論文

Flow Pattern of the Dispersed System of Tobacco
and Water During Extruding III.
Influences of Water-Soluble Compositions Included in Tobacco
on Apparent Viscosity of the Dispersed System

by

Yukio SHIMIZU^{*1}, Tetsu FUJITA^{*1}, and Kaoru UMEYA^{*2}

(Central Research Institute, The Japan Tobacco & Salt Corp., Umeaoka,
Midori-ku, Yokohama, Kanagawa 227^{*1} and Faculty of Engineering, Tohoku
University, Aramaki, Sendai, Miyagi 980^{*2})

There was a clear difference between the apparent viscosity η_a of dispersed systems of the flue-cured tobacco and that of the air-cured tobacco. To clarify this difference, the influences of water-soluble compositions included in tobacco on η_a were examined about the systems of the flue-cured tobacco, the air-cured tobacco, and their residues treated with water, using a ram-type extruder. Since a part of water-soluble compositions of tobacco should be dissolved into the water, the concentration of the systems was expressed in terms of the ratio of weights of water and insoluble composition.

Sugars, the major part of the water-soluble compositions for the flue-cured tobacco, exhibited a large effect on η_a . η_a decreased with increase of sugar content in tobacco and also with addition of sugars to the systems. The influences of the sugars were evenly observed for two varieties of tobacco and their residues.

The extract of the flue-cured tobacco bore the viscosity about 13 times larger than that of water. However, as dispersion medium, the extract gave a dispersion with lower η_a than did water. On the other hand, the extract of the air-cured tobacco bore the viscosity about 3 times larger than water, and it gave a dispersion with η_a slightly higher than did water.

By decationizing treatment, the viscosity η of two extracts and the apparent viscosity η_a of dispersed systems in these extracts were both decreased. The decrease in η_a were remarkable in the systems of the extract of the air-cured tobacco.

There was little difference in chemical compositions between two tobaccos, after treatment with hot water. Some differences in η_a , however, was observed between systems of two residues with as yet unknown reason.

たばこ粉-水系の流動特性について Ⅲ .

たばこ粉に含有される水溶性成分の 見掛けの粘性に及ぼす影響について

清水 幸夫^{*1}・藤田 哲^{*1}・梅屋 薫^{*2}

(原稿受理：1978年7月20日)

1. 緒 言

火力乾燥種たばこの粉末-水系の流動に対する見掛けの粘性 η_a と空気乾燥種たばこの粉末-水系のそれとの比較においては、後者が前者の約8倍であった^{1),2)}。両たばこの粉末は同一条件により粉碎、分級されたものであり、顕微鏡法による粒度の分布に差はほとんど見られない。それにもかかわらずこれらの η_a に大きい差が認められたことは、本研究の目的である再生たばこを製造するための押出成形法の確立を進める上で極めて重要な、かつ興味深い現象の一つである。

両種たばこの間には、品種が異なることおよび収穫後受ける乾燥条件（火力乾燥と空気乾燥）が異なることに由来する化学的、物理的性質の相違点が挙げられる^{3)~6)}。本報告は、たばこの粉末が細胞質材料の特色である水溶性成分を含有することに着目し、なかでも化学的性質の中では両たばこの最大の相違点である糖類の含有割合を取り上げ、更には両系の η_a の差に及ぼす水溶性成分の影響について検討した結果を取りまとめたものである。

2. 試料及び測定方法

2・1 試料

火力乾燥種および空気乾燥種たばこの代表的な栽培品種である Bright Yellow (*Nicotiana tabacum*, c.v. Bright Yellow, 着葉位置の上位の葉)と松川 (*Nicotiana tabacum*, c.v. Matsukawa, 着葉位置の下位の葉)をそれぞれ選定し、正常な生育と処理を受けた葉から主脈を除いて葉肉部だけとし乾燥ののち超微粉碎機で粉碎し、更に篩振とう器により170メッシュ篩目(目開き0.088mm)を通過させたものを得た。このたばこ粉末を10倍量の約70℃の水に60分間浸漬、攪拌した。不溶性成分(以後はこれを残渣と言う)を2500Gの遠心沈降器で沈殿させて回収し、更にこの操作を2回繰り返したのち真空凍結乾燥し試料とした。得られた残渣の割合は Bright Yellow が52%、松川が60%であった。残渣の化学的成分を Table 1 に示した。一方、別に水溶性成分を遠心沈降器より回収し抽出液とした。また、この抽出液からイオン交換樹脂(三菱化成製, SK-116)を用いて陽イオンを除去したのもも試料とした。その主たる化学的成分を Table 2 に示した。

