薄層植物材料へのエタノールの拡散[†]

中西 幸雄・小針 正夫

日本たばこ産業(株) たばこ中央研究所^{††}

薄層植物材料であるたばこへの香料の吸着速度について検討した。

たばこ材料へのエタノールの吸着速度は材料内拡散律速モデルによってよく表わすことができた。理論吸収曲線と実測値との比較から有効拡散係数を求めた結果、一定の吸着水量におけるエタノールの有効拡散係数はcorrected diffusivityと吸着平衡関係から推算できることがわかった。さらに、吸着のみによるたばこの加香操作について検討し、この操作によって、従来の香料滴の散布による加香操作よりも均一な香料の添加が期待できることを明らかにした。

緒 言

たばこの加香は、傾斜円筒型混合機内で所定の含水率のたばこ刻みに揮発性の香料液をスプレーノズルで散布することによって行われている。香料は、液の浸透および蒸気の吸着の2つの機構によってたばこへ移動する。これまで、香料を均一に添加するためには吸着による移動機構が不可欠であることを明らかにし、吸着操作の基本となるたばこ水・香料混合蒸気の吸着平衡について検討してきた⁴⁻⁶⁾。最適な加香操作条件の設計のためには、さらに、香料のたばこ材料内での移動機構について検討する必要がある。

たばこのような乾燥収縮性材料では含水率によって細孔分布が変化するので⁵⁾、これに伴って香料の移動特性も大きく変化することが予測される。そこで、含水率をパラメータとしてたばこ材料内での香料(エタノール)の拡散速度について検討することにした。

たばこ刻みは植物の葉を刻んだものであり、その構造は拡散に対して等方的とはいえない。しかし、たばこ刻みは、おおそ縦13mm、横1mm、厚さ0.1mmの平板状の形態を持ち、表面(葉面)積と比較して断面積が著しく小さいので、断面方向からの拡散は無視できるものと思われる。そこで、断面からの拡散を無視して吸着・拡散過程をモデル化し、拡散係数を求めて、その水およびエタノール吸着量依存性について検討した。さらに、加香機を一種の流動層吸着装置とみなし、得られた拡散係数から吸着加香操作の合理性について検討した。

1. 実 験

たばこ材料は低含水率の状態では破碎されやすく、高含水率の状態では味と香りが劣化する。このため、加香操作におけるたばこ材料の適正含水率は、比較的狭い範囲に限られる。現行の加香操作は、経験的に相対湿度 $p_w/p_w^*=0.6$ で平衡にあるたばこ材料に対して行われている。本研究では、比較検討のために、 $p_w/p_w^*=0.6$ の場合に加えて0.3および0.8で吸着平衡にあるたばこ材料へのエタノールの拡散について検討する。

1.1 材 料

材料には、黄色種たばこおよびバーレー種たばこの2種を用いた。たばこ材料は、加香工程前にキュアリングや乾燥・加水などの処理を受けており、その物理的、化学的性質は生体植物と大きく異なる⁵⁾。これらの材料を半径 $r=1.5$ および 2.5 mm の円形に切り抜き、揮発性物質除去のために圧力 10^{-3} Pa 、温度 303 K 、時間 36 ks の条件⁵⁾で乾燥して実験に使用した。Table 1に、各 p_w/p_w^* におけるたばこ材料の平衡吸着水量と累積細孔容積とを示す。

1.2 実験装置と方法

筆者らは、たばこ材料への水・エタノール混合蒸気の吸着平衡についてすでに検討し、水蒸気圧が一定の場合、水の平衡吸着量はエタノール蒸気圧に依存せず、ほぼ一定となることを明らかにした⁶⁾。そこで、本吸着実験は、所定の水蒸気圧で吸着平衡に保ったたばこ材料に、段階的にエタノール蒸気を加えることによって行った。

実験にはFig. 1に示す吸着平衡測定装置を用いた⁶⁾。この装置は 10^{-3} Pa の圧力を維持することが可能で、定容法と重量法を併用して2成分混合蒸気の吸着平衡測定を行うものである。本装置の主要構成部分は、吸着管

