



دانشگاه گوارز، دانشکده مهندسی چوب و کاغذ

نشریه پژوهش‌های علوم و فناوری چوب و جنگل

جلد بیست و سوم، شماره چهارم، ۱۳۹۵

<http://jwfst.gau.ac.ir>

## پیش‌بینی ویژگی‌های کاغذهای استیله‌شده و تقویت شده با نانوسلولز با استفاده از شبکه‌های عصبی مصنوعی

\*مژده مشکور<sup>۱</sup>، الیاس افرا<sup>۲</sup> و حسین رسالتی<sup>۳</sup>

<sup>۱</sup> دانشجوی دکتری صنایع خمیر و کاغذ، دانشکده مهندسی چوب و کاغذ، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان،

<sup>۲</sup> دانشیار گروه صنایع خمیر و کاغذ، دانشکده مهندسی چوب و کاغذ، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان،

<sup>۳</sup> آستاد گروه صنایع خمیر و کاغذ، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی ساری

تاریخ دریافت: ۱۳۹۴/۰۲/۲۹؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۴/۰۷/۰۴

### چکیده

**سابقه و هدف:** ویژگی‌های مقاومتی و ممانعتی، از جمله مهم‌ترین ویژگی‌های مورد نیاز برای انواع کاغذ، به‌ویژه کاغذهای چاپ و بسته‌بندی می‌باشند. بنابراین یکی از زمینه‌های مهم تحقیقاتی در صنعت کاغذ، تحقیق در راستای بهبود این ویژگی‌ها است. در این پژوهش، برای نخستین بار از شبکه‌های عصبی مصنوعی در پیش‌بینی ویژگی‌های مقاومتی و ممانعتی کاغذهای استیله‌شده و تقویت‌شده با نانوسلولز استفاده شد.

**مواد و روش‌ها:** سلولز نانوفیبریل‌شده (NFC)، از خمیر کاغذ رنگ‌بری شده تجارتي با روش آسیاب تولید شد. اصلاح کاغذ با دو روش، استیله کردن خمیر پیش از ساخت کاغذ و استیله کردن کاغذ ساخته شده، انجام شد. فرآیند استیله کردن خمیر و کاغذ، در فاز مایع و در دمای ۷۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۱،۰/۵ و ۳ ساعت انجام گرفت. موفقیت اصلاح شیمیایی با استفاده از طیف‌سنجی مادون‌قرمز اثبات شد. دو نوع کاغذ (ترکیبی و غیرترکیبی) ساخته شد. ویژگی‌های کاغذها شامل ضخامت، وزن پایه، حجیمی، طول پارگی، مقاومت به پاره شدن و ممانعت به جذب آب اندازه‌گیری شدند. در

\*مسئول مکاتبه: [mashkour@gau.ac.ir](mailto:mashkour@gau.ac.ir)

طراحی شبکه عصبی مصنوعی، نوع تیمار (تیمار الیاف و تیمار کاغذ)، زمان تیمار (۰/۵، ۱ و ۳ ساعت) و نوع کاغذ (ترکیبی و غیرترکیبی) به‌عنوان ورودی و ویژگی‌های فیزیکی، مقاومتی و ممانعتی کاغذ شامل حجیمی، طول پارگی، مقاومت به پاره شدن و ممانعت به جذب آب به‌عنوان خروجی در نظر گرفته شدند.

**یافته‌ها:** بین همه کاغذها، ضعیف‌ترین ویژگی‌های کاغذ مربوط به کاغذ ساخته شده از خمیر استیله‌شده بود. بهترین ویژگی‌های کاغذ با استیله کردن کاغذ ترکیبی حاصل شد. براساس نتایج، استیله کردن کاغذ تأثیر معنی‌داری بر ویژگی‌های فیزیکی و مکانیکی کاغذ نداشته است ( $p > 0.05$ ). استیله کردن کاغذهای غیرترکیبی و ترکیبی منجر به کاهش جذب آب به ترتیب به میزان حدود ۲۴/۴۶ و ۴۸/۰۹ درصد شد. شبکه عصبی مصنوعی پیش‌خور تعمیم یافته با یک لایه مخفی، تابع انتقال تانژانت آکسون و قاعده آموزش مونتوم به‌عنوان بهترین شبکه انتخاب گردید.

**نتیجه‌گیری:** شبکه عصبی مصنوعی طراحی شده، توانست خصوصیات کاغذها را با متوسط ضریب همبستگی ۹۸/۱۱ پیش‌بینی کند.

**واژه‌های کلیدی:** شبکه عصبی مصنوعی، سلولز نانوفیبریل‌شده، اصلاح کاغذ، استیله کردن، ویژگی‌های کاغذ

#### مقدمه

صنعت بسته‌بندی یکی از مهم‌ترین مصرف‌کنندگان کاغذ است، چنان‌که حدود یک سوم از مواد موردنیاز این صنعت مواد کاغذی و مقوا می‌باشند (۱۹). به‌طور کلی، کاغذهای بسته‌بندی به مقاومت‌های مکانیکی و ویژگی‌های ممانعتی بالایی نیاز دارند. مهم‌ترین ویژگی‌های ممانعتی کاغذهای بسته‌بندی، ویژگی‌های ممانعتی در برابر آب، گازها و روغن می‌باشد (۲۰). به‌طور متداول بهبود خواص ممانعتی این کاغذها، با افزودن عوامل تقویت‌کننده سنتزی و مواد شیمیایی با پایه نفتی به پایانه تر کاغذسازی و استفاده از فناوری‌هایی همچون لمینیت، آهار درونی، آهار سطحی و اندود به‌دست می‌آید (۱۹). همچنین یکی از روش‌های مناسبی که اخیراً به‌منظور بهبود ویژگی‌های ممانعتی، خصوصاً ممانعت در برابر آب، استفاده شده است اصلاح شیمیایی سطح سلولز و مواد سلولزی می‌باشد. در بین

واکنش‌های اصلاح، استیله کردن<sup>۱</sup> یکی از پراهمیت‌ترین آن‌ها می‌باشد (۸). این واکنش یک روش ارزان قیمت و دوست‌دار محیط‌زیست برای ایجاد بیوپلیمرهای ترموپلاستیک می‌باشد و به‌طور گسترده‌ای برای اصلاح چوب استفاده شده است (۲۵، ۳۳). فرآیند استیله کردن، یک واکنش افزایشی می‌باشد که موجب جایگزینی بعضی از گروه‌های هیدروکسیل سلولز با گروه‌های استیل شده و در نهایت سبب کاهش آب‌دوستی مواد سلولزی می‌شود (۱، ۳، ۱۶، ۲۲، ۲۶، ۳۲). از این فرآیند برای بهبود ویژگی ممانعت به آب کاغذ استفاده شده است (۲۶، ۲۹). تاکنون دو روش استیله کردن شامل، استیله کردن الیاف خمیر پیش از ساخت کاغذ و استیله کردن کاغذ ساخته شده، با هدف بهبود ویژگی ممانعتی کاغذ در برابر آب مورد استفاده قرار گرفته‌اند. سلطانی و همکاران (۲۰۱۳) و میرشکرایی و همکاران (۲۰۰۵) گزارش دادند که با استیله کردن الیاف خمیر به سبب مسدود شدن بخشی از گروه‌های هیدروکسیل (عوامل تشکیل پیوند در کاغذ)، ویژگی‌های مقاومتی کاغذ کاهش می‌یابد. در حالی که ویژگی‌های مقاومتی کاغذ استیله‌شده ثابت مانده و یا به‌طور جزئی کاهش می‌یابد (۱۷، ۲۹). به‌طور کلی جذب آب توسط کاغذ از دو طریق انجام می‌شود: الف. جریان موئین به‌واسطه منافذ شبکه کاغذ و ب. برهم‌کنش‌هایی که بین سطح کاغذ و آب، به‌واسطه گروه‌های هیدروکسیل آزاد سلولز و همی‌سلولز الیاف، روی می‌دهد (۲۷). انجام فرآیند استیله کردن به‌سبب جایگزینی بخشی از گروه‌های هیدروکسیل آزاد با گروه‌های استیل، تنها منجر به کاهش برهم‌کنش‌های بین سطح کاغذ و آب می‌شود. در حالی که امکان جذب آب از طریق حفرات کاغذ وجود دارد.

به‌نظر می‌رسد، استفاده از سلولز نانوفیبریل شده<sup>۲</sup> (NFC) در کاغذ، می‌تواند گزینه خوبی برای بهبود بیشتر ویژگی‌های ممانعتی و همچنین ویژگی‌های مقاومتی کاغذ باشد. NFC به الیاف سلولزی فیبریل شده تا حد دسترسی به دستجات میکروفیبریل سلولزی گفته می‌شود که قطرشان در حد نانومتری (کمتر از ۱۰۰ نانومتر) و طولشان چند میکرومتر است (۱۸). در حقیقت افزودن NFC به خمیر منجر به افزایش درگیری‌های مکانیکی فیبریل‌ها، افزایش تعداد پیوندهای هیدروژنی بین الیاف و در نهایت، افزایش مقاومت‌های مکانیکی و ویژگی‌های فیزیکی کاغذ می‌شود (۲، ۷، ۹-۱۱، ۲۸).

