論文

Flow Pattern of the Dispersed System of Tobacco
and Water during Extruding. IV
Influence of Water Content on the Apparent Viscosity of
Tobacco-Water Systems and Its Interpretation in Terms of
Their Pressure Transmission Characteristics

by

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

(Central Research Institute, The Japan Tobacco & Salt Corp.,
Umegaoka, Midoriku, Yokohama 227^{*1} and Faculty of Engineering,
Tohoku University, Aramaki, Sendai 980^{*2})

In spite of little difference in chemical compositions between the residues on extraction of the flue-cured tobacco (Bright Yellow) and that of the air-cured tobacco (Matsukawa), an appreciable difference in apparent viscosity η_a appeared between dispersed systems of these residues in water. To clarify the reason of the difference, the pressure transmission characteristics of the systems were examined in a closed cylinder apparatus. The following results were obtained.

For the systems of the residues in water, the rate of transmitted pressure increased with the increase of water content of the systems, and the inclination of the rates changed remarkably at some water content ψ'_{critical} . Up to the contents ψ'_{critical} , water was bound tightly to the particles as adsorptive water, and did not behave as dispersion medium. At higher water contents, a layer of water was formed around the particle and its thickness d was evaluated by

$$d = \frac{(\psi' - \psi'_{\text{critical}})}{A\rho} \times 10^4 (\mu).$$

Here $A(\text{m}^2/\text{g})$ is the specific surface area of the residue and $\rho(\text{g}/\text{cm}^3)$ is the density of the medium. The apparent viscosities η_a for the two residues having different specific surface areas gave a single line in the plot of $\log \eta_a$ against d . For the systems of the Matsukawa residue in sugar solution or KNO_3 solution, the value of ψ'_{critical} changed with the concentration of solutions. Apparently, the results suggested that the thickness of the adsorptive film decreased with the increase of the concentration. The $\log \eta_a$ vs. d plot obtained for the systems of sugar solutions gave a curve essentially similar to that for the water systems.

たばこ粉-水系の流動特性について Ⅳ

応力伝達特性から見た見掛けの粘性に対する 水分含量の影響

藤 田 哲・清 水 幸 夫^{*1}・梅 屋 薫^{*2}

(原稿受理：1979年4月17日)

1. 緒 言

火力乾燥種および空気乾燥種たばこを、それぞれ熱水抽出処理により水溶性成分を除去すると、得られる残渣の化学的成分はセルロース、ヘミセルロース、ペクチンなどであり¹⁾、その組成割合は両者にほとんど差は見られない。それにもかかわらず、これらを水との分散系にし、その流動に対する見掛けの粘性 η_a を比較すると明らかな差が見られ、空気乾燥種たばこの残渣系の η_a が火力乾燥種たばこの残渣系のそれに比べて約1.6倍であった¹⁾。その原因を明らかにし、 η_a についての考察の手段とするため、たばこ粉に対する自由水の割合の η_a に与える影響を検討することにした。

本報告は、シリンダーに収容した分散系を圧密して、その応力伝達割合を検討することにより、吸着液膜の厚さを推定し、更には系内の水から残渣に吸着されている液膜の量を差し引いた残りの水、すなわち自由水のつくる膜の厚さ d を分散系濃度の指標とし、 η_a と d との関係を明らかにしようとした結果を取りまとめたものである。

2. 試料および方法

2・1 試 料

火力乾燥種たばこ (*Nicotiana tabacum* L., c.v. Bright Yellow, 着葉位置の上位の葉、以後はこれをBright Yellowと呼ぶ) および空気乾燥種たばこ (*Nicotiana tabacum*, c.v. Matsukawa, 着葉位置の下位の葉、以後は松川と呼ぶ) を前報¹⁾と同様に粉碎、分

級の後、熱水抽出処理し、その残渣を真空凍結乾燥したものを用いた。両たばこ粉末およびそれらの残渣の物理的性質の一部をTable 1に示す(比表面積、細孔率は液体窒素沸点温度における窒素ガス吸着の吸着等温曲線よりInkley法²⁾で求めた値である。細孔直径の測定範囲は30~300Åである)。

