

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：12605

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14953

研究課題名(和文) 微細セルロースファイバーを用いた低質古紙配合紙の強度向上処理

研究課題名(英文) Strengthening process using fine cellulose fiber coating of lower-quality grade papers produced from wastepaper

研究代表者

岡山 隆之 (Okayama, Takayuki)

東京農工大学・(連合)農学研究科(研究院)・理事

研究者番号：70134799

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,900,000円

研究成果の概要(和文)：古紙配合紙は、古紙利用率の増加に伴って品質低下が進んでいる。劣化パルプ繊維を含む低質古紙配合紙は、製紙工程で他のパルプ繊維原料と混合することによって、紙の強度低下を招いている。低質古紙配合紙を強化するために、微細セルロースファイバー(FCF)塗工処理を検討した。高圧ホモジナイザーを用いて木材パルプ繊維からFCFを調製し、リサイクルパルプ紙表面に塗工した。紙を湿潤後、減圧ろ過を施しながらワイヤーバーコーターを用いて平坦にFCFを拡げた。FCF塗工直後の紙の引張強さは、未塗工紙の1.17倍になった。FCF塗工によってパルプの繊維間結合強度を高めれば、リサイクルによって生じる紙の劣化を改善できる。

研究成果の概要(英文)：The majorities of papers produced from wastepaper are lower-quality grade papers, mainly attributable to the increasing rate of paper recycling. Most of the paper strengths are lowered by the re-use of recycled pulp fibers. Fine cellulose fiber (FCF) coating was performed for strengthening low-quality grade recycled papers. The FCF mechanically prepared from wood pulp fibers using a high pressure homogenizer was coated onto the recycled paper surface. A small amount of water is poured on the paper with suction. The application of FCF onto the wet paper was done using a wire bar coater to spread fine fibers evenly. Increases in paper strengths such as tensile strength and tear resistance were observed just after FCF coating of the recycled paper. Tensile index of the FCF coated paper showed 1.17 times that of the uncoated paper. If FCF coating is able to reinforce the bonding strength between fibers, then it would be possible to control paper degradation caused by recycling process.

研究分野：紙パルプ科学

キーワード：古紙 微細セルロースファイバー リサイクル 紙 塗工 引張強さ 引裂強さ

1. 研究開始当初の背景

日本の古紙回収量は、2014年には2,175万トンを超え、古紙回収率は80.8%に達した。日本の古紙回収率の伸びは自治体などによる資源回収が順調に伸びていることによるが、一方で、段ボール古紙、新聞古紙、オフィス古紙のほか、雑誌古紙を中心とするいわゆる低質古紙が増加している。

2014年の日本の古紙利用量は1,719万トンで、古紙利用率は63.9%となっている。古紙利用率を増加させるには、板紙生産における古紙利用率がほぼ限界に達していることから、紙生産における古紙利用の促進が必要となる。古紙回収率の増加に伴ってリサイクルが進めば古紙の品質低下は避けられず、製紙原料としての古紙利用に限界が生じる。増加する低質古紙に新たな利用価値を見出せなければ、紙ごみとして処理せざるを得ない。

近年、新しい工業用素材としてセルロースナノファイバー(CNF)が注目され、研究開発が進められている。CNFの特徴としては、高強度、軽量、低熱膨張性、ガスバリア性、耐熱性などが期待されることから、樹脂との複合化による高強度材料の開発、電子材料、包装材料、分離材料及び光学材料への応用など多方面への利用が検討されている。

CNFは可視光の波長の1/10以下の要素となることから、通常、可視光の散乱が起こらないため、光学透明性を示し、人間の眼ではその存在を認識できないことが知られている。研究代表者らは、CNFのもつ高強度特性及び光学透明性に着目し、経年劣化して脆弱化した紙資料の閲覧を可能にすることを目的として、微細セルロースファイバー(FCF)による紙の強化処理を提案した。CNFは、セルロースマイクロフィブリルが数本の束になった繊維で、紙に対する長期的な安定性を備えており、接着剤などを使用することなく、紙を構成するパルプ繊維と繊維間結合を形成する可能性がある。

2. 研究の目的

本研究では、CNFよりも紙の強度向上に寄与すると推定される数十～数百マイクロメートルレベルの繊維長を有するFCFを、抄紙工程の湿紙ウェブ上または紙表面に塗工することによって、古紙パルプ繊維表面上に存在するセルロース分子との間に水素結合による繊維間相互作用を生じさせ、低質古紙配合紙の強度向上処理法を開発することを第一の目的とする。