**شبکه‌های عصبی مصنوعی:** شبکه‌های عصبی زیرمجموعه‌ای از تکنیک‌های هوش مصنوعی هستند که امروزه در طیف وسیعی برای به‌کارگیری در حل بسیاری از مسائل، شامل حافظه‌های ارتباط‌دهنده،

1- Acetylation

2- Nanofibrillated cellulose

بهینه‌سازی، پیش‌بینی، تشخیص و کنترل رایج شده‌اند (۳۰). هر شبکه عصبی مصنوعی شامل یک لایه ورودی و یک لایه خروجی بوده و در بین این دو لایه یک یا چند لایه مخفی قرار می‌گیرد. در هر لایه چند نرون<sup>۱</sup> وجود داشته که مجموعاً شبیه یک شبکه عصبی بیولوژیک عمل می‌کنند. شبکه‌های عصبی در بسیاری از کاربردها در صنعت کاغذ و دیگر بخش‌ها مورد استفاده قرار گرفته‌اند. بیوراستاک و ولچینا (۱۹۹۲) از جمله نخستین افرادی بودند که از شبکه‌های عصبی مصنوعی در صنعت کاغذ (برای مدل کردن شوینده خمیر قهوه‌ای) استفاده کردند (۵). گسترش مدل‌های شبکه عصبی مصنوعی در ارتباط با عدد کاپا (۶)، پالاینده خرده‌چوب (۲۳) و تخلیه بخار از دیگ بخار<sup>۲</sup> (۴)، گستردگی کاربرد شبکه‌های عصبی مصنوعی را در صنعت کاغذ نشان می‌دهد. کومار و هاند (۲۰۰۰) با هدف پیشگویی و بهینه‌سازی درخشندگی<sup>۳</sup> مقوا و کاغذ پوشش‌دهی شده، از شبکه‌های عصبی و الگوریتم‌های ژنتیک استفاده کردند (۱۵). نیتو و همکاران (۲۰۱۲) از نوارهای رگرسیونی انطباقی چند متغیره<sup>۴</sup> و شبکه‌های پرسپترون چندلایه<sup>۵</sup>، برای ارزیابی کاغذ ساخته شده از اکالیپتوس استفاده کردند (۲۱).

**الگوریتم ژنتیک<sup>۶</sup>:** الگوریتم ژنتیک که ایده آن از سیستم تکامل طبیعی موجودات زنده (ژن و کروموزوم) برگرفته شده، به‌عنوان روش نوین بهینه‌سازی مدل‌های غیرخطی بسیار مناسب بوده و کاربردهای فراوانی دارد (۱۲). روش جستجوی ژنتیک تلاشی برای شبیه‌سازی و به‌کارگیری برخی خصوصیات و توانایی‌های تکامل در بهینه‌سازی می‌باشد.

با مطالعه منابع، تاکنون شبکه عصبی‌های مصنوعی جهت مدل‌سازی خواص مقاومتی و ممانعتی کاغذ به‌کار نرفته‌اند. در این پژوهش برای نخستین بار، از شبکه‌های عصبی مصنوعی در ترکیب با الگوریتم ژنتیک برای پیش‌بینی ویژگی‌های مقاومتی و ممانعتی کاغذ استیله‌شده و تقویت‌شده با نانوسلولز استفاده شد.

- 
- 1- Neuron
  - 2- Boiler
  - 3- Brightness
  - 4- Multivariate adaptive regression splines
  - 5- Multilayer perceptron networks
  - 6- Genetic Algorithm (GA)

## مواد و روش‌ها

مواد موردنیاز: در این تحقیق، خمیر کاغذ سوزنی‌برگ تجارتي (کاج جنوبی<sup>۱</sup>) از شرکت لینترياک فراهم شد و جهت توليد سلولز نانو فیبريله شده و ساخت کاغذهای دست‌ساز مورد استفاده قرار گرفت. ماده کمک نگهدارنده پلی‌آکریل‌آمید کاتیونی با نام تجاری فارینرت<sup>۲</sup> k325، دارای وزن مولکولی زیاد و بارکاتیونی متوسط، از کارخانه صنایع چوب و کاغذ مازندران خریداری شد و پس از محلول‌سازی با غلظت ۰/۰۵ درصد، برای ماندگاری نانوالیاف در سوسپانسیون خمیر جهت ساخت کاغذ دست‌ساز مورد استفاده قرار گرفت. مواد شیمیایی مورد مصرف در این تحقیق شامل: انیدرید استیک، اتانول، استن و تولوئن بودند.

تهیه NFC: NFC با روش آسیاب تهیه شد. بدین ترتیب که ابتدا خمیر الیاف بلند تجارتي به منظور حذف آلودگی‌ها، چند بار با آب شسته شد. سپس سوسپانسیون با غلظت یک درصد از خمیر الیاف بلند تهیه شده و از دستگاه آسیاب (MKCA6-3; Masuko Sangyo Co., Ltd., Japan) سه بار و در ۱۵۰۰ دور در دقیقه عبور داده شد تا NFC تهیه گردد.

آماده‌سازی خمیر کاغذ: پالایش خمیر طبق آیین‌نامه شماره T۲۴۸ sp-۰۰ استاندارد تاپی<sup>۳</sup> انجام شد. با استفاده از دستگاه پالایش‌گر PFI و پس از ۱۰۷۰۰ دور پالایش، درجه روانی خمیر از مقدار اولیه CSF ۷۷۰ به درجه روانی CSF ۳۵۰ رسانده شد. درجه روانی خمیر قبل و بعد از پالایش، مطابق با آیین‌نامه شماره T ۲۲۷ om-۰۴ استاندارد تاپی اندازه‌گیری شد.

اصلاح خمیر کاغذ: اصلاح الیاف خمیر کاغذ مطابق با روش شرح داده شده توسط ردیونوا و همکاران (۲۰۱۱) انجام شد (۲۴). قبل از انجام واکنش استیله کردن به علت مزاحمت آب برای این واکنش، آب‌زدایی خمیر کاغذ با روش تبادل حلال<sup>۴</sup> به ترتیب از آب به استن و از استن به تولوئن انجام شد. به این منظور، سوسپانسیون آبی خمیر کاغذ با درصد خشکی حدود ۱۰ درصد، با استفاده از دستگاه سانتریفیوژ با ۱۰۰۰۰ دور در دقیقه، دمای ۲۳ درجه سانتی‌گراد و به مدت ۱۰ دقیقه، ابتدا به استن و سپس به تولوئن تبادل حلال شد. برای استیله کردن الیاف خمیر کاغذ، ابتدا ظرف واکنش (بالون) در

1- American southern pine (*Pinus* spp.)

2- Farinret

3- TAPPI Standard

4- Solvent extraction

حمام روغن روی هیتر- همزن مغناطیسی قرار داده شد و تا دمای ۷۰ درجه سانتی‌گراد، گرم شد. سپس مقدار ۴۰ گرم الیاف خمیرکاغذ مرطوب در تولوئن، داخل بالون قرار داده شد و در ادامه ۶۰ میلی‌لیتر انیدرید استیک به آن اضافه شد و مجدداً بالون داخل حمام روغن روی هیتر- همزن مغناطیسی قرار داده شد. به‌منظور ممانعت از تبخیر مخلوط واکنش، از سیستم کندانسور آب استفاده شد. اصلاح در دمای ثابت ۷۰ (درجه سانتی‌گراد) و در سه زمان مختلف (۰/۵، ۱ و ۳ ساعت) انجام شد. در پایان زمان به‌منظور توقف کامل واکنش، مخلوط واکنش با قرار گرفتن در حمام یخ سرد شد و سپس برای خروج بقایای انیدرید استیک، به مدت ۳۰ دقیقه و با دور RCF ۷۵۰، سانتریفیوژ انجام شد. بعد از انجام سانتریفیوژ رسوب ایجاد شده، در تولوئن به حالت سوسپانسیون درآمد و مجدداً سانتریفیوژ شد. این عمل دو بار تکرار شد. بعد از این واکنش، سوسپانسیون خمیرکاغذ (در تولوئن) با دقت از تولوئن به استن و از استن به آب تبادل حلال شد.

**ساخت کاغذ دست‌ساز:** کاغذهای دست‌ساز مطابق آیین‌نامه شماره ۹۵- T۲۰۵ sp استاندارد TAPPI تهیه شدند. کاغذهای دست‌ساز به شرح جدول ۱ ساخته شدند.

