29.9	54.3	74.6	550
Poplar	54.6	55.3	3.3	30.4	53.1	74.8	565
Alder	53.1	54.0	3.2	32.6	51.2	75.9	575
Willow	52.6	53.5	3.0	35.0	50.2	77.9	515
Birch	52.8	53.5	3.6	32.2	51.3	75.3	595
Maple	51.3	52.8	3.7	33.7	49.1	79.2	505
Elm	48.4	49.2	3.9	33.0	46.3	77.5	585
Oak	47.5	48.9	3.9	29.0	45.3	80.6	630

Effective alkali : 16% of dry chip

Sulfidity : 25%

Liquor ratio : 5.5 ml/g of dry chip

Max. temperature : 170°C

Time at max. temperature : 50 min

ると,

1. Spruce 及び Fir, 2. Pine, 3. Douglas fir の3種に大別しても差支えなく, larch その他のものもこの3種の結果から推察することができる。すなわちパルプ用針葉樹材の場合, 容積重は 0.3~0.5 の範囲にほとんど入り, 比較的差が少なく, 繊維長差による紙質への影響が主体である。一方広葉樹材は, パルプ用として用いられるものだけをみても樹種が極めて多く, 容積重は 0.3~0.8 と広範囲にわたり, 繊維形態も薄壁~厚壁, 長繊維~短繊維と非常に変化に富んでいる。従って当然のことながら, これらの繊維から作られた紙の性質もかなり相違のあるものとなる。繊維の形態特性とシート強度との関係についてはすでにいくつかの報告^{4~11)}があり, 繊維長, 繊維幅, 繊維壁厚などの形態因子が, 単独あるいは相互に関連しあってシート密度に影響し, 強度の支配因子となることが認められている。しかし, 乾燥時の収縮挙動, 紙の伸縮安定性との関連で繊維形態をみた報告は見当たらない。

この報告では, 北海道産広葉樹材数種について形態特性を調べ, BKP シートの乾燥時収縮性及び湿度に対する伸縮安定性その他の物性との関係を調べた。

2. 実験方法

2.1 繊維形態の観察

繊維形態の顕微鏡観察用試料としては, 薬品による柔軟化処理を行うことが多いが, この際起こる脱リグニンのため繊維が膨潤する傾向がある。そこでここでは, 木材の小切片を水で煮沸, 冷却を繰返して軟化したのち, ミクロトームで横断切片を作り, 風乾後そのまま検鏡し¹²⁾, 繊維壁厚, ルーメン直径を測定した。繊維幅は「ルーメン直径+壁厚×2」として表わした。繊維長は後述する BKP を用いて測定した。

2.2 蒸解及び漂白

供試丸太を割木, チップ化した後, 小片及び粗大片を除去したものを試料として用いた。仕切りつき金網かごに各樹種別にチップを詰め, カバ材チップの中に埋没して 120l 容オートクレーブで同時に蒸解を行った。蒸解パルプは個別に精選したのち, 次亜塩素酸ソーダ, 塩素, カセイソーダ, 次亜塩素酸ソーダの4段階漂白を行い BKP とした。蒸解, 漂白結果を表1に示した。

2.3 抄紙及び乾燥

得られたパルプをナイヤガラビーターで叩解し, JIS に準じて手すき, プレスを行った後, 一部のシートは収縮率測定用¹³⁾, 収縮応力測定用²⁾に供し, 他は回転式ドライヤーで乾燥して紙質測定用に供した。

3. 実験結果及び考察

Table 2 Morphological properties and their indexes of woodfibers

Wood species	Density (g/cm ³) (G)	Wall thickness (u) (W)	Lumen diameter (u) (L)	Fiber width (u) (D)	Fiber length (mm) (L)	Morphological Index							
						2W/l	L/D	L ² /D	L ³ /D	L·W	L ² W	L ³ W	L/W
Linden	0.34	2.3	20.6	25.2	1.23	0.22	4.88	6.00	7.38	2.83	3.48	4.30	5.35
Poplar	0.39	2.4	20.6	25.4	1.07	0.23	4.21	4.51	4.82	2.57	2.75	2.94	4.46
Alder	0.40	2.3	17.6	22.2	1.12	0.26	5.05	5.65	6.33	2.58	2.89	3.23	4.87
Willow	0.44	2.3	10.7	15.3	0.86	0.43	5.62	4.83	4.16	1.98	1.70	1.46	3.74
Birch	0.51	2.2	11.7	16.1	1.12	0.38	6.96	7.79	8.73	2.46	2.76	3.09	5.09
Maple	0.60	3.5	8.5	15.5	0.61	0.82	3.95	2.40	1.46	2.14	1.30	0.79	1.74
Elm	0.62	3.2	7.5	13.9	1.13	0.85	8.13	9.19	10.38	3.62	4.90	4.62	3.53
Oak	0.68	3.6	9.2	16.4	0.98	0.78	5.98	5.86	5.74	3.53	3.46	3.39	2.72

