

یازدهمین کنگره ملی سراسری  
فناوریهای نوین در حوزه توسعه پایدار ایران  
11<sup>th</sup> National Congress of  
the New Technologies in Sustainable Development of Iran

senaconf.ir

## نانوسلولز در کاغذسازی

مژده مشکور ۱

استادیار گروه علوم و مهندسی کاغذ، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان

Email: M.Mashkour@gau.ac.ir

### چکیده

در فرآیند تولید کاغذ، نانوالیاف سلولزی (NFC) یا در آغاز به دوغاب کاغذسازی اضافه می‌شوند یا به عنوان پوشش بیونانو، روی سطح کاغذ نهایی بکار برده می‌شوند. هدف اصلی در نظر گرفتن نانوسلولز به عنوان بیونانوفیلر، حفظ خواص استحکامی کاغذ پس از استفاده از پرکننده‌های معدنی مانند کربنات کلسیم می‌باشد. نانو سلولز همچنین به افزایش مقدار استفاده از پرکننده در ورق کاغذ بدون از افت ویژگی‌های مقاومتی کاغذ کمک می‌کند.

### واژه‌های کلیدی

نانوالیاف سلولزی (NFC)، پوشش بیونانو، ویژگی‌های مقاومتی کاغذ

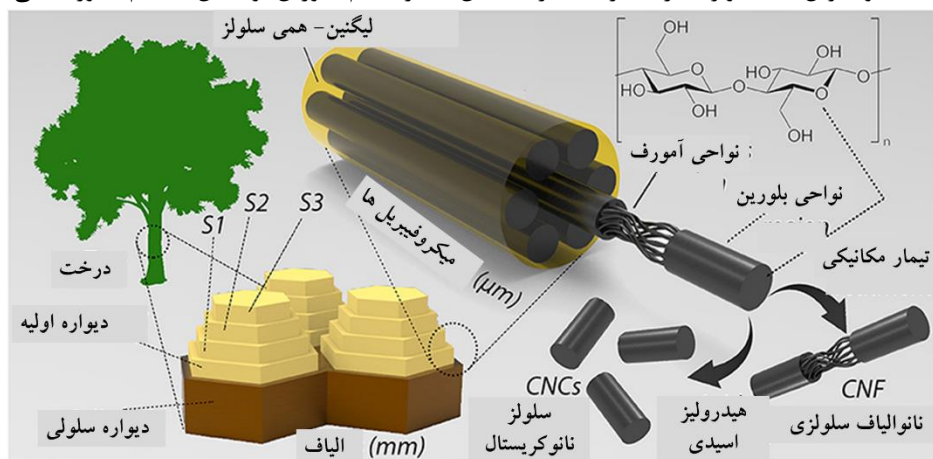
# یازدهمین کنگره ملی سراسری فناوریهای نوین در حوزه توسعه پایدار ایران

11<sup>th</sup> National Congress of  
the New Technologies in Sustainable Development of Iran