برای تهیه کاغذهای ترکیبی با افزودن نانوالیاف و پلی‌اکریل‌آمید با استفاده از روش به‌کار برده شده توسط تاپپال و همکاران (۲۰۱۰)، ابتدا سوسپانسیون خمیرکاغذ با ۰/۳ درصد خشکی با دستگاه هم‌زن به مدت ۱۲۰ ثانیه هم زده شد. سپس ۰/۳ درصد پلی‌اکریل‌آمید کاتیونی به آرامی به سوسپانسیون خمیر در حال هم خوردن اضافه شد و بعد از ۱۵ دقیقه هم خوردن، سوسپانسیون نانوالیاف با ۰/۳ درصد خشکی به آن اضافه شد. سوسپانسیون به دست آمده پس از ۱۵ دقیقه هم زدن، در داخل محفظه سیستم ساخت کاغذ دست‌ساز ریخته شد (۳۱). در ادامه مشابه روش‌های متداول عمل گردید. بر اساس نتایج اندازه‌گیری میزان ماندگاری نانوالیاف و نرمه در کاغذ دست‌ساز با استفاده از دستگاه تنگ‌آبگیری دینامیکی (DDJ)، میزان ماندگاری در کاغذهای دست‌ساز ترکیبی ۶۰-۸۰ درصد بود.

جدول ۱- انواع کاغذهای دست‌ساز تهیه شده.

Table 1. The series of handsheets produced in this study.

کد اختصاری Abbreviation	زمان تیمار استیله کردن (ساعت) Acetylation time (h)	ترکیب Composition	کاغذ دست‌ساز Handsheet
UMP	۰	الیاف خمیر کاغذ Pulp	غیر ترکیبی (۱۰۰ درصد خمیر)
UMAP-0.5h	۰/۵	الیاف خمیر کاغذ استیله شده	Unmixed paper (100% Pulp)
UMAP-1h	۱	Acetylated Pulp	
UMAP-3h	۳		
MP	۰	الیاف خمیر کاغذ + NFC Pulp + NFC	ترکیبی (۹۰ درصد خمیر + ۱۰ درصد NFC)
MAP-0.5h	۰/۵	الیاف خمیر کاغذ استیله شده NFC+	Mixed Paper (90% Pulp + 10% NFC)
MAP-1h	۱	Acetylated pulp + NFC	
MAP-3h	۳		

اصلاح کاغذ دست‌ساز: اصلاح کاغذهای دست‌ساز (غیر ترکیبی یا ترکیبی) با استفاده از انیدریداستیک، در فاز مایع و بدون کاتالیزور، انجام شد. ظرف واکنش (بالون) داخل حمام روغن، روی هیتر- هم‌زن مغناطیسی قرار داده شد و تا دمای ۷۰ درجه سانتی‌گراد حرارت داده شد. کاغذها با انیدرید استیک اضافی، درون بالون پیش حرارت‌دهی شده قرار داده شدند. به‌منظور ممانعت از تبخیر انیدرید استیک، از سیستم کندانسور آب استفاده شد. فرآیند استیله کردن در زمان‌های ۰/۵، ۱ و ۳ ساعت انجام شد. بعد از پایان زمان واکنش برای توقف کامل فرآیند کاغذها درون آب غوطه‌ور شدند. برای خروج مواد شیمیایی باقی‌مانده، کاغذهای استیله‌شده با آب کاملاً شسته شدند. سپس مطابق روش متداول پرس و هوا خشک شدند. کاغذهای دست‌ساز به شرح جدول ۲ اصلاح شدند.

جدول ۲- انواع کاغذهای دست‌ساز اصلاح‌شده.

Table 2. The series of treated handsheets.

کد اختصاری Abbreviation	زمان اصلاح (ساعت) Treatment time (h)	نمونه Specimen
AUMP-0.5h	0.5	کاغذ غیر ترکیبی
AUMP-1h	1	Unmixed paper
AUMP-3h	3	
AMP-0.5h	0.5	کاغذ ترکیبی
AMP-1h	1	Mixed Paper
AMP-3h	3	

شناسایی مورفولوژی الیاف خمیر کاغذ و NFC: با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدان<sup>۱</sup> (FE-SEM) (مدل Hitachi S4800, Japan) انجام شد.

آزمون طیف‌سنجی مادون قرمز تبدیل فوریه<sup>۲</sup> (FTIR): با هدف بررسی اثر تیمار استیله کردن بر گروه‌های عاملی، ساختار شیمیایی الیاف خمیر کاغذ و کاغذهای دست‌ساز قبل و بعد از اصلاح شیمیایی با استفاده از روش طیف‌سنجی FTIR و به وسیله دستگاه پرکین-المر RXI<sup>۳</sup> با قدرت تفکیک طیفی ۴ بر سانتی‌متر و ۶۴ اسکن در دقیقه، بین اعداد موجی ۴۰۰ تا ۴۰۰۰ cm<sup>-1</sup>، مورد مطالعه قرار گرفتند.

اندازه‌گیری ویژگی‌های فیزیکی، مقاومتی و ممانعتی: ویژگی‌های فیزیکی، مکانیکی و ممانعتی کاغذهای دست‌ساز براساس دستورالعمل‌های مربوطه در آئین‌نامه تاپی به شرح زیر اندازه‌گیری شدند: وزن پایه کاغذ ۰۲-۴۱۰ om T، ضخامت کاغذ ۰۵-۴۱۱ om T، طول پارگی (مقاومت کششی) ۰۱-۴۹۴ om T، مقاومت به پاره شدن ۰۴-۴۱۴ om T و ممانعت به جذب آب ۰۴-۴۴۱ om T. تجزیه و تحلیل آماری ویژگی‌های کاغذهای دست‌ساز براساس طرح کاملاً تصادفی با استفاده از نرم‌افزار آماری SPSS، به روش آنالیز واریانس یک طرفه<sup>۴</sup> انجام شد.

1- Field-emission scanning electron microscope

2- Fourier transform infrared spectroscopy

3- Perkin-Elmer Spectrum RXI

4- One- way ANOVA



شبکه عصبی مصنوعی: در طراحی شبکه نوع تیمار (تیمار الیاف و تیمار کاغذ)، زمان تیمار ( ۰/۵، ۱ و ۳ ساعت)، نوع کاغذ (ترکیبی و غیرترکیبی) به عنوان ورودی و ویژگی‌های فیزیکی، مقاومتی و ممانعتی کاغذ شامل حجیمی، طول پارگی، مقاومت به پاره شدن و ممانعت به جذب آب به عنوان خروجی در نظر گرفته شدند. شبکه‌ها، توابع، قوانین یادگیری مختلف و تعداد لایه‌های پنهان متفاوت برای پیش‌بینی خواص فیزیکی، مکانیکی و ممانعتی کاغذهای ساخته شده استفاده شد (جدول ۳). در این تحقیق ۶۰ درصد داده‌ها برای آموزش<sup>۱</sup>، ۱۵ درصد برای ارزیابی<sup>۲</sup> و ۲۵ درصد برای آزمون<sup>۳</sup> استفاده شد. نرم‌افزار "Neurosolutions ver.5" برای طراحی و ارزیابی شبکه استفاده شد. فرآیند آموزش برای این شبکه‌ها که شامل تغییر وزن‌ها بین لایه‌های مختلف در طول زمان آموزش است انجام گردید تا جایی که تفاوت بین داده‌های واقعی (برای داده‌های آزمون) و داده‌های پیش‌بینی شده به کمترین حد برسد. از الگوریتم ژنتیک در فرآیند آموزش در ترکیب با سایر الگوریتم‌های خود شبکه عصبی مصنوعی استفاده شد. به این ترتیب که الگوریتم ژنتیک در هر مرحله با کنترل اندازه مرحله<sup>۴</sup> و ضریب ممتوم<sup>۵</sup>، بهترین نتایج را برای پارامترهای موجود انتخاب می‌کند. برای یافتن شبکه‌های با معماری مناسب به کمک الگوریتم‌های آموزشی، از معیار خطای مربعات میانگین<sup>۶</sup> (رابطه ۱) استفاده شد (۱۳). هدف در هر الگوریتم آموزشی، کاهش میزان خطای مربعات میانگین، خطای قدر مطلق میانگین و افزایش مقدار R<sup>2</sup> است.

$$MSE = \frac{\sum_{p=1}^M \sum_{i=1}^N (S_{ip} - T_{ip})^2}{n_p \times n_o} \quad (\text{رابطه ۱})$$

در این معادله، MSE خطای مربعات میانگین در مرحله آموزش، S<sub>ip</sub> خروجی شبکه در نورون i و الگوی p، T<sub>ip</sub> خروجی هدف (حقیقی) در نورون i و الگوی p، n<sub>o</sub> تعداد نورون‌های لایه خروجی، N تعداد نورون‌های خروجی و m تعداد الگوی آزمایشی است. از تابع تانژانت آکسون<sup>۷</sup> در لایه پنهان و لایه خروجی استفاده شد.

