

(19) 日本国特許庁(JP)

**再公表特許(A1)**

(11) 国際公開番号

**W02015/029977**

発行日 平成29年3月2日 (2017.3.2)

(43) 国際公開日 **平成27年3月5日 (2015.3.5)**

(51) Int.Cl.

**A 2 4 B 15/28 (2006.01)**

F 1

A 2 4 B 15/28

テーマコード (参考)

4 B 0 4 3

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 16 頁)

出願番号	特願2015-534220 (P2015-534220)	(71) 出願人	000004569
(21) 国際出願番号	PCT/JP2014/072244		日本たばこ産業株式会社
(22) 国際出願日	平成26年8月26日 (2014. 8. 26)		東京都港区虎ノ門二丁目2番1号
(31) 優先権主張番号	特願2013-175626 (P2013-175626)	(74) 代理人	100100549
(32) 優先日	平成25年8月27日 (2013. 8. 27)		弁理士 川口 嘉之
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(74) 代理人	100131392
			弁理士 丹羽 武司
		(74) 代理人	100126505
			弁理士 佐貫 伸一
		(74) 代理人	100123098
			弁理士 今堀 克彦
		(74) 代理人	100146330
			弁理士 本間 博行
		(74) 代理人	100160945
			弁理士 菅家 博英

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 たばこ原料及びその製造方法並びにたばこ製品

## (57) 【要約】

香喫味が良好なたばこ原料及びその製造方法を提供する。

n - ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量の比が、水抽出物重量 / ヘキサン抽出物重量比で、0 以上 1 . 5 以下である、たばこ原料を提供する。

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

n - ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量の比が、水抽出物重量 / ヘキサン抽出物重量比で、0 以上 1 . 5 以下である、たばこ原料。

**【請求項 2】**

n - ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量の合計量が、抽出前のたばこ原料の重量の 5 ~ 17 重量 % である、請求項 1 に記載のたばこ原料。

**【請求項 3】**

誘電率 1 以上 2.5 未満の溶媒を用いて葉たばこ材料を抽出して抽出液と抽出残渣を得る第一の抽出工程と、第一の抽出工程の後に、第一の抽出工程で得られた抽出残渣を誘電率 2.5 以上の溶媒を用いて抽出して抽出残渣を得る第二の抽出工程と、第二の抽出工程を経て得られる抽出残渣に、第一の抽出工程で得られた抽出液をかけ戻して葉たばこ原料とする工程とを含む、たばこ原料の製造方法。

**【請求項 4】**

第一の抽出工程で用いる溶媒が誘電率 1 ~ 2.0 の溶媒であり、第二の抽出工程で用いる溶媒が水である、請求項 3 に記載の製造方法。

**【請求項 5】**

第一の抽出工程で用いる溶媒が n - ヘキサン、テトラヒドロフラン及びエタノールから選ばれる 1 以上である、請求項 3 または 4 に記載の製造方法。

**【請求項 6】**

請求項 3 ~ 5 のいずれか一項に記載の製造方法により得られるたばこ原料。

**【請求項 7】**

請求項 1、2 または 6 に記載のたばこ原料を用いたたばこ製品。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本発明は、たばこ原料及びその製造方法に関する。

**【背景技術】****【0002】**

たばこの香喫味を調整する方法として、葉たばこ材料から特定の成分を抽出除去する技術や、葉たばこ材料に対して一旦抽出操作を行い、抽出液と抽出残渣を取得し、得られた抽出液に対して所定の処理等を行った後で、抽出残渣にその抽出液をかけ戻す技術が知られている。

葉たばこ材料から特定の成分を抽出除去する技術としては、脂肪族炭化水素と低級アルコールの混合溶媒を用いて、たばこから脂質成分を除去する技術が知られている（特許文献 1）。

葉たばこ材料に対して一旦抽出操作を行い、抽出残渣に抽出液をかけ戻す技術としては、界面活性剤を含有する溶液でたばこ原料の抽出を行い、抽出液中の界面活性剤とポリペプチドを除去した後で、その溶液をたばこ原料に添加する方法が知られている（特許文献 2）。

また、超臨界流体を用いてたばこ原料を処理し、処理により得られた抽出物から、ニトロサミンを除去することで、たばこ材料からニトロサミンを減少させる方法が知られている（特許文献 3）。

さらに別の技術として、葉たばこ材料を加圧下で超臨界流体とした二酸化炭素に浸漬し、その後圧力を大気圧まで下げる操作を経ることで、葉たばこ材料に含まれる香喫味成分を葉たばこの表面に凝縮させる技術が知られている（特許文献 4）。