senaconf.ir

## ۱. مقدمه

نانوتکنولوژی در قرن ۲۱ ام، امید فراوانی برای تغییرات اساسی در مواد مورد استفاده و فرصت بزرگی برای خلق محصولات جدید در بخش‌های گوناگون صنعت جهانی ایجاد کرده است. در حال حاضر، آزمایشگاه‌های متعدد تحقیقات زیادی را در مورد تولید محصول از نانومواد (مانند پودرها، لوسیون‌ها، مایعات و الیاف) انجام داده که می‌تواند یا مستقیماً توسط مصرف‌کنندگان مورد استفاده قرار گیرند یا به عنوان مواد افزودنی مهم در محصولات سنتی بکار گرفته شوند. این نانوذرات ویژگی‌های بسیار مفیدی به محصولات جدید می‌دهند، از این رو فناوری‌های مورد استفاده برای تولید آنها اغلب متحول‌کننده تعریف می‌شوند. ارزش تولید جهانی نانومواد در سال ۲۰۱۰ به ۱/۷ میلیارد دلار رسیده است. پیش‌بینی می‌شود که بازار جهانی مواد نانو تا سال ۲۰۲۰ با افزایش ۲۳ درصدی به ۵/۸ میلیارد دلار برسد (۱). در حال حاضر، تقاضای زیادی برای تولید محصولات با ارزش افزوده بالا از منابع تجدیدپذیر وجود دارد که برای جایگزینی مواد با پایه نفتی برنامه‌ریزی شده‌اند. سلولز فراوان‌ترین پلیمر طبیعی است و می‌توان از آن برای پیشنهاد راه‌حل‌های منطقی برای این مسئله استفاده کرد (۲). سلولز به عنوان مهم‌ترین جزء اسکلت گیاهان، ماده خام پلیمری تقریباً بی‌پایان با ساختار و خواص جذاب است که امروزه به‌طور گسترده‌ای در صنعت استفاده می‌شود (۳). به لحاظ ساختاری، پلی‌ساکاریدی با ساختار نیمه‌بلورین است که واحد تکرار شونده آن شامل دو حلقه انیدروگلوکوزی است که از طریق پیوند گلیکوزیدی  $\beta$ -۱-۴ به هم متصل هستند (۴، ۵). همان‌گونه که در شکل ۱ مشاهده می‌شود، دیواره‌های سلولی چوب با ماکرو فیبرهای سلولز، همی‌سلولز و لیگنین ساخته می‌شوند که چندسازه لیفی سلولزی را تشکیل می‌دهد. این ماکرو فیبرها از میکرو فیبریل‌ها ساخته شده‌اند که خود نیز از نانوفیبریل‌های سلولزی تشکیل شده است. جالب توجه است که نانوفیبریل‌های سلولزی در یک ردیف دارای بخش بسیار منظم (بلورین) و بخش نامنظم (آمورف) می‌باشند (۳).



شکل ۱- ساختار سلسله مراتبی سلولز (۶)

## ۲. نانوسلولز و طبقه‌بندی آن

منظور از "نانوسلولز" عموماً، مواد سلولزی است که حداقل یکی از ابعادشان در مقیاس نانومتری باشد. نانو سلولز به سلولز نانوفیبریله شده (NFC) و نانوکریستال‌های سلولزی (CNC) طبقه‌بندی می‌شود. هر دو آنها یا از مواد گیاهی یا غیر گیاهی مشتق می‌شوند (۷). سلولز نانوفیبریله شده (NFC) به الیاف سلولزی فیبریله شده تا حد دسترسی به دستجات میکروفیبریل سلولزی گفته می‌شود که قطرشان در حد نانومتری (کمتر از ۱۰۰ نانومتر) و طولشان چند میکرومتر است. سلولز نانوفیبریله شده، نخستین بار در سال ۱۹۸۳ توسط تورباک و همکارانش با روش همگن‌سازی به دست آمد (۴). مهم‌ترین ویژگی‌های این ماده که باعث مورد توجه قرار گرفتن آن شده است، شامل وزن سبک، ساختار شبکه‌ای، تجدیدپذیری، زیست تخریب‌پذیری، سختی و مقاومت زیاد، شفافیت، ظرفیت جذب آب بالا، اصلاح‌کننده خواص رئولوژیکی، سطح ویژه و نسبت منظر زیاد، واکنش‌پذیری زیاد و ویژگی‌های ممانعتی می‌باشد (۸). برای تولید سلولز نانوفیبریله از منابع سلولزی مختلف استفاده می‌شود. مهم‌ترین منبع صنعتی الیاف سلولزی و منبع اصلی استفاده شده برای تولید NFC،

# یازدهمین کنگره ملی سراسری فناوریهای نوین در حوزه توسعه پایدار ایران

11<sup>th</sup> National Congress of  
the New Technologies in Sustainable Development of Iran