- 1- Train
- 2- Cross validation
- 3- Test
- 4- Step Size
- 5- Momentum Rate
- 6- Mean square error
- 7- TanhAxon

جدول ۳- مدل‌ها، توابع انتقال و قوانین یادگیری ارزیابی شده جهت انتخاب بهترین مدل.

Table 3. The evaluated models, transfer functions, and learning rules for choosing the best model.

الگوریتم ژنتیک Genetic Algorithm	قانون یادگیری Learning Rule	تابع انتقال Transfer function	مدل شبکه عصبی مصنوعی Neural network model
به همراه الگوریتم ژنتیک With GA	مومنتوم Momentum	تانژانت آکسون Than Axon	پرسپترون چندلایه Multilayer Perceptron (MLP)
بدون الگوریتم ژنتیک Without GA	کانجاگیت گرادیانت Conjugate Gradient	سیگموئید آکسون Sigmoid Axon	پیش‌خور تعمیم یافته Generalized Feed Forward (GFF)
	لونبرگ مارکوآرت Levenberg Marquard	لینیر تانژانت آکسون Linear Tanh Axon	آنالیز اجزاء اصلی Principal Component Analysis (PCA)
	کوئیک پروپاگیشن Quick Propagation	لینیر سیگموئید آکسون Linear Sigmoid Axon	شبکه بازگشتی Recurrent Network
	دلتا بار دلتا Delta Bar Delta	سافت ماکس آکسون Soft Max Axon	شبکه‌های شعاع مبنا Radial Basis Function (RBF)
	استپ Step	بیاس آکسون Bias Axon	شبکه‌های احتمالی Probabilistic Neural Network (PNN)

## نتایج و بحث

مدل شبکه عصبی مصنوعی: در این پژوهش نوع قاعده آموزشی، تابع انتقال، تعداد نرون لایه مخفی و همچنین تعداد عناصر پردازشی لایه مخفی مورد آزمایش قرار گرفت. در نهایت با توجه به معیارهای ارزیابی شده یاد شده در بخش مواد و روش‌ها، شبکه پیش‌خور تعمیم یافته<sup>۱</sup> با یک لایه مخفی و قاعده آموزش مومنتوم و تابع انتقال تانژانت آکسون به‌عنوان بهترین شبکه انتخاب گردید تا برای پیش‌بینی خواص مقاومتی و ممانعتی در سایر نقاط مورد استفاده قرار می‌گیرد. شبکه‌های عصبی پیش‌خور، ساده‌ترین شکل شبکه‌های عصبی مصنوعی می‌باشند. این شبکه‌ها تنها دارای مسیرهای رو به جلو هستند. برای درک بهتر از وضعیت عملکرد شبکه نمودارهای خروجی شبکه برای مجموعه الگوهای آزمون و پیش‌بینی در شکل‌های ۱ و ۲ ارائه گردیده است.

شکل ۱ الف، مقایسه خروجی واقعی و مقادیر پیش‌بینی شده توسط شبکه را نشان می‌دهد. همچنین در شکل ۱ ب، میانگین مربع خطا (MSE) برای داده‌های آموزشی برحسب تکرار<sup>۲</sup> ارائه شده است.

1- Generalized feed forward (GFF)

2- Epoch

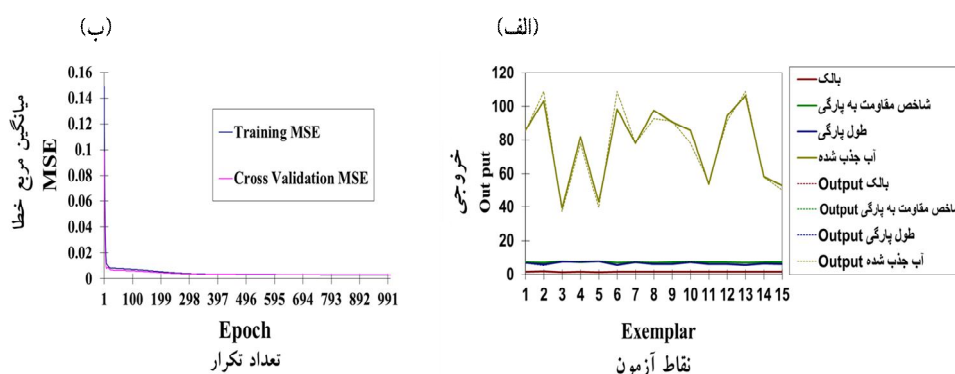
به منظور تعیین تعداد بهینه تکرار، میزان MSE برای داده‌های ارزیابی تعیین گردید. همان‌گونه که از شکل ۱ ب بر می‌آید میزان خطای شبکه برای داده‌های ارزیابی با افزایش تعداد تکرار سیر نزولی دارد و در نهایت به مقدار ثابتی می‌رسد که بیان‌کننده تأثیر تعداد تکرار بر روی توانایی یادگیری شبکه است. همچنین این شکل نشان می‌دهد که خطای موردنظر به حد معقولی رسید و این شبکه قادر است به طور صحیح رابطه بین پارامترهای ورودی و خروجی را تشخیص دهد. نتایج به دست آمده نشان دهنده موفقیت شبکه عصبی مصنوعی طراحی شده در پیش‌بینی خصوصیات مقاومتی و ممانعتی کاغذ می‌باشد.

جدول ۴- مقادیر خطاها و ضریب همبستگی برای خصوصیات مختلف کاغذ.

Table 4. Values of errors and linear correlation coefficient for different paper properties.

ویژگی	بالک	شاخص مقاومت به پارگی	طول پارگی	آب جذب شده
Performance	Bulk	Tear index	Breaking length	Water absorption
میانگین مربع خطا MSE	0.006	0.002	0.044	18.656
میانگین مربع خطا نرمال شده NMSE	0.056	0.042	0.090	0.039
میانگین قدر مطلق خطا MAE	0.021	0.034	0.171	3.247
حداقل خطای مطلق Min Abs Error	0.0003	0.0001	0.034	0.162
حداکثر خطای مطلق Max Abs Error	0.073	0.145	0.413	10.483
ضریب همبستگی خطی <sup>۱</sup> (r)	0.978	0.979	0.982	0.985

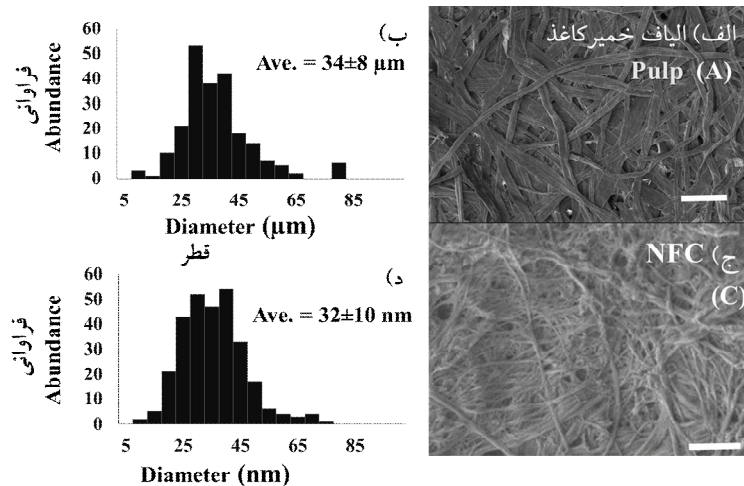
1- Linear Correlation Coefficient



شکل ۱- الف) مقایسه خروجی واقعی شبکه با خروجی پیش‌بینی شده توسط شبکه، ب) میانگین مربع خطای آموزش و خطای ارزیابی در مقابل تعداد تکرار.

Figure 1. A) Comparison of actual network output with desired output B) Training MSE and Cross validation MSE against Epoch.

بررسی ریزنگاره‌های الکترونی از میکرو الیاف و نانوالیاف حاصل از خمیر کاغذ تجارتنی کاج جنوبی: در شکل ۲ ریزنگاره‌های الکترونی، قطر و توزیع قطری الیاف خمیر کاغذ و NFC آورده شده است. با بررسی صورت گرفته، دامنه قطری الیاف خمیر از حدود ۹ تا ۶۵ میکرومتر با متوسط  $34 \pm 8$  میکرومتر به دست آمد (شکل ۲ الف، ب). درحین فرآیند آسیاب و در اثر نیروهای برشی و فشاری ایجاد شده بین سنگ‌های آسیاب، ضمن تبدیل الیاف خمیر به NFC، میانگین قطری آن‌ها به  $32 \pm 10$  نانومتر کاهش یافت (شکل ۲ ج، د). از این تصاویر الکترونی استنباط می‌شود که فرآیند آسیاب به خوبی توانسته نانوفیبریل‌های سلولزی یک‌دست و با کیفیتی را تولید کند. در مطالعه دیگری متوسط قطری نانوفیبریل‌های تولید شده از خمیر سوزنی‌برگ با روش آسیاب  $28 \pm 11$  نانومتر گزارش شده است (۲).

