レーザー回折による紙の繊維配向の厚さ方向プロファイル測定

山陽国策パルプ(株)商品開発研究所 阿部 裕司, 坂本 祥

Measurement of the Z-direction profile of fiber orientation in paper by laser diffraction

Yuji Abe and Akira Sakamoto

Research Laboratory of Products Development, Sanyo-Kokusaku Pulp Co., Ltd.

A method for measuring the Z-direction profile of fiber orientation of paper in X-Y plane is described. The technique is based on Fraunhofer diffraction and sheet splitting method by adhesive tape peeling. Diffraction patterns were evaluated by calculation together with experiments of simulated fiber orientation distribution, where the diffraction patterns of zero order were used. The results from these analyses are in good agreement with fiber orientation distribution obtained from experiments. Furthermore the Z-direction profiles of fiber orientation of the papers made by Fourdrinier machine with shake and made by high speed machine are measured.

Keywords : Fiber orientation, Z-direction profile, Fraunhofer diffraction, Sheet splitting, Simulated distribution

紙のX-Y平面内の繊維配向分布のZ方向プロファイル測定法について検討した。これはフラウンホーファー回折とテープ剥離による紙層分割法を組み合わせたものである。回折像の評価に関して、シミュレートした繊維配向分布の数値計算と実験により調査した。なお、ここでは0次回折像が対象となった。これらの分析による結果は与えられた繊維配向分布と良く一致することが分った。さらに、実機製品であるシェイキングマシン抄き紙、及び高速マシン抄き紙に関して、繊維配向のZ方向プロファイルの測定を行った。

1. 緒 言

繊維配向は紙の力学的性質や寸法安定性の異方性を決定する主要因の1つである。紙の繊維配向は抄紙機の構造、あるいは抄紙条件の違いによってそれぞれ異なり、その決定要因としてはワイヤー上での紙料とワイヤーの相対速度が重要と考えられている。紙料とワイヤーの相対速度は紙層形成過程において順次変化し、その結果としてできた紙は裏面から表面まで様々な繊維配向を持つ層の集合体となる。

カールは紙の二面性に起因する現象であるが、紙の

繊維配向の厚さ方向プロファイルはカールを考える上で最も基本的な事項である。繊維配向の測定にはゼロスパン引張り試験に代表される種々の手法が考案されており、この繊維配向の厚さ方向プロファイルは紙を幾つかの層に分割し、適当な測定方法を用いることにより測定できる。分割方法にはシートスプリッター¹⁾やマイクロームを使う方法の他にテープ剥離分割による方法²⁾がある。しかしながら、現在まで繊維配向の厚さ方向プロファイルの測定報告はないようである。本報告は光回折法とテープ剥離分割法を組み合わせ、繊維配向の厚さ方向プロファイル測定法について述べたものである。

光回折法そのものは古くからある手法ではあるが、紙の分野において、最初にこの方法を応用したのはRudströmとSjölin³⁾であり、低坪量の紙における回折パターンに異方性が認められ、その結果、主配向方向を知ることができると報告している。またSadowski⁴⁾は回折像の評価に関して、短い繊維や填料の影響がある場合は、高次数の回折像について測定することを推奨している。しかしながら、これらの測定対象は1枚のシートであった。また配向強度の定量化に関しては

言及しておらず、Young 率の縦横比との比較を Yang⁵⁾らが扱ったにすぎない。

そこで、これからの紙物性や抄紙技術の研究において有効と思われる、紙の繊維配向の厚さ方向プロファイル測定を目的として、実際の立場より光回折法の定量評価に関する可能性を理論と実験から検討した。さらに、機械抄き紙について、実際に繊維配向の厚さ方向プロファイルの測定を行った。

2. 理 論

2.1 フラウンホーファー回折

最初に回折現象を数式的に扱ったのは Kirchhoff である。波源、及び観測点が無限遠にある場合をフラウンホーファー回折というが、この考え方によると、回折面 Σ_Q を通過した後の任意の点 P における波は、

$$U(P) = C \iint_{\Sigma_Q} G(\xi, \eta) \cdot \exp\{-ik(\alpha\xi + \beta\eta)\} d\xi d\eta \quad \dots\dots(1)$$

と表すことができる。ここで α, β は方向余弦、 k は波数で $2\pi/\lambda$ である。 $G(\xi, \eta)$ は回折面 Σ_Q 上の透過率、位相変化を表す関数であるが、このように $U(P)$ は $G(\xi, \eta)$ の 2 次元フーリエ変換となっている。