3. 研究の方法

(1) 実験手法

本研究は、a.材料：製紙・加工工程における低質古紙配合紙の強度向上処理に適したFCFの製造開発、b.手法：FCFを湿紙ウェブまたは紙表面に効果的に塗布する(付着させ

る)手法の開発、c.評価：FCF塗工処理による低質古紙配合紙の強度向上効果の検証からなる。なお、a～dはそれぞれが独立した研究ではなく、aで製造開発した材料を、bの手法で紙に塗布(付着)して強化処理を施し、その効果をcで評価することによって低質古紙配合紙の強度向上技術の確立を目指した。

(2) 試料

パルプ試料は、市販の古紙100%リサイクルコピー用紙(王子製紙製「やまゆり」坪量64.0g/m²、グリーン購入法総合評価値85)および古紙を含まないコピー用紙(富士ゼロックス製「V-Paper」坪量64.0g/m²)を用いた。FCFはスギノマシン製のBiNF-i-s(繊維幅約20nm)を用いた。

(3) 試料の調製

各試料を水に浸漬後、離解した。JIS P 8222に準じて手すき紙を調製した後、コーティング、プレスを行った。乾燥条件は熱風循環式乾燥機に入れて、80℃、24時間拘束乾燥することによってリサイクル手すき紙を作製した。以上の処理をリサイクル処理1回とする。以下、古紙100%のパルプ試料から作製したリサイクル紙をRP、古紙0%のパルプ試料から作製したリサイクル紙をURPとする。

(4) FCF塗工処理

リサイクル紙の表面には、FCFを塗工した。FCF塗工処理は、作製した手すき紙の表面を上にして自動バーコーター(熊谷理機製)上に置き、太さの異なる2種類のワイヤー・バー(安田精機製、No.3、14)を用いて、塗工速度30または50mm/sで塗工した。これをろ紙を重ねたプレート上に置き、プレス脱水後、回転型乾燥機(熊谷理機製)で100℃、4分30秒間乾燥した。乾燥後、23℃、50%RHの恒温室で調湿した。FCF塗工紙はJIS P 8223に準じてシート密度のほか、引張強さ、ゼロスパン引張強さ、引裂強さ、ISO白色度、比散乱係数などの物理的性質の測定およびSEM観察を行った。

4. 研究成果

図1には、RP100%およびURP100%の5回リサイクル処理を施した手すき紙において紙の比引張強さに及ぼすFCF塗工の影響を示す。紙の比引張強さは、RPでは塗工量が増加するにつれて向上し、塗工量2.85g/m²のとき約1.17倍になった。一方、URPでは塗工量の増加とともに低下した。これに対して、紙の比引張強さから坪量の影響を除く引張強さを比較すると、RPでは塗工量とともに同様の向上効果が確認できたのに対して、URPでは変化しなかった。

パルプの単繊維強度の指標となるゼロスパン比引張強さの変化を図2に示す。ゼロスパン比引張強さは、RP、URPともFCF塗工によってそれぞれ1.16倍、1.11倍に向上した。シート密度はRPのほうがURPより低く、FCF