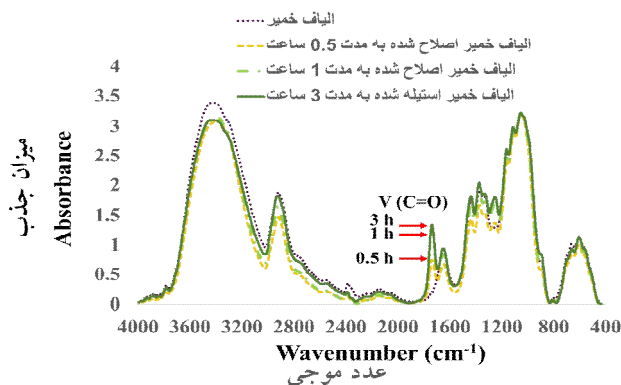


شکل ۲- ریزنگاره‌های الکترونی از الف) میکروالیاف، ج) NFC، حاصل از خمیر کاغذ تجارتنی کاج جنوبی، شاخص مقیاس ۲۰۰ میکرومتر (الف) و ۵۰۰ نانومتر (ج) است.

Figures 2. Electron micrographs of (A) Pulp and (C) NFC, from the commercial pulp produced from southern pine wood.

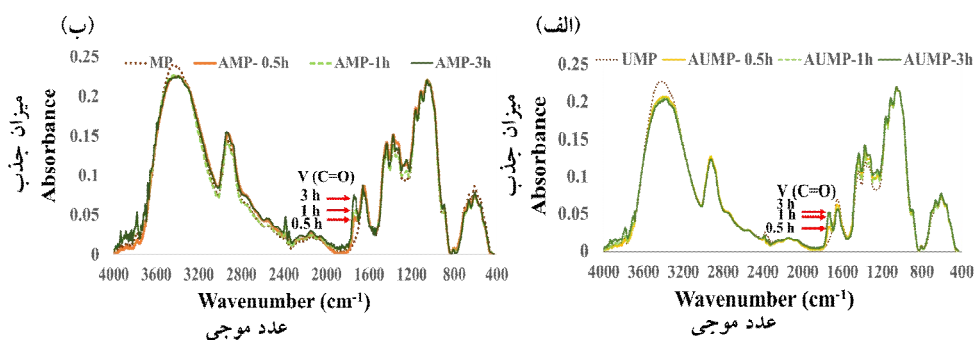
بررسی انجام اصلاح شیمیایی: طیف‌سنجی FTIR تکنیک مطمئن و مؤثری برای بررسی گروه‌های عاملی، به‌وسیله اندازه‌گیری ارتعاشات مولکولی می‌باشد (اسمیت، ۲۰۱۱). بنابراین به‌منظور ارزیابی اثر تیمار استیل‌ه کردن بر خصوصیات شیمیایی الیاف خمیرکاغذ و کاغذ (کاغذهای ترکیبی و غیرترکیبی)، طیف‌سنجی FTIR مورد استفاده قرار گرفت. طیف‌های FTIR حاصل از بررسی الیاف خمیر و کاغذ (غیرترکیبی و ترکیبی) قبل و بعد از اصلاح شیمیایی، در دامنه عدد موجی  $400$  تا  $4000$   $\text{cm}^{-1}$  به‌ترتیب در شکل‌های ۳ و ۴ ارائه شده‌اند. با توجه به شکل‌ها در همه نمونه‌ها، پیک جذبی در محدوده  $3300$ - $3500$   $\text{cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاش کششی گروه‌های هیدروکسیل آزاد مولکول سلولز و پیک جذبی در محدوده  $2900$ - $2950$   $\text{cm}^{-1}$ ، مربوط به کشش گروه‌های C-H سلولز می‌باشد. پیک موجود در محدوده  $1640$ - $1650$   $\text{cm}^{-1}$ ، احتمالاً مربوط به آب جذب شده توسط بخش‌های بلورین سلولز است. پیک جذبی در ناحیه  $1059$   $\text{cm}^{-1}$  مربوط به کشش پیوندهای C-O در پیوندهای گلیکوزیدی C-O-C سلولز و پیک‌های جذبی در ناحیه  $1165$  و  $112$  به‌ترتیب مربوط به کشش غیرمقارن C-O-C و گروه‌های هیدروکسیل الکلی است (۳). همان‌طور که مشاهده می‌شود در الیاف خمیر و کاغذهای استیل‌نشده، طیفی در محدوده  $2400$  و  $1730$  دیده نشد. اما در طیف IR الیاف و کاغذهای اصلاح‌شده وجود گروه‌های استیل پیوند یافته کاملاً مشهود است، به‌طوری که کشش مربوط به گروه‌های کربونیل

C=O در محدوده  $1741-1735\text{ cm}^{-1}$  (۱؛ ۳۲)، خمش مربوط به گروه‌های متیل  $(\text{C}=\text{O})-\text{CH}_3$  در ناحیه  $1375\text{ cm}^{-1}$  و کشش C-O گروه‌های استیل در ناحیه  $1258$  (۲۲)، همگی بیانگر انجام اصلاح موفق الیاف و نانوالیاف سلولزی می‌باشند. همچنین استیله شدن الیاف و نانوالیاف موجب کاهش شدت باند جذبی در ناحیه  $3300-3500\text{ cm}^{-1}$  شده، که بیانگر کاهش گروه‌های هیدروکسیل آزاد سلولز در نتیجه جایگزینی آن‌ها با گروه‌های استیل می‌باشد. عدم حضور پیک جذبی در ناحیه  $1700\text{ cm}^{-1}$  که مربوط به گروه‌های کربوکسیل می‌باشد، بیانگر تهی بودن الیاف و کاغذهای استیله شده از اسید استیک به عنوان فرآورده جانبی است (۱).



شکل ۳- طیف‌های FTIR نرمال شده، حاصل از بررسی الیاف خمیر، قبل و بعد از اصلاح شیمیایی.

Figure 3. Normalized FTIR spectra of unmodified and acetylated pulp fibers.

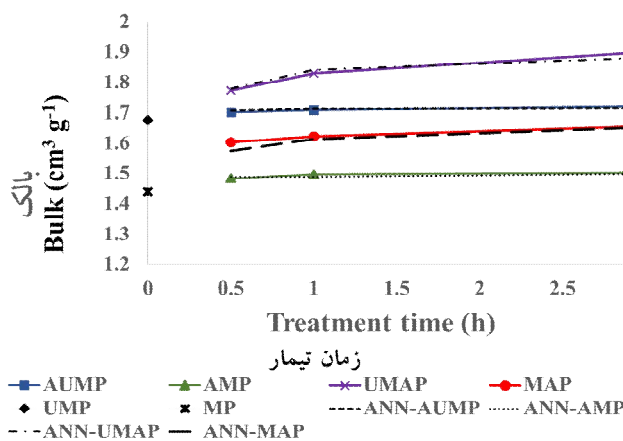


شکل ۴- طیف‌های FTIR نرمال شده، حاصل از بررسی الیاف (الف) الیاف کاغذهای غیرترکیبی، (ب) الیاف کاغذهای ترکیبی قبل و بعد از اصلاح شیمیایی.

Figure 4. Normalized FTIR spectra of unacetylated and acetylated samples of (A) unmixed and (B) mixed papers.

## ویژگی‌های فیزیکی، مقاومتی و ممانعتی کاغذهای دست‌ساز

الف) حجیمی<sup>۱</sup>: شکل ۵ نتایج حاصل از افزودن NFC، استیله کردن خمیر و استیله کردن کاغذهای دست‌ساز ترکیبی و غیرترکیبی را بر حجیمی کاغذهای حاصله را در کنار نتایج حاصل از شبکه عصبی مصنوعی نشان می‌دهد. حجیمی یا بالک، نشان‌دهنده حجمی است که توسط ۱ گرم کاغذ اشغال شده است. حجیمی را می‌توان از تقسیم ضخامت بر وزن پایه محاسبه نمود. با توجه به شکل، بیش‌ترین و کم‌ترین مقادیر حجیمی به ترتیب مربوط به کاغذهای UMAP و MP می‌باشد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، حجیمی کاغذ ساخته شده از الیاف استیله‌شده (UMAP) در مقایسه با حجیمی کاغذ شاهد (UMP) حدود ۹ درصد افزایش یافت. همچنین با افزایش زمان واکنش استیله کردن، افزایش حجیمی بیش‌تر شد. از سوی دیگر با افزودن NFC به خمیر استیله‌شده، حجیمی کاغذ حدود ۱۱/۵ درصد کاهش یافت (کاغذ MAP در مقایسه با کاغذ UMAP). همچنین با افزودن NFC به خمیر پایه (خمیر بدون اصلاح)، حجیمی کاغذ حدود ۱۴ درصد کاهش یافت. بررسی‌های آماری نیز دلالت بر معنی‌داری کاهش حجیمی کاغذ با افزودن NFC داشت ( $p < 0/05$ ). بر پایه نتایج آنالیز آماری، استیله کردن سطح کاغذهای ترکیبی و غیرترکیبی، اثر معنی‌داری بر حجیمی کاغذهای ساخته شده در مقایسه با کاغذ پایه نداشت ( $p > 0/05$ ). نتایج نشان دهنده دقت بالای شبکه در پیش‌بینی نتایج می‌باشد.