測定に当たっては、たばこ粉末の残渣に所定量の水、更には糖類、抽出液を加えて混合し、いったんスクリュ-式押出機で6φの棒状体に成形することにより試料の均質化をはかったものを用いた。

^{*1} 日本専売公社中央研究所 横浜市緑区梅が丘6の2

^{*2} 東北大学工学部応用化学科 仙台市荒巻字青葉

Table 1 Chemical compositions of residue (%/Residue)

Composition	Bright Yellow	Matsukawa
Cellulose	24.2	25.9
Hemicellulose	23.8	24.9
Lignin	2.1	2.2
Resin and Wax	11.5	10.2
Pectine	26.1	24.8
Unidentified	12.3	12.0

Table 2 Chemical compositions of solute (%/Solute)

Composition	Bright Yellow	Matsukawa
Sugars	51.6	3.9
Alkaloid	7.3	5.0
Organic acids	13.1	22.9
Starch	10.8	7.6
Volatile base	0.8	1.3
Ash	14.1	34.7
Unidentified	2.3	24.6

試料中の水分割合は乾燥減量(100℃, 1時間)より求めた。

2・2 押出特性の測定

押出特性の測定に使用した機器および測定方法はすべて前報¹⁾と同じである。試料温度は20℃, その精度は±0.5℃であった。

2・3 抽出液の粘度測定

抽出液および抽出液から陽イオンを除去したものをそれぞれ水槽温度を50℃にしたロータリエバポレーターで濃縮し、その粘度を2重円筒回転型粘度計(精機工業研究所製, VS-A1)で測定した。

3. 結果と考察

これまでは濃度をたばこ粉末の重量 T に対する水の重量 W の割合を用いて式(1)で表現してきた。しかし、水溶性成分の内容と量とが異なる両種たばこ粉末の分散系を比較する上では、Eyringら⁷⁾の主張に従い分散系の粘性を粒子側の要因と分散媒側の要因とに分割する必要がある。たばこ粉末と水とを混合した場合、粉末からは水分割合に応じて水溶性成分が水に溶出し、それぞれの系に応じた濃度で平衡状態に達する。したがってそのときの濃度

Fig. 1. Dependences of equilibrium concentration of solute and α (=Dissolved matter/Total soluble matter) on water content of tobacco, at $\theta = 25 \sim 28^\circ\text{C}$.

は T から溶出した水溶性成分の量 αT_{sol} を差し引いた値に対する W の割合で表示することができ、その関係は式(2)で定義できる。

$$\phi = W/T \quad (1)$$

$$\phi' = W/(T - \alpha T_{\text{sol}}) \quad (2)$$

ここで従来用いてきた濃度 ϕ を「初期濃度」とし、 ϕ' を「平衡濃度」と呼ぶことにする。 T_{sol} はたばこ粉末に含有される水溶性成分、 α は全水溶性成分に対する分散媒に溶出した量の割合である。

α を求めるため、たばこ葉に水を吸着させ圧搾機により吸着水の一部を搾取し、あるいは水を噴霧し2昼夜放置後に付着水を搾取しその濃度を測定した。得られた濃度とたばこ葉の水分割合から溶出している水溶性成分の量を、更には α を求めて Fig. 1 に示した。Bright Yellow では $\phi = 100\%$ で α はほぼ 1.0 に達するが、松川では $\phi = 208\%$ においても α は 0.83 にすぎない。これは両者に含有される水溶性成分の溶解度の相違、すなわち溶解度の高い糖類を主体とする前者、溶解度の低い無機塩を主体とする後者との相違によるものであろう。

前報^{1),2)}で得た結果を式(1)に従って整理し $\phi - \log \eta_a$ 座標上にプロットして Fig. 2 に示した。既に述べたとおり両系の η_a の比較では、例えば $\phi = 40\%$ で松川系が Bright Yellow 系よりも約 8 倍大きかった。同じ結果を式(2)に従って再整理し $\phi' - \log \eta_a$ 座標上にプロットし Fig. 3 に示した。両系の η_a の比較では、例えば $\phi' = 70\%$ で松川系が Bright Yellow 系よりも約 1.8 倍大きかった。両者の濃度表示の基準を変えることにより η_a の相対的な関係が変化したことは、水溶性成分の溶出する割合が異なること、溶出した水溶性成分により分散媒の性質が変化し、しかもその内容成分が異なることなどによるものと考えられる。

