(昭和 57 年 7 月 15 日受理)

水銀法によるたばこ刻みの見掛け密度の測定法

日本専売公社中央研究所 片山良徳・清水幸夫
東京工業大学工学部 清水二郎

A "MERCURY DISPLACEMENT" METHOD FOR MEASUREMENT OF THE APPARENT DENSITY OF CUT TOBACCO

By Yoshinori Katayama*, Yukio Shimizu* and Jiro Shimizu**

* (Central Research Institute, The Tobacco & Salt Public
Corporation, Umeoka, Midori-ku, Yokohama, Japan)

** (Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Technology,
Ookayama, Meguro-ku, Tokyo, Japan)

The apparent density of cut tobacco is one of the most important physical properties, because it has a high correlation to the bulkiness (Filling value) relating closely to the reduction of materials in cigarette production. In addition, it is related to the burning characteristics of cigarettes which have a great influence on the taste and aroma of smoke, and to the conditions of separating, transporting and drying processes of cigarette making. However, the conventional measurement method (the oil impregnation method) has the disadvantages of long operating time. For a rapid and convenient measurement of apparent density, the "mercury displacement" method was investigated using the large mercury surface tension. And the results obtained are as follow.

1) The apparent specific volume of cut tobacco in the pressure range of about 200 to 300 g-f/cm² was recognized to be in the nearly constant state, though it slightly decreased with the increase in pressure. The apparent density of each sample obtained under the pressure of 250 g-f/cm² agreed with the value by other methods, and it was adopted as the standard pressure in this method.

2) Under the standard pressure, it was confirmed experimentally that the mercury would not enter into the concave surface and the pore of diameter less than 60 μm. And the pore of diameter above 60 μm could not be observed in the surface of ordinary cut tobacco.

3) The values of apparent density and their accuracy obtained by this standardized method were almost the same as those obtained by the conventional method. The time required for this operation was about 15 min, which was one-third for the time of the conventional method.

4) The apparent density of cut tobacco consisting of the ordinary grain size distribution could be measured exactly by the pressure of 250 g-f/cm² and sample weight of 1-2 g (in case of 25 cm³ sample cell) as the standardized procedure.

(Received July 15, 1982)

1. 緒 言

たばこの刻みは多孔質材料であり、その多孔性を表す見掛け密度は、原料の節約に関係し、また、たばこの味や香りに関与する燃焼性や製造工程での分離、輸送、乾燥などに関係する重要な物理的性質の一つである。しかし、その見掛け密度の測定法について検討した報告¹⁾は

少なく、しかもその方法は繁雑であるので簡便な測定法が強く要望されている。

たばこの葉の場合は、ある程度の大きさをもった葉片を採取できるので、紙の測定法²⁾と同様に厚さの測定から単位面積重量との関係で容易に見掛け密度を求めることができる。しかし、たばこの刻みは細かく切られ、しかも熱などで処理されることが多く、形は複雑であり、

紙に類似した方法を刻みに適用することは実際上困難である。

現在ある方法には、刻みの細孔に真空油を含浸させて、その含浸した重量から見掛け密度を求める油含浸法¹⁾があるが、この方法では試料表面の油膜の遠心力による除去操作と真密度の測定などの操作があって繁雑となり、測定に時間を要する欠点がある。

そこで、刻みの見掛け密度を簡便に測定することを目的として、水銀の表面張力が大きいことを利用した紙の厚さ、見掛け密度の簡便な測定法^{3,4)}ヘリウム-水銀法による全細孔容積の測定法⁵⁾および水銀圧入法の原理^{6,7)}を参考にして、水銀で刻みの表面を一樣に被いその排除体積を測定する方法で見掛け密度の測定を行ったので、その結果をまとめた。

2. 実 験

2.1. 試 料

試料は、たばこ刻みの主原料である黄色種たばこ (Tobacco A) とバーレー種たばこ (Tobacco B) の2種類及びシート状に成形した再生たばこ⁷⁾を用いた。