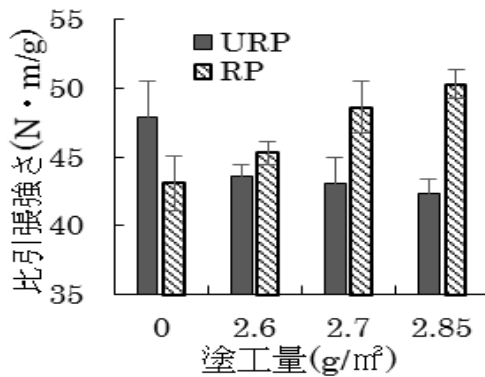


図1 リサイクル5回の紙の比引張強さに及ぼすFCF塗工量の影響

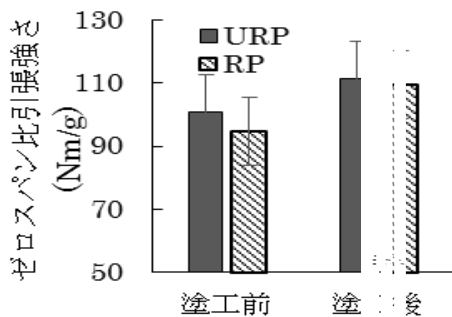


図2 FCF塗工処理によるリサイクル5回の紙の比ゼロスパン引張強さの変化

塗工によっていずれも低下した。

図3には、FCF塗工紙の比引張強さに及ぼすリサイクル回数の影響を示す。リサイクル処理を1回行ったFCF塗工紙では比引張強さが1.21倍に、リサイクル処理5回の場合には1.19倍にそれぞれ向上することが判明し、リサイクル回数の違いによってFCF塗工の効果に大きな差は確認されなかった。

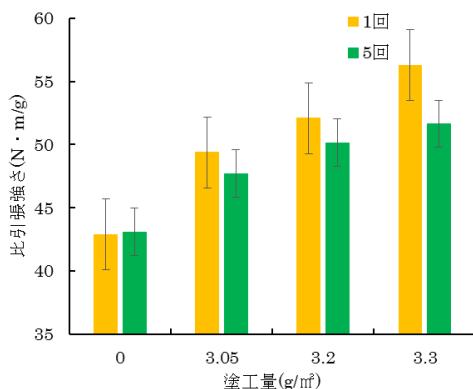


図3 FCF塗工紙の比引張強さに及ぼすリサイクル処理回数の影響

図4には、RP100%およびURP100%の5回リサイクル処理を施した手すき紙において紙の比引張強さに及ぼすFCF塗工の影響を示す。紙の比引張強さは、RP、URPのいずれも塗工量が増加するにつれて向上する傾向が認められたが、RPで1.06倍、URPで1.12倍であった。以上の結果からFCF塗工は紙の強度、特に引張強さを向上させることが明らかに

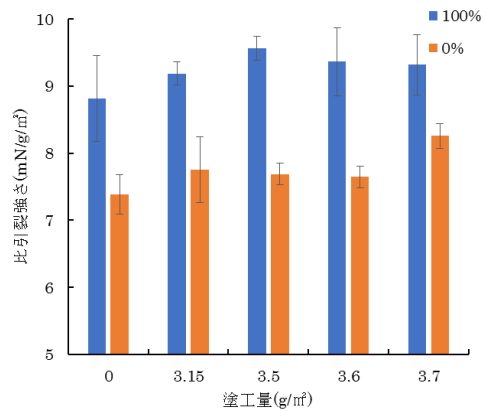


図4 リサイクル5回の紙の比引張強さに及ぼすFCF塗工量の影響

になった。

紙の比散乱係数はRPで低下したのに対し、URPではやや増加した。繊維間結合が発達した紙では比表面積が減少し、比散乱係数が低下することから、RPではFCF塗工によって繊維間結合が形成されていることが示唆された(図5)。

また、FCF塗工前後で白色度、比吸収係数及び不透明度に有意差は認められなかった。

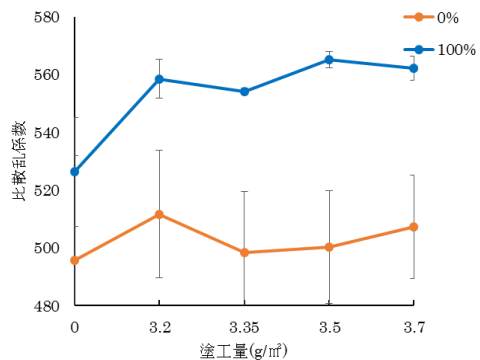


図5 リサイクル5回の紙の比散乱係数に及ぼすFCF塗工量の影響

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計6件)

小瀬亮太、松下明裕、岡山隆之、浸透圧を利用したセルロースナノファイバー分散水の濃縮、査読有、Journal of Fiber Science and Technology、73、2017、368-372、Doi: 10.2115/fiberst.2017-0052

小瀬亮太、岡山隆之、セルロースナノファイバー調製技術の古紙・リサイクルパルプ繊維への応用、査読無、紙パルプ技術タイムス、60(11)、2017、19-23

金海蘭、趙駿衡、岡山隆之、麦わらパルプシートの低密度化特性および表面自由エネルギーの変化、査読有、Journal of Fiber Science and Technology、72(11)、2016、231-236、Doi: 10.2115/fiberst.2016-0034