2・2 応力伝達特性の測定

応力伝達特性の測定には、Fig. 1に示す閉塞シリンダー(内径40mm)を用いた。手動式油圧ポンプによりピストンに荷重をかけ、圧密の速度をピストンヘッド中央に装備した圧力計の示す値 P_1 を基準に、5 kg/cm²/minの圧力増加割合で200 kg/cm²まで圧密し、その後は P_1 を200 kg/cm²に保った。同時にシリンダー底面中央での圧力 P_2 、シリンダー側壁(底面より20mmの高さ)での圧力 P_3 をそれぞれ測定した。応力伝達割合は試料の層高 h により変化するから³⁾、あらかじめ試料を秤量し、最終層高を29±2mmの範囲に調整した。試料の温度はシリンダーの外側に取り付けたウォーター・ジャケットへの通水温度により制御した。サーミスター温度計による測定での試料温度は20.0±0.5℃であった。

圧密試験に当たっては、所定量の水あるいは糖溶液(ここでは、Bright Yellowの含有する各糖の割合に合わせて、ブドウ糖と果糖とを50%⁴⁾づつ配合してある)、KNO₃の水溶液を添加し、混合の後ビニール袋に入れて室内に約24時間静置したものを用いた。試料の水分割合 ϕ' (=水/残渣)は、シリンダーへ収容する直前の試料の一部を100℃、1時間乾燥し、その間の減量を水分として算出した。

Table 1 Physical properties of tobacco powders before and after extracting with hot water.

	Water-soluble components	Specific weight	Specific surface area*	Pore volume*
	%	g/cm ³	m ² /g	cm ³ /g
Bright Yellow				
before treatment	48	1.47	0.62	0.0040
after treatment	2	1.45	1.52	0.0078
Matsukawa				
before treatment	40	1.48	1.63	0.0051
after treatment	2	1.47	2.70	0.0091

* Calculated from adsorption isotherm of N₂ at -195℃ (N₂ boiling point) by the Inkley method.

*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

Fig. 1 Scheme of closed cylinder apparatus.

3. 結果および考察

3・1 残渣-水系における $\psi'_{critical}$

応力伝達の測定結果の1例を松川の残渣 $\psi' = 30.6\%$ について、Fig. 2に示した。 P_1 の上昇に対して P_2 , P_3 では遅れが生じたが、 P_1 が 200 kg/cm^2 に到達してその値を維持している間にも、しばらくは P_2 , P_3 が上昇を続けた。 P_1 を 200 kg/cm^2 に維持するためにはピストンによる加圧操作が必要であり、その移動量は P_1 が 200 kg/cm^2 に到達した直後は大きく、時間経過とともに減少し160分からはピストンの操作は必要でなくなった。更に、Fig. 2 から P_2 , P_3 の P_1 に対する割合 r_2 , r_3 を求めて Fig. 3 に示した。 r_2 , r_3 は応力伝達割合を表す。 Fig. 3 からは、圧密開始より40分までの P_1 上昇期間には r_2 , r_3 が増大すること、 P_1 を一定値に維持しても r_2 , r_3 は当初は急激に増大し、時間経過とともに減少しついには一定値へ収れんすること、などが明らかになった。

同様に、 ψ' を変えた圧密試験におけるそれぞれの収れんした時の r_2 , r_3 を求め、 ψ' との関係は松川残渣系について Fig. 4(上)に、Bright Yellow 残渣系について Fig. 4(下)に示した。これ

Fig. 2 Pressures observed at the piston head (P_1), bottom (P_2), and circumference (P_3) of the closed cylinder, as functions of the time elapsed after loading of pressure.

