

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：82620

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H00617

研究課題名（和文）紙文化財補修用材料としての高機能化楮繊維の開発

研究課題名（英文）Development of High-Performance Kozo Fibres as a Material for Reinforcing Paper Cultural Properties

研究代表者

稲葉 政満（Inaba, Masamitsu）

独立行政法人国立文化財機構東京文化財研究所・保存科学研究センター・客員研究員

研究者番号：50135183

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,300,000円

研究成果の概要（和文）：虫食い文書の修復に用いられる漉嵌め法（leaf casting）用に開発した高機能化繊維である高度外部フィブリル化楮繊維は、本紙との接着性が高まるなど、新規な高機能材料として紙本修理の改善が期待される。これは、接着性改善のために小麦粉デンプン糊などの虫菌害を呼ぶような材料を用いず、しかも作業工程を減らすことが可能であるからである。外部フィブリル化楮繊維を製造する際には石臼式摩砕機（スーパーマスコロイダー）の砥石の摺り合せ処理が重要である事を確認し、調製法を確立した。そしてその紙本補填材料としての有用性を確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

虫食い文書の修復に用いられる漉嵌め法（leaf casting）用に開発した高機能化繊維である高度外部フィブリル化楮繊維は、本紙との接着性が高まるなど、新規な高機能材料として紙本修理の改善が期待される。今回、外部フィブリル化楮繊維製造方法を確立したので、紙本修復家が必要に応じて修復現場において、その製造を行えることとなった。

研究成果の概要（英文）：Highly externally fibrillated kozo fibre is a high-performance fibre developed for the leaf casting method used to repair insect-eaten documents. As a new high-performance material, it is expected to improve paper conservation by increasing adhesion to the original paper. This is because it does not require the use of materials that may be damaged by insects and fungi, such as wheat flour starch paste, to improve adhesion, and it also makes it possible to reduce the number of work steps. We confirmed that grinding the grindstones of a stone mill (Supermasscolloider) is important when producing externally fibrillated kozo fibre, and established a preparation method. We also confirmed its usefulness as a conservation material.

研究分野：保存科学 製紙科学

キーワード：修復材料 紙質文化財 漉嵌め ナノセルロース

## 1. 研究開始当初の背景

虫食い文書の修復に用いられる漉嵌め法 (leaf casting) 用に開発した高機能化繊維である高度外部フィブリル化楮繊維は、本紙との接着性が高まるなど、新規な高機能材料として紙本修理の改善が期待される(1)。これは、接着性改善のために小麦粉デンプン糊などの虫菌害を呼ぶような材料を用いず、しかも作業工程を減らすことが可能であるからである。

## 2. 研究の目的

石臼式摩砕機 (スーパーマスコロイダー) による高度外部フィブリル化楮繊維の製造過程を経て得られる繊維の性質は、石臼の状態や原料繊維の状態など影響する因子が多いため、これらについて検討し、修復目的に応じた最適な製造方法を確立することを目的とした。

## 3. 研究の方法

### (1) 原料および外部フィブリル化楮繊維の調製

原料として若山楮 (高知県黒潮町) の白皮を長さ約 3mm に切断した後、煮熟・解繊・洗浄を行うことで楮繊維を得た。石臼式摩砕機 (スーパーマスコロイダー:MKCA 6-5、砥石:MKGC6-80(6 インチ)、増幸産業製) を使用し、楮繊維原料濃度 0.5% (5 L/回)、砥石間の間隔 (クリアランス) 10  $\mu\text{m}$  で、10~40 pass で処理し、外部フィブリル化楮繊維試料を調製した。

マスコロイダー処理にて得られた外部フィブリル化楮繊維試料について、位相差光学顕微鏡にて観察した。また、試料の繊維長、フィブリル化度を繊維画像分析計 (Valmet 製 FS-5) にて測定した (JIS P 8226-2:2011)。