[†] 1989年4月5日受理；化学工学協会第17回秋季大会(仙台、1983年9月)にて一部発表

^{††} 〒227 横浜市緑区梅が丘6-2

Table 1 Amounts of adsorbed water and cumulative pore volumes for tobacco materials at 303K

Material	P_w/P_w^* [-]	q_w/ρ_a [mol/kg]	v_p [m ³ /kg]
Bright tobacco	0.3	2.50	1.19×10^{-4}
	0.6	6.83	2.22×10^{-4}
	0.8	14.32	2.98×10^{-4}
Burley tobacco	0.3	3.44	1.95×10^{-4}
	0.6	6.60	2.00×10^{-4}
	0.8	10.16	2.29×10^{-4}

(350cm³)(1). 循環室(1850cm³)(2) および液体溜(3), (4)と気体溜(5)である。吸着管はガラス製で、外側にヒーターを電気メッキした透明管である。液体溜と気体溜は二重のガラス管からなり、その円環内に恒温水を流通できる。

まず、試料を石英バスケット(7)に充てんして前述の条件で乾燥処理し、吸着管のデッドボリュームを測定した。その後、全系を303Kに保ち、所定の水蒸気圧下で試料を吸着平衡に保った。平衡重量および平衡圧をそれぞれラインセンサーカメラ(14)および圧力センサー(15)によって測定し、吸着管と循環室内の水の総量を算出した。次に、エタノール蒸気を次の手順によって供給した。まず、三方コック12の操作によって吸着管を循環室から切り放した。気体溜を真空排気し、ここにエタノール蒸気を送り込んだ。トラップ(13)をジュワー瓶に満たした液体窒素で冷却し、コック10を開いて気体溜のエタノール蒸気をトラップ内に凝縮させた。圧力センサー(16)によって気体溜内の圧力が0となったことを確認した後、コック10を閉じてトラップからジュワー瓶を取り除き、循環室の圧力が一定になるまで蒸気を気体循環ポンプ(17)で混合した。循環室内の圧力を測定し、供給したエタノール量を pVT 関係から算出した。次に、三方コック12を操作して混合蒸気を吸着管に送り込んだ。気体循環ポンプを作動させながら重量および蒸気圧の変化を経時的に測定し、各成分の蒸気圧と吸着量変化を物質収支と pVT 関係とから計算した。同様な手順でエタノール蒸気の供給を繰り返し、各段階の吸収曲線を測定した。

2 基礎的考察

たばこ材料への水およびエタノールの吸着は、水吸着量が極めて少ない場合を除いて、いずれの場合も物理吸着である⁸⁾。したがって、水分がすでに存在するたばこ材料への吸着過程は、材料内の拡散律速と考えてよい。また、たばこ材料中のマイクロポアは半径1-2nm以下のものが大部分を占め、 p_w/p_w^* が大きな場合にはこれら

Fig. 1 Schematic diagram of apparatus 1. Adsorption column; 2. Circulation chamber; 3, 4. Liquid reservoir; 5. Vapor reservoir; 6. Quartz spring; 7. Basket; 8, 9, 10, 11, 12. Cocks; 13. Vapor trap; 14. Line sensor camera; 15, 16. Pressure gauge; 17. Gas circulator; 18. Thermocouple

のマイクロポアの大部分は毛管凝縮水によって満たされている⁵⁾。したがって、拡散流束に対するKnudsen拡散の寄与は無視してよい。このような状態を考え、次の仮定を置いた。

仮定1) 気相とたばこ間に水の移動はなく、水蒸気は不活性ガスと見なせる。

仮定2) たばこ試料の断面からの拡散は無視できる。すなわち、試料は無限大の広がりを持つ平板とみなせ、その厚さ方向にのみ拡散が起こる。

試料のエタノール吸着量変化は次の微分方程式によって表わされる。

$$\partial q_e / \partial t = \partial / \partial x (D_e \partial q_e / \partial x); -l \leq x \leq l \quad (1)$$