フラウンホーファー回折の性質としては、次の様なものがある。

- (1) 同じ形のスリットとマスクでは原点以外の回折像は同じである (Babinet の定理)。
- (2) 回折面で位相変化が無ければ、回折像は原点に對し点対称である。
- (3) 回折面上でスリットを平行移動しても、回折像は変化しない。
- (4) スリットの対称性は回折像に引き継がれる。

特に(1)はスリットを対象として扱った理論の結果を、マスクを測定対象とした実験に適用できる論拠となっている。

このフラウンホーファー回折を実験室的に実現する為には、光源 (波源) としてコヒーレントな平行光であるレーザーを用い、またレンズの焦点距離の位置にスクリーンを置けばよい (図 1)。こうすることによ

り、同じ方向余弦を持つ光はスクリーン上 1 点に集まり、方向余弦とスクリーン上の点は 1 対 1 に対応し、無限遠の観測点と同じこととなる。スクリーン上に ξ と平行に x 軸を、 η と平行に y 軸を設定すると、方向余弦は $\alpha = x/f$, $\beta = y/f$ と表せる。ここで f はレンズの焦点距離である。

これからの扱いでは、スリット部で $G(\xi, \eta) = 1$ 、それ以外では $G(\xi, \eta) = 0$ とする。

2.2 繊維配向測定法の原理

本報告では繊維をアスペクト比の大きい矩形と仮定して扱った。実際の測定対象においては、繊維のカールや切断により 1 つとみなせる矩形のアスペクト比は低下する可能性があり、また繊維同士の重なり部分もある。さらに填料の影響もある。いずれの場合も、バックグラウンドを増加させることになり、繊維の長さや繊維同士の重なり部分、填料の寸法が繊維の幅と同程度以下の場合は分離が不可能である。しかし、繊維のアスペクト比は大きく、繊維配向の情報を消滅させる程の繊維のカールも稀である。また繊維同士の重なりは、テープ剥離分割試料においては 1 枚のシートのそれよりずっと少ない。従って高填料の紙を除けばこの扱いが可能である。

回折面に幅 $2b$ 、長さ $2a$ のスリットが 1 個のみ、 ξ 方向に向いて存在する場合の回折光強度は次式で表される。

$$I(\alpha, \beta) = I_0 \text{sinc}^2(ak\alpha) \cdot \text{sinc}^2(bk\beta) \quad \dots\dots(2)$$

ただし、 $\text{sinc } x \equiv \sin x/x$ 、 I_0 は回折像中心の強度である。1 番目の暗部の内側について(2)式を図示すると図 2 の様になる。回折像は縦長の形をしており、回折光の広がり方向はスリットの軸方向と 90° 異なっている。図中の点線は回折光強度が 0 となる暗部であるが、周囲の点線に囲まれた部分にも強度の弱い同様のパターンが存在する (なお、マスクの場合は直進光による輝点が原点に付加される)。 $y = \text{sinc}^2 x$ のグラフは図 3 の様になるが、2 番目のピークでさえ $x=0$ の値の 4.7% にしか過ぎない。これは周囲の高次の回折像の光強度は 0 次の回折像と比較して格段に弱いことを示しており、高次の回折光を測定することは実験上、現実的で

Fig. 1 Schematic diagram of Fraunhofer diffraction.

Fig. 2 Equi-intensity contours of diffraction pattern with one aperture. The width of aperture $2b$ is $18\text{ }\mu\text{m}$ and the aspect ratio a/b is 10. The focal length f is $1,000\text{mm}$ and the wavelength λ is 632.8 nm .

Fig. 3 Shape of the function of $\text{sinc}^2 x$.

ないことが分かる。従って、この検討では1番目の暗部の内側に生じる0次の回折像の異方性による繊維配向測定を考えることとする。

次に複数(N)個のスリットが重ならず回折面にランダムに分布する場合を考えてみる。回折光強度は次式のようになる。

$$I(\alpha, \beta) = \sum_{n=1}^N I_n + I_r \quad \dots\dots(3)$$

$$\left(I_n = I_0 \text{sinc}^2(aku_n/f) \cdot \text{sinc}^2(bkv_n/f) \right. \\ \left. u_n/f = \alpha \cos \theta_n + \beta \sin \theta_n, v_n/f = -\alpha \sin \theta_n + \beta \cos \theta_n \right)$$

u_n-v_n 座標は $x-y$ 座標を θ_n だけ回転させたものであるが、 I_n は(2)式で示される1本のスリットによる回

折像を θ_n だけ回転させたものに等しい。回折光強度は、1本1本のスリットによる回折像の和の部分 $\sum I_n$ と、スリット同士の間渉項である I_r の2つの部分より成り立つ。繊維配向測定の原理は(3)式右辺の第1項を測定することにはほかならないが、このように、回折像にはさらに I_r という余分なものが含まれている。なお中心の光強度は $N^2 I_0$ となる。

