

تأثیر به‌کارگیری نانوالیاف سلولزی بر ویژگی‌های کاغذ چندلایه تهیه‌شده از الیاف بازیافتی

چکیده

استفاده از نانوالیاف سلولزی به‌عنوان افزودنی مقاومت‌دهنده در بخش پایانه تر ماشین کاغذ مقاومت‌های کلی کاغذ را افزایش می‌دهد. اما افزایش قابل‌ملاحظه زمان آبیگری از سوسپانسیون خمیرکاغذ و کاهش تخلخل و ماتی کاغذ ازجمله محدودیت‌های اساسی به‌کارگیری از آن در این بخش کاغذسازی گزارش شده است. در این پژوهش، تأثیر استفاده از نانوالیاف سلولزی در بخش شکل‌گیری کاغذ بر روی ویژگی‌های کاغذ سه‌لایه تهیه‌شده از الیاف بازیافتی موردبررسی قرار گرفت. نمونه‌های الیاف بازیافتی از صنایع خمیر و کاغذ اترک تهیه شد. بدین منظور خمیرکاغذ پالایش‌شده و پراکنده نشده به ترتیب برای تهیه کاغذ لایه رویی و دولایه دیگر استفاده شدند. از هر یک از خمیرکاغذهای بازیافتی کاغذهای دست‌ساز استاندارد با گراماژ 40 ± 2 گرم بر مترمربع تهیه شد. سپس پاشش نانوالیاف سلولز در چهار سطح ۱، ۲، ۴ و ۶ درصد (بر اساس وزن خشک الیاف) بر روی یک سطح ورقه تر و متعاقباً مکش ملایم آن با استفاده از دستگاه پاشش نانوالیاف سلولز که در پردیس علمی تحقیقاتی زیراب طراحی و ساخته شد، انجام گرفت. با استفاده از کاغذهای تیمارشده، کاغذ سه‌لایه با گراماژ حدود 120 ± 5 گرم بر مترمربع تهیه و ویژگی‌های آن مورد ارزیابی قرار گرفت. نتایج کلی نشان داد که پاشش نانوالیاف سلولز بر روی ورقه در حال شکل‌گیری، به ترتیب باعث افزایش شاخص‌های کششی و ترکیدن کاغذ به میزان $33/59$ و $26/29$ درصد شده است. این فرآیند به‌ویژه تأثیر فراوانی در بهبود مقاومت بین لایه‌های کاغذ چندلایه دارد که در این نوع کاغذها بسیار مهم است. به‌طوری‌که مقدار این مقاومت از حدود 116 J/m^2 به 217 J/m^2 افزایش معنی‌داری یافته است. تصاویر SEM تهیه‌شده از ضخامت کاغذ، اتصال بیشتر بین لایه‌ها و فشردگی کاغذ چندلایه را تأیید می‌کند.

واژگان کلیدی: الیاف بازیافتی، کاغذ چندلایه، نانوالیاف سلولز، شکل‌گیری، مقاومت بین لایه‌ها.

حمیدرضا رودی^{۱*}داود آتون^۲حسین جلالی ترشیزی^۳رحمان جعفری پطودی^۴

^۱ استادیار گروه مهندسی پالایش زیستی، دانشکده مهندسی انرژی و فناوری‌های نوین، دانشگاه شهید بهشتی، زیراب، ایران

^۲ دانشجوی فارغ‌التحصیل کارشناسی ارشد، گروه مهندسی فناوری سلولز و کاغذ، دانشکده مهندسی انرژی و فناوری‌های نوین، دانشگاه شهید بهشتی، زیراب، ایران

^۳ استادیار گروه مهندسی پالایش زیستی، دانشکده مهندسی انرژی و فناوری‌های نوین، دانشگاه شهید بهشتی، زیراب، ایران

^۴ استادیار گروه مهندسی پالایش زیستی، دانشکده مهندسی انرژی و فناوری‌های نوین، دانشگاه شهید بهشتی، زیراب، ایران

مسئول مکاتبات:

[Email:h_rudi@sbu.ac.ir](mailto:h_rudi@sbu.ac.ir)

تاریخ دریافت: ۱۳۹۶/۱۰/۱۶

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۶/۱۲/۰۵

مقدمه

کشورهای توسعه‌یافته به حدود ۷۰ درصد رسیده است [۱]. علیرغم تلاش‌های گسترده برای استفاده از الیاف بازیافتی برای تولید این نوع کاغذها، نیاز مصرف‌کننده و بازار به برخی از ویژگی‌ها در آن‌ها هنوز برآورده نشده

امروزه رقابت زیادی برای بازیافت کاغذهای باطله و استفاده از آن برای تولید انواع کاغذهای بسته‌بندی وجود دارد. به‌گونه‌ای که نرخ بازیافت کاغذ در برخی از

این موضوع به لحاظ حفظ خواص اولیه الیاف و افزایش عمر مفید آن از نقطه‌نظر بازیافت کاغذ بسیار حائز اهمیت است.

بر اساس نتایج به‌دست‌آمده توسط محققین، یکی از مهم‌ترین چالش‌های اساسی استفاده از نانوالیاف سلولزی در پایانه تر ماشین کاغذ، افزایش قابل‌ملاحظه زمان آبگیری از سوسپانسیون خمیرکاغذ است [۱۹]. آب‌دوستی فوق‌العاده این ماده و مسدود نمودن منافذ بین الیاف و کاهش شدید نفوذپذیری شبکه کاغذ، عمده‌ترین دلایل تأثیر نانوالیاف سلولز در کاهش نرخ آبگیری از خمیرکاغذ عنوان شده است [۱۹، ۲۰]؛ و با در نظر گرفتن نسبت معکوس بین مقاومت آبگیری خمیرکاغذ و مربع سطح ویژه الیاف [۲۱]، قابل‌انتظار است که نرخ آبگیری با افزایش مقدار نانوالیاف سلولز مصرف‌شده بشدت کاهش یابد. یکی از روش‌های جایگزین در به‌کارگیری از افزودنی مقاومت‌دهنده نانوالیاف سلولز، استفاده از روش پاشش آن بر روی ورقه تر کاغذ شکل‌گرفته است [۲۲]. نتایج بررسی پاشش نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه کاغذ تهیه‌شده از الیاف کرافت پهن‌برگ رنگ‌بری شده حاکی از افزایش مقاومت‌های کاغذ است [۲۳]. در نتیجه با حذف اثر منفی نانوالیاف سلولزی در افت نرخ آبگیری، می‌توان هم‌زمان با ماندگاری بیشتر ذرات نانوالیاف سلولزی در روش پاشش آن، مقاومت‌های کاغذ نهایی را بهبود بخشید. از این‌رو در این پژوهش، اثر استفاده از نانوالیاف سلولزی به‌صورت پاشش بر روی ورقه‌های تر بر روی ویژگی‌های کاغذ ترکیبی سه‌لایه تهیه‌شده از الیاف بازیافتی مورد بررسی قرار گرفت.