ここで、 q_e は試料のみかけ体積当りのエタノール吸着量、 p_e はエタノール蒸気圧、 D_e は有効拡散係数、そして x は試料の厚み方向を示す座標である。 D_e の物理的内容は次式のように分割されることが知られている¹⁰⁾。

$$D_e = D_{0e} \partial \ln p_e / \partial \ln q_e \quad (2)$$

ここで、 D_{0e} は化学ポテンシャルを駆動力として導出された拡散係数(corrected diffusivity)であり、 D_e と比較すると濃度の影響を受けないことが知られている。エタノールの吸着量変化が小さいときには、エタノール吸着量はその蒸気圧と直線平衡($\partial q_e / \partial p_e = K$)で近似することができ、 D_e は一定と見なすことができる。また、材料表面で常に吸着平衡が成立しているものとすれば、初期および境界条件は次のようになる。

$$q_e = q_{e0}, \quad t \leq 0, \quad -l < x < l \quad (3)$$

$$p_e = p_{e1}, \quad t = 0, \quad x \geq l \quad \text{and} \quad x \leq -l \quad (4)$$

$$\partial q_e / \partial x = 0, \quad x = 0 \quad (5)$$

Table 2 Effective diffusivities of ethanol in bright tobacco at 303K

p_w/p_w^* [-]	r [mm]	p_{e0} [kPa]	p_{e1} [kPa]	$p_{e\infty}$ [kPa]	$\Delta p_w/p_{w\infty}$ [-]	$\Delta p_w/p_{w\infty}$ [-]	$D_e \times 10^{12}$ [m ² /s]
0.6	1.5	0	1.83	1.51	0.023	-0.014	1.83
		1.51	3.32	3.08	-0.018	0.010	2.66
		3.08	4.10	3.92	-0.018	0.010	2.13
		3.92	4.79	4.61	0.022	-0.014	1.55
		4.61	5.63	5.37	0.013	-0.007	1.44
		5.37	6.37	6.08	0.000	0.000	0.989
	2.5	2.40	3.35	3.23	0.000	0.000	2.67
		3.96	4.85	4.67	0.020	-0.009	1.98
		5.33	6.21	5.96	0.014	-0.007	1.45
		0	5.56	5.25	-0.009	0.005	4.00×10^{-2}
		5.25	7.76	7.33	-0.096	0.051	3.47×10^{-2}
0.3	1.5	0	0.89	0.65	-0.004	0.001	4.68
		0.65	1.57	1.41	-0.007	0.002	6.32
		1.41	2.33	2.16	0.000	0.000	4.79
		2.16	3.05	2.84	0.000	0.000	4.55
		2.84	3.73	3.49	0.007	-0.003	3.32
		3.49	4.40	4.12	0.007	-0.003	2.63

$$(V/A)/(RT) \partial p_e / \partial t = \mp D_e \partial q_e / \partial x,$$

$$t > 0, x = \pm l \quad (6)$$

ここで V は容器の容積，そして A は試料の全表面積である。したがって，吸収曲線は次式で与えられる¹⁾。

$$\frac{m_t}{m_\infty} = 1 - \sum \frac{2\alpha(1+\alpha)}{1+\alpha+\alpha^2\phi_n^2} \exp(-D_e\phi_n^2 t/l^2) \quad (7)$$

ここで m は吸収量（添え字 t および ∞ はそれぞれ時間 t および無限大時間経過後の値）， ϕ_n は $\tan \phi_n = -\alpha \phi_n$ の n 次の0でない根，そして $\alpha = (V/A)/(RTkl)$ である。したがって， D_e 値は実測吸収曲線とEq.(7)とのカーブフィッティングによって求めることができる。

3. 結果と考察

3.1 拡散モデルの検討

Fig. 2 に $p_w/p_w^* = 0.6$ で吸湿した $r = 1.5$ および 2.5 mm の黄色種たばこ試料のエタノール吸収曲線の例を示す。図中の実線はEq.(7)のカーブフィッティング曲線であり，測定点と良く一致している。カーブフィッティングにより得た D_e を実験条件とともにTable 2にまとめて示す。水蒸気圧および水吸着量の変化が小さく，測定点とカーブフィッティング曲線とが良く一致していることから，仮定1)は妥当であることがわかる。また，Fig. 3 に， D_e とエタノール吸着量 $q_e = (q_{e0} + q_{e\infty})/2$ との関係を示す。実験試料の半径にかかわらず， D_e はほぼ同一の曲線で表わされることがわかる。このことから，たばこ材料においては，表面からの拡散が支配的であって断面からの拡散は無視できると考えられ，仮定2)は妥当である