標準の見掛け密度を定めるために、たばこ葉の主・支

脈を除いた葉肉部から葉片 (45×45 mm) を採取し、また再生たばこについては正常な部分から同じ大きさの試験片を採取した。

刻みについては、同様の方法で選択した葉片又は試験片を 0.8 mm 幅に、刻み用裁刻機を用いて裁断し、試料とした。

これらの試料を温度 22℃、相対湿度 60% の条件下で調湿し、測定に供した。

なお、表面及び切断面の走査形電子顕微鏡写真を図 1 に示す。Tobacco B は Tobacco A とほぼ同様であった。

2.2. 測定装置及び方法

2.2.1. 標準法と仮定した単位面積重量、厚さ測定による方法

単位面積重量と厚さを測定し、その結果から見掛け密度を算出する方法は最も簡便である。

しかし、たばこ葉の場合は大きい主・支脈は除いたとは言え、細網脈があり、葉の表面には凹凸がある。したがって、試験片の厚さの測定が重要である。一般に、紙の厚さ測定に用いるダイヤルゲージではその測定機構から大きい値となり、また切断面を顕微鏡で測定する方法は精度は高いが、試験片を切断するため他の測定に再

Fig. 1 Scanning electron micrographs of surface and cut cross-section of tobacco A and reconstituted tobacco

使用できない欠点がある。そこで、顕微鏡法とはほぼ同じ値が得られ、試験片を破壊しないで測定できる非接触形の光学式厚さ計⁹⁾を用いた。これは同一光軸上の対称位置にある二双の顕微鏡により試料の両面に焦点を合わせ、焦点間の移動距離を厚さとしてダイヤルゲージの目盛(1/100mm)を読み取る方法である。

この方法により各試料について試験片 10 片のそれぞれ 100 箇所を測定してその平均値を代表値とした。また、単位面積重量は試験片 30 片の重量を測定してその平均値を求めた。

2.2.2 水銀法による測定

水銀法による測定装置は図 2 に示すように、デシケター①、試料セル②、真空ポンプ④、緩衝容器⑤、水銀マンノメーター⑥、水銀溜⑦からなる。なお、それらの間はニードルバルブ(A)及びガラス製コック(B)～(D)で連結した。試料セルは容積約 25 cm³ のアクリル樹脂製セルを用いた。

Fig. 2 Apparatus for measuring volumes by mercury displacement method

測定方法は、試料 0.5～3 g を入れたセルをデシケター内に収容し、デシケター内を真空にする(脱気時間 5 分間、真空度は $3\sim7\times10^{-1}$ mmHg に到達)。次いで、ニードルバルブ(A)を開き、水銀溜中の水銀をセルに供給するが、水銀は大気圧によってセルの供給用細管(a)に流入し、セル内を満たす。水銀がセル内に充満すると三方コック(C)を切り替えて真空ポンプへの経路を閉じた後、コック(D)をわずかに開いて真空度を調節してマンノメーターの水銀柱の差を所定値にして刻みへの水銀の圧力を一定にした後水銀の供給を停止する。その間、供給過剰の水銀はセルの排出用細管(b)からセル外へ流出する。それから、コック(D)を開いてデシケター内を大気圧に戻してセルの重量を秤量する。

供試試料の見掛け密度(ρ_a)は(1)式により、試料の見

掛け体積(V_s)と供試重量(W_s)から算出する。見掛け体積は、セルに水銀のみを満たした時の重量(W_M)、試料を入れて測定した時の重量(W_T)、供試試料重量及び水銀の密度(ρ_M)から求める。

$$\rho_a = \frac{W_s}{V_s} = \frac{W_s}{\frac{W_M - W_T + W_s}{\rho_M}} \quad (1)$$

2.2.3 油含浸法

本法と比較のため油含浸法¹⁾による測定を行った。その測定法の概要について述べると、油含浸法では試料を真空用油中に浸漬して 20 分間減圧(真空度 $\times 10^{-2}$ mmHg)に保ち、試料細孔内の空気を排除して油で置換する。その後、試料を取り出して表面の過剰の油層を遠心除去(遠心効果は刻みで 300 G、シート状で 470 G)した後、その重量を測定し、増加した重量と真空用油の密度から細孔容積を求める。また、別に空気比較式比重計(東芝ベックマン社製、930 形)で真密度を測定して、供試試料の実体積を求め、細孔容積、供試重量から見掛け密度を算出する方法である。

3. 結果及び考察

3.1. 水銀法の操作条件の検討

3.1.1. 測定圧力の影響

まず、標準法での結果として単位面積重量、厚さ及び測定時水分は、Tobacco A では 73.0 g-W.M./m²、0.12 mm、12.9% W.B. であり、以下同様に Tobacco B は 30.4 g-W.M./m²、0.06 mm、9.9% W.B.、再生たばこは 50.3 g-W.M./m²、0.09 mm、13.4% W.B. であった。見掛け密度の値は表 4 に示す。