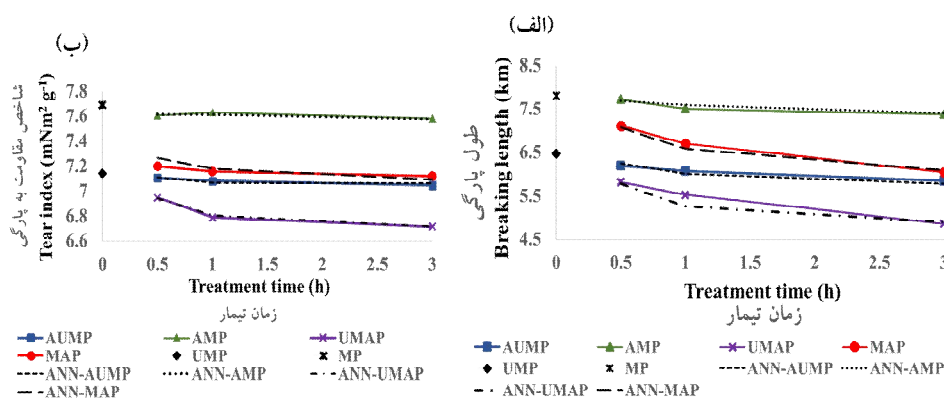


شکل ۵- نتایج اثر تیمار استیله کردن بر حجیمی کاغذهای ساخته‌شده و نتایج پیش‌بینی شده با مدل شبکه عصبی مصنوعی.

Figure 5. The results of acetylation effect on the made papers bulk and the predicted results by artificial neural network model.

## 1- Bulk

ب) طول پارگی (مقاومت کششی) و مقاومت به پاره شدن کاغذ: شکل‌های ۶ الف و ۶ ب، نتایج حاصل از افزودن NFC، خمیر استیله شده و استیله کردن کاغذهای دست‌ساز ترکیبی و غیرترکیبی را به ترتیب بر طول پارگی (مقاومت کششی) و مقاومت به پارگی کاغذهای حاصله به همراه داده‌های حاصل از مدل نشان می‌دهند. با توجه به شکل، بیش‌ترین و کم‌ترین مقادیر طول پارگی و مقاومت به پارگی به ترتیب مربوط به کاغذهای MP و UMAP می‌باشد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، طول پارگی و مقاومت به پارگی کاغذ ساخته شده از الیاف استیله شده (UMAP) در مقایسه با کاغذ شاهد (UMP) به ترتیب حدود ۱۶/۴ و ۴/۵ درصد کاهش یافت ( $p < 0/05$ ). روند این نتایج مطابق با نتایج میرشکرایی و همکاران (۲۰۰۵) بوده است. با افزایش زمان واکنش استیله کردن، افت این مقاومت‌های مکانیکی بیش‌تر شد. از سوی دیگر با افزودن NFC به خمیر استیله شده، طول پارگی و مقاومت به پارگی کاغذ به ترتیب حدود ۲۲/۴ و ۵ درصد افزایش یافت (کاغذ MAP در مقایسه با کاغذ UMAP). همچنین با افزودن NFC به خمیر پایه (خمیر بدون اصلاح)، طول پارگی و مقاومت به پارگی کاغذ به ترتیب حدود ۲۱ و ۷/۷ درصد افزایش یافت ( $p < 0/05$ ). استیله کردن سطح کاغذهای ترکیبی و غیرترکیبی، اثر معنی‌داری بر طول پارگی و مقاومت به پارگی کاغذهای ساخته شده در مقایسه با کاغذ پایه نداشت ( $p > 0/05$ ). روند این نتایج با نتایج سلطانی و همکاران (۲۰۱۳) و میرشکرایی و همکاران (۲۰۰۶) هم‌راستا بوده است (۱۷؛ ۲۹).



شکل ۶- نتایج اثر تیمار استیله کردن بر طول پارگی و مقاومت به پارگی کاغذهای ساخته شده و نتایج پیش‌بینی شده با مدل شبکه عصبی مصنوعی.

Figure 6. The results of acetylation effect on the breaking length and tear index of made papers, and the predicted results by artificial neural network model.



به‌طور کلی با استیله‌کردن الیاف، به سبب جایگزینی بخشی از گروه‌های هیدروکسیل سطحی آن‌ها با گروه‌های استیل، قابلیت پیوندیابی الیاف و به‌دنبال آن قدرت پیوند و سطح پیوند بین آن‌ها کاهش می‌یابد (۲۴؛ ۲۹). در نهایت این امر منجر به افزایش حجیمی یا تخلخل، کاهش دانسیته و کاهش مقاومت‌های مکانیکی کاغذهای ساخته‌شده از الیاف استیله‌شده در مقایسه با کاغذ ساخته‌شده از الیاف اصلاح‌نشده شد. همچنین با استفاده از الیاف تیمار شده در زمان‌های واکنش طولانی‌تر به سبب درجه جایگزینی بیشتر گروه‌های استیل، افت مقاومت‌ها شدیدتر بود. همچنین نتایج اندازه‌گیری ویژگی‌های فیزیکی و مکانیکی کاغذهای ترکیبی نشان‌دهنده بهبود ویژگی‌های کاغذهای دست‌ساز در صورت استفاده از NFC در ترکیب کاغذ می‌باشد. به‌طور کلی NFC به سبب داشتن سطح ویژه زیاد، منافذ میکرو و نانومتری کاغذ را پر کرده و همراه با توسعه ایجاد پیوند هیدروژنی بین الیاف در ساختار شبکه کاغذ، منجر به کاهش حجم منافذ خالی، کاهش حجیمی و افزایش دانسیته کاغذ می‌شود (۱۰). مهم‌ترین عوامل تأثیرگذار بر مقاومت‌های مکانیکی کاغذ، شامل سطح پیوند نسبی<sup>۱</sup>، مقاومت پیوند و مقاومت الیاف می‌باشند (۲۸). از آن‌جا که پیوندیابی در کاغذ از طریق پیوندهای هیدروژنی موجود در الیاف صورت می‌گیرد، لذا هرچه الیاف و مواد موجود در شبکه کاغذ از گروه‌های هیدروکسیل بیشتری برخوردار باشند، کاغذ مقاوم‌تر و با استحکام‌تری تولید می‌شود. سلولز نانوفیبریل‌شده (NFC) به دلیل سطح ویژه زیاد و به‌دنبال آن در دسترس بودن گروه‌های هیدروکسیل فراوان، قابلیت منحصر به فردی در ایجاد پیوند هیدروژنی بین الیاف و با یکدیگر دارند (۱۴). بنابراین افزودن NFC به شبکه کاغذ موجب افزایش درگیری‌های مکانیکی فیبریل‌ها، افزایش تعداد پیوندهای بین فیبری و نهایتاً افزایش مقاومت‌های مکانیکی کاغذ می‌شود (۷، ۹). با توجه به نتایج، استیله‌کردن سطح کاغذ تأثیر معنی‌داری بر ویژگی‌های فیزیکی و مکانیکی کاغذ نداشته است. در حقیقت در اصلاح کاغذ با فرآیند استیله کردن پس از ساخت آن، تنها گروه‌های هیدروکسیل آزاد در واکنش شرکت کرده و بنابراین مقاومت اتصال لیف به لیف (مقاومت پیوند) توسط فرآیند استیله کردن تحت تأثیر قرار نمی‌گیرد (۲۹). در نتیجه ویژگی‌های فیزیکی و مقاومت‌های مکانیکی کاغذ تولید شده با فرآیند استیله کردن تغییر معنی‌داری نمی‌کند.