Fig. 2 Comparison of sorption curves in bright tobacco samples of different radius at 303 K ($p_w/p_w^* = 0.6$)

と結論できる。

3.2 黄色種たばこ

$p_w/p_w^* = 0.3, 0.6$ および 0.8 で吸湿した黄色種たばこ試料の D_e を実験条件とともにTable 2に示す。 $p_w/p_w^* = 0.3$ の測定点が少ないが，これはエタノール吸着量のステップ変化量を他の p_w/p_w^* の場合とほぼ等しくするため，蒸気圧のステップ幅を大きくとって測定したことによる。

D_e の吸着量依存性を明確に示すため，Fig. 3に p_w/p_w^* をパラメーターとして D_e とエタノール吸着量との関係を示す。 p_w/p_w^* は水吸着量の尺度なので， D_e は水吸着量の

Fig. 3 Effective diffusivities for ethanol in bright tobacco at 303 K

増大に伴って増大する傾向にあり、一方、水吸着量が一定の場合には、エタノール吸着量の少ない領域ではエタノール吸着量とともに増大し、その後は減少する傾向にあることがわかる。また、 $p_w/p_w^*=0.3$ の場合、 D_e 値は著しく小さい。この原因は、水吸着量の増大に伴う黄色種タバコの細孔容積の増大が乾燥収縮した組織構造の弛緩に起因することから⁵⁾、低い p_w/p_w^* では構造の弛緩が十分ではなく、エタノールの拡散に大きな活性化エネルギーを必要とするためと考えられる。

Fig. 4に、Eq.(2)を用いて計算した D_{0e} とエタノール吸着量との関係を示す。 D_{0e} 値は、 $p_w/p_w^*=0.3$ の場合、著しく小さいためにバラツキが大きい、水吸着量が増すと増大し、また、水吸着量が等しい場合には、エタノール吸着量に依存せず、ほぼ一定の値を示すことがわかる。したがって、 $p_w/p_w^*=0.6$ および 0.8 の場合には、Eq.(2)から任意のエタノール吸着量で D_e 値を推算できる。 D_{0e} の水吸着量依存性は、前述のように黄色種タバコの構造変化に起因する活性化エネルギーの変化によるものと考えられる。しかし、膨潤現象が極めて複雑なために理論的な解析は困難である。

3.3 バーレー種タバコ

Table 3にバーレー種タバコの場合の D_e を実験条件とともに示す。ただし、 $p_w/p_w^*=0.3$; $p_e=0-3.37$ kPaにおける実験では、測定点をEq.(7)でカーブフィッティングすることができなかった。これは、 D_e が平衡に達するにつれて減少し、大きなエタノール濃度依存性を示したことによる。この原因は、バーレー種タバコが高濃度のエタノール水溶液に浸すと収縮することから⁴⁾、吸着の初期段階でタバコ表面のエタノール濃度が高くなって収縮

Fig. 4 Corrected diffusivities for ethanol in bright tobacco at 303 K

が起きたためと考えられる。

p_w/p_w^* をパラメータとして D_e および D_{0e} のエタノール吸着量依存性をそれぞれFigs. 5および6に示す。黄色種タバコと比較すると、 D_e の水吸着量依存性が小さいこと、および水吸着量の大きな領域で D_{0e} 値がエタノール吸着量ばかりでなく水吸着量にも依存せず、一定の値となる点で異なっている。両者のタバコ材料で D_{0e} の水吸着量依存性が異なる原因は、Table 1に示したように、水の吸着によるバーレー種タバコの構造変化が黄色種タバコの場合と比較して小さいためと考えられる。