水銀法による測定の場合、測定時の状態は、試料表面を水銀が一樣に被った状態で容積を測定することが望ましい。しかし、水銀は表面張力が大きく、試料の刻みはからみあって塊状となっているので上記の条件を満たすためにはある一定の圧力を加える必要がある。この加える圧力と容積変化の関係について測定した結果を図 3 に示す。圧力と比容積の関係を示したが、圧力が増加するにしたがって見掛け比容積は減少し、圧力 200～300 g-f/cm² の範囲では見掛け比容積の変化はごくわずかで、また圧力 250 g-f/cm² の値は標準値とした単位面積重量・厚さ測定法の結果とよく一致した。このことから、水銀法での圧力の標準を 250 g-f/cm² が適当であると判断した。なお、大きい試験片についてもほぼ同様の結果が得られた。

なお、水銀が試料表面を被うために必要な圧力として、水銀ポロシメーターによる Juhola らのガラス球(6～8 mesh)での結果⁹⁾、小野木らの紙についての結果¹⁰⁾より

Fig. 3 Effect of mercury pressure on the apparent specific volume of samples

低い圧力である。それは、水銀が試料表面を被うための圧力に関係するたばこ刻みの表面の凹凸は、細い繊維の集合体である紙及びガラス球に比べて大きいこと、また細長い刻みの接触によって二次的に形成される微小な空間はガラス球、紙の場合より大きいことによるものと考えられる。

次に、圧力と水銀が浸入する細孔径について検討する。水銀は表面張力が大きいので刻みの組織内細孔に水銀が浸入するには圧力が必要であり、その圧力と円形の細孔径との関係はE. W. Washburn¹¹⁾が提唱した(2)式の関係が成立する。

$$p = \frac{-2\sigma \cdot \cos\theta}{r \cdot g_c} \quad (2)$$

ただし、 p : 圧力 $[g-f/cm^2]$

σ : 水銀の表面張力 $[dyn/cm^2]$

θ : 水銀と固体の接触角 $[^\circ]$

r : 細孔半径 $[cm]$

g_c : 重力換算係数 $[g-mass \cdot cm/g-f \cdot sec^2]$

そこで、設定した圧力と細孔径の関係を試料の細孔の構成状態につき検討した。まず、ポリプロピレン製の細管を用いて、毛細管に水銀が浸入する時の水銀柱の高さから圧力と細孔径の関係を検討した結果を図4に示す。なお、水銀の表面張力及び固体との接触角は水銀ガラスメーターで多く採用されている値(表面張力 $480 dyn/cm^2$, 接触角 140°)⁹⁾を用いた。その結果は図4に示したように(2)式によく一致し、圧力を定めると水銀が浸入し得る細孔径が定まり、それ以下の細孔には浸入し得ないことを示した。したがって、本法では測定圧力を $250 g-f/cm^2$ に定めたことから、刻み表面に通ずる細孔径 $60 \mu m$ 以上の細孔に水銀が浸入することになる。この

Fig. 4 Relationship between pressure and pore diameter on the mercury penetration

ことは逆に、 $60 \mu m$ より小さい細孔及び表面の凹凸を含めた容積を測定していることになる。

次いで、測定圧力での水銀浸入に関係する試料の切断面の細孔について、顕微鏡写真から細孔の周辺長と面積を測定して求めた換算直径を細孔径として表現すると、Tobacco Aで $39 \mu m$, Tobacco Bでは $35 \mu m$, 再生たばこでは $44 \mu m$ であった。この換算直径は再生たばこがたばこ葉よりやや大きい値を示すが、各試料とも測定圧力で水銀が浸入する細孔径 $60 \mu m$ より小さい。したがって、測定圧力条件では組織内空隙に水銀が浸入しないと推定される。

また、測定圧力条件下での試料の圧縮による変形について検討してみた。測定が容易であるので試料の厚さについて測定条件と同じ圧力をかけ測定したところ、圧力を加えない場合とほぼ近い値が得られたので変形の影響はないと考えられる。

3.1.2 供試量と刻みの大きさの影響

まず、供試量が $0.5 \sim 3 g$ の範囲、すなわちかさ密度として $0.02 \sim 0.12 g/cm^3$ の範囲で供試量の多少が測定値に及ぼす影響を検討した結果を表1に示す。なお、供試量 $3 g$ は用いた試料セルでの最大充てん量に相当する。その結果、供試量が増加するにしたがってわずかに測定値は大きくなる傾向にあるが、測定精度からみて見掛け比容積として有意な差とは認められない。この結果から供試量の多少に伴う刻み間の接触による影響は無視できるものと考えられるし、供試量としては測定精度、試料セルへの充てん操作の難易から判断して $1 \sim 2 g$ の範囲を適正量と考えた。