مواد و روش‌ها

خمیر کاغذ

جهت انجام این پژوهش، از خمیرکاغذ شرکت صنایع خمیر و کاغذ اترک استفاده شد. خمیرکاغذ پالایش‌شده با درجه روانی ml.CSF 20 ± 24 و با میزان نرمه‌های الیاف حدود 2 ± 32 درصد برای لایه رویی و خمیرکاغذ پراکنده نشده با درجه روانی ml.CSF 21 ± 438 و با میزان نرمه‌های الیاف حدود 2 ± 38 درصد برای تهیه لایه‌های پشتی مورد استفاده قرار گرفت. این خمیرکاغذها بدون هرگونه

است [۲]. از این‌رو هنگامی که هدف به‌کارگیری الیاف بازیافتی برای تهیه کاغذ باشد، مهم‌ترین دغدغه مناسب‌سازی آن برای استفاده در صنعت کاغذسازی است [۳]. عملیات مکانیکی پالایش و کوبش الیاف رایج‌ترین روش در صنعت کاغذسازی برای این منظور است [۴]. پالایش و کوبش با تغییرات مثبت فیبریگی داخلی و خارجی^۲ که در ساختار دیواره الیاف ایجاد می‌کند، باعث افزایش انعطاف‌پذیری و پیوندپذیری آن می‌شود [۵، ۶]. در نتیجه تأثیر قابل‌توجهی در افزایش اکثر مقاومت‌های کلی کاغذ دارد [۷]. در مقابل، این تیمارهای مکانیکی محدودیت‌هایی نیز ایجاد می‌کنند که عبارتند از: تخریب ساختار الیاف و افزایش قابل‌ملاحظه نرمه‌های الیاف [۸]، افزایش زمان آبگیری از سوسپانسیون خمیرکاغذ [۳]، کاهش نرخ تولید کاغذ [۹]، کاهش مقاومت‌های وابسته به طول الیاف به علت تخریب ساختار دیواره سلولی الیاف [۱۰] و کوتاه شدن آن [۱۱] که از مهم‌ترین معایب آن محسوب می‌شود.

استفاده از تیمارهای شیمیایی همانند افزودنی‌های مقاومت خشک در بخش پایانه تر از جمله به‌کارگیری نشاسته کاتیونی؛ از دیگر روش‌های رایج برای حل این مشکل است [۱۲]. نکته بسیار مهم و اساسی در استفاده از این مواد این است که اگر بتوان مقدار بیشتری از این مواد مقاومت‌دهنده را جذب سطح الیاف نمود، پیوندپذیری الیاف افزایش‌یافته و در نهایت مقاومت‌های کاغذ حاصله افزایش می‌یابد [۱۳، ۱۴]. اما به دلیل استفاده تک‌مرحله‌ای از آن‌ها در روش‌های متداول، امکان جذب مقدار بیشتری از این پلیمرها بخصوص بر روی سطح الیاف بازیافتی وجود ندارد. نانوالیاف سلولزی به‌عنوان نانوماده طبیعی معرفی‌شده در سال ۱۹۸۳ [۱۵]، افزودنی جدیدی است که در کاغذسازی، به‌عنوان یک مقاومت‌دهنده خشک و تر در بخش پایانه تر و نیز به‌عنوان یک پوشش در بهبود ویژگی‌های ممانعتی در کاغذ توجه زیادی را در صنعت کاغذسازی به خود جلب کرده است [۱۶، ۱۷، ۱۸]. مهم‌ترین مزیت استفاده از نانوالیاف سلولزی نسبت به عملیات مکانیکی پالایش، عدم تخریب ساختار الیاف است.