以上の結果から、バーレー種タバコの場合、 p_w/p_w^* の高い領域では任意のエタノール吸着量で D_e 値を推算できることがわかった。

3.4 V型混合機による連続加香操作に関する考察

D_e 値が小さく、しかもエタノール吸着量が少ないことから、吸着操作のみで1wt%程度の加香を達成できるかどうか検討する必要がある。ここではすでにホールドアップ特性および混合特性を検討している連続V型混合機⁷⁾を用いた加香操作について考察する。実際の加香操作では円筒型混合機が使用されているが、連続V型混合機は多段流動層装置として取り扱うことができるため、吸着操作の設計が容易であるという利点を持つ。

今、Fig. 7に示すようなV型混合機による向流連続加香操作について考察する。この混合機の各V型ユニットは2槽の完全混合槽として機能し、そのホールドアップは次式で与えられる。

$$M_i = \begin{cases} [2(N-(i+1)/2)+1]F/n; & i=1,3,\dots \\ \{2(N-i/2)+1\}F/n; & i=2,4,\dots \end{cases} \quad (8)$$

ここで、 N はV型ユニットの全段数、 i は材料入口側から数えた完全混合槽の槽数、 F は材料流量、そして n は回転数である。ここで、次の仮定を置く。

Table 3 Effective diffusivities of ethanol in burley tobacco at 303K

p_w/p_w^* [-]	P_{e0} [kPa]	P_{e1} [kPa]	$P_{e\infty}$ [kPa]	$\Delta p_w/p_{w\infty}$ [-]	$\Delta q_w/q_{w\infty}$ [-]	$D_e \times 10^{12}$ [m ² /s]
0.3	0	3.52	3.37	0.007	-0.005	—
	3.37	6.85	6.68	-0.039	0.025	0.411
	6.68	8.92	8.73	-0.009	0.005	0.488
0.6	0	1.80	1.64	0.000	0.000	1.40
	1.64	3.40	3.25	-0.014	0.006	1.22
	3.25	4.23	4.10	-0.005	0.002	0.929
	4.10	5.07	4.92	-0.005	0.002	0.871
	4.92	5.90	5.71	-0.010	0.005	0.547
0.8	0	1.57	1.40	-0.004	0.002	1.97
	1.40	2.87	2.72	-0.008	0.003	2.43
	2.72	3.68	3.57	-0.004	0.002	1.13
	3.57	4.56	4.41	-0.012	0.005	0.701
	4.41	6.13	5.22	0.004	-0.002	0.602

Fig. 5 Effective diffusivities for ethanol in burley tobacco at 303 K

Fig. 6 Corrected diffusivities for ethanol in burley tobacco at 303 K

1) 気相は栓流とし、軸方向の拡散を無視する。また、流速は一定とする。

2) たばこ刻みは装置の大きさと比較して著しく小さいので、たばこ刻みの長さ方向での濃度分布を無視する。

3) 各完全混合槽で直線吸着平衡を仮定する。

4) 吸着の律速過程はたばこ材料内の拡散過程であり、境膜物質移動抵抗は無視できる。

簡略化のため、吸着速度を1次推進力モデルで記述する。

$$\partial \bar{q} / \partial t = kK'(c - c^*) \quad K' = \partial \bar{q} / \partial c \quad (9)$$

ここで、 $\bar{q}$ は平均吸着量、 k は物質移動係数、そして c^* は材料表面でのエタノール吸着量と平衡な気相のエタノール濃度である。このモデルをたばこ刻みに適用するため、Haynes らの提案した方法²⁾に準拠して平板状の材料 k と D_e 間の関係について考察する。

Fig. 7 Schematic drawing of flavoring process using continuous twin shell mixer

k と D_e との関係 今、一定速度 v で不活性キャリアーが流れているたばこ刻みの固定層に、吸着質をパルス状に供給した場合を考える。仮定1), 2)および4)から、ガス側の微分物質収支は次式で与えられる。

$$v \frac{\partial c}{\partial z} + \frac{\partial c}{\partial t} + \left(\frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} \right) \frac{\partial \bar{q}}{\partial t} = 0 \quad (10)$$