3. 実験

3.1 シミュレート試料の作製

繊維配向と回折像の対応関係を調べる為に、次式に従う繊維配向分布を持つシミュレート試料を作製した。

$$f(\theta) = 1/\pi \{1 + \eta \cos 2(\theta - \alpha)\} \quad \dots\dots(4)$$

ここで、 η は配向強度を示す配向指数、 α は主配向方向を示す配向角である。理論との対応関係を調べる為に繊維同士の重なりが無い分布のもの(図4)を、実際の紙との対応関係を調べる為に繊維同士の重なりのあるもの(図5)を作製した。

繊維の角度 θ と乱数 x の関係を線型にすればランダムな角度分布に、その関係を $dx/d\theta$ と $f(\theta)$ が比例するように決めれば $f(\theta)$ に従う分布になる。繊維をコンピュータ上の仮想平面にランダムに分布させることにより、重なりのあるシミュレート試料が得られる。また重なりが無いシミュレート試料に関しては、繊維を分布させる際に、既にある繊維と重なりの有無を判定し、重なりが生じた場合は次の新たな場所に配置した。その為、繊維密度が高くなると、角度の近い繊維同士は並び易くなり、仮想平面上でランダムな分布か

Fig. 4 Simulated fiber orientation distribution without fibers crossing each other.

Fig. 5 Simulated fiber orientation distribution with fiber crossing. The total number of fibers is given by N .

らはずれる傾向となる。重なりが無いシミュレート試料は、コンピュータ上の大面積の試料(mother paper)から、円形の部分(図4)を取り出して用いた。

得られたシミュレート試料の位置や角度のデータは数値計算に用いられ、またX-Yプロッターで描かれたパターンを繊維の寸法まで縮小して得られたマイクロフィルムは回折の実験に用いられた。

3.2 方 法

フラウンホーファー回折の光学配置を図1に示す。光源はHe-Neレーザー($\lambda=632.8\text{ nm}$)を用いた。回折像はレンズより焦点距離 $f=1,200\text{ mm}$ 離れた位置のスクリーン上にできる。回折光強度は、スクリーンの位置に光軸を中心に 360° 回転できるスリットを備えたフォトダイオードにより測定した。スリットの形状や光軸からの距離は、シミュレート試料の回折光強度を数値計算し、繊維配向との対応関係を検討して最適条件を求めた。

テープ剥離法により紙を全層に渡り分割し、繊維の付着したテープ試料を35 mmスライド用のマウントに保持した。繊維密度の高い場合はさらにテープ剥離分割を行い、繊維のレース状試料を得た。この試料に照射されるレーザー光は約 $23\text{ mm}\phi$ であった。またテープ剥離分割試料上の繊維は完全なマスクとはなり得ないので、高コントラストフィルムにパターンを焼き直してこの影響も調べた。

4. 結果と考察

4.1 アスペクト比

この測定法は繊維の幅に比べ繊維の長さが十分大きいことを基本としているが、アスペクト比の違いによる回折光強度の角度分布の異方性と、繊維配向の異方性との対応関係を次に調べてみた。図6は半径と(3)式

Fig. 6 The influence of the aspect ratio (a/b) on the extent of the angular intensity distribution of diffraction pattern. The fiber width was constant at $2b=18\text{ }\mu\text{m}$ and the fiber orientation index η was 0.702.

の第1項の異方性パラメータ η_0 の関係をいろいろなアスペクト比のもとで計算した例である。繊維幅に由来する回折光強度の1番目の暗部の半径(42.2 mm)の約半分の位置にピークを持ち、アスペクト比が大きい程、 η_0 は $\eta(=0.702)$ に近づくのが分かる。

4.2 干渉項 I_r の影響

一般的には N が十分大きいと(3)式の干渉項 I_r は0に収束するとして扱われているが、適当なモデルにおいて、 I_r の ΣI_n に対する割り合いを実際に計算してみると、 10^4 本程度では収束しなかった(図7)。従ってテープ剥離分割試料を扱う範囲では、回折光強度には干渉項 I_r が存在することになる。この干渉項 I_r を消去する方法として、回折像の r 方向、あるいは θ 方向で

Fig. 7 The influence of the number of fibers on $I_r / \Sigma I_n$. The intensity was calculated at $r=20$ mm and $\theta=90^\circ$. The fiber orientation is nearly random.