らの結果、 ψ' の増加につれて r_2 , r_3 は急激に増大するが、ある値を境にその変化割合を著しく変え、その ψ' の値より大きいところでは r_2 , r_3 の変化割合が極端に小さくなること、その傾向は r_2 , r_3 で共通であること、急激な変化が起こる水分割合の値 $\psi'_{critical}$ は松山残渣系で約43%、Bright Yellow 残渣系で約38%

Fig. 3 Rates of pressure transmission observed at bottom (r_2) and circumference (r_3) of the closed cylinder. Fig. 4 Dependency of the pressure transmission rate r on ψ' . Upper panel, treated Matsukawa; lower panel, treated Bright Yellow.

であること、などがわかった。

Fig. 2 において、 P_1 が 200 kg/cm^2 に到達した後、その値を維持する間のシリンダー底面への応力伝達割合の変化について考察する。例えば、 P_1 が 200 kg/cm^2 に到達した当初は $P_2=142 \text{ kg/cm}^2$ であり、これはシリンダー軸方向に $P_1-P_2=58 \text{ kg/cm}^2$ の応力差が存在したことである。この場合、系の中の任意の微小部分を取り上げると、これは応力勾配の場に置かれた一つの力学的な構造と見ることができる。この構造が応力勾配に抵抗しきれなくなって、構成している粒子のすべりなどの構造破壊が起こることにより、その部分での応力勾配による不安定状態が解消される。これらの現象が系内の各部分で起こり系全体で見ると P_1 が減少し、同時に P_2 が上昇してその差が小さくなり応力の伝達が進行したと見られる（当実験では、 P_1 の減少分はピストン操作により補われている）。したがって、この現象は応力勾配が大きい時ほど顕著である。徐々に応力の伝達が進行し応力勾配が小さくなると、すべりなどによりいったん破壊された後にできた新しい構造は、もはやその応力勾配では破壊されなくなる。これらの構造が系の中で支配的になると、 P_1 と P_2 との差は減少しなくなり、 r_2 が一定値へ収れんするように見られるものと考えられる。

Fig. 4 における ψ'_{critical} について検討を加える。残渣である粒子に水を加えて混合し放置すると、水は粒子の周りに吸着、付着されると考えられるが、これを圧密すると粒子間隙が減少し、それぞれの粒子について水膜どうしが接するまで近づく。一般に固相の周りには水膜の中では、固相との距離が小さいほど結合力は大きく、距離が大きくなると結合力は減少する⁵⁾。本試料についても同様のことが考えられ、水分割合が大きくなって粒子について水膜の厚さが大きい場合には、水膜の外側寄りには粒子との結合力が極めて小さい水が存在するようになる。この水をここでは自由水と呼ぶことにする。自由水は結合力がほとんど無いから、圧密操作などによる応力下では粒子から離れ、系ではその応力では分離しない水膜（以下は吸着液膜と呼ぶ）を着けた粒子を、この自由水が分散させているような状態となる。しかも、自由水の存在する水分割合の範囲では押出成形が可能で、かつ固液分離などの現象が見られなかった¹⁾から、応力下での系の分散は安定であると推定できる。既に述べたとおり、 $\psi' < \psi'_{\text{critical}}$ では r_2, r_3 が小さく、ある応力勾配、例えば松川残渣系では $(P_1-P_2)/h=3.45 \text{ kg/cm}^2$ 以上の下でも粒子のすべりなどが起こらず、系は抵抗を有していた。粒子のつくる構造が応力に対する抵抗を有することは、粒子間の摩擦抵抗が大きいことを意味する。粒子間に自由水が存在すれば粒子の移動は容易となり、構造は破壊されやすいから、 r_2, r_3 が大きくなる。したがって、 r_2, r_3 の変化から自由水の存在し始める臨界点が推定でき、ここでは ψ'_{critical} がそれに相当すると考えた。Bright Yellow 残渣系の ψ'_{critical} である38%は、等温吸着曲線（ 20°C ）上相対湿度95%において示す値に相当するが、この場合に松川残渣の示す値は40.5%であり、等温吸着曲線上における差2.5%は ψ'_{critical} における差5%の1/2である。