¹ Beating

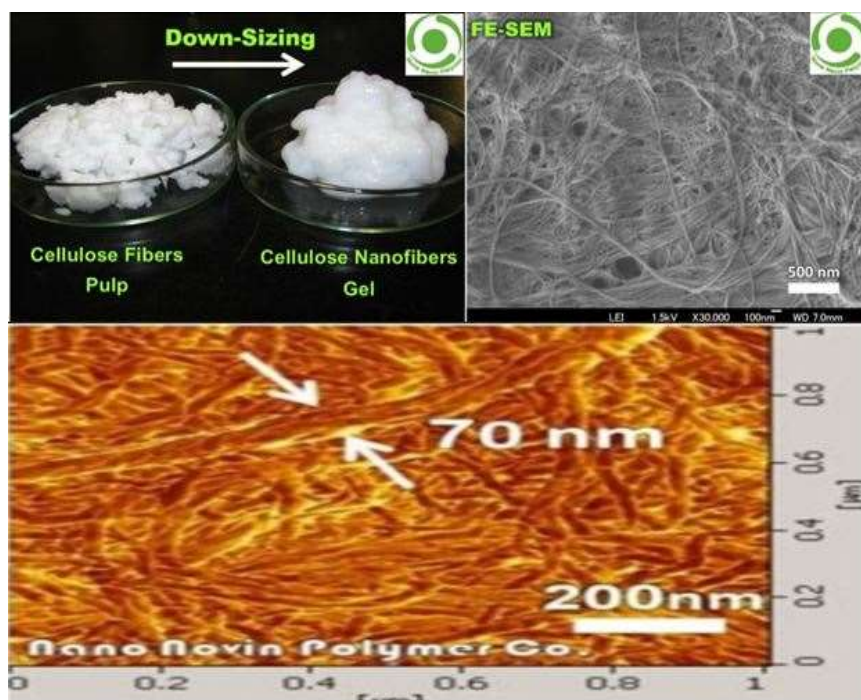
² Internal and external fibrillation

شده^۲ و تهیه شده به روش مکانیکی آسیاب کردن^۳ خمیر الیاف بلند وارداتی کارخانه چوب و کاغذ مازندران، از شرکت دانش بنیان نانونوین پلیمر (پارک علم و فناوری مازندران) و به صورت ژل سفیدرنگ با خشکی ۳/۳ درصد، متوسط قطر الیاف 28 ± 11 نانومتر، درصد خلوص مشخص ($\leq 99\%$ درصد) خریداری و پس از رقیق سازی با خشکی ۰/۱۵ درصد و پراکنش با دستگاه فراصوت^۴ و در سطوح ۱، ۲، ۴ و ۶ درصد بر مبنای وزن خشک الیاف مورد استفاده قرار گرفت. شکل ۱ تصاویر مربوط به ریزنگارهای میکروسکوپ نیروی اتمی نانوفیبرهای سلولزی مورد استفاده در این تحقیق را نشان می دهد.

افزودنی و به ترتیب از مخزن ذخیره خمیر کاغذ پالایش شده و مخزن خمیر کاغذ جداسازی شده انتخاب و پس از آگیری از آن ها به آزمایشگاه انتقال داده شد. سپس جداسازی الیاف با استفاده از آب شهری با هدایت الکتریکی حدود $380 \mu\text{S}/\text{cm}$ و در جداساز آزمایشگاهی^۱ انجام شد. نمونه ها پس از تعیین دقیق درصد رطوبت، درون کیسه های زیپ کیپ و در شرایط با درجه حرارت تقریبی 5°C نگهداری تا برای ادامه آزمایش ها مورد استفاده قرار گیرد.

نانوالیاف سلولزی

نانوالیاف سلولزی از نوع نانوالیاف سلولز نانوفیبریله



شکل ۱- ریزنگار میکروسکوپ نیروی اتمی نانوفیبرهای سلولزی مورد استفاده در این بررسی

^۲Nanofibrillated cellulose (NFC)

^۳Grinding

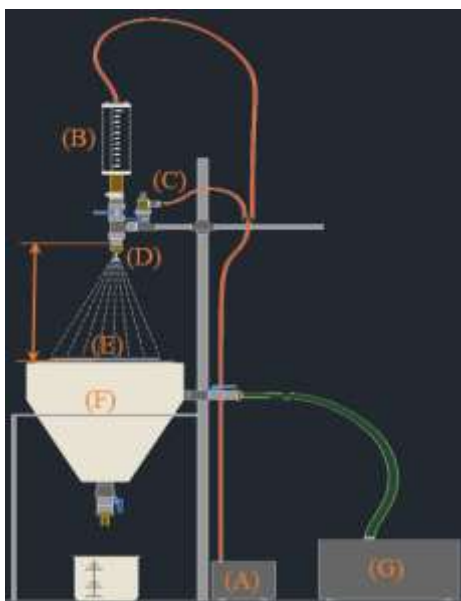
^۴Ultrasonic

^۱Disintegrator

طراحی و ساخت دستگاه آزمایشگاهی پاشش نانوالیاف سلولزی

قبل از عملیات پاشش نانوالیاف سلولزی، با استفاده از دستگاه آزمایشگاهی و بر اساس استاندارد TAPPI شماره T205 sp-02 کاغذ دست‌ساز با گراماژ حدود g/m^2 40 ± 2 تهیه شد. برای پاشش نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه تر کاغذ از دستگاه آزمایشگاهی پاشش نانوالیاف سلولزی استفاده شد. این دستگاه با هدف کاهش خطای انسانی و پاشش یکنواخت نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه تر کاغذ، در کارگاه فنی پارک علم و فناوری زیرآب طراحی و ساخته شد (شکل ۲)؛ که شامل یک سیستم فشار (A) جهت اعمال فشار کنترل‌شده و انتقال فشار به مخزن ذخیره سوسپانسیون نانوالیاف سلولزی (B) است. فشار اعمال‌شده همچنین جهت اختلاط و یکنواخت‌نمودن سوسپانسیون نانوالیاف سلولزی (C) قبل از ورود به نازل

(D) مورد استفاده قرار گرفت. با تنظیم فاصله بین نازل و توری (E) مستقر بر روی مخزن تفلونی (E) پاشش نانوالیاف سلولزی به‌دقت بر روی کل سطح ورقه کاغذ انجام شد. از پمپ خلأ (G) به‌منظور اعمال خلأ ملایم (مکش) جهت نگهداشت نانوالیاف سلولزی در سطح کاغذ و انتقال جزئی آن به بافت شبکه کاغذ استفاده شد. سپس سه ورقه تک‌لایه تیمار شده روی هم قرار گرفته و کاغذ سه‌لایه آزمایشگاهی با وزن پایه حدود g/m^2 120 ± 5 تهیه شد. پاشش نانوالیاف سلولزی در سطوح ۱ تا ۶ درصد باعث افزایش گراماژ به مقدار g/m^2 ۵-۱ شده است و این افزایش در گراماژ نهایی کاغذ سه‌لایه تصحیح شده است. کاغذ چندلایه تهیه‌شده پس از پرس تر و خشک‌کن، بر اساس آیین‌نامه شماره T205 om-88، جهت مشروط‌سازی تحت شرایط استاندارد ($RH \approx 50 \pm 2\%$) و ($T \approx 23 \pm 1^\circ C$) گرفت.