次に、刻みの大きさによる影響を検討するために、刻みをふるい分けて測定した結果を表2に示す。その結果、

Table 1 Effect of sample weight on apparent specific volume

Sample weight g-W. M.	Apparent specific volume cm ³ /g-W. M.			
	Tobacco A		Reconstituted tobacco	
	Mean	Standard deviation	Mean	Standard deviation
0.5	1.72	0.02	1.60	0.03
1.0	1.77	0.04	1.62	0.01
2.0	1.78	0.01	1.65	0.02
3.0	1.78	0.01	1.66	0.01

Table 2 Effect of sample size on apparent specific volume

Size * ¹⁾	Sample	Apparent specific volume cm ³ /g-W. M.
	Screen opening mm	
a	> 4.00	1.76
b	4.00~2.00	1.75
c	2.00~1.00	1.80
d	1.00~0.84	1.80
e	0.84~0.71	1.78
f	0.71~0.59	1.70

*¹⁾ Prepared by screening of shreds (tobacco A)

ふるい目開き 0.71 mm 以上の粒度区分の測定値では有意な差は認められないが、0.71 mm 以下では見掛け比容積は小さくなる傾向が認められる。これは刻みが小さい場合にみられる粒子間の接触による微小空間の影響よりも、刻みが小さくなることによってそれまでの内部空間が水銀と接触する面となり、比表面積に比して内部空間が減少するためと考えられる。また、実用上 0.71 mm 以下の刻みはほとんどないのでその影響は無視できると言える。

3.1.3 測定中の水分変化の影響

本法では試料を減圧下に保持するために水分変化が生じる。したがって、それに伴う乾燥収縮による見掛け容積の変化が考えられるのでこれについて検討した。なお、そのときの乾燥による重量変化の影響は供試量とその含水率の変化量からみて小さく、無視できると見なした。そこで、初期水分として温度 22℃、相対湿度 60% に調湿した刻みと減圧乾燥しほとんど水分がないものについて測定した結果を表 3 に示す。なお、見掛け比容積は測定時の重量基準とした。

表 3 の結果から乾燥した各試料の見掛け比容積は調湿品と有意な差は認められず、ほぼ同じ値を示す。しかし、同一水分にして比較すると、すなわち調湿品について含水率に相当する重量と容積を単純計算して水分のない状態での見掛け比容積を求めてみると、減圧乾燥品より値

Table 3 Change in apparent specific volume by moisture content

Sample	Apparent specific volume cm ³ /g	Moisture content % W. B.
Tobacco A * ¹⁾	1.77	12.9
	1.74	0.7
Tobacco B * ²⁾	2.09	9.9
	2.08	0.
Reconstituted tobacco	1.60	13.4
	1.63	0.

*¹⁾ Bright Yellow tobacco*²⁾ Burley tobacco

は大きく、減圧乾燥により 4~8% 程度の収縮となる。したがって、調湿品を供試する場合は乾燥収縮による容積変化が考えられ、乾燥による収縮の大きい試料及び脱気時間の変更については注意を要する。しかしながら、本法での所要時間は約 10 分間と短く、その間の水分変化は試料によって異なるが、表 3 に示す温度 22℃、相対湿度 60% での含水率では 4~6% W. B. の減少であり、水分変化による重量及び容積への影響は小さく、実用的には問題ないと考えられる。

3.2 水銀法の標準条件での測定結果

上記操作条件の検討から定めた標準条件、すなわち水銀圧力 250 g-f/cm²、試料量 1~2 g として本法による水銀法で見掛け密度を測定し、また従来法の油含浸法及び標準法と見なした方法での結果と比較した。その結果を表 4 に示す。

水銀法による刻みの見掛け密度は、たばこ葉については標準とした単位面積重量・厚さからの測定法及び油含浸法の結果とよく一致するが再生たばこではやや大きい値を示した。しかし、測定精度として平均値に対する標準偏差の割合(%, 測定 5 回)で示すと、油含浸法が 3.2%, 水銀法が 2.7% であり、再現性に有意な差は認められない。