### (2) 充填部と本紙の引張強度による接着性の評価

市販の機械漉き那須楮紙の内部を切り取り、シートマシン装置を用いて穴を補填した試験紙 (24 cm  $\times$  24 cm) を作製した。補填紙料は、未処理楮繊維にマスコロイダー処理した外部フィブリル化楮繊維を 10%(10、20、40 pass)、20%(40pass)、50%(10、20 pass) および 100%(10 pass) 添加して使用した。試験紙から試験片 10 枚を図1のとおり切り出し、引張試験機の上部治具に本紙、下部治具に補填紙の向きに装着し、ストログラフ E3-L (東洋精機製) にて引張強さを測定した (JIS P 8113 :2006)。

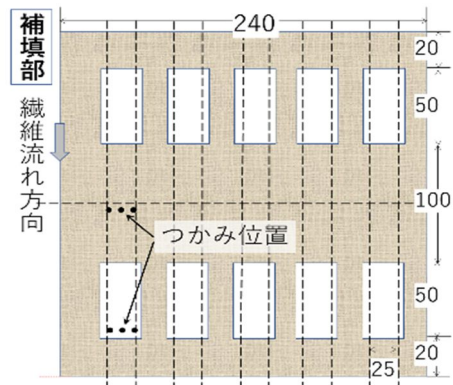


図1 シートマシンにより補填した試験紙  
および引張試験片の模式図  
(点線:カット位置)(単位:mm)

### (3) 修理技術者による官能評価

修理技術者により、作業時の繊維分散性、補填後の目視による地合い、および補填部と本紙の接着性 (引張り、折り曲げ) について、補填紙に添加した外部フィブリル化楮繊維を修復材料として評価した。

修理技術者により作製された虫損の疑似本紙 (袋綴装四ツ目綴じの版本本紙 (23.3 cm  $\times$  32.3 cm、坪量約 24 g/m<sup>2</sup>) に手作業で同位置、同型の虫損を再現) について、日常的に行われている漉嵌め法の工程に従い、修理技術者が補填作業を行い、試験紙とした。補填紙料は、未処理楮繊維 (5 mm角裁断の楮紙:悠久紙・宮本友信製、または上述の楮繊維) に、上述の楮繊維を添加し (全体の 10~50%)、ネリとしてノリウツギ (北海道標津町産) を使用した。 (図 2~4)

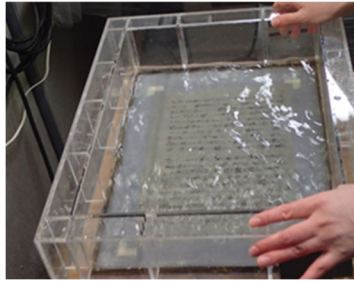


図2 漉込み作業

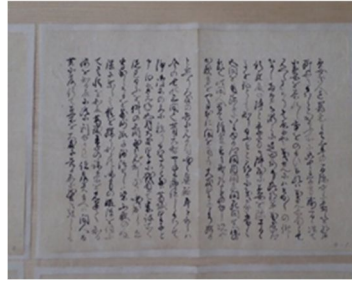


図3 補填後の疑似本紙



図4 補填後の疑似本紙における  
修理技術者による補填紙接着  
性の評価

(左図)指触による引張り試験、  
(右図)指触による折り曲げ試験

#### 4. 研究成果

##### (1) 石臼式摩砕機砥石の調整

以前の研究(1)では愛媛大学でナノセルロース製造に用いている機材を借用して外部フィブリル化楮繊維を製造した。今回東京藝術大学に同型機である石臼式摩砕機(スーパーマスコロイダー: MKCA6-2(増幸産業(株)、MKGC6-80砥石を装着)を導入したが、外部フィブリル化処理を行うことができなかった。結論からいえば、砥石の摺り合わせの調整が重要であることが判明した。そのため、外部フィブリル化処理のためのより精密な摺り合せ処理を同製品の納入業者に依頼して実施した。具体的には乾燥状態で