3・2 松川残渣-糖液系および松川残渣- KNO_3 溶液系における応力伝達特性

残渣としては、 ψ'_{critical} がより明確であった松川残渣を、分散媒としてはBright Yellowの有する代表的な化学的成分である糖類の溶液、松川の有するそれである KNO_3 の溶液をそれぞれ用

いた。各系の r_3 を、分散媒の溶質濃度をパラメーターに取りFig. 5 に示した。Fig. 5(上) において、 ψ' が水系の場合の ψ'_{critical} よりも大きい範囲では、 r_3 にほとんど差異は見られないが、 ψ' が ψ'_{critical} よりも小さい範囲では、糖濃度の増大につれて r_3 が大きくなった。したがって、糖液系の ψ'_{critical} の値は減少し、水系のそれ43%に比べて、濃度30%の糖液系で6%、20%系で4%の低下が見られ、10%系ではほとんど差異はなかった。Fig. 5 (下)からは、 ψ' が ψ'_{critical} よりも大きい範囲では糖液系と同様にほとんど差異がないこと、 ψ' が ψ'_{critical} よりも小さい範囲では KNO_3 溶液系の r_3 が大きくなること、しかもその差は糖液系の場合よりも小さく ψ'_{critical} の減少した量は、濃度20%の KNO_3 溶液系で2%であること、などが明らかとなった。

Fig. 5 において分散媒の溶質濃度が增大するにつれて r_3 が大きくなること、 ψ'_{critical} の値が減少する方向にあることに検討を加える。上述したとおり、自由水の存在しないところでは吸着液膜どうしが直接に接触しており、その厚さにより r_3 の値が異なる。吸着液膜が厚いほど粒子間の摩擦抵抗が小さくなり、粒子のすべりなどが起こりやすいから、 r_3 も大きくなる。分散媒の溶質濃度が高くなることにより、 r_3 が変化し大きくなった原因としては、①分散媒の粒子との結合力が濃度により異なる、②吸着液膜どうしの接点での摩擦係数が濃度により異なる、③吸着液膜自身

Fig. 5 Dependency of r_3 on ψ' . Upper panel, treated Matsukawa in sugar soln.; lower panel treated Matsukawa in KNO_3 soln.

がすべりと同じ効果を有する変形を起こすようになる、などが挙げられる。糖液の場合には、糖類相互間の水素結合よりも水分子との相互作用が強い⁶⁾ことから、濃度によっては結合力に変化がなく粒子に吸着される膜の厚さには変化がないと考えられるが、この糖液の場合においては ψ'_{critical} の値の減少量が KNO_3 溶液のそれよりも大きい。このことから、先に挙げに3項のうち、①は主たる原因ではないと推定できるが、詳しくは解明できなかった。しかし、Fig. 5に見られる現象から各溶液系の吸着液膜の厚さは、 ψ'_{critical} の値の減少分に相当する量だけ小さいことと見掛けの上で同じである。したがって、3・3では ψ'_{critical} の変化量に応じて吸着液膜の厚さが変わるとして解析を加えることにした。

3・3 ψ'_{critical} の η_a への応用

系内の水のうち ψ'_{critical} に相当する量は、粒子に吸着されて粒子とともに移動するので、分散媒としての効果を有しない。したがって、系の流動に寄与する自由水の割合 ψ'' は式(1)で与えられる。

$$\psi'' = \psi' - \psi'_{\text{critical}} \quad (1)$$

一方、水系において $\psi' > \psi'_{\text{critical}}$ では固液分離が起こることなく、安定した流動が得られていることから、自由水は応力下でも偏ることなく均一に分布しているものと考えられる。したがって、自由水の作る膜の厚さ d は ψ'' 、粒子の比表面積 A (m^2/g)、水の比重 ρ (g/cm^3) とにより式(2)で与えられる。

$$d = \frac{\psi''}{A \cdot \rho} \times 10^4 \quad (\mu) \quad (2)$$

ここで、粒子内の空隙は外部と導通して水が容易に侵入でき、吸着面積は比表面積と等しいものとした。

前報¹⁾で得られた η_a を、それぞれの ψ' から式(1)、(2)により求めた d の値に対応させて $d - \log \eta_a$ 座標上にまとめて Fig. 6 に示した。Fig. 6 からは、比表面積の異なる Bright Yellow 残渣および松川残渣それぞれの分散系の η_a がほぼ一つの直線で示された。 η_a が減少する傾向にあった糖液系についても、Fig. 5 から得られた ψ'_{critical} を用いて同様の整理をすれば、Fig. 6 の直線にはほぼ一致した。これらのことは、分散系の濃度を d で整理することが η_a の表示には有用であることを示唆している。