これらの要因は互いに関連し合って複雑であるので、解析を容易にするためたばこ粉末とあらかじめ水溶性成分を除去した残渣とを用い。これらに水、既知の成分である糖液あるいは抽出液などを添加する方法で検討した。

3・1 圧力分布

シリンダ、コーンおよびノズルでの圧力 P 、緩和後の残留応力 P_y はその 1 例を、Bright Yellow の残渣系について Fig. 4 に示した。ノズルにおける測定点 3 から出口まではほぼ直線的に減少

Fig. 2. Relation between ϕ and η_a of the two specimens indicated in the figure, at $S = 10^0 \text{ sec}^{-1}$ and $\theta = 20^\circ\text{C}$.

Fig. 3. Relation between ϕ' and η_a of the two specimens indicated in the figure, at $S = 10^0 \text{ sec}^{-1}$ and $\theta = 20^\circ\text{C}$.

し、水抽出処理を受けないたばこ粉末の分散系と同じ傾向を呈した。このことから、測定点 3 ではノズル入口の効果が小さいと見て、測定点 3 から出口までの間の圧力降下 P_3 、測定点 3 における残留圧力 P_y とを用いて、これまでと同様に η_a 、ノズル壁面でのせん断速度 S とを求めた。

3・2 抽出液の粘度

抽出液およびそれから陽イオンを除去した液の粘度 η は、その 1 例を 20°C について濃度- $\log \eta$ 座標上に整理し Fig. 5 に示した。Bright Yellow の抽出液の η は松川のそれより濃度約 30% 以下で大きく、それ以上では小さかった。両者から陽イオンを除去するとそれぞれ η は低下し、しかもほぼ一つの曲線として示された。

抽出液の中で陽イオンは無機酸または有機酸と結合しており、その組み合わせは種々にわたっていると推定されるが、現在ではその組成を測定する分析法は確立されていない。一般にはたばこ粉末をいったん灰化しその灰分を分析する方法⁸⁾が採られており、これは灰化前の成分とは必ずしも一致しないが、一応の傾向を示すものとして用いられている。灰化法による菅原⁹⁾の分析結果

Fig. 4. Pressure measured at cylinder, cone, and nozzle for the treated Bright Yellow system, at $\theta=20^\circ\text{C}$ and $\psi'=40\%$. Nozzle is 5mm in diameter and 50 mm in length.

Fig. 5. Dependence of η on concentration of solute, at $\theta=20^\circ\text{C}$.

Table 3 Cations in tobacco⁹⁾ (%/Tobacco)

Cation	Bright Yellow	Matsukawa
Na	0.04	0.06
K	2.08	6.40
Ca	1.41	2.89
Mg	0.54	0.40
Nicotine	4.02	2.35

を Table 3 に示した。陽イオンはイオン交換樹脂によりその90～98%が除去されるが、その陽イオンが H^+ と交換されると抽出液の中では新しい化合物が生ずる。これらが η に影響しているものと推定されるが、ここでは定性的な η の値を用いるにとどめた。

3・3 η_a の糖類含有割合依存性

Bright Yellow, その残渣に糖液を添加した場合の η_a の ψ' 依存性は Fig. 6 に示すとおりである。Fig. 6 は、得られた η_a と S とを $\log S - \log \eta_a$ 座標上に ψ' をパラメーターにして整理し、 $S=10^0 \text{sec}^{-1}$ における η_a を読み取り更に $\psi' - \log \eta_a$ 座標上に糖類含有割合をパラメーターにとって再整理したものである。ここで糖類とは Bright Yellow の含有する各糖の割合に合わせて¹⁰⁾、Glucose と Fructose とを50%ずつ配合したものである。Fig. 6 からは、Bright Yellow 系の η_a がその残渣系の η_a に比べて約1/2.4であること、 η_a は糖類の添加により減少し添加割合が大きいほど減少量が多いこと、いずれの系についても η_a の ψ' 依存性はほぼ等しいこと、などが明らかとなった。松川系およびその残渣系についても同様に求め、それぞれの $\psi'=80\%$ における η_a の値を読み取り $\text{Sugar}/(T - \alpha \cdot T_{\text{sol}}) - \log \eta_a$ 座標上に試料の種類をパラメーターにして整理し、Fig. 7 に示した。Fig. 7 からは、糖類含有割合が η_a に及ぼす影響は各試料について変わらず、実験の範囲では糖類含有割合にほぼ直線比例して η_a が減少すること、両たばこ粉末の残渣には化学的成分にほとんど差が見られないが