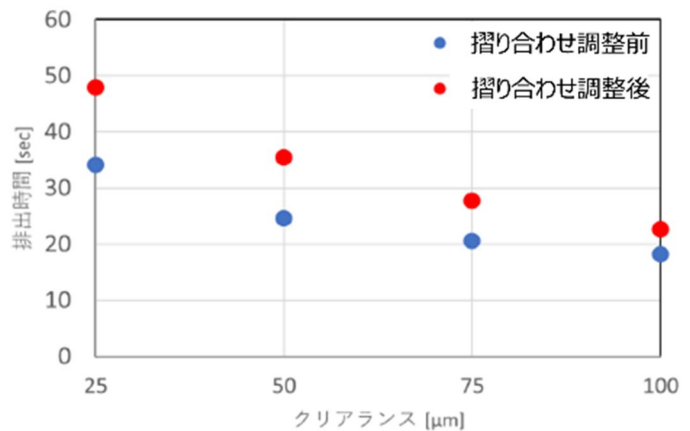


図5 砥石摺り合わせ調整前後の水排出に要する時間の比較

砥石間のクリアランスを-100 μm(マイナスは砥石が接触してから 100 μm 押し込むことを示す)にして 1500 rpm で 1~2 秒の空摺を 15 回程度行い、下臼の加熱箇所(より多く当たっている箇所)を触って見つけ、その箇所を研磨用砥石で研磨する。この処置を繰り返し、その後さらにクリアランス -100~-150 μm、1500 rpm で 20~30 分水磨り処理を行った。摺り合わせ調整の結果を図5に示す。例えばクリアランスが+25 μm の際、5 L の水の排出時間が 33 秒から約 50 秒に上昇した。これに伴い楮繊維の石臼式摩砕機内滞留時間も大幅に上昇することとなるため、効率的な外部フィブリル化処理が可能となった。

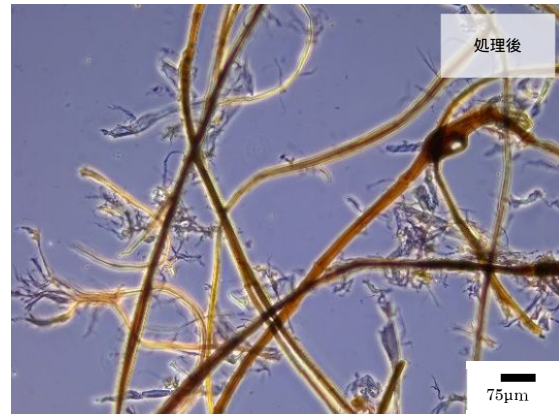
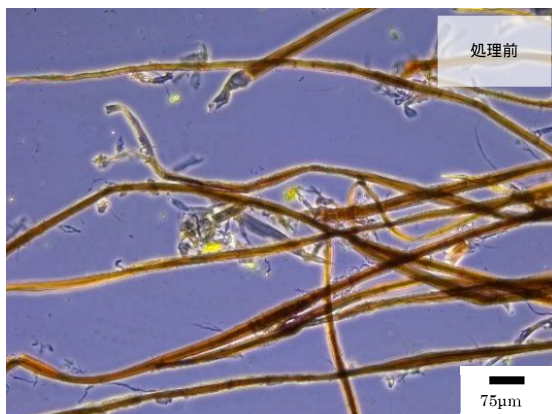


図6 外部フィブリル化処理前後の楮繊維(20 pass)、位相差顕微鏡観察

摺り合わせ調整後の砥石を用いて、楮繊維 25 g を水道水 5 L に分散させ、石臼式摩砕機に通液することで外部フィブリル化処理を 5 pass、10 pass、20 pass・・・と変えながら試作を行った。石臼を用いて試作した外部フィブリル化楮繊維を図6に示す。処理により繊維の周囲にひげ状のフィブリルが生成していることが確認された。

(2) 外部フィブリル化繊維を用いて模擬的な漉嵌め法で作成した試験片の引張試験による接着性評価

図7に示すように、補填部原料繊維に外部フィブリル化楮繊維を添加した試料では、無添加の対照試料(未処理楮繊維のみ)に比較し、本紙部分と補填紙部分の引張強度が増加する傾向がみられ、その接着性が向上することを確認した。これまでの研究より 20 pass、40 pass の外部フィブリル化楮繊維では添加量が増えると、補填部の紙の質感が、本紙の楮紙と大きく異なるため、それぞれ 50%、20% の添加量を最大として評価したが、いずれの pass 回数 の試料でも、添加量の増加に伴う接着性の向上を確認した。