Phuong, D.T.M., Miyanishi, T., Okayama, T., Kose, R., Pore characteristics and adsorption capacities of biochars derived from rice residues as affected by variety and pyrolysis temperature, 査読有, The American Journal of Innovative Research and Applied Sciences, 2, 2016, 179-189
Kose, R., Yamaguchi, K., Okayama, T., Preparation of fine fiber sheets from recycled pulp fibers using aqueous counter collision, 査読有, Cellulose, 23, 2016, 1393-1399, Doi:10.1007/s10570-016-0874-5
金海蘭、趙駿衡、岡山隆之、陳礼輝、李堅、超音波細胞粉碎処理によるリサイクル竹パルプシートの特性変化、査読有、Journal of Fiber Science and Technology, 72(2)、2016、44-48、Doi: 10.2115/fiberst.2016-0007

〔学会発表〕(計 11 件)

岡山隆之、本の高齢化対策 - 酸性紙の脱酸性化処理および劣化紙の強化処理 -、繊維学会紙パルプ研究委員会第 264 回定例研究会、2017.12.15、東京
岡山隆之、門屋智恵美、殿山真央、関正純、園田直子、自然劣化紙の脱酸性化処理およびセルロースナノファイバー塗工による強化処理の併用効果、文化財保存修復学会第 39 回大会、2017.7.1、金沢
門屋智恵美、岡山隆之、園田直子、関正純、殿山真央、劣化紙へのセルロースナノファイバーコーティング最適条件の検討、文化財保存修復学会第 39 回大会、2017.7.1、金沢
ウーデン理也、門屋智恵美、岡山隆之、古紙パルプ繊維シートのセルロースファイバーコーティング、第 84 回紙パルプ研究発表会、2017.6.22、東京
岡山隆之、低密度調整剤および ASA サイズ剤の併用添加がリサイクル紙の物性に及ぼす影響、第 84 回紙パルプ研究発表会、2017.6.22、東京
ウーデン理也、門屋智恵美、岡山隆之、微細セルロースファイバーを用いた古紙配合紙の強度向上処理、第 67 回日本木材学会大会研究発表会、2017.3.18、福岡
松下明裕、小瀬亮太、岡山隆之、浸透現象を用いたセルロースナノファイバーの濃縮、第 67 回日本木材学会大会研究発表会、2017.3.17、福岡
Okayama, T., Kadoya, C., Seki, M., Tonoyama, M., Applicability of cellulose nanofiber coating treatment for strengthening naturally aged papers, Pan Pacific Conference 2016 – Current Research and Perspectives on Pulp, Paper and Lignocellulosic materials, 2016.10.26、Seoul

岡山隆之、岩淵真行、エタノールアミン類を用いた気相法による酸性紙の劣化抑制処理、文化財保存修復学会第 38 回大会、2016.6.25、神奈川
岡山隆之、門屋智恵美、園田直子、関正純、殿山真央、セルロースナノファイバーコーティングによる劣化紙の強化処理、文化財保存修復学会第 38 回大会、2016.6.25、神奈川
殿山真央、関正純、岡山隆之、園田直子、セルロースナノファイバーを用いたエレクトロスピンニング法による紙資料の強化処理、文化財保存修復学会第 38 回大会、2016.6.25、神奈川
小瀬亮太、山口光紀、岡山隆之、ナノ微細化技術を用いたリサイクルパルプ微細繊維シートの特性、第 83 回紙パルプ研究発表会、2016.6.22、東京
岡山隆之、清水裕之、ジエタノールアミンを用いた気相法による酸性紙の新規劣化抑制処理法の開発、第 83 回紙パルプ研究発表会、2016.6.22、東京

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称：紙の強化方法
発明者：園田直子、日高慎吾、岡山隆之、小瀬亮太、門屋智恵美、関正純、殿山真央、
権利者：人間文化研究機構
種類：特許
番号：2017-252277
出願年月日：2017 年 12 月 25 日
国内外の別：国内

取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡山隆之 (OKAYAMA, Takayuki)
東京農工大学・大学院農学研究院・理事
研究者番号: 70134799

(2) 研究分担者

小瀬亮太 (KOSE, Ryota)
東京農工大学・大学院農学研究院・助教
研究者番号: 60724143

(3) 研究協力者

関正純 (SEKI, Masazumi)

殿山真央 (TONOYAMA, Mao)