senaconf.ir

چوب می باشد. نانوکریستال های سلولزی (CNC)، ذراتی میله مانند هستند که فقط دارای بخش های کریستالی (بلورین) می باشند. فرآیند اصلی برای جداسازی نانوکریستال های سلولزی از الیاف سلولزی، بر پایه هیدرولیز اسیدی می باشد که الیاف سلولزی را بطور عرضی می شکند. نواحی بی شکل سلولز که به عنوان معایب ساختاری عمل می کنند، به موجب شکست عرضی الیاف سلولزی به نانوذرات میله مانند حذف می شوند. این تغییر شامل شکستن مناطق بی شکل اطراف میکروفیبریل ها و بین آنهاست، در حالیکه بخش های منظم و بلورین سالم باقی می ماند (۹). نانوکریستال های سلولزی در مقایسه با NFC، انعطاف پذیری بسیار محدودی دارند، زیرا مناطق آمورف در آنها وجود ندارد. نانوکریستال های سلولزی همچنین با عناوین نانویسکرها<sup>۱</sup>، نانو میله ها<sup>۲</sup> و کریستال سلولزی میله ای شناخته می شوند. این ذرات صد درصد سلولزی هستند و تا حد زیادی بلوری می باشند. ناحیه بلورین آنها بین ۵۴ تا ۸۸ درصد متغیر می باشد (۷).

## ۳. کاربردهای نانوسلولز در کاغذسازی

امروزه استفاده از نانوسلولز رو به گسترش است و استفاده از آن منافع زیادی به لحاظ کیفی ایجاد کرده است (۱۰). علاوه بر این، نانوالیاف سلولزی یا در آغاز به دوغاب کاغذسازی اضافه می شوند یا به عنوان پوشش بیونانو روی سطح کاغذ نهایی بکار برده می شوند.

### ۱.۳ کاربرد نانوسلولز به عنوان افزودنی در کاغذسازی

نقش نرمة های لیفی در افزایش مقاومت پیوند بین الیاف در کاغذسازی، برای کاغذسازان به خوبی شناخته شده است. سلولز نانوفیبریل شده به عنوان یک عامل مقاومتری تر و خشک و عامل تقویت کننده برای افزایش مقاومت خمیر کاغذهای مختلف به ویژه خمیرهای تولید شده با فرآیند گرمایی- مکانیکی عمل می کند (۱۱). در حقیقت سلولز نانوفیبریل شده به علت داشتن سطح ویژه بزرگ، نسبت منظر زیاد، میل ترکیبی زیاد با خمیر سلولزی همراه با توانایی تشکیل شبکه سه بعدی، منافع بسیار زیادی را برای بهبود مقاومت کاغذ در زمان اضافه شدن به دوغاب خمیر ایجاد می نماید (۱۲). تایپال و همکاران (۲۰۱۰) نشان دادند که افزودن سلولز نانوفیبریل شده به سوسپانسیون خمیر، سبب کاهش سرعت زهکشی و افزایش مقاومت کاغذ می شود، به خصوص اگر از یک پلی الکترولیت کاتیونی به عنوان کمک نگهدارنده استفاده شود. این در حالی است که با انتخاب بهینه مواد و شرایط فرآیند می توان بدون کاهش محسوس سرعت زهکشی، ویژگی های مقاومتری را افزایش داد (۱۳). اثر پوشش دهی کاغذ و مقوا با سلولز نانوفیبریل شده بر بهبود مقاومت های مکانیکی و مقاومت به عبور هوای کاغذ و مقوا اثبات شده است (۱۴). همچنین اثر افزودن سلولز نانوفیبریل شده به سوسپانسیون کاغذسازی و بهبود مقاومت های کاغذ توسط محققان زیادی تأیید شده است (۱۱، ۱۵). نانوالیاف اصلاح شده شیمیایی به بهبود قابلیت ترشوندگی، سازگاری، آبگریزی و امکان تعامل الیاف نانو در ماتریس کاغذ کمک می کنند و باعث تغییر خواص سلولز می شوند (۱۶، ۱۷).