Fig. 8 Comparison of ΣI_n and I with averaging for varied averaging length (Δr). The intensity was calculated along the radial direction at $\theta=45^\circ$.

の光強度を積分することが考えられる。

図8は一定の角度 θ の直線上で、積分範囲(Δr)を変えた場合の回折光強度を示している。積分範囲を広くするに従い、平均化された回折光強度は(3)式の第1項を示す中心の曲線に近づいていくことが分かる。 $\Delta r=20$ mmにおいては、干渉項 I_r による変動はほとんど無くなり、繊維幅に由来する回折光強度の1番目の暗部の半径の約半分の位置で、(3)式の第1項を示す中心の曲線とほぼ一致した。

図9は一定の半径 r の円周上で、積分範囲($\Delta\theta$)を変えた場合の回折光強度を示している。積分範囲を広くするに従い、平均化された回折光強度の変動は減少するが、(3)式の第1項を示す中心の曲線との相関性は低い。この結果は回折光強度の角度分布を計測することの測定方法において、 θ 方向での光強度を積分することが有効でないことを示している。

次に、 r 方向の積分により干渉項 I_r が消去できた理

Fig. 9 Comparison of ΣI_n and I with averaging for varied averaging width ($\Delta\theta$). The intensity was calculated along the azimuthal direction at $r=20$ mm.

由について考えてみる。干渉項 I_r は次式のように表すことができる。

$$I_r = 2 I_0 \sum_{n>m}^N \psi_{nm}(r, \theta) h_n(r, \theta) h_m(r, \theta) \quad \dots\dots(5)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \psi_{nm}(r, \theta) \equiv \cos\{k r r_{nm}/f \cdot \cos(\theta - \phi_{nm})\} \\ h_n(r, \theta) \equiv \text{sinc}\{a k r/f \cdot \cos(\theta - \theta_n)\} \\ \quad \cdot \text{sinc}\{b k r/f \cdot \cos(\theta - \theta_n)\} \end{array} \right\}$$

ここで、 r_{nm} と ϕ_{nm} はそれぞれ繊維 n と m の中心を結ぶ線分の距離、及び角度を示している。2本の繊維 n と m に注目すると $\psi_{nm}(r, \theta)$ は r の変化により-1と1の間で周期的に変動する。 $\psi=0$ となる r を求めると、

$$r = \frac{2q+1}{4} \cdot \frac{f\lambda}{r_{nm} \cos(\theta - \phi_{nm})} \quad (q: \text{整数}) \quad \dots\dots(6)$$

その間隔 R は、

$$R = \frac{f\lambda}{2 r_{nm} \cos(\theta - \phi_{nm})} \quad \dots\dots(7)$$

となる。この式の意味するところは、 θ と繊維 n と m の中心を結ぶ線分の角度 ϕ_{nm} とが一致する場合、中心点間距離 r_{nm} が大きいと r 方向の光強度が細かく変動するという事である。 r_{nm} を20 mmとすると、 R は約0.02 mmとなり、実際の光強度はこの値より大きい周期で変動していることになる。つまり、 r 方向の平均化により、この $\psi_{nm}(r, \theta)$ の変動が消去され、結果的に干渉項 I_r の影響を取り除くことができたと考えられる。

以上の結果、スリットの形状としては、 Δr の半径の差がある2つの同心円に挟まれた $\Delta\theta$ の幅を持つ部分(図10)とし、スリットの r 方向の長さ(Δr)として

Fig. 10 Shape of the aperture for measuring angular intensity distribution.

20 mm, その中心は繊維幅に由来する回折光強度の1番目の暗部の半径の約半分的位置が適当であることが分かる。また θ 方向の拡がり ($\Delta\theta$) は、繊維配向の各角度におけるバラツキを平均化する為に、決定されるべきであり、ある程度大きいほうが良いが、それに伴ない測定される η_0 は小さくなる。ここで用いた 7.5° の条件では η_0 の低下は約 0.3% である。

4.3 シミュレート試料の回折像

図1に示す実験の光学配置において、カメラをレンズの位置に置き、フィルムをスクリーンに対応させることにより回折像の写真を撮る事ができる。回折像は図11のように配向指数 η が大きいほど、その異方性は強くなった。また干渉の影響による粒状の構造も見られる。なお、この写真の回折像は繊維幅に由来する