شکل ۲- طرح دستگاه آزمایشگاهی ساخته‌شده جهت پاشش نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه کاغذ

ارزیابی ویژگی‌های خمیر کاغذ و کاغذ

خواص خمیر کاغذ و کاغذ دست‌ساز استاندارد تهیه‌شده از هر یک از تیمارها بر اساس روش‌های مندرج در جدول ۱ تعیین گردید. با استفاده از میکروسکپ الکترونی مدل Hitachi SU 3500 ضخامت کاغذ تیمار نشده و تیمار شده، تصاویر الکترونی تهیه‌شده تا تغییرات در ساختار ظاهری شبکه کاغذ مورد بررسی قرار گیرد. این پژوهش در قالب

طرح آماری کاملاً تصادفی با یک نمونه شاهد (نمونه تیمار نشده) و مقایسه آن با تیمار حاصل از پاشش نانوالیاف سلولزی در ۴ سطح و با ۵ تکرار برای هر آزمون بوده، بررسی‌های آماری آزمون تجزیه واریانس و گروه‌بندی میانگین‌ها با روش آزمون چند دامنه‌ای دانکن و در سطح

¹Analysis of variance (ANOVA)

² Duncan multiple range test (DMRT)

نسبی پیونددار^۳ بین الیاف شود، باعث بهبود مقاومت کششی کاغذ می‌شود [۲۵]. گزارش‌های مختلف بر این نکته تأکید دارند که در اثر افزودن نانوالیاف سلولزی، مقاومت کششی فرآورده‌های کاغذی افزایش می‌یابد. در اثر جذب این ماده سطح تماس بین الیاف در شبکه کاغذ توسعه یافته و در نتیجه پیوند بیشتر و محکم‌تری بین الیاف تشکیل می‌شود [23, 26]. شکل ۳ تغییرات شاخص مقاومت به کشش کاغذ را در اثر پاشش نانوالیاف سلولزی بین لایه‌های آن را در مقایسه با کاغذ پایه (تیمار نشده) نشان می‌دهد. مقاومت به کشش کاغذ از حدود $N.m/g$ $11/35 \pm 22/74$ در کاغذ باز یافتی سه لایه به حدود $N.m/g$ $11/54 \pm 30/38$ به‌طور معنی‌داری ($p \leq 0/05$) و به میزان $33/59$ درصد افزایش یافته است.

معنی‌داری $0/05$ (سطح اطمینان ۹۵٪ درصد) با استفاده از نرم‌افزار SPSS انجام پذیرفت.

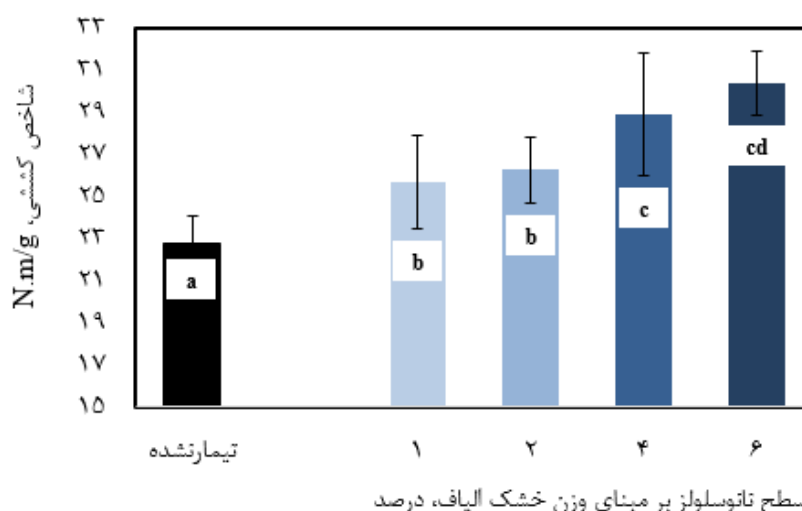
نتایج و بحث

شاخص کششی، زبری سطح کاغذ

یکی از مهم‌ترین خواص مقاومتی کاغذ، مقاومت کششی آن است که تحت تأثیر عواملی از قبیل مقاومت ذاتی الیاف، مقاومت پیوند بین الیاف، تعداد پیوند (سطح پیوند یافته) و توزیع الیاف (کیفیت شکل‌گیری کاغذ) است. دو عامل مقاومت پیوند و سطح پیوند یافته به‌طور فراوانی به‌وسیله مواد افزودنی مقاومت‌دهنده قابل‌افزایش هستند [۲۴] و به‌طور کلی، هر عاملی که بتواند باعث افزایش سطح

جدول ۱- استانداردها و دستگاه‌های تعیین ویژگی‌ها

| دستگاه | آیین‌نامه | ویژگی |
|---------------------------------|---------------|----------------------|
| MARACO PAPER CUTTER | T220 om-60 | برش نمونه‌های آزمونی |
| - | T410 om-02 | گراماژ |
| Mitchell Robert Freeness Tester | T227 om-04 | درجه روانی خمیر کاغذ |
| Dynamic Drainage Jar (DDJ) | SCAN cm 66:05 | میزان نرمه |
| GOTECH Tensile Strength Tester | T494 om-06 | شاخص کششی |
| PPS Roughness Tester | T538 om-16 | زبری سطح |
| Frank Internal Bonding Tester | T569 om-14 | مقاومت بین لایه‌ها |
| DRK 109 Bursting Tester | T403 om-02 | شاخص ترک‌یدن |



شکل ۳- تأثیر پوشش‌دهی شده نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه کاغذ بر شاخص کششی کاغذ. میله خطا روی ستون‌ها نشان‌دهنده میزان انحراف استاندارد است. حروف لاتین متفاوت روی ستون‌ها بیانگر معنی‌داری تفاوت بین میانگین‌ها است.

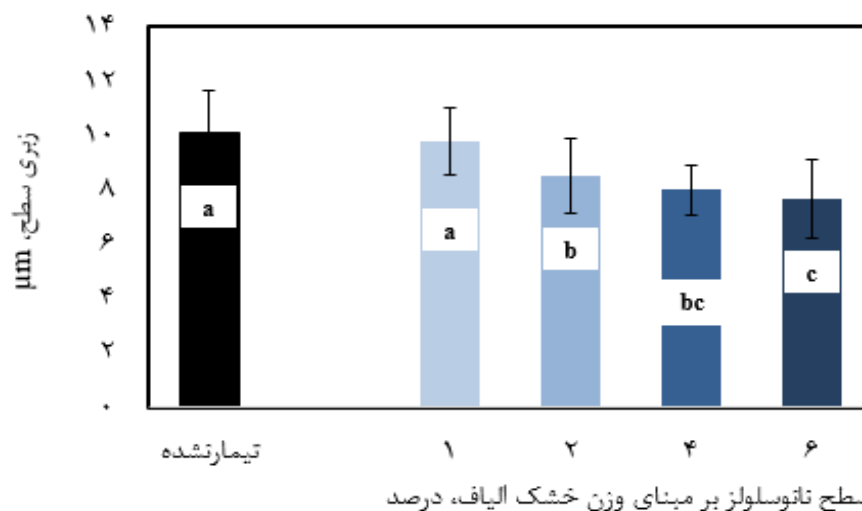
⁵ Relative bonded area (RBA)