3.1 繊維形態

繊維形態の観察結果を表2に示した。使用した材の容積重は0.34~0.70であり、国産広葉樹材としては軟材から硬材の広範囲にわたっている。繊維壁厚は容積重の小さいものは薄く、大きいものは厚い傾向が認められるが完全な相関とはいえない。これは道管の形態、分布密度の相違があるためである。ルーメン直径は容積重との相関が比較的明瞭であり、容積重の小さいものほどルーメン直径が大きい。繊維長は容積重とは全く関係がない。

これらの形態特性の相違がシートにどのように影響するかを調べるため、単繊維の柔軟度、繊維間結合度の指数になると思われるものを測定値から計算し、形態指数として表2に併記した。

3.2 シート乾燥時の収縮性と繊維形態の関係

各樹種のBKPについて、種々の湿度のシート特性を表3に掲げた。このうち乾燥時の収縮挙動すなわち、叩解による乾燥時収縮率と収縮応力の関係の変化を図1に示した。叩解により各樹種とも収縮率、収縮応力ともに増大するが、樹種によってその関係は非常に異なっており、繊維の形態特性によってその傾向を大別することもできない。湿度と収縮率あるいは収縮応力との関係も同様に形態特性と関係づけることは困難である。収縮応力についてはすでに述べた²⁾³⁾ように繊維間結合の多いものほど大きい。従って、繊維の柔軟度の指標の1つと考えられる繊維壁厚/ルーメン直径が小さく、また繊維長の長いものほど収縮応力が大きくなるが、ここに用いた試料は柔軟度、繊維長が広範囲にわたり、しかも相互の関係も一定していないので、単純に形態特性との関係を見出しえないもの

Fig. 1 Relation between shrinkage and shrinking stress during drying of handsheets

○ Linden, ⊙ Poplar, ⊗ Alder, △ Birch
□ Willow, ● Maple, ⊗ Elm, ● Oak

と考えられる。また、収縮率は繊維長が支配的因子であることは前報³⁾で述べたところであるが、乾燥時の繊維間のずれの抑制からすると当然繊維の柔軟度も影響し、形態特性と一義的には関連づけ難い。柔軟長繊維、剛直短繊維の場合のようにプラス因子同志又はマイナス因子同志が組み合わせられた繊維（北方産針葉樹パルプ、広葉樹パルプの比較がこれに相当する）においてのみ形態特性と乾燥時収縮性との単純な相関が認