なお、本法での再生たばこの値が大きい値を示した原因として表面状態の影響が考えられる。すなわち、図 1 から観察されるように、切断面については両者に大きな相違はない。しかし、たばこ葉の表面は破壊された表皮細胞がほとんど認められず、凹凸はあるが連続した表面状態を示しているのに対し、再生たばこはその製法からたばこ葉の繊維質を混合積層しているため、表面は繊維自体の凹凸に加えて繊維間の隙間があり複雑な形となっている。また、透気度¹²⁾測定結果ではたばこ葉の 2650 sec/100 ml に対して再生たばこは 18 sec/100 ml と小さく、再生たばこの場合は空気は組織を容易に通過し、細孔は両面間を相互連絡していることがわかる。し

Table 4 Comparison of apparent density and required time for measurement

		Method		Standard* ¹⁾ value
		Mercury displacement (Shreds)	Oil impregnation (Shreds)	(Sheet)
Apparent density (g-W. M./cm ³)	Tobacco A	0.56	0.58	0.59
	Tobacco B	0.48	0.47	0.47
	Reconstituted tobacco	0.63	0.56	0.58
Required time for measurement* ²⁾ (min)		15	50	

*¹⁾ Calculated from weight per unit area and thickness.

*²⁾ Mercury displacement: evacuating (5 min) — charging mercury (5 min) — adjusting pressure and recharging mercury (5 min).
Oil impregnation: evacuating and penetrating oil (20 min) — separating sample from oil (5 min) — centrifuging excess oil (10 min), and measuring true density (15 min).

たがって、再生たばこの複雑な表面構造と細孔径がたばこ葉より大きいことから水銀が浸入する細孔がわずかに存在し、標準値よりやや大きい値を示したと考えられる。

3.3 従来法との測定方法の比較

水銀法と油含浸法の簡便さを所要時間と測定操作の特性から比較すると、表 4 に両方法の 1 点の測定所要時間を示すように、水銀法は油含浸法の約 1/3 以下となり、時間を大幅に短縮できる。

また、測定操作の特性としていずれの方法も熟練を要する操作はないが、水銀法ではセルに試料を収容してから水銀を満たしてその重量を秤量するまでは試料の移動はなく、測定操作は簡単である。なお、水銀は毒性物質であるため真空ポンプの排気及び測定後の試料などの取扱いには十分注意を要する。それに対して油含浸法では含浸後油中からの試料の取出し、遠心分離のために試料を異なる容器に移動しなければならず、また粒度の小さい刻みもあるためその操作に時間を要することになる。

したがって、水銀法は簡単な装置により簡便にしかも実用的に他の方法と同等の測定精度でたばこ刻みの見掛け密度を測定することができる。

4. 結 論

たばこ刻みの見掛け密度を簡便に測定するために、水銀の表面張力が大きい性質を利用した測定方法を検討し、以下の結果を得た。

1) 水銀の圧力の増加にしたがって刻みの見掛け比容積は減少するが、圧力が 200～300 g-f/cm² の範囲ではほぼ一定値を示し、その見掛け密度は従来法と一致した。その結果から測定圧力を 250 g-f/cm² とした。

2) 圧力 250 g-f/cm² では直径 60 μm 以下の凹凸及び細孔には水銀が浸入し得ないことを確かめた。また、通常の刻みには 60 μm 以上の細孔は認められなかった。

3) 測定法として従来法の油含浸法と比較すると、精度はほぼ同じで、測定所要時間は約 15 分間であり、油含浸法の約 1/3 である。

4) 操作条件として圧力 250 g-f/cm²、試料量 1～2 g (25 cm³ 容試料セル) で、通常の粒度分布をもつ刻みに対して、本方法は正確に測定することができる。

付記：本研究は繊維学会昭和 55 年年次大会において発表した。

文 献

- 1) 増尾 裕, 片山良徳, 篠崎松江; 専売中研報, **114**, 17 (1971)
- 2) JIS P8118
- 3) TAPPI Standard, RC method 256
- 4) D. L. Taylor; *Tappi*, **47**, 165A (1964)
- 5) 河添邦太郎, 池田憲治; 化学工学, **26**, 1101 (1962)
- 6) 浦野紘平; 表面, **13**, 588 (1975)
- 7) 片山良徳, 加藤 育, 清水幸夫, 清水二郎; 繊維誌, **35**, T-119 (1979)
- 8) 清水幸夫; 農機誌, **31**, 309 (1970)
- 9) A. J. Juhola, E. O. Wiig; *J. Amer. Soc.*, **71**, 2078 (1949)
- 10) 小野木康治, 山内龍男, 村上浩二, 今村力造; 紙パ技協誌, **28**, 99 (1974)
- 11) 近藤連一編著; 「多孔材料」, 博報堂, p.45 (1973)
- 12) JIS P8117