### ۲.۳ کاربرد نانوسلولز به عنوان ماده پوشش دهی در کاغذسازی

به عنوان یک ماده پوشش دهنده، نانوالیاف سلولزی با توجه به اینکه بعد از ساخت کاغذ اضافه می شوند، مشکل آب گیری (زهکشی) را حل می کنند. همچنین می توان از آنها به عنوان فیلم های بسته بندی زیست تخریب پذیر و شفاف که ویژگی های ممانعتی بهتری دارند استفاده نمود (۱۸). مقدار ماده پوشش دهی به روش پوشش دهی بستگی دارد. انواع مختلفی از روش ها مانند اسپری، پوشش دهی با میله، رول و پرس آهارزنی برای اعمال نانوسلولز روی سطح کاغذ وجود دارند (۱۰). لاوین و همکاران (۲۰۱۱)، از پوشش دهی میله ای و پرس آهارزنی برای اعمال سلولز نانوفیبریل شده روی سطح کاغذ استفاده کردند. براساس نتایج حاصله، وزن پوشش ۷ و ۱۴ گرم بر مترمربع، به ترتیب برای ۵ و ۱۰ لایه NFC برای پوشش دهی میله ای حاصل شد، اما پرس آهارزنی وزن پوشش ۳ و ۴ گرم بر متر مربع را با ۵ و ۱۰ لایه NFC ایجاد می کند (۱۹). لاوین و همکاران (۲۰۱۴)، اثر پوشش NFC را بر روی سختی خمش، مقاومت فشاری و خواص ممانعتی مقوا بررسی کردند و فقط از روش پوشش دهی میله ای برای اعمال NFC روی مقوا استفاده کردند. نتایج نشان داد که سختی خمش و مقاومت فشاری در جهت ماشین ۳۰٪ افزایش یافته است. استفاده از NFC ضخامت مقوا را افزایش داد که موجب سختی خمش بیشتر شد. برعکس، ویژگی های ممانعتی مقوا ضعیف بودند و جذب آب برای مقوای پوشش دهی شده با NFC در این مطالعه بیشتر شد (۱۴).

<sup>1</sup> Nanowhiskers

<sup>2</sup> Nanorods

# یازدهمین کنگره ملی سراسری فناوریهای نوین در حوزه توسعه پایدار ایران

11<sup>th</sup> National Congress of  
the New Technologies in Sustainable Development of Iran

senaconf.ir

فوم NFC برای استفاده روی سطح پیشنهاد می شود، به شما کمک می کند تا وزن پوشش کم را با لایه پوشش دهی ضخیم تر بدست آورید (۱۰).

## ۴. ویژگی های ورق کاغذ

نانو سلولز بر خصوصیات فیزیکی و مکانیکی کاغذ تأثیر دارد. استفاده از نانوسلولز به عنوان ماده پرکننده و پوشش دهنده موجب بهبود ویژگی های فیزیکی و مقاومتی کاغذ می شود. در این بخش، به طور جداگانه به تأثیر نانوسلولز بر خواص کاغذ پرداخته شده است.

### ۱.۴ اثر نانوسلولز به عنوان یک ماده پرکننده روی ویژگی های کاغذ

نانوسلولز به عنوان یک ماده پرکننده می تواند به تنهایی یا با دیگر افزودنی ها در صنعت کاغذسازی استفاده شود. این ماده ویژگی های فیزیکی و مقاومتی کاغذ را بهبود می بخشد (۱۰).

### ۱.۱.۴ دانسیته

محققین مشاهده نمودند که با افزایش NFC به کاغذ، دانسیته کاغذ افزایش یافت. افزودن ۴٪ NFC در ورقه های TMP موجب افزایش ۳۰-۴ درصدی دانسیته شد (۱۱). مشکور و همکاران (۲۰۱۹) گزارش دادند که با افزودن ۱۰٪ NFC به خمیر الیاف بلند، دانسیته کاغذ به میزان ۱۵٪ افزایش یافت. NFC یک جزء سلولزی با ابعاد نانومتری می باشد که دارای سطح ویژه بالا و گروه های هیدروکسیل فراوان می باشد. به همین دلیل پیوندهای بین الیاف را افزایش داده و همچنین فضاهای خالی بین الیاف را در ورقه کاغذ پر می کند. این پدیده موجب افزایش دانسیته کاغذ می شود (۲۰).

### ۲.۱.۴ نفوذپذیری

محققان دریافته اند که نفوذپذیری هوا بسیار تحت تأثیر NFC می باشد. طبق نتایج تایپال و همکاران (۲۰۱۰)، با افزایش میزان NFC از ۰ به ۳۰٪ وزنی، نفوذپذیری هوا از ۱۴۵۰ به ۴۵۰ میلی لیتر در دقیقه کاهش یافت (۱۳). با افزودن NFC تا ۴٪، نفوذپذیری هوا به تدریج کاهش می یابد (۱۱). در حقیقت استقرار نانوالیاف در فضاهای خالی و خلل و فرج بین الیاف موجب پر شدن این فضاها، کاهش تخلخل کاغذ و در نهایت افزایش مقاومت کاغذ به عبور هوا می شود.