Table 3 Sheet properties of pulps

Wood species	C. S. F. (ml)	Shrinkage (%)	Shrinking stress (kg/cm ²)	Density (g/cm ³)	Light scatt. coeff. (cm ² /g)	Breaking length (km)	Porosity (sec)	Moist-expansivity (%)
Linden	550	0.65	37.4	0.75	365	5.5	11	0.15
	525	0.85	49.0	0.79	350	6.9	21	0.16
	385	1.45	66.0	0.90	290	9.7	88	0.18
	320	1.80	70.0	0.95	270	10.0	120	0.20
	270	2.00	72.5	0.98	230	10.2	190	0.22
Poplar	565	0.60	32.5	0.65	385	5.4	9	0.13
	550	0.90	38.5	0.70	355	6.3	13	0.15
	435	1.70	49.4	0.79	310	8.2	54	0.18
	365	2.15	61.5	0.83	280	9.6	145	0.22
	290	2.65	69.0	0.91	240	9.3	190	0.24
Alder	575	0.45	28.0	0.68	400	4.2	7	0.11
	555	0.85	34.5	0.70	385	5.2	12	0.13
	430	1.40	51.0	0.79	335	8.0	47	0.18
	360	1.80	60.0	0.84	290	9.1	88	0.21
	270	2.35	67.6	0.92	260	9.6	175	0.25
Willow	515	0.55	24.3	0.67	430	4.0	7	0.12
	485	0.85	27.0	0.72	410	4.8	12	0.14
	435	1.55	42.5	0.80	355	6.9	27	0.20
	340	2.55	49.0	0.86	325	8.2	77	0.25
	265	3.35	56.2	0.93	290	8.8	165	0.30
Birch	595	0.20	28.0	0.64	395	4.8	2	0.10
	570	0.30	43.3	0.68	380	7.0	4	0.12
	495	0.85	57.6	0.77	335	9.3	11	0.16
	345	2.10	75.0	0.85	260	11.0	64	0.23
	250	2.75	83.6	0.91	225	10.9	175	0.28
Maple	505	0.60	23.5	0.62	525	3.2	2	0.14
	480	1.30	28.5	0.67	500	3.7	3	0.17
	430	2.15	36.0	0.73	425	5.0	8	0.21
	350	2.70	39.0	0.75	405	5.3	12	0.26
	305	3.40	42.8	0.85	355	7.1	38	0.32
Elm	585	0.05	21.0	0.52	535	3.0	1	0.07
	540	0.10	26.0	0.55	500	3.7	2	0.09
	485	0.15	41.6	0.63	465	6.0	3	0.11
	395	0.60	52.2	0.71	420	8.1	12	0.13
	305	0.90	54.8	0.76	350	8.3	28	0.15
Oak	630	0.10	18.0	0.48	500	2.0	0	0.07
	590	0.20	22.8	0.59	460	3.3	1	0.09
	495	1.00	35.3	0.68	420	5.5	5	0.16
	395	1.85	45.0	0.74	390	7.0	13	0.20
	285	2.35	49.8	0.82	335	7.3	54	0.23

Fig. 2 Moist-expansivity of handsheets from BKP of several kinds of woods (Symbols same as in Fig. 1)

Fig. 3 Moist-expansivity as a function of light scattering coefficient of handsheets (Symbols same as in Fig. 1)

められるものと考えられる。

3.3 シートの伸縮性と繊維形態の関係

叩解による各パルプの伸縮性の変化を図2に示した。樹種によって叩解による伸縮性の増加率は異なり、最も薄壁であるシナノキは粗叩解時には比較的伸縮性が大きい、叩解に伴う増大率は小さく、針葉樹パルプと類似の挙動を示している。叩解による伸縮の変化率はニレも同程度である。一方、ニレと同様厚壁でも繊維長の短いイタヤカエデは叩解による伸縮性の増加率が著しく大きく、ヤナギもこれに近い増加率を示している。その他の樹種はこの中間にある。概略的にいえば、高沔水度域では厚壁繊維からできた紙は伸縮性が小さく、薄壁繊維からのものは大きい傾向にあり、叩解による伸縮性の変化率は繊維長の影響が複雑に組み合わされてくる。

次にシートの比散乱係数、密度と伸縮性の関係をみた(図3, 4)。前述の叩解による伸縮性の増加率が小さかったシナノキ、ニレは、比散乱係数—伸縮性の関係においては一直線上にあり、変化率が最も小さい。シナノキ、ニレは沔水度で比較すると伸縮性のレベルが異なったが、これは繊維壁厚が異なる(ルンケル比が0.22, 0.85)ため、同一沔水度での繊維間結合量が全く違うからであり、結合量と伸縮性との関係でみると同一挙動を示したと考えられる。イタヤカエデはルンケル比がニレとほぼ同じであるが、はるかに大きい伸縮性を示す。これは前述のように繊維長が約1/2と極めて短いと推察される。同様に繊維長の比較的短いナラ、ヤナギも伸縮性が大きい。

Fig. 4 Moist-expansivity as a function of density of handsheets (Symbols same as in Fig. 1)

密度—伸縮性の関係でみても同様の傾向が認められ、シナノキ、ニレはほぼ同一線上で伸縮性少なく、イタヤカエデ、ナラ、ヤナギなどは伸縮性が大きい。このように比散乱係数あるいは密度と伸縮性の関係でみると、薄壁繊維、厚壁繊維が同傾向を示すこともあり、反面、同一ルンケル比の繊維でも繊維長の短いものは伸縮性が大きいという結果を示す。これは乾燥時の繊維の収縮がシートの平面方向の収縮として伝ばするか、あるいは厚さ方向の収縮にとどまるかによる相違であり、それによって同一密度でもシートの伸縮性は非常に異なったものとなる。伸縮性の観点からすると