³ Significance level

⁴ Confidence level

ورقه کاغذ پوشش‌دهی شده با سطوح مختلف نانوالیاف سلولزی اندازه‌گیری شد. همان‌طور که در شکل ۴ ملاحظه می‌گردد با افزایش سطح پوشش نانوالیاف سلولزی، زبری سطح کاغذ به‌طور معنی‌داری از $10/1 \pm 1/55 \mu\text{m}$ به $7/68 \pm \mu\text{m}$ کاهش یافته است که بیانگر نفوذ ذرات نانوالیاف سلولزی در بافت متخلخل سطح کاغذ و کاهش زبری آن شده است. کاهش متوسط طول الیاف نیز می‌تواند علت دیگری بر کاهش زبری سطح کاغذ باشد [۲۸].

همان‌طور که ملاحظه می‌شود با افزایش میزان پوشش نانوالیاف سلولزی، شاخص کششی کاغذ به‌طور خطی افزایش یافته است. به نظر می‌رسد شکل‌گیری یک فیلم نانوالیاف سلولزی با پیوستگی بیشتر با تشکیل تعداد بیشتر پیوندهای بین لیفی می‌تواند منجر به توسعه شاخص کششی می‌شود [۲۳]. همچنین با قرارگیری نانوالیاف سلولزی در خلل و فرج و ناهمواری‌های سطح ورقه کاغذ، اتصال مکانیکی آن با الیاف افزایش می‌یابد [۲۷]. در تأیید این فرضیه، ویژگی زبری سطح ورقه کاغذ تیمارنشده و



شکل ۴- تأثیر پوشش‌دهی شده نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه کاغذ بر زبری سطح کاغذ. میله خطا روی ستون‌ها نشان‌دهنده میزان انحراف استاندارد است. حروف لاتین متفاوت روی ستون‌ها بیانگر معنی‌داری تفاوت بین میانگین‌ها است.

را به‌خوبی ارزیابی کرد [۳۰]. مقادیر شاخص مقاومت به ترکیدن کاغذهای تولیدشده از نمونه تیمارنشده و تیمارنشده با پوشش نانوالیاف سلولزی در شکل ۵ ارائه شده است. همان‌طور که ملاحظه می‌شود با پوشش نانوالیاف سلولزی در بین لایه‌های کاغذ، شاخص ترکیدن کاغذهای چندلایه به‌طور معنی‌داری افزایش یافته است ($p < 0.05$). شاخص ترکیدن در نمونه کاغذ شاهد از حدود $1/94 \pm 0/94 \text{ kPa.m}^2/\text{g}$ به $2/45 \pm 0/08 \text{ kPa.m}^2/\text{g}$ رشد حدود ۲۶ درصدی داشته است.

شاخص ترکیدن

آزمون ارزیابی مقاومت به ترکیدن کاغذ (آزمون مولن) قدیمی‌ترین روش آزمایش مقاومت کاغذ است و معمولاً بین دو مقاومت کششی و ترکیدن کاغذ همبستگی خوبی وجود دارد. در سطح برابر مقاومت کششی، کاغذی که طول‌شدگی و کرنش در نقطه شکست بیشتری دارد، شاخص مقاومت به ترکیدن آن بیشتر خواهد بود [۲۹]. بدین علت با اضافه‌شدن نانوالیاف سلولزی آستانه شکست شبکه کاغذ در مقابل فشار اعمال‌شده برای ترکیدن آن افزایش می‌یابد [۲۳]. از این رو با استفاده از نتایج این آزمون می‌توان میزان و قدرت اتصال بین الیاف با یکدیگر

¹Mullen

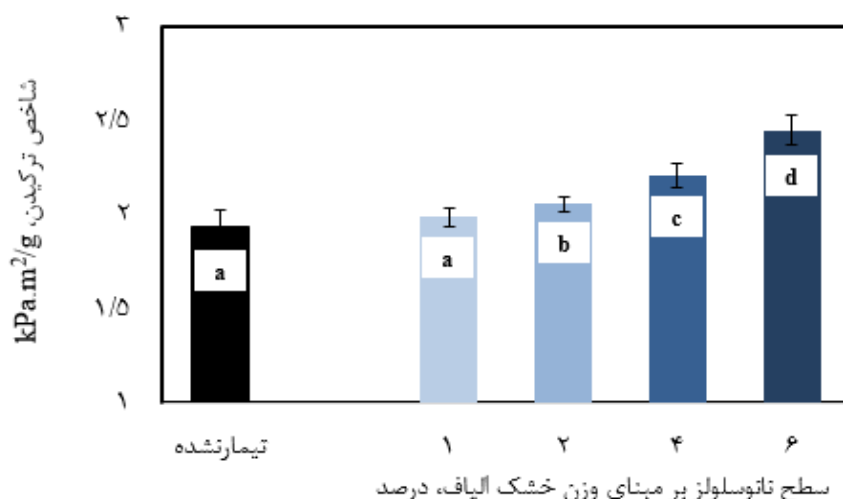
²Elongation

³Strain at break

واقعیت است که بین مقادیر مقاومت بین لایه‌های کاغذهای تهیه‌شده از ورقه کاغذ تیمارنشده و تیمار شده با نانوالیاف سلولز، اختلاف معنی‌داری در سطح 95 درصد وجود دارد (حروف نایکسان در شکل ۶ نشان‌دهنده معنی‌داری در سطح اطمینان 95 درصد است). در بین مقاومت‌های مورد بررسی در این تحقیق، مقاومت بین لایه‌ها بالاترین نرخ افزایش (در حدود دو برابر) را به خود اختصاص داده است که حاکی از تشکیل پیوندهای قوی‌تری بین الیاف در جهت ضخامت و بین لایه‌های ورقه چندان است. ذرات نانوالیاف سلولز در بین لایه‌های ورقه کاغذ به علت سطح ویژه بالا، پیوندهای هیدروژنی بیشتری بین الیاف تشکیل داده و در نتیجه انرژی اتصال بین لایه‌ها افزایش می‌یابد [۳۳].