### ۳.۱.۴ طول شکست

افزودن نانوسلولز موجب افزایش طول شکست می شود. طول شکست به درصد نانوسلولز در ورق کاغذ بستگی دارد. درصد بیشتر نانوسلولز موجب طول شکست بالاتر ورق کاغذ خواهد شد (۲۱).

### ۴.۱.۴ ویژگی های مقاومتی

NFC موجب بهبود ویژگی های مقاومتی ورقه های کاغذ می شود که توسط بسیاری از محققین اثبات شده است (۱۴، ۱۶، ۲۰). اریکسن و همکاران مشاهده نمودند که شاخص مقاومت کششی ورقه های TMP بعد از افزودن ۴٪ NFC همراه با ذرات پرکننده به ورق کاغذ، افزایش یافت (۱۱). مشکور و همکاران (۲۰۱۵) دریافته اند که با افزودن ۱۰٪ NFC، مقاومت به ترکیدن ورقه های کاغذ به مقدار ۲۹/۵ درصد افزایش یافت (۱۶). تایپال و همکاران ۳٪ NFC در ترکیب با ۱/۵٪ نشاسته کاتیونی به خمیر سوزنی برگ پالایش شده افزودند و مشاهده نمودند که مقاومت کششی ورقه های کاغذ افزایش یافت (۱۳). عوامل مؤثر روی مقاومت کششی ورقه کاغذ شامل طول، شکل، جهت گیری الیاف، سطح پیوند و مقاومت پیوند می باشند. اثر نانوالیاف سلولزی روی مقاومت کششی به مقدار نانوالیاف سلولزی، شدت فیبریله شدن، درجه پالایش خمیر، نوع و روش افزودن عوامل ماندگاری بستگی دارد (۱۱، ۱۴).

### ۵.۱.۴ ویژگی های نوری

اریکسن و همکاران مشاهده نمودند که افزودن ۴٪ NFC به ورقه های TMP ضریب شکست نور را به میزان ۲-۵ مترمربع بر کیلوگرم کاهش داد (۱۱). نانوالیاف سلولزی دانسیته و سطح پیوند را افزایش می دهند که موجب کاهش سطح ویژه نسبی و ضریب شکست نور می شود. بنابراین درجه روشنی و ماتی کاغذهای حاصله کاهش می یابد (۱۰).

# یازدهمین کنگره ملی سراسری فناوریهای نوین در حوزه توسعه پایدار ایران

11<sup>th</sup> National Congress of  
the New Technologies in Sustainable Development of Iran

senaconf.ir

## ۲.۴. اثر نانوسلولز به عنوان ماده پوشش دهنده روی ویژگی های کاغذ

### ۱.۲.۴. ویژگی های مقاومتی

سیورود و استنیوس (۲۰۰۹) متوجه شدند که بعد از پوشش دهی با لایه NFC، شاخص کششی ۳۵-۴۰ نیوتن متر بر گرم افزایش می یابد (۲۲). برودین و همکاران بیان نمودند که نانوالیاف تعداد بسیار زیادی پیوندهای بین فیبری ایجاد می کند، زیرا در مقایسه با الیاف خمیر فیبریل های بیشتری دارد. این پیوندها ویژگی های مقاومتی کاغذ را افزایش می دهد (۱۰).

### ۲.۲.۴. نرمی

NFC نرمی سطح را افزایش می دهد و کاربرد پوشش NFC بعد از پیش-پوشش دهی نرمی سطح کاغذ پوشش دهی ده با نانوالیاف را افزایش می دهد. فضاهای خالی ایجاد شده در محل تلاقی فیبر با فیبر توسط NFC پر می شوند و بنابراین NFC نرمی کاغذ را افزایش می دهد (۱۰).