ここで、 ε は固定層の空隙率である。また、たばこ材料

Table 4 Required number of perfect mixing tanks (2N) for flavoring up to 1 wt %

Material	ρ_a [kg/m ³]	$2l$ [m]	p_w/p_w^* [-]	G [m ³ /s]	c_{in} [mol/m ³]	c_{out} [mol/m ³]	2N [-]
Bright Tobacco	4.4×10^2	1.3×10^{-4}	0.6	2.24×10^{-2}	2.55	1.28×10^{-1}	10.0
Burley Tobacco	3.4×10^2	6×10^{-5}	0.6	2.24×10^{-2}	2.55	1.28×10^{-1}	8.2
Burley Tobacco			0.8	2.71×10^{-2}	2.11	1.05×10^{-1}	6.5

の吸着量変化は、仮定4)からEq.(1)によって与えられる。
 $q = \int_0^l q dx / l$ と置いてRosenの方法⁹⁾したがってEqs.(1)
 および(10)を解くと次式が得られる。

$$\frac{\sigma^2}{2\mu^2} = \frac{v}{L} \left(\frac{\epsilon}{1-\epsilon} \right) \frac{l^2}{3K'D_e} \left(1 + \frac{\epsilon}{(1-\epsilon)K'} \right)^{-2} \quad (11)$$

ここで、 μ は出口濃度の平均、 σ^2 は分散、そして L は固定層長さである。一方、吸着速度としてEq.(9)の1次推進力モデルを用いた場合には次式が得られる¹⁰⁾。

$$\frac{\sigma^2}{2\mu^2} = \frac{v}{L} \left(\frac{\epsilon}{1-\epsilon} \right) \frac{1}{kK'} \left(1 + \frac{\epsilon}{(1-\epsilon)K'} \right)^{-2} \quad (12)$$

Eqs.(11)と(12)との比較から k と D_e 間に次式の関係を得る。

$$k = 3D_e / l^2 \quad (13)$$

流動層加香操作 Fig. 7の連続V型混合機に対する物質収支から次式が得られる。

$$F(q_1 - q_{n+1}) = G(c_0 - c_n) \quad (14)$$

ここで G は気体流量である。また、第2N槽の段効率 η は次式で与えられる³⁾。

$$\eta = (c_0 - c_1) / (c_0 - c_1^*) = 1 - \exp(-kK'M_{2N}/G) \quad (15)$$

今、加香操作条件を次のように設定し、1 wt %の加香が達成されるユニット数を試算する。ただし、 $p_w/p_w^* = 0.3$ の場合には D_e 値が小さく、加香操作には不適なので、計算から除外した。

1) 実際の操作条件に準拠し、V型混合機のローター半径は70cm、回転数は13rpmとし、材料流量は250g/sとする。

2) エタノール蒸気圧は、各設定水蒸気圧($p_w/p_w^* = 0.6$ および0.8)下で気液平衡にあるエタノール蒸気分圧の90%の値とする。

3) 段効率の低下を防ぐため、出口エタノール濃度は入口に対して5%の値とする。

Fig. 8に、一例として、 $p_w/p_w^* = 0.6$ の場合のバーレー種タバコに対する図解法を示す。 D_e が小さく、材料出口側の完全混合槽ではタバコ刻みの保有量が小さいため段効率は低いが、必要とする添加量が1 wt %と小さく、タバコ刻みの厚みが薄いので、吸着による加香操作が十

Fig. 8 Required number of perfect mixing tanks for flavoring on burley tobacco up to 1 wt% (0.217 mol/kg) at 303 K ($p_w/p_w^* = 0.6$)

分に可能であることがわかる。また、Table 4には各 p_w/p_w^* 値における黄色種およびバーレー種タバコの加香に必要な完全混合槽の槽数を示す。Table 4の結果から、吸着による加香操作が十分に可能であり、吸着加香によって従来法より均一な香料の添加が期待できると結論できた。

結 論

収縮性植物材料であるタバコへの香料(エタノール)の吸着速度について、その水およびエタノール吸着量依存性を検討した。さらに、得られた拡散係数から流動層吸着装置を用いた加香操作の合理性について検討し、以下の結論を得た。