مقاومت بین لایه‌ها

این آزمون که به آزمون پیوند اسکات^۱ معروف است، به بررسی کیفیت پیوند بین الیاف در جهت Z یا همان پیوند داخلی^۳ بین الیاف در ضخامت ورقه کاغذ و یا مقاومت بین لایه‌های کاغذ چندلایه^۴ می‌پردازد. از ویژگی‌های این آزمون، تأثیرپذیری زیاد آن از افزودنی‌های مقاومت‌دهنده است [۳۱]. ضمن اینکه فیبریلگی خارجی^۵ و نرمه‌های سلولزی به علت میزان RBA بالا، چسبندگی داخلی را در شبکه الیاف توسعه می‌دهند [۳۲]. در نتیجه باعث افزایش مقاومت پیوند داخلی کاغذ می‌شود. از این رو تأثیر پاشش نانوالیاف سلولزی بین ورقه‌های تر بر این ویژگی را می‌توان با توجه به تغییرات شاخص‌های کششی و ترکیدن کاغذهای تهیه‌شده (شکل‌های ۳ و ۵) پیش‌بینی کرد. آنالیز واریانس نتایج آزمون اسکات کاغذ بیانگر



شکل ۵- تأثیر پوشش دهی شده نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه کاغذ بر شاخص ترکیدن کاغذ. میله خطا روی ستون‌ها نشان‌دهنده میزان انحراف استاندارد است. حروف لاتین متفاوت روی ستون‌ها بیانگر معنی‌داری تفاوت بین میانگین‌ها است.

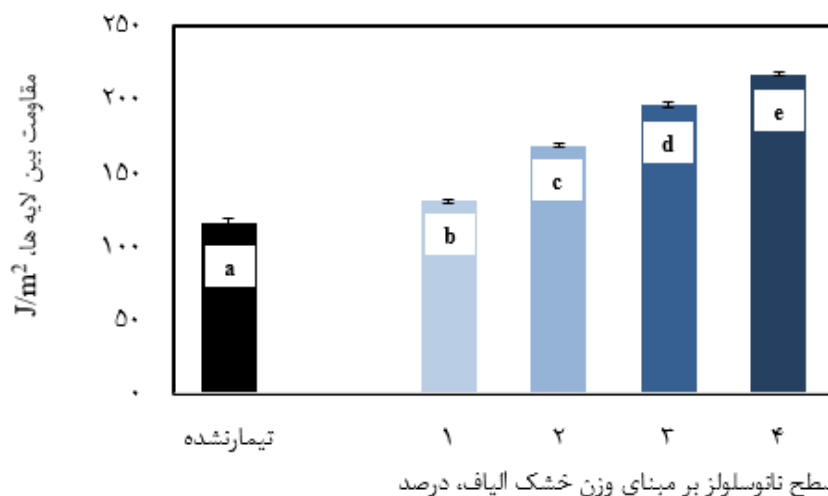
¹Scott bond

²Z-direction

³Internal bonding (IB)

⁴Plybond

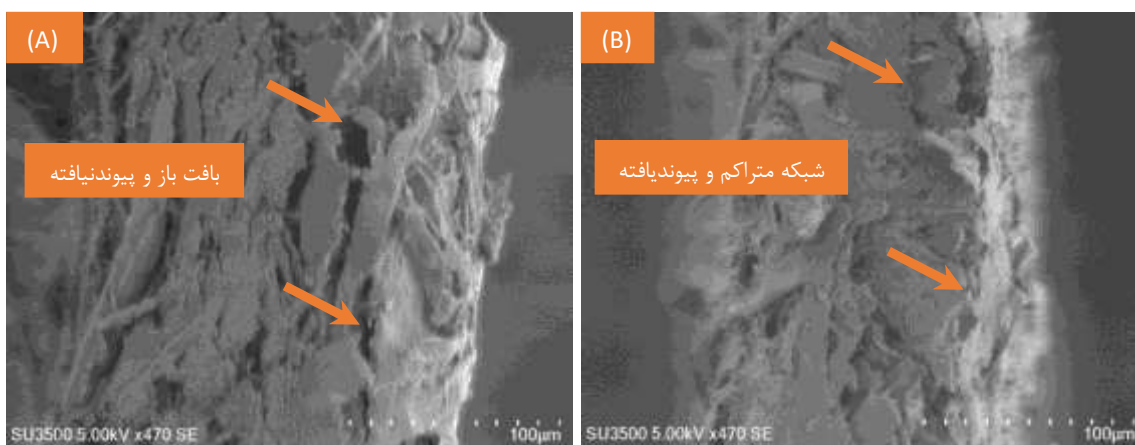
⁵External fibrillation



شکل ۶- تأثیر پوشش دهی شده نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه کاغذ بر مقاومت بین لایه‌های کاغذ. میله خطا روی ستون‌ها نشان دهنده میزان انحراف استاندارد است. حروف لاتین متفاوت روی ستون‌ها بیانگر معنی داری تفاوت بین میانگین‌ها است.

سلولز، توسعه سطح پیوندیافته بین الیاف در شبکه کاغذ و افزایش تراکم و فشردگی بافت آن مشاهده می‌شود. علت این موضوع را می‌توان به نقش نانوالیاف سلولز نسبت داد که با الحاق به سطح الیاف شبیه فیبریلگی خارجی الیاف عمل کرده که می‌تواند در فضای خالی بین الیاف شبیه ژل، پل تقویتی بین الیاف-الیاف برقرار نماید [۳۴].