### ۳.۲.۴. ممانعت نسبت به هوا

NFC استفاده شده به عنوان فیلم یا پوشش روی ویژگی ممانعت به هوا مؤثر می باشد و نفوذپذیری به هوا را کاهش می دهد. زمانیکه کاغذ با ۵ لایه NFC توسط پوشش دهنده میله ای پوشش داده می شود، ویژگی های ممانعت به هوا را تا ۹۰ درصد بهبود می بخشد (۱۹). تحقیقات سیورود و استنیوس حاکی از اثر وزن پوشش روی نفوذپذیری هوا می باشد. نویسندگان از وزن پوشش ۲ تا ۸  $gr/m^2$  روی کاغذ پایه استفاده کردند و نفوذپذیری هوا از ۶۵۰۰۰ به ۳۳۰۰۰  $nm/Pas$  برای کاغذ پایه کاهش یافت. فیلم های NFC نفوذپذیری هوا را تا بیش از ۱۰  $nm/Pas$  کاهش می دهند. فضاهای خالی کاغذ با NFC پر می شود که به عنوان مانعی برای نفوذپذیری هوا عمل می کند (۱۰).

### ۴.۲.۴. ممانعت نسبت به اکسیژن

محققین در ارتباط با تأثیر فیلم ها، ورقه ها و پوشش های NFC روی کاهش سرعت انتقال اکسیژن (OTR) یا نفوذپذیری به اکسیژن گزارش داده اند. سیورود و استنیوس (۲۰۰۹) مقادیر ۱۷-۱۸  $ml/m^2 day$  OTR را برای فیلم های NFC تیمار شده بطور مکانیکی با وزن پایه ۱۷-۲۹  $gr/m^2$  در رطوبت نسبی ۰ درصد روی سطح رویی و ۵۰٪ روی سطح زیرین اندازه گیری کرده اند (۲۲).

### ۵.۲.۴. ممانعت به روغن

مقاومت به روغن برای برخی از مواد بسته بندی مواد غذایی اجباری می باشد. اولین و همکاران (۲۰۱۰)، روغن کرچک و تربنتین را به درون ورقه های پوشش داده شده با NFC و بدون پوشش نفوذ دادند. نویسندگان دریافتند که ورقه های پوشش داده شده با NFC در مقایسه با نمونه های فاقد پوشش دارای ویژگی مقاومت به روغن بیشتری بودند. حتی ورقه با مقدار پوشش بیشتر دارای مقاومت بیشتر در برابر روغن و نفوذپذیری هوای کمتری بود (۲۳). از آنجا که فضاهای خالی و منافذ توسط NFC بخوبی مسدود می شود، ظرفیت انتقال روغن کاغذ کاهش می یابد.

### ۵. نتیجه گیری

در سال های اخیر مواد سازگار با محیط زیست که دارای کاربردهای مختلفی می باشند، بسیار مورد توجه قرار گرفته اند. سلولز فراوان ترین پلیمر زیستی در سطح کره زمین است که از منابع لیگنوسلولزی مختلف استخراج می شود. یکی از مهمترین مشتقات سلولزی، سلولز نانوفیبریل شده است. امروزه محققین تحقیقات زیادی در ارتباط با استفاده از نانوالیاف سلولزی در کاغذسازی انجام داده اند. نانوالیاف سلولزی موجب افزایش دانسیته و ویژگی های مقاومتی کاغذ می شوند. اما ماتی و تخلخل کاغذ کاهش می یابد. این تغییرات با کنترل مقدار و درجه فیبریل شدن نانوالیاف سلولزی تنظیم می شود. نانوالیاف سلولزی همچنین به بازیابی ویژگی های مقاومتی کاغذ که به واسطه استفاده از انواع مختلف پرکننده کاهش یافته، کمک می کنند.

# یازدهمین کنگره ملی سراسری فناوریهای نوین در حوزه توسعه پایدار ایران

11<sup>th</sup> National Congress of  
the New Technologies in Sustainable Development of Iran