Table 4 Regression coefficient of moist-expansivity to density of handsheets

$$y = ax + b$$

x : density of handsheet

y : moist-expansivity of handsheet

Wood species	a	b	correlation coefficient
Linden	0.278	-0.061	0.973
Poplar	0.440	-0.157	0.984
Alder	0.575	-0.276	0.998
Willow	0.715	-0.367	0.997
Birch	0.663	-0.332	0.990
Maple	0.881	-0.367	0.984
Elm	0.307	-0.085	0.991
Oak	0.511	-0.188	0.978

シートの厚さ方向の収縮にとどまったほうが、平面方向の伸縮安定性が優れていることは当然であるが、そのためには乾燥時において繊維間の絡み合いのために平面方向の相対位置のずれを起こさない繊維のほうがよく、したがって各繊維がより多くの繊維と絡み合い、3次元的に固定状態にあることが望ましい。

これらのことをさらに解析するため、図4に示した密度—伸縮性の関係から伸縮性の変化率の回帰直線を求め、表4に示した。回帰直線のこう配は樹種によって大幅に異なる。表2に示した形態指数との関係を種々調べたが、図5に示すように

(繊維長)³×繊維壁厚

との相関が比較的高い。3次元的絡み合いには繊維長が最も効果的であり、壁厚の影響がこれに次ぐことを示しており、繊維長が長く、壁厚の厚いものほど繊維の収縮がシートに伝ばしにくく、シートの厚さ方向の収縮あるいは空隙となって伸縮安定性の高いシートとなる。しかし、これは叩解の進行に伴う伸縮の増加率についてであり、シナノキが示しているように、粗叩解の場合は繊維の柔軟性が最も大きい伸縮性の支配因子である。

以上樹種によってシートの伸縮性が異なることを述べて来たが、図6に示したように乾燥時のシート収縮率と伸縮性の関係でみると各樹種ごとの相違は全くみられない。

3.4 伸縮性その他の物性の関係

これまでに繊維形態と伸縮性との関係を述べてきたが、紙はいかなる場合においても強度など伸縮性以外

Fig. 5 Relation between morphology index of fiber and regression coefficient of moist-expansivity to density of handsheets (Symbols same as in Fig. 1)

の他の物性も問題にされる。シートの物性については表3に示したが、ここでは代表的物性として引張強さ及び透気度と伸縮性の関係を調べた。

図7に示したように伸縮性—裂断長の関係でみると全体的にはシラカバ、ニレが強度高く、シナノキも優れているがイタヤカエデは強度が低い。引張強さは繊維長の影響が大きいといわれている⁶⁾¹⁰⁾¹⁴⁾が、シラカバ、シナノキ、ニレなどは繊維長が長く、表3からも同一密度での引張強さの大きいことが分かる。しかし、

Fig. 6 Moist-expansivity as a function of shrinkage during drying of handsheets

Fig. 8 Relation between density and porosity of handsheets (Symbols same as in Fig. 1)

Fig. 7 Relation between breaking length and moist-expansivity of handsheets (Symbols same as in Fig. 1)

Fig. 9 Relation between porosity and moist-expansivity of handsheets (Symbols same as in Fig. 1)

ニレの場合は厚壁繊維であるため叩解を進めてもシラカバ、シナノキの強度には達しない。他方、イタヤカエデは繊維長が短かいため强度的にも極めて劣り、前述のように繊維長の影響で乾燥時の収縮が大きいため伸縮性が大きく、総合的にみて良繊維とはいえない。これらの結果を表2の形態指数との関係でみると、伸縮性—引張強さの関係は L^2/D が比較的良好なパラメータと考えられる。すなわち、繊維長の寄与率が大きく、しかも繊維の縦横比(屈曲性)の大きいものほど良いといえよう。

一方、透気度はシートの緻密度を表わしているため、

図8に示したように繊維形態に関係なく密度と良い相関を示しており、密度、透気度の関係の回帰直線求めると、8樹種のうち6樹種においてその相関係数は5.2~5.8にあり、全8樹種についても相関係数0.96と極めて高い相関を示した。従って、伸縮性—透気度でみると、図4でも触れたように繊維長が短かく、シート乾燥時に長さ方向に収縮の起こり易いイタヤカエデは劣る。