回折光強度の1番目の暗部と原点の距離を半径とする円内部にあり、これは0次の回折像の集合体に異方性が現われることを示している。

回折光強度の角度分布は4.2で示した領域の積分強度の角度依存性より求めた。図12は回折光強度の角度分布の理論値と実測値の比較であるが、細部の構造においても両者はよく一致している。

また、いろいろな繊維配向強度のシミュレート試料(図5)について回折光強度の角度分布を測定した。その結果、回折光強度より求めた配向指数 η_0 は、繊維配向指数 η とよい相関が得られた(図13)。なお、 η_0 が η より小さくなったが、これは繊維の配向方向と直交し

Fig. 12 Comparison of observed and predicted angular intensity distribution of diffraction pattern with simulated fiber orientation distribution.

Fig. 11 Diffraction patterns for simulated fiber orientation distribution prescribed by various values of η .

Fig. 13 Relationship between the measured and calculated fiber orientation index. The total number of fibers is given by N .

た方向に伸ばされたマイクロフィルム内の気泡による回折の影響と思われる。この相関は繊維の本数が6,000本/0.7 cm²程度(坪量換算で10 g/m²以下程度)までは変化しないことを確認したが、フロック状の繊維の重なり部分から繊維が飛び出している程度の繊維密度までは、定量的な測定が可能であることを示している。

4.4 紙の繊維配向の厚さ方向プロファイル

光回折法は、繊維パターンが明瞭であることが必要である為、1枚の紙の繊維配向測定にはあまり適さないと考えられる。しかしながら、紙は層構造であるので、テープ剥離法による紙層分割が比較的容易に行え、繊維配向の厚さ方向プロファイルの測定に応用することが可能である。次に実機長網マシン抄き紙のテープ剥離分割による測定結果を示す。

図14は典型的な低速のシェイキングマシン抄き紙の結果である。シェイキングにより生じる紙料中のせん断力により、繊維配向が変化し、ワイヤー面側は配向が強く、フェルト面側にいくに従って配向が弱くなっていく様子がよく分かる。

図15は高速マシン抄きの上質紙の結果である。配向強度のパターンは図14と異なっており、W面は弱配向で内部にいくに従って上昇している。また配向角は紙層中で回転し、配向強度が最小となる60 μm付近を境にフェルト面側とワイヤー面側で交差している。これは、カール軸がマシン方向、あるいは、クロス・マシン方向からずれた「ねじれカール」の発生を予想させる。

このように、紙の繊維配向の厚さ方向プロファイル

Fig. 14 The Z-direction profile of fiber orientation index in X-Y plane for paper made by Fourdrinier machine with shake.

Fig. 15 The Z-direction profile of fiber orientation index in X-Y plane for paper made by high speed machine.

は抄紙機の構造や抄紙条件の違いにより様々なパターンを示しており、これは紙の抄造の難しさを示す1例といえるであろう。

また、テープ剥離分割試料上の繊維は完全なマスクとはなり得ないので、高コントラストフィルムにパターンを焼き直してこの影響を調べた。得られた回折像は繊維による光の散乱がテープ剥離分割試料より少なく、回折像の広がりシミュレート試料に近づいた。配向強度の定量測定にはこの方法を推奨するが、紙の繊維配向の厚さ方向プロファイル情報を得る目的においては、テープ剥離分割試料でも十分であると考えられる。

5. 結 論

繊維幅に由来する回折光強度の1番目の暗部の内側に関する回折像の異方性より、繊維配向を定量的に測定できることを数値計算、及びモデル実験により示した。さらにテープ剥離分割法との組み合わせにより、紙の繊維配向の厚さ方向プロファイル測定が可能となった。この手法は紙層構造解析の他にワイヤーパー

ト上の紙層形成過程の研究に応用されるであろう。

引用文献

- 1) Parker, J. and Mih, W. C., Tappi 47 (1964) : 5, 254-263
- 2) Finger, E. R. and Majewski, Z. J., Tappi 37 (1954) : 5, 216-224
- 3) Rudström, L. and Sjölin, U., Svensk Papperstidn. 73 (1970) : 5, 117-121
- 4) Sadowski, J. W., Paperi ja Puu 61 (1979) : 9, 588-595
- 5) Yang, C., Crosby, C., Eusufzai, A. and Mark, R., "Laser Determination of Fiber Orientation Distributions in Sheet", ESPRA Report 67 (1977) : 99-119

(受理：'90.11.2)