Fig. 6. Influence of sugar concentration of dispersion medium on η_a of the Bright Yellow systems, at $\theta=20^\circ\text{C}$ and $S=10^0 \text{sec}^{-1}$.

Fig. 7. Dependence of η_a on sugar concentration of dispersion medium ($=\text{Sugar}/(T - \alpha T_{\text{sol}})$), at $S=10^0 \text{sec}^{-1}$, $\theta=20^\circ\text{C}$, and $\psi'=80\%$.

(Table 1), それぞれの分散系の η_a の比較では一致しないこと, Bright Yellow 系とその残渣系とはほぼ一つの線上にあること, などが明らかとなった。

分散媒である水に糖類を添加すれば粘度は増大する。例えば本実験の最大濃度である38%の糖液の η は水のその約5.5倍である¹¹⁾。分散媒の粘度が添加する糖類の割合に従って増大するにもかかわらず分散系の η_a が減少した理由としては, 糖類が分散剤として作用し粒子の分散をより均一にしている, 粒子の周りに形成される吸着液膜の厚さ, 粘弾性の性質が糖濃度により変化する, などによる可能性がうかがわれ, 更に検討を要する。

η_a に対する分散媒の影響を検討するため, 粘度の異なるグリセリン, プロピレングライコール, ワセリン, シリコンオイルを分散媒として使用したところ, いずれの系においてもせん断応力下では固液分離が起こって分散系の濃度にむらが生じ, 安定した流動状態を得ることができなかった。このことから, 本実験で取り扱う濃度の範囲において安定した分散系を得るには, 分散媒と粒子との親和性が極めて重要な因子であることが確認された。

3・4 η_a に及ぼす抽出液の影響

水, 両たばこの抽出液およびこれらから脱陽イオン処理した液を分散媒とし, Bright Yellow および松川の残渣との分散系をつくり η_a を測定した。各抽出液の η と分散系の η_a とを Table 4 に示した。ここで抽出液の濃度は, たばこ粉-水系を $\phi'=80\%$ に調整した場合の水溶性成分の濃度に合わせ, Bright Yellow には40%, 松川には20%での値を用いた。Table 4 からは, いずれの分散媒を用いても松川の残渣系の η_a が大きい, 松川の抽出液は Bright Yellow のそれよりも η は小さいが分散系の η_a は大きい, 脱陽イオン処理により分散系の η_a は小さくなる, などのことが明らかとなった。

Table 4 Influences of η of dispersion medium on η_a of the two specimens

Dispersion medium	η (g/cm $\cdot$ sec) $\times 10^{-2}$	η_a	
		Treated Matsukawa (g/cm $\cdot$ sec) $\times 10^6$	Treated Bright Yellow (g/cm $\cdot$ sec) $\times 10^6$
Water	1.0	1.15	0.70
Extract of Matsukawa	3.9	1.35	1.10
Decationized	3.0	0.87	0.72
Extract of Bright Yellow	13	0.64	0.54
Decationized	12	0.56	0.47

Bright Yellow の抽出液の η が松川のそれに比べて大きいことは, 溶質濃度の相違によるところが大きい (Fig. 5)。両抽出液の化学的成分は Table 2 に示したとおりで, Bright Yellow の主成分は糖類である。前述したように, その存在により η_a は減少したから, Bright Yellow 抽出液の中の糖類が η_a を, 水を分散媒とした系のそれより減少させる方向に作用したものであろう。一方, 松川の抽出液の主成分は無機塩, 有機酸であって糖類は非常に少ない。これらは抽出液の中で電離し, その存在が η を上昇させているものと考えられるが, η の上昇につれて η_a も増大し糖