شکل ۷ ریزنگارهای تهیه شده از ضخامت نمونه‌های کاغذ تیمار نشده و کاغذ تیمار شده با پاشش نانوالیاف سلولز را نشان می‌دهد. بر اساس اطلاعات شکل A، تصویر تهیه شده از کاغذ تیمار نشده بیانگر وجود سطوح پیوندیافته بین الیاف است. از این رو در شبکه الیاف، فضای خالی و خلل و فرج به وضوح مشاهده می‌شود. در صورتی که در تصویر B، به علت ظرفیت بالای پیوندیابی ذرات نانوالیاف



شکل ۷- ریزنگارهای پوشش الکترونی (بزرگنمایی ۴۷۰ برابر) تهیه شده از A: ضخامت کاغذ (نمونه تیمار نشده) و B: ضخامت کاغذ پوشش دهی شده با نانوالیاف سلولزی

ارتقاء خواص مقاومتی کاغذ نهایی حائز اهمیت است. توسعه مقاومت‌ها در کاغذهای حاصل از الیاف بازیافتی با استفاده از افزودن نانوالیاف سلولزی در پایانه تر ماشین کاغذ همراه با محدودیت اساسی افزایش زمان آبگیری از

نتیجه‌گیری

الیاف بازیافتی منبع عمده برای تأمین ماده اولیه فیبری برای تولید انواع کاغذهای بسته‌بندی محسوب می‌شوند. با توجه به افت خواص مقاومتی این نوع الیاف،

که پاشش دوغاب نانوالیاف سلولز بر روی لایه تر کاغذ باعث بهبود مقاومت‌های کاغذ سه‌لایه می‌شود. به نظر می‌رسد افزایش پاشش مقدار نانوالیاف سلولزی از طریق تشکیل لایه نانوالیاف سلولزی با پیوستگی بیشتر منجر به افزایش بیشتر مقاومت‌ها می‌گردد. این روش می‌تواند به‌عنوان تکنیکی ساده و سریع برای بهبود مقاومت بین لایه‌ها که در کاغذهای بسته‌بندی از اولویت و ضرورت بسیار بالایی برخوردار است، مورد استفاده قرار گیرد.

سوسپانسیون خمیر کاغذ در بسیاری از پژوهش‌ها گزارش شده است. در تحقیق حاضر با هدف حذف این محدودیت، بررسی تأثیر پاشش نانوالیاف سلولزی بر روی ورقه تر کاغذ بر ویژگی‌های کاغذ سه‌لایه تهیه‌شده از الیاف بازیافتی انجام گرفته است. افزایش گراماژ به‌اندازه $5-1 \text{ g/m}^2$ در اثر پاشش ۱ تا ۶ درصد نانوالیاف سلولزی بیانگر ماندگاری زیاد آن است و به‌عنوان یک مزیت نسبت به افزودن آن در پایانه تر مطرح است. نتایج این پژوهش همچنین نشان داد

منابع

- [1] Ervasti, I., Miranda, R. and Kauranen, I., 2016. A global, comprehensive review of literature related to paper recycling: A pressing need for a uniform system of terms and definitions. *Waste management*, 48:64-71.
- [2] Navaee-Ardeh, S., 2007. A new model for maximizing the bending stiffness of a symmetric three-ply paper or board. *Pulp and Paper Canada*, 108(4):45-47.
- [3] Wistara, N. and Young, R.A., 1999. Properties and treatment of pulps from recycled paper. Part I. Physical and chemical properties of pulps. *Cellulose*, 6:291-324.
- [4] Gharekhani, S., Sadeghinezhad, E., Kazi, E.S.N., Yarmand, H., Badarudin, A., Safaei, M. and Mohd Zubir, M.M., 2015. Basic effects of pulp refining on fiber properties—A review. *Carbohydrate Polymers*, 115:785-803.
- [5] Nugroho, D.D.P., 2012. Low consistency refining of mixtures of softwood & hardwood bleached kraft: Effects of refining power, Thailand, Asian Institute of Technology.
- [6] Haavisto, S., Koskenhely, K. and Paulapuro, H., 2008. Effect of fiber flocculation and filling design on refiner loadability and refining characteristics. *BioResources*, 3(2):403-424.
- [7] Fernando, D., Muhi, D., Engstrand, P. and Daniel, G., 2011. Fundamental understanding of pulp property development under different thermomechanical pulp refining conditions as observed by a new Simons' staining method and SEM observation of the ultrastructure of fiber surfaces. *Holzforschung*, 65(6):777-786.
- [8] Jones, B.W., Venditti, R., Park, S., Jameel, H. and Koo, B., 2013. Enhancement in enzymatic hydrolysis by mechanical refining for pretreated hardwood ligno-cellulosics. *Bioresource Technology*, 147:353-360.
- [9] Malton, S., Kuys, K., Parker, I. and Vanderhoek, N., 1998. Adsorption of cationic starch on eucalypt pulp fibers and fines. *Appita Journal*, 51(4):292-298.
- [10] Hubbe, M.A., Venditti, R.A. and Rojas, J.O., 2007. What happens to cellulosic fibers during papermaking and recycling? A Review. *BioResources*, 2(4):739-788.
- [11] Ellis, R.L. and Sendlachek, K.M., 1993. Recycled versus virgin-fiber characteristics: A comparison in secondary fiber recycling, R. J. Spangenberg (ed.), TAPPI Press, Atlanta, GA. 268 p.
- [12] Gurnagul, N., 1995. Sodium hydroxide addition during recycling: effects on fiber swelling and sheet strength. *Tappi Journal*, 78(12):119-124.
- [13] Wagberg, L., Forsberg, S., Johansson, A. and Juntti, P., 2002. Engineering of fiber surface properties by application of the polyelectrolyte multilayer concept. Part 1: Modification of paper strength. *Journal of pulp and paper science*, 28(7):222-228.
- [14] Eriksson, M., Notley, S.M. and Wagberg, L.J., 2005. The influence on paper strength properties when building multilayers of weak polyelectrolytes onto wood fibres. *Journal of Colloid and Interface Science*, 292:38-45.
- [15] Turbak, A., Snyder, F. and Sandberg, K., 1983. Microfibrillated cellulose, a new cellulose product: properties uses and commercial potential. *Journal of Applied Polymer Science*, 37:815-827.