以上のように紙の強度あるいは密度などと伸縮性との関係はあまり明瞭にはつかみにくい。強度と木繊維の形態特性との関係はルンケル比 ($2w/l$) あるいは

繊維幅に対するルーメン幅の比 (l/D) でよく表わされるとされている¹⁰⁾¹¹⁾が、伸縮性については乾燥時の収縮性という因子が影響するため、単に繊維の柔軟度のみでは伸縮性を表わしえないのであろう。

4. 結 論

樹種別に繊維の形態特性とシートの特性の関係を調べた。ここに用いた樹種は北海道産広葉樹という極く限られた地域のものであり、しかも種類も多くはない。しかし、容積重 0.35~0.70, ルーメン径 7.5~20 μ , 繊維幅 14~25 μ , 繊維長 0.85~1.25 mm とかなり広範囲にわたっている。西日本地区の広葉樹材は一般に容積重が北海道産のものよりも高く、木繊維の形態も若干異なるとされているが、上記の形態範囲にほぼ入ると考えてよい。近年多用されている南方産広葉樹材の場合は容積重 0.90 に近いものもあり、殊にルーメンの極めて小さい木繊維も多い。また繊維長が概して長く、1.5~2.5 mm 程度のものも多数存在する。さらに、製紙適性を考える場合、木繊維の形態の外、道管の形態を考慮しなければならない。これらのことを考えると、ここに取りあげた、限られた範囲のものを対称とした結果から、広葉樹材すべての製紙適性について結論づけることは、もちろん不可能であるが、製紙適性のうちの重要な因子であるシートの伸縮安定性について、木繊維の形態との関係を次のように明らかにできた。

1) 材の容積重は木繊維の壁厚よりもルーメン直径との相関の方が強かった。容積重と繊維長とは全く関係なかった。

2) 乾燥時のシート収縮性は樹種によって異なり、木繊維の柔軟性、繊維長が影響することが分かった。

3) シートの伸縮性には木繊維の柔軟度、繊維長がともに影響するが、シート密度、比散乱係数などと直接の相関はなかった。

4) 粗叩解時には繊維の柔軟度がシート伸縮性の支配的因子であるが、叩解が進行すると繊維長の影響が大きくなり、

(繊維長)³・繊維壁厚

が伸縮性の傾向とよく一致した。

5) 強度、透気度と伸縮性との関係は樹種によって

異なるが、(繊維長)²/繊維幅 の大きいものは同一強度での伸縮性が少ない傾向にあった。

謝 辞

最後に、この研究を進めるに当り種々御教示頂いた当社戸田久昭博士、三島製紙(株)吉野 勇博士に、また、繊維の形態観察に御協力頂いた浜田忠平氏に深謝致します。(受理, 53.11.28)

引用文献

- 1) 木島常明, 山川 功: 紙パ技協誌, **32**, (10), 584, (1978).
- 2) 木島常明, 山川 功: 紙パ技協誌, **32**, (11), 654, (1978).
- 3) 木島常明, 山川 功: 紙パ技協誌, **32**, (12), 722, (1978).
- 4) Beasley, L.: Pulp Paper Mag. Can. **61**, (7), 136, (1960).
- 5) Gally, W.: "The Formation and Structure of Paper" (ed. F. Bolam) Tech. Sect. Brit. Paper and Board Makers' Assoc., London, (1962), p. 491.
- 6) Tamalong, F. N. and Wangaard, F. F.: Tappi **44**, (3), 201, (1961).
- 7) Dadswell, H. E. and Watson, A. J.: "The Formation and Structure of Paper" (ed. F. Bolam) Tech. Sect. Brit. Paper and Board Makers' Assoc., London, (1962), p. 537.
- 8) Malmberg, B.: Svensk Papperstidn. **67**, (3), 69, (1964).
- 9) Malmberg, B.: Svensk Papperstidn. **67**, (16), 617, (1964).
- 10) Wangaard, F. F.: Tappi **45**, (7), 548, (1962).
- 11) 守屋正夫: 紙パ技協誌, **21**, (3), 141, (1967).
- 12) 長友真雄: 木材繊維の形態学的研究, p. 49, (1959).
- 13) Malmberg, B.: Svensk Papperstidn. **65**, (22), 911, (1962).
- 14) Clark, J. d'A.: Pulp Paper Mag. Can. **49**, (9), 101, (1948).