1) タバコ材料へのエタノールの吸着速度は材料内拡散律速モデルによってよく表わすことができた。

2) 一定の吸着水量におけるエタノールの有効拡散係数 D_e は、corrected diffusivity D_{0e} と吸着平衡関係から推算できる。

3) タバコ材料の流動層吸着装置による加香が可能で

あり、この方法により、従来法と比べてより均一な香料の添加が期待できる。

[謝 辞] 本論文をまとめるにあたって適切な御助言をいただきました東北大学工学部 鈴木睦教授に深謝いたします。

Nomenclature

A	= surface area of sample	[m ²]
c	= concentration in gas phase	[mol/m ³]
c^*	= equilibrium value of c	[mol/m ³]
D_e	= effective diffusivity of ethanol	[m ² /s]
D_{0e}	= corrected diffusivity of ethanol	[m ² /s]
F	= volumetric feed rate of material	[m ³ /s]
G	= volumetric feed rate of gas	[m ³ /s]
K	= equilibrium constant defined in term of ethanol pressure	[mol/(m ³ ·Pa)]
K'	= equilibrium constant defined in term of ethanol concentration	[-]
k	= overall effective mass transfer coefficient	[s ⁻¹]
L	= adsorption bed length	[m]
l	= half length of sample	[m]
M	= volume of material in perfect mixing tank	[m ³]
m	= total amount of ethanol in sample	[mol]
N	= number of twin shell units connected in series	[-]
n	= rotational speed	[s ⁻¹]
p	= vapor pressure	[Pa]
p^*	= saturated vapor pressure	[Pa]
q	= amount adsorbed	[mol/m ³]
R	= gas constant	[J/mol]
r	= radius of sample	[m]

T	= temperature	[K]
t	= time	[s]
V	= volume of vessel	[m ³]
v	= interstitial velocity of gas	[m/s]
ϵ	= voidage of adsorption bed	[-]
η	= stage efficiency	[-]
μ	= mean retention time	[s]
ρ_a	= apparent density of material	[kg/m ³]
σ	= standard deviation of pulse response	[s]
<Subscripts>		
e	= ethanol	
w	= water	
0	= initial equilibrium value	
1	= value at $t = 0$	
∞	= final equilibrium value	

Literature cited

- 1) Crank, J.: "the Mathematics of Diffusion", Clarendon Press, Oxford (1975)
- 2) Haynes, H.W. and W.D.Sarma: *AIChE J.*, **19**, 1043 (1973)
- 3) Kagaku Kogaku Kyokai(ed.): "Kagaku Kogaku Benran (5th ed.)", Maruzen, Tokyo (1988)
- 4) Nakanishi, Y. Y.Mizuno and M.Kobari: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **14**, 794 (1988)
- 5) Nakanishi, Y. and M.Kobari: *ibid.*, **14**, 685 (1988)
- 6) idem: *ibid.*, **15**, 968 (1989)
- 7) Nakanishi, Y. M.Kobari and Y.Shimizu: *ibid.*, **13**, 58 (1987)
- 8) Nakanishi, Y. Y. Shimizu and M. Kobari: World Congress III of Chem. Eng., Tokyo, Japan, September, 1986, Vol. 2, p. 841
- 9) Rosen, J.B.: *J. Chem. Phys.*, **20**, 387 (1952)
- 10) Ruthven, D.M.: "Principles of adsorption and Adsorption Processes", Wiley, New York (1984)

Diffusion of Ethanol Vapor in Thin Sheet Plant Material

Yukio Nakanishi and Masao Kobari

Tobacco Science Research Lab., Japan Tobacco Inc. Yokohama 227

Key Words : Adsorption, Mass Transfer, Diffusivity, Flavor, Water

The rates of adsorption of ethanol vapor (the principle flavoring constituent) on tobacco materials with various water contents were studied.

The rates correlated well with those predicted by the internal diffusion control model. The effective diffusivities of ethanol were obtained by comparing the experimental values with the theoretical sorption curve. It was shown that the effective diffusivities at constant water content can be determined by the corrected diffusivity and the adsorption equilibrium relation. In addition, the possibility of a flavoring method dependent solely on adsorption was investigated. The results suggested that flavor can be distributed more homogeneously through tobacco by using this method rather than by spraying.