**د) ممانعت به جذب آب:** نتایج اندازه‌گیری میزان جذب آب کاغذهای ساخته‌شده و نتایج حاصل از مدل شبکه عصبی مصنوعی در شکل ۷ نشان داده شده است. با توجه به شکل مشاهده می‌شود که

---

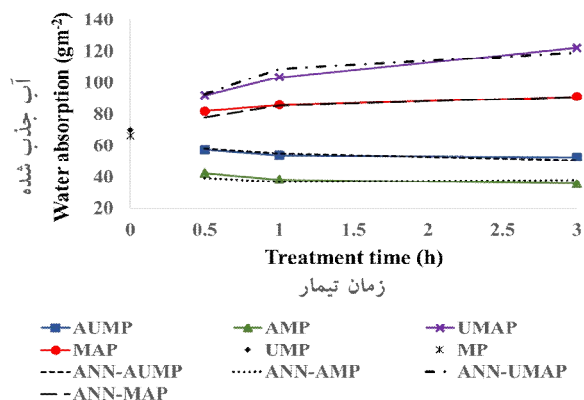
1- Relative bonding area (RBA)

بیش‌ترین و کم‌ترین مقادیر جذب آب، به ترتیب به کاغذهای غیرترکیبی ساخته‌شده از خمیر استیله‌شده (UMAP) و کاغذهای ترکیبی تیمار شده سطحی (AMP) اختصاص داشت. با توجه به نتایج، ساخت کاغذ از الیاف استیله‌شده، سبب افزایش جذب آب کاغذ حدود ۵۱/۶۱ درصد شد که در مقایسه با کاغذ شاهد، به لحاظ آماری در سطح اطمینان ۹۵ درصد معنی‌دار می‌باشد ( $p < 0/05$ ). بدیهی است که وجود حجم بسیار زیاد منافذ در کاغذ مذکور، سبب این امر گردیده است. همچنین با افزایش زمان تیمار استیله کردن الیاف خمیر، جذب آب کاغذ افزایش یافت. با افزودن NFC به خمیر استیله‌شده جذب آب کاغذ حاصله (MAP) در مقایسه با کاغذ غیرترکیبی ساخته‌شده از خمیر استیله‌شده، حدود ۱۸/۴۱ درصد کاهش یافت. در حالی که افزودن NFC به خمیر اصلاح نشده، اثر معنی‌داری بر جذب آب کاغذ نداشت ( $p > 0/05$ ). استیله کردن کاغذ غیرترکیبی، منجر به کاهش جذب آب به میزان حدود ۲۴/۴۶ درصد و استیله کردن کاغذ ترکیبی، موجب کاهش جذب آب کاغذ حدود ۴۸/۰۹ درصد شد. افزایش زمان تیمار، موجب کاهش بیش‌تر این ویژگی شد.

به‌طور کلی همان‌طور که پیش از این نیز گفته شد جذب آب کاغذ به دو عامل، ساختار متخلخل ورقه و برهم‌کنش‌هایی که بین الیاف و آب اتفاق می‌افتد، بستگی دارد. در این تحقیق الیاف سلولزی استیله‌شده، از یک سو به‌واسطه جایگزینی گروه‌های هیدروکسیل آب‌دوست خود با گروه‌های آب‌گریز استیل، موجب کاهش جذب آب کاغذ و از سوی دیگر به سبب کاهش قابلیت تشکیل پیوند در نتیجه کاهش تعداد گروه‌های هیدروکسیل در دسترس، موجب افزایش تخلخل شبکه کاغذ و بنابراین افزایش جذب آب شده توسط کاغذ شدند. که به سبب تعداد کم گروه‌های هیدروکسیل در دسترس موجود در الیاف سلولزی، با استیله کردن آن‌ها عامل افزایش تخلخل بر عامل افزایش آب‌گریزی غلبه کرده و بنابراین جذب آب توسط کاغذ افزایش یافت. همچنین با پیشرفت واکنش استیله کردن الیاف، به سبب افزایش درجه جایگزینی گروه‌های استیل و در نتیجه کاهش سطح پیوند و افزایش تخلخل کاغذ، جذب آب آن افزایش یافت. افزودن NFC به ساختار این کاغذ، موجب افزایش دانسیته، افزایش سطح پیوند، کاهش تخلخل و در نهایت کاهش ویژگی جذب آب کاغذ مذکور شد.

تیمار سطحی کاغذ ساخته‌شده با فرآیند استیله کردن، تنها گروه‌های هیدروکسیل سطحی شرکت نکرده در پیوند را تحت تأثیر قرار می‌دهد و بنابراین، سطح پیوند و میزان تخلخل کاغذ تغییر نمی‌یابد. بدین ترتیب افزایش آب‌گریزی ورقه همزمان با حفظ پیوندهای بین الیاف، منجر به کاهش آب جذب

شده توسط کاغذ و یا به عبارت دیگر بهبود مقاومت کاغذ همزمان با کاهش جذب آب آن می شود. روند این نتایج با نتایج سلطانی و همکاران (۲۰۱۳) همراستا بوده است (۲۹).



شکل ۷- نتایج اثر تیمار استیله کردن بر جذب آب کاغذهای ساخته شده و نتایج پیش بینی شده با مدل شبکه عصبی مصنوعی.

Figure 7. The results of acetylation effect on the made papers water absorption and the predicted results by artificial neural network model.

### نتیجه گیری

شبکه پیش خور تعمیم یافته با یک لایه مخفی، تابع انتقال تانژانت آکسون و قاعده آموزش مومنتوم به عنوان بهترین شبکه انتخاب گردید و به خوبی توانست خصوصیات ممانعتی و مقاومتی کاغذ را با ضریب همبستگی بالا (۹۸/۱۱) پیش بینی کند. نتایج نشان داد با استیله کردن الیاف خمیر به سبب مسدود شدن بخشی از گروه های هیدروکسیل (عوامل تشکیل پیوند در کاغذ) سطح سلولز و همی سلولزها، ویژگی های مقاومتی کاغذ کاهش یافت. در حالی که ویژگی های مقاومتی کاغذ استیله شده ثابت ماند و یا به طور جزئی کاهش یافت. همچنین با افزودن NFC به ترکیب کاغذ، ویژگی های فیزیکی و مقاومت های مکانیکی کاغذ بهبود یافت. اما همان طور که نتایج نشان داد، کاهش تخلخل (افزایش دانسیته) کاغذ پس از افزودن NFC، نتوانست از خواص جذب آب کاغذ بکاهد که دلیل آن وجود گروه های هیدروکسیل سطحی فراوان و آب دوستی بسیار زیاد NFC می باشد. بر اساس نتایج اندازه گیری جذب آب این تحقیق، تیمار کاغذ ترکیبی با فرآیند استیله کردن به دلیل بستن گروه های هیدروکسیل آزاد موجود در سطح کاغذ در گام نخست موجب کاهش نفوذ آب به درون بافت کاغذ و

NFC می‌شود. همچنین در گام بعدی وجود NFC به‌عنوان مانع فیزیکی در ساختار کاغذ، سبب کاهش سرعت پخش و انتشار مولکول‌های آب خواهد شد. بدین ترتیب جذب آب کاغذ به‌طور قابل ملاحظه‌ای کاهش یافت. با توجه به اینکه یکی از چالش‌های بزرگ صنعت کاغذسازی، بهبود همزمان ویژگی‌های مقاومتی و ممانعتی می‌باشد، این دستاورد جدید روشی مؤثر و کارا در تولید کاغذهای بسته‌بندی با خواص مقاومتی و ممانعت بالا در برابر نفوذ آب و هوا می‌باشد.

### سپاسگزاری

از ستاد ویژه توسعه فناوری نانو ریاست جمهوری و دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان بابت حمایت در انجام این پژوهش و نیز از شرکت نانو نوین پلیمر به‌ویژه جناب آقای دکتر حسین یوسفی بابت همکاری در تهیه نانوالیاف سلولزی تشکر و قدردانی می‌گردد.

### منابع

1. Adebajo, M.O., Frost, R.L., Klopogge, J.T., and Kokot, S. 2006. Raman spectroscopic investigation of acetylation of raw cotton. *Spectrochimica Acta Part a: molecular and biomolecular spectroscopy*. 64: 2. 448-453.
2. Afra, E., Yousefi, H., Hadilam, M.M., and Nishino, T. 2013. Comparative effect of mechanical beating and nanofibrillation of cellulose on paper properties made from bagasse and softwood pulps. *Carbohydrate Polymers*. 97: 2. 725-730.
3. Ashori, A., Babae, M., Jonoobi, M., and Hamzeh, Y. 2014. Solvent-free acetylation of cellulose nanofibers for improving compatibility and dispersion. *Carbohydrate Polymers*. 102: 369-375.
4. Baines, G.H., Hayes, R.L., and Stabell, J.L. 1997. Predicting boiler emissions with neural networks. *Tappi journal (USA)*.
5. Beaverstock, M., and Wolchina, K. 1992. Neural network helps GP Ashdown mill improve brownstock washer operation. *Pulp and Paper*. 66: 9. 134-136.
6. Dayal, B.S., MacGregor, J.F., Taylor, P.A., Kildaw, R., and Marcikic, S. 1994. Application of feedforward: neural networks and partial least squares regression for modelling kappa number in a continuous Kamyrdigester: how multivariate data analysis might help pulping. *Pulp and Paper Canada*. 95: 1. 26-32.
7. Djafari Petroudy, S.R., Syverud, K., Chinga-Carrasco, G., Ghasemian, A., and Resalati, H. 2014. Effects of bagasse microfibrillated cellulose and cationic polyacrylamide on key properties of bagasse paper. *Carbohydrate Polymers*. 99: 311-318.