類の場合と逆の結果が示されている。本実験結果からはその理由は明らかでないが, 分散媒の η が上昇すれば分散系の η_a が上昇するのは妥当であり⁷⁾, 糖類の場合こそ特異とすべきものであろう。更に, 抽出液から陽イオンを除去すれば η_a はそれぞれ減少するが, その減少割合は松川の抽出液において大きい。これは, 松川の抽出液には無機塩がより多く含有されていることにより, その効果が顕著に現れたものと考えられる。

両種たばこ粉末の残渣系の η_a 間には, なお明らかな差が見られ松川の残渣系のそれが大きい。これは粒子側の要因であり, 具体的には粒子の周りに形成される吸着液膜の厚さとその性質の影響が大きいと推察され, 今後の問題として検討している。

結 論

たばこ粉末に含有される水溶性成分の見掛けの粘性 η_a に及ぼす影響を明らかにするため, 火力乾燥種, 空気乾燥種たばこの粉末およびそれぞれの熱水抽出残渣と, 水, 糖液および抽出液との分散系について, ラム式定速押出機を用いて検討した。ここで, これまで系の濃度を ϕ =水/たばこ粉末 で表してきたが, 系内ではたばこ粉末に含まれる水溶性成分の一部が溶出するので, 濃度としては ϕ' =水/不溶状態にある成分 が実態に即していると考えた。得られた結果は以下のとおりである。

火力乾燥種たばこの水溶性成分の主体である糖類は η_a に大きい影響を与え, 系に含有される割合が大きいほど η_a は減少し, その影響はそれぞれの系において同じであった。

火力乾燥種たばこの抽出液は粘度 η が水の約13倍であるにもかかわらず, 分散媒として用いる場合には系の η_a を水系のそれよりも低下させた。一方, 空気乾燥種たばこの抽出液は η が水の約3倍であり, 分散媒として用いると系の η_a を水系のそれよりもわずかに増大させた。

両抽出液から陽イオンを除去すると η はわずかに減少し, これらを分散媒とした系の η_a も減少した。その傾向は空気乾燥種たばこの抽出液系においてより顕著に現れた。

水溶性成分を除去することにより, 化学的成分のほとんど変わらない両種たばこの残渣が得られたが, いずれの分散媒を用いても空気乾燥種たばこの残渣系の η_a が大きかった。

Nomenclature

P	Pressure	kg/cm 2
P_y	Remained pressure after relaxation	kg/cm 2
S	Shear rate	sec $^{-1}$
T	Weight of tobacco	g
T_{sol}	Weight of soluble compositions in tobacco	g
v	Flow rate	cm 3 /sec
W	Weight of water	g
α	Dissolved matter/Total soluble matter	—
η	Viscosity of extract	g/cm $\cdot$ sec
η_a	Apparent viscosity of dispersed system	g/cm $\cdot$ sec
θ	Temperature	$^{\circ}$ C
ϕ	Ratio of water to tobacco	—
ϕ'	Ratio of water to $(T - \alpha T_{sol})$	—

文 献

- 1) 清水幸夫, 藤田 哲, 梅屋 薫, 日本レオロジー学会誌, **5**, 8 (1977).
- 2) 清水幸夫, 藤田 哲, 梅屋 薫, 日本レオロジー学会誌, **5**, 175 (1977).
- 3) Frankenburg, W.G., *Advances in Enzymology*, **6**, 309 (1946).
- 4) Akehurst, B.C., *Tobacco*, p. 438 (1973) Longman Group Ltd., London.
- 5) Warner, B.R., *Arch. Biochem. & Biophys.*, **40**, 143 (1952).
- 6) Samejima, T., Y. Soh, and T. Yano, *Agr. Biol. Chem.*, **41**, 983 (1977).
- 7) Ree, T., and H. Eyring, *J. Appl. Phys.*, **26**, 793(1955).
- 8) たばこ分析法第1集葉たばこ成分編, p. 119, (1972), 日本専売公社.
- 9) 菅原志朗, 小橋浦子, 江田茂, 安藤誠太, 日本専売公社中央研究所研究報告, **113**, 179 (1971).
- 10) 菅原志朗, 小橋浦子, 岡林佑子, 鍋木陽一, 日本専売公社中央研究所研究報告, **109**, 67 (1967).
- 11) 例えば, 改訂三版化学工学便覧, p. 48 (1968) 丸善.