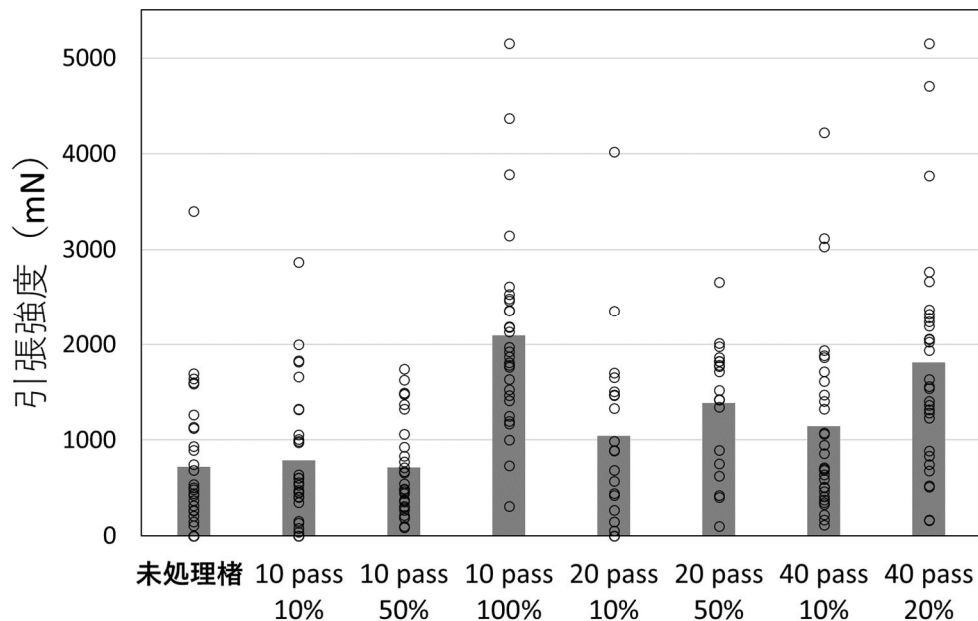


図7 シートマシンにより作製した模擬補填紙試料における補填紙部と本紙の引張試験による接着性評価

(3) 修理技術者による官能評価

2種の楮繊維に各種処理回数の外部フィブリル化楮繊維を少量添加(10%)した試料では、20 pass 処理の外部フィブリル化楮繊維を添加した場合に、本紙と補填紙の接着性が最も高い評価を得た(図8)。そこで、20 pass 処理外部フィブリル化楮繊維の添加量を増やして評価した結果を表1に示す。補填繊維を全て外部フィブリル化繊維とした試料では作業時の分散性が低下し、添加量が 50%以上の試料でも地合が下がった。40%までは添加しても大きな問題は生じない可能性が示された。

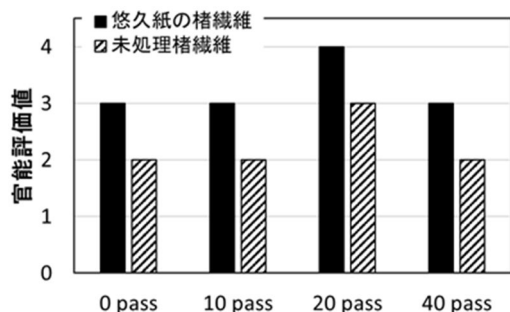


表 1 補填紙に外部フィブリル化(20 pass)楮繊維を添加したときの修理技術者による官能評価

添加率(%)	分散性*	地合*	接着性*
20	○	○	4
30	○	○	4
40	○	○	4
50	○	△	4
100	△	×	3

図 8 補填紙楮繊維を添加(10%)したときの修理技術者による接着性評価

\*分散性:作業時の繊維分散性 地合:補填紙の均一性  
接着性:図6の評価値

(官能評価値)