8. Ernest-Saunders, R., Pawlak, J.J., and Lee, J.M. 2014. Properties of surface acetylated microfibrillated cellulose relative to intra-and inter-fibril bonding. *Cellulose*. 21: 3. 1541-1552.
9. Hassan, E.A., Hassan, M.L., and Oksman, K. 2011. Improving bagasse pulp paper sheet properties with microfibrillated cellulose isolated from xylanase-treated bagasse. *Wood and Fiber Science*. 43: 1. 76-82.
10. Hassan, M.L., Bras, J., Mauret, E., Fadel, S.M., Hassan, E.A., and El-Wakil, N.A. 2015. Palm rachis microfibrillated cellulose and oxidized-microfibrillated cellulose for improving paper sheets properties of unbeaten softwood and bagasse pulps. *Industrial Crops and Products*. 64. 9-15.
11. Hassan, M.L., Mathew, A.P., Hassan, E.A., El-Wakil, N.A., and Oksman, K. 2012. Nanofibers from bagasse and rice straw: process optimization and properties. *Wood science and technology*. 46: 1-3. 193-205.
12. Haupt, R.L., and Haupt, S.E. 2004. *Practical genetic algorithms*: John Wiley and Sons.
13. Hristev, R. 1998. *The ANN book*. GNU public license. 71.
14. Kalia, S., Boufi, S., Celli, A., and Kango, S. 2014. Nanofibrillated cellulose: surface modification and potential applications. *Colloid and Polymer Science*. 292: 1. 5-31.
15. Kumar, A., and Hand, V.C. 2000. Feasibility of using neural networks and genetic algorithms to predict and optimize coated paper and board brightness. *Industrial and engineering chemistry research*. 39: 12. 4956-4962.
16. Mashkour, M., Afra, E., Resalati, H., and Mashkour, M. 2015. Moderate surface acetylation of nanofibrillated cellulose for the improvement of paper strength and barrier properties. *RSC Advances*. 5. 60179 – 60187.
17. Mirshokraie, S.A., Abdulkhani, A., Enayati, A.A., and Jahan Latibari, A. 2005. Evaluation of mechanical and optical properties of modified bagasse chemi-mechanical pulp through acetylation in liquid phase. *Iranian Polymer Journal*. 14: 11. 982.
18. Missoum, K., Belgacem, M.N., and Bras, J. 2013. Nanofibrillated cellulose surface modification: A review. *Materials*. 6: 5. 1745-1766.
19. Missoum, K., Martoia, F., Belgacem, M.N., and Bras, J. 2013. Effect of chemically modified nanofibrillated cellulose addition on the properties of fiber-based materials. *Industrial Crops and Products*. 48: 98-105.
20. Nicu, R., Lupei, M., Balan, T., and Bobu, E. 2013. ALKYL-CHITOSAN AS PAPER COATING MATERIAL TO IMPROVE WATER BARRIER PROPERTIES. *Cellulose Chemistry and Technology*. 47: 7-8. 623-630.
21. Nieto, P.G., Torres, J.M., de Cos Juez, F.J., and Lasheras, F.S. 2012. Using multivariate adaptive regression splines and multilayer perceptron networks to evaluate paper manufactured using *Eucalyptus globulus*. *Applied Mathematics and Computation*. 219: 2. 755-763.

22. Olaru, N., Ciolacu, D., Tampu, D., and Olaru, L. 2007. Structural modifications of cellulose in heterogeneous acetylation process. *Journal of optoelectronics and advanced materials*. 9: 12. 3917-3920.
23. Qian, Y., Tessier, P., and Dumont, G.A. 1995. Modeling a wood-chip refiner using artificial neural networks. *Tappi journal (USA)*.
24. Rodionova, G., Lenes, M., Eriksen, Ø., and Gregersen, Ø. 2011. Surface chemical modification of microfibrillated cellulose: improvement of barrier properties for packaging applications. *Cellulose*. 18: 1. 127-134.
25. Rowell, R.M., Tillman, A.-M., and Simonson, R. 1986. A simplified procedure for the acetylation of hardwood and softwood flaxes for flakeboard production. *Journal of Wood Chemistry and Technology*. 6: 3. 427-448.
26. Sain, M., and Fortier, D. 2002. Flax shives refining, chemical modification and hydrophobisation for paper production. *Industrial Crops and Products*. 15: 1. 1-13.
27. Scott, W.E., and Trosset, S. 1989. The barrier and resistance properties of paper. *Properties of paper: an introduction*. Tappi Press, Atlanta, USA, Pp: 101-108.
28. Sehaqui, H., Zhou, Q., and Berglund, L.A. 2013. Nanofibrillated cellulose for enhancement of strength in high-density paper structures. *Nordic Pulp and Paper Research Journal*. 28: 2. 182-189.
29. Soltani, M., Andalib, M., and Ravanbakhsh, M. 2013. Some physical and mechanical properties of uncatalysed acetylated paper. *BioResources*. 8: 1. 1274-1282.
30. Strobl, R., and Forte, F. 2007. Artificial neural network exploration of the influential factors in drainage network derivation. *Hydrological processes*. 21: 22. 2965-2978.
31. Taipale, T., Österberg, M., Nykänen, A., Ruokolainen, J., and Laine, J. 2010. Effect of microfibrillated cellulose and fines on the drainage of kraft pulp suspension and paper strength. *Cellulose*. 17: 5. 1005-1020.
32. Tang, L., Huang, B., Lu, Q., Wang, S., Ou, W., Lin, W., and Chen, X. 2013. Ultrasonication-assisted manufacture of cellulose nanocrystals esterified with acetic acid. *Bioresource technology*. 127: 100-105.
33. Zhang, G., Huang, K., Jiang, X., Huang, D., and Yang, Y. 2013. Acetylation of rice straw for thermoplastic applications. *Carbohydrate Polymers*. 96: 1. 218-226.



Gorgan University of Agricultural  
Sciences and Natural Resources

*J. of Wood & Forest Science and Technology, Vol. 23 (4), 2016*

*<http://jwfst.gau.ac.ir>*

## **Prediction of nanofibrillated cellulose reinforced acetylated papers properties using artificial neural networks**

**\*M. Mashkour<sup>1</sup>, E. Afra<sup>2</sup> and H. Resalati<sup>3</sup>**

<sup>1</sup>Ph.D. Student, Dept., of Pulp and Paper Industries, Faculty of Wood and Paper Engineering, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Basij Square, Gorgan, Iran, <sup>2</sup>Associate Prof., of Dept., of Pulp and Paper Industries, Faculty of Wood and Paper Engineering, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Basij Square, Gorgan, Golestan, Iran, <sup>3</sup>Professor of Dept., of Wood and Paper Sciences, Faculty of Natural Resources, Sari Agricultural Sciences and Natural Resources University, Sari, Iran

Received: 05/19/2015 ; Accepted: 09/26/2015

### **Abstract**

**Background and objectives:** The strength and barrier properties are some of the most important required features for kinds of paper, especially printing and packaging paper. So one of the important research areas in the paper industry is researching to improve these properties. In this research for the first time, the artificial neural networks (ANNs) were used to predict the strength and barrier properties of nanofibrillated cellulose reinforced acetylated papers.

**Materials and methods:** Nanofibrillated cellulose (NFC) was produced from bleached commercial pulp using grinding method. Paper modification was performed using two methods including acetylation of pulp fibers before paper-sheet making, and acetylation of made paper-sheet. Pulp and paper acetylation process was performed in liquid phase at 70 °C for 0.5, 1, and 3 hours. The success of chemical modification was confirmed using Infrared spectroscopy. Two kinds of paper (unmixed and mixed paper) were made. The paper properties, including thickness, basis weight, bulk, breaking length, tear strength, and water barrier property were measured. In order to design an artificial neural network, the type of treatment (treatment of fibers and paper treatment), treatment time (0.5, 1, and 3 h), and types of paper (unmixed and mixed paper) were considered as input data, and the physical, mechanical, and barrier properties of the paper (bulk, breaking length, tear index, and water absorption) were considered as output data.

---

\*Corresponding author: [m.mashkour@gau.ac.ir](mailto:m.mashkour@gau.ac.ir)

**Results:** Among all the papers, the weakest strength and barrier properties were obtained for the paper made from the acetylated pulp. The best paper properties were obtained by the acetylation of paper. According to the results, the acetylation of paper had no significant effect on the physical and mechanical properties of produced papers ( $p>0.05$ ). Acetylation led to decrease in the water absorption of unmixed and mixed papers about 24.5 and 48%, respectively. Generalized feed forward artificial neural network with one hidden layer, Tanh axon- transfer function, and momentum as learning rule was chosen as the best network.

**Conclusion:** The designed artificial neural network could predict the paper properties with high correlation coefficient ( $R^2= 98.11$ ).

**Keywords:** Artificial neural network, Nanofibrillated cellulose, Paper modification, acetylation, Paper properties