式(1)、(2)からわかるとおり、 $\psi' < \psi'_{\text{critical}}$ で d は定義されてい

Fig. 6 Dependency of η_a on the thickness of free water layer d .

ないので、この範囲での η_a の取り扱いを除外する。この範囲では、系が押出機のコーン部からノズルにかけて流動を起こさず、単に圧密されるだけである実験結果が得られており、流動に対して ψ'_{critical} が一つの重要な指標であることを示している。

4. 結 論

火力乾燥種たばこの残渣と空気乾燥種たばこのそれには、化学的成分のうえではほとんど差が見られないが、これらの水との分散系においては見掛けの粘性 η_a に差異が見られる。この原因を明らかにするため系の応力伝達特性、吸着液膜を閉塞シリンダーを用いて検討し、次の結果を得た。

残渣-水系では、水分割合の増加につれて応力伝達割合は増加したが、ある水分割合でその傾向が著しく変化した。その水分割合 ψ'_{critical} に相当する水の量は、吸着液膜として粒子に束縛されており、分散媒としての効果を有しないと考えた。したがって、自由水のつくる膜の厚さ d は次式で与えられる。

$$d = \frac{\psi' - \psi'_{\text{critical}}}{A \cdot \rho} \times 10^4$$

比表面積の異なる両残渣と水系の η_a は、 $d - \log \eta_a$ 座標上では一つの直線として示された。

残渣-糖液系、残渣- KNO_3 溶液系では、溶質濃度により ψ'_{critical} の値が変化し、濃度が大きいほど減少量が大きく、見掛けの上で濃度が大きくなるほど吸着液膜が薄くなる現象が見られ、その傾向は糖液系においてより明確である。更に、糖液系についても同様に d について整理をすると、水系の場合の直線とほぼ一致する。

(昭和52年11月28日第15回粉体に関する討論会で発表)

Nomenclature

A	Specific surface area of residue	m^2/g
d	Thickness of free water	μ
h	Final height of system in closed cylinder	cm
P_1	Pressure at piston head	kg/cm^2
P_2	Pressure at cylinder bottom	kg/cm^2
P_3	Pressure at cylinder circumference	kg/cm^2
r	Rate of pressure transmitted	—
r_2	Rate of pressure transmitted to bottom (P_2/P_1)	—
r_3	Rate of pressure transmitted to circumference ($=P_3/P_1$)	—
η_a	Apparent viscosity of dispersed system	$\text{g}/\text{cm} \cdot \text{sec}$
θ	Temperature	$^{\circ}\text{C}$
ρ	Density of free water in dispersed system	g/cm^3
ψ'	Ratio of water to insoluble	—
ψ'_{critical}	Critical point of ψ' at which free water begins to exist in system	—
ψ''	$\psi' - \psi'_{\text{critical}}$	—

文 献

- 1) 清水幸夫, 藤田 哲, 梅屋 薫, 日本レオロジー学会誌, **6**, 124 (1978).
- 2) Cranston, R.W., and F.A. Inkley, *Adv. in Catalysis*, **9**, 143 (1957).
- 3) 船越嘉郎, 山本真樹, 荒木征雄, 材料, **24**, 669 (1975).
- 4) 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報告, **109**, 67 (1967).
- 5) 例えば, 慶伊富長, 吸着, p. 38 (1965) 共立全書.
- 6) Taylor, J.B., and J.S. Bawlinson, *Trans. Faraday Soc.*, **51**, 1183 (1955).