- 1: 接着していない
- 2: ほとんど接着していない
- 3: 接着しているが実用強度に達しない
- 4: ほぼ接着していると思われる
- 5: 実用強度に十分達している

#### (4) 結論

外部フィブリル化楮繊維を製造する際には石臼式摩砕機(スーパーマスコロイダー)の砥石の摺り合せ処理が重要である。

シートマシンにより作製した模擬補填紙について、補填紙部と本紙の接着性を引張強度により評価し、補填繊維に外部フィブリル化楮繊維を添加すると接着性が向上することが示された。さらに、修理技術者による澁嵌め試料の各種官能評価では、20 pass 外部フィブリル化楮繊維の添加で接着性は最も増加し、その添加量は40%より低い方が分散性、地合い、接着性ともに良好であることがわかった。

以上の結果より、外部フィブリル化楮繊維製造方法を確立し、その紙本補填材料としての有用性を確認した。

#### 【引用文献】

- (1) Keiko KIDA, Yuko KASEYA, Masaki HANDA, Mao TONUYAMA, Noriyoshi NISHIDA, Manato, FUJIMOTO, Ryota KOSE, Takayuki OKAYAMA, Masamitsu INABA: Preparation of a Novel Adhesive from Highly Fibrillated Kozo Fibre for Paper Conservation Restaurator 2024 <https://doi.org/10.1515/res-2023-0025> (Published online: May 13,2024)

#### 【謝辞】

修理技術者による官能評価にご協力を頂きました株式会社半田九清堂の佐伯勇成様に深く感謝申し上げます。本研究において、マスコロイダー装置に関するご助言等を頂きました愛媛大学の内村浩美先生および秀野晃大先生、楮繊維調製にご協力頂きました高知県立紙産業技術センターに御礼申し上げます。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kida Keiko, Handa Masaki, Okayama Takayuki, Kose Ryota, Nishida Noriyoshi, Fujimoto Manato, Kaseya Yuko, Tonoyama Mao, Inaba Masamitsu	4. 巻 45
2. 論文標題 Preparation of a Novel Adhesive from Highly Fibrillated Kozo Fibre for Paper Conservation	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Restaurator. International Journal for the Preservation of Library and Archival Material	6. 最初と最後の頁 17 ~ 34
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1515/res-2023-0025	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 西田典由、貴田啓子、加瀬谷優子、岩田直美、藤本真人、半田昌規、稲葉政満
2. 発表標題 紙文化財補修用材料としての高機能化楮織の調製 - 砥石摺り合わせの改善と外部フィブリル化処理 -
3. 学会等名 文化財保存修復学会第45回大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 貴田啓子、加瀬谷優子、半田昌規、稲葉政満、西田典由、藤本真人、殿山真央、小瀬亮太、岡山隆之
2. 発表標題 ナノセルロース製造法を応用した修復用楮繊維材料の評価
3. 学会等名 文化財保存修復学会第43回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加瀬谷優子、貴田啓子、西田典由、藤本真人、半田昌規、稲葉政満
2. 発表標題 紙文化財補修用材料としての高機能化楮繊維の調製方法の検討
3. 学会等名 文化財保存修復学会第44回大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 貴田啓子、西田典由、藤本真人、岩田直美、半田昌規、稲葉政満
2. 発表標題 高度外部フィブリル化楮繊維のリーフキャストによる評価
3. 学会等名 文化財保存修復学会第46回大会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	半田 昌規 (Handa Masaki) (20538764)	広島市立大学・芸術学部・研究員  (25403)	
研究分担者	貴田 啓子 (Kida Keiko) (20634918)	東京藝術大学・大学院美術研究科・准教授  (12606)	
研究分担者	藤本 真人 (Fujimoto Manato) (20827521)	愛媛県産業技術研究所(紙産業技術センター)・技術支援室・研究員  (86305)	
研究分担者	西田 典由 (Nishida Noriyoshi) (80502898)	独立行政法人国立文化財機構東京文化財研究所・保存科学研究センター・アソシエイトフェロー  (82620)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	加瀬谷 優子  (Kaseya Yuko)		
研究協力者	岩田 直美  (Iwata Naomi)  (00911538)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関