senaconf.ir

## ۶. منابع

1. Lucintel, B., 2020. Global Nanomaterials Opportunity and Emerging Trends, <http://www.lucintel.com/com/lucintelbrief/globalnanomaterialsoportunity-final.pdf>. (accessed on 15 January 2020).
2. Nechyporchuk, O., Mohamed Naceur Belgacem, M., Bras, J., 2016. Production of cellulose nanofibrils: a review of recent advances, *Industrial Crops and Products*, 93, 2-25.
3. Kim, J.H., Shim, B.S., Kim, H.S., Lee, Y.J., Min, S.K., Jang, D., Abas, Z., Kim, J., 2015. *Review of nanocellulose for sustainable future materials*, *International Journal of Precision Engineering and Manufacturing-Green Technology*, 2, 197-213.
4. Brinchi, L., Cotana, F., Fortunati, E., Kenny, J.M., 2013. Production of nanocrystalline cellulose from lignocellulosic biomass: technology and applications, *Carbohydrate Polymers*, 94, 154-169.
5. Moon, R.J., Martini, A., Nairn, J., Simonsen, J., Youngblood, J., 2011. Cellulose nanomaterials review: structure, properties and nanocomposites, *Chemical Society Reviews*, 40, 3941-3994.
6. Titton Dias, O.A., Konar, S., Leao, A.L., Yang, W., Tjong, J., Sain, M., 2020. Current state of applications of nanocellulose in flexible energy and electronic devices, *Frontiers in Chemistry*, 8, 420.
7. TAPPI. Proposed New TAPPI Standard: Standard terms and their definition for cellulose nanomaterial. Draft for review, WI 3021.
8. Siró, I., Plackett, D., 2010. Microfibrillated cellulose and new nanocomposite materials: a review, *Cellulose*, 17, 459-494.
9. Habibi, Y., 2014. Key advances in the chemical modification of nanocelluloses, *Chemical Society Reviews*, 43, 1519-1542.
10. Brodin, F.W., Gregersen, O.W., Syverud, K., 2014. Cellulose nanofibrils: challenges and possibilities as a paper additive or coating material—a review, *Nordic Pulp and Paper Research Journal* 29, 156–166.
11. Eriksen, O., Syverud, K., Gregersen, O., 2008. The use of microfibrillated cellulose produced from kraft pulp as strength enhancer in TMP paper, *Nordic Pulp & Paper Research Journal*, 23, 299-304.
12. Kalia, S., Boufi, S., Celli, A., Kango, S., 2014. Nanofibrillated cellulose: surface modification and potential applications, *Colloid and Polymer Science*, 292, 5-31.
13. Taipale, T., Österberg, M., Nykänen, A., Ruokolainen, J., Laine, J., 2010. Effect of microfibrillated cellulose and fines on the drainage of kraft pulp suspension and paper strength, *Cellulose*, 17, 1005-1020.
14. Lavoine, N., Bras, J., Desloges, I., 2014a. Mechanical and barrier properties of cardboard and 3D packaging coated with microfibrillated cellulose, *Journal of applied polymer science*, 131, 40106.
15. Hassan, M.L., Bras, J., Mauret, E., Fadel, S.M., Hassan, E.A., 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.
16. Mashkour, M., Afra, E., Resalati, H., Mashkour, M., 2015. Moderate surface acetylation of nanofibrillated cellulose for the improvement of paper strength and barrier properties, *RSC Advances*, 5, 60179–60187.
17. Missoum, K., Martoia, F., Belgacem, M.N., Bras, J., 2013. Effect of chemically modified nanofibrillated cellulose addition on the properties of fiber-based materials, *Industrial Crops and Products*, 48, 98–105.
18. Boufi, S., Gonzalez, I., Delgado-Aguilar, M., Tarres, Q., Pelach, M.A., Mutje, P., 2016. Nanofibrillated cellulose as an additive in papermaking process: a review, *Carbohydrate Polymer*, 154, 151–166.
19. Lavoine, N., Desloges, I., Khelifi, B., Bras, J., 2014b. Impact of different coating processes of MFC on barrier and mechanical properties, *Journal Material Sciences*, 49, 2879–2893.
20. Mashkour, M., Afra, E., Resalati, H., 2019. Direct esterification of reinforced papers by immersion method and evaluation of their properties, *Wood Science and Technology*, 53, 1035-1050.
21. Gonzalez, I., Vilaseca, F., Alcalá, M., Pelach, M.A., Boufi, S., Mutje, P., 2013. Effect of the combination of biobeating and NFC on the physico-mechanical properties of paper, *Cellulose*, 20, 1425–1435.
22. Syverud, K., Stenius, P., 2009. Strength and barrier properties of MFC films, *Cellulose*, 16, 75–85.
23. Aulin, C., Gallstedt, M., Lindstrom, T., 2010. Oxygen and oil barrier properties of microfibrillated cellulose films and coatings, *Cellulose*, 17, 559–574.