- [16] Gonzalez, I., Boufi, S., Pelach, M.A., Alcalá, M., Vilaseca, F. and Mutje, P., 2012. Nanofibrillated cellulose as paper additive in eucalyptus pulps. *BioResources*, 7(4):5167–5180.
- [17] Lindstrom, T. and Aulin, C., 2014. Market and technical challenges and opportunities in the area of innovative new materials and composites based on nanocellulosics. *Scandinavian Journal of Forest Research*, 29:345–351.
- [18] Shatkin, J.A., Wegner, T.H. and Bilek, E.M., 2014. NanoMarket projections of cellulose nanomaterial-enabled products—Part 1: Applications. *Tappi Journal*, 13:9–16.
- [19] Boufia, S., Gonzalez, I., Delgado-Aguilar, M., Tarres, Q., Pelach, M.A. and Mutje, P., 2016. Nanofibrillated cellulose as an additive in papermaking process: A review. *Carbohydrate Polymers*, 154:151–166.
- [20] Rantanen, J. and Maloney, T.C., 2013. Press dewatering and nip rewetting of paper containing nano- and microfibril cellulose. *Nordic Pulp & Paper Research Journal*, 28(4):582–587.
- [21] Hubbe, M.A. and Heitmann, J.A., 2007. Review of factors affecting the release of water from cellulosic fibres during paper manufacture. *BioResources*, 2(3):500–533.
- [22] Mirmehdi, S., Hein, P.R., Sarantopoulos, C.I., Dias, A.V. and Tonoli, G.H., 2017. Cellulose nanofibrils/nanoclay hybrid composite as a paper coating: Effects of spray time, nanoclay content and corona discharge on barrier and mechanical properties of the coated papers. *Food Packaging and Shelf Life*, <https://doi.org/10.1016/j.fpsl.2017.11.007>.
- [23] Beneventi, D., Chaussy, D., Curtil, D., Zolin, L., Gerbaldi, C. and Penazzi, N., 2014. Highly Porous Paper Loading with Microfibrillated Cellulose by Spray Coating on Wet Substrates. *Industrial Engineering and Chemistry Research*, 53:10982–10989.
- [24] Maurer, H., 1998. Opportunities and challenges for Starch in the Paper industry. *Starch/Stärke*, 50:396-402.
- [25] Hubbe, M., 2006. Bonding between cellulosic fibers in the absence and presence of dry-strength agent-A review. *Bioresource*, 1(2):281-318.
- [26] Chinnama, P.R., Mantravadia, R., Jimenez, J.C., Dikinb, D.A. and Wundera, S.L., 2016. Lamellar, micro-hase separated blends of methyl cellulose and dendritic polyethylene glycol, POSS-PEG. *Carbohydrate Polymers*, 136:19–29.
- [27] Gardner, D.J., Oporto, G.S., Mills, R. and Samir, M.A.S.A., 2008. Adhesion and surface issues in cellulose and nanocellulose. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 22(5-6):545-567.
- [28] Surip, S.N., Wan Jaafar, W.N.R., Azmi, N.N. and Anwar, U.M.K., 2012. Microscopy observation on nanocellulose from kenaf fibre. *Advanced Materials Research*, 488:72-75.
- [29] Lavoine, N., Desloges, L., Khelifi, B. and Bras, J., 2014. Impact of different coating processes of microfibrillated cellulose on the mechanical and barrier properties of paper. *Journal of Material Science*, 49:2879–2893.
- [30] McKee, R.C., 1971. Effect of repulping on sheet properties and fiber characteristics. *Paper trade journal*, 155: 34-40.
- [31] Rudi, H., Ebrahimi, G., Hamzeh, Y., Behrooz, R. and Nazhad, M.M., 2012. The Effect of Degree of Substitution of Cationic Starch on Multi-layer Formation of Ionic Starches in Recycled Fibers. *Iranian Journal of Polymer Science and Technology*, 25(1):11-18.
- [32] Kang, T. and Paulapuro, H., 2006. Effect of external fibrillation on paper strength. *Pulp and Paper Canada*, 107(7/8):51–54.
- [33] Delgado-Aguilar, M., Gonza, I., Pelach, M.A., De La Fuente, E., Negro, C. and Mutje, P., 2015. Improvement of deinked old newspaper/old magazine pulp suspensions by means of nanofibrillated cellulose addition. *Cellulose*, 22:789–802.
- [34] Xu, Y. and Pelton, R., 2005. A new look at how fines influence the strength of filled papers. *Journal of Pulp and Paper Science*, 31:147–152.

Effect of applying cellulose nanofibers on the properties of multiply paper made from recycled fibers

Abstract

The use of cellulose nanofibers as strength-enhancing additive in the wet end section of paper machine increases the general strengths of paper. Nevertheless, considerable increase in draining time from pulp suspension and decrease in paper porosity and opacity has been reported as substantial restriction of its application in this section of papermaking. In this study, the effect of applying cellulose nanofibers in the forming section of paper was examined on the properties of three-ply paper made from recycled fibers. Samples of recycled fibers were prepared from Atrak pulp and paper industries. The refined and not dispersed pulps were, respectively, used to form top layer and other two layers. Standard sheets with 40 ± 2 g/m² basis weight were prepared from each of the recycled pulps. Then, cellulose nanofibers were sprayed in 1, 2, 4 and 6 levels (based on oven dry weight of fibers) on one sheet surface and subsequently mild suction was done applying cellulose nanofibers spraying machine designed and fabricated in Zirab research campus. Finally, three-ply paper with 120 ± 5 g/m² basis weight were prepared using treated sheets and its properties were evaluated. The overall results revealed that spraying cellulose nanofibers on the forming sheet led to an increase in tensile and burst indices of the paper about 33.59 and 26.29 percent, respectively. This process particularly had a considerable effect on the strength improvement between layers in multiply paper which is the most important in these kinds of papers. Thereby, the value of this strength has been significantly increased from roughly 116 J/m² to 217 J/m². SEM micrographs prepared from paper thickness confirm larger link between layers and multi-ply condensation.

Keywords: recycled fibers, multiply paper, cellulose nanofibers, forming, plybond.

H. Rudi^{1*}
D. Atun²
H. Jalali Torshizi³
S. R. Djafari Petroudy⁴

¹ Assistant Prof., Department of biorefinery engineering, Faculty of new technologies and energy engineering, Shahid Beheshti university, Zirab, Iran

² M.Sc. graduated student, Department of cellulose and paper Technology, Shahid Beheshti university, Zirab, Iran

³ Assistant Prof., Department of biorefinery engineering, Faculty of new technologies and energy engineering, Shahid Beheshti university, Zirab, Iran

⁴ Assistant Prof., Department of biorefinery engineering, Faculty of new technologies and energy engineering, Shahid Beheshti University, Zirab, Iran

Corresponding author:
h_rudi@sbu.ac.ir

Received: 2018/01/06
Accepted: 2018/02/24