**【先行技術文献】****【特許文献】**

10

20

30

40

50

## 【0003】

- 【特許文献1】特公昭58-4544号公報
- 【特許文献2】特表平7-505521号公報
- 【特許文献3】特許第3931084号公報
- 【特許文献4】特開平8-23952号公報

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0004】

葉たばこ材料は極性の異なる多くの成分を含有しており、それらの成分は低極性、高極性及び両極性の成分に大別される。これらの成分について、抽出による除去を行う場合、例えば低極性の溶媒で抽出を行うと、葉たばこ中の低極性と両極性の成分群が除去される。

10

これに対し、高極性の溶媒で抽出を行う場合は、葉たばこ材料中の高極性と両極性の成分群が除去される。

そのため、低極性あるいは高極性の溶媒による一回の抽出では、低極性あるいは高極性の成分に加え、両極性の成分群をも除くことになる。これにより、たばこ原料の香喫味に与える影響が大きくなることがある。

また、抽出を行った後にその抽出物をたばこ原料に添加する技術の場合では、一回の抽出により得られた成分群は多くの成分を含んでおり、その抽出物に処理（抗酸化剤との接触など）を加えた場合、除きたい成分に加え、香喫味に影響する成分も変化すると考えられる。そのため香喫味に与える影響が大きくなる可能性が考えられる。

20

## 【0005】

このようなことから、本発明では、香喫味が良好なたばこ原料を提供するとともに、そのたばこ原料を製造する方法の提供を課題とする。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0006】

本発明者が鋭意検討した結果、n-ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量の比が、水抽出物重量/ヘキサン抽出物重量比で、0以上1.5以下であるたばこ原料が、香喫味に優れるものであることを見出した。

30

また、誘電率1以上2.5未満の溶媒を用いて葉たばこ材料を抽出して抽出液と抽出残渣を得る第一の抽出工程と、第一の抽出工程の後に、第一の抽出工程で得られた抽出残渣を誘電率2.5以上の溶媒を用いて抽出して抽出残渣を得る第二の抽出工程と、第二の抽出工程を経て得られる抽出残渣に、第一の抽出工程で得られた抽出液をかけ戻して葉たばこ原料とする工程とを含む製造方法が、上記課題を解決できることがわかり本発明に到達した。

## 【0007】

すなわち、本発明は、以下のとおりである。

[1] n-ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量の比が、水抽出物重量/ヘキサン抽出物重量比で、0以上1.5以下である、たばこ原料。

40

[2] n-ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量の合計量が、抽出前のたばこ原料の重量の5~17重量%である、[1]に記載のたばこ原料。

[3] 誘電率1以上2.5未満の溶媒を用いて葉たばこ材料を抽出して抽出液と抽出残渣を得る第一の抽出工程と、第一の抽出工程の後に、第一の抽出工程で得られた抽出残渣を誘電率2.5以上の溶媒を用いて抽出して抽出残渣を得る第二の抽出工程と、第二の抽出工程を経て得られる抽出残渣に、第一の抽出工程で得られた抽出液をかけ戻して葉たばこ原料とする工程とを含む、たばこ原料の製造方法。

[4] 第一の抽出工程で用いる溶媒が誘電率1~2.0の溶媒であり、第二の抽出工程で

50

用いる溶媒が水である、[ 3 ]に記載の製造方法。

[ 5 ] 第一の抽出工程で用いる溶媒が n - ヘキサン、テトラヒドロフラン及びエタノールから選ばれる 1 以上である、[ 3 ]または[ 4 ]に記載の製造方法。

[ 6 ] [ 3 ] ~ [ 5 ]のいずれかに記載の製造方法により得られるたばこ原料。

[ 7 ] [ 1 ]、[ 2 ]または[ 6 ]に記載のたばこ原料を用いたたばこ製品。

【 0 0 0 8 】

なお、本明細書でいう「葉たばこ材料」とは、「たばこ原料」を製造するために用いられるものであり、抽出工程等の処理を経る前の葉たばこを意味する。本明細書でいう「たばこ原料」とは、上記「葉たばこ材料」に抽出工程等の処理を加えて得られるものである。

【 発明の効果 】

【 0 0 0 9 】

本発明によれば、香喫味が良好なたばこ原料と、その製造方法を提供できる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 0 】

【 図 1 】 実施例 3 と比較例 2 の官能評価結果を示す図である。

【 図 2 】 実施例 4 と比較例 3 の官能評価結果を示す図である。

【 図 3 】 実施例 5 と比較例 4 の官能評価結果を示す図である。

【 図 4 】 実施例 6 及び比較例 1 の官能評価結果を示す図である。

【 図 5 】 比較例 5 と比較例 6 の官能評価結果を示す図である。

【 図 6 】 比較例 7 の官能評価結果を示す図である。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 1 】

以下、本発明について実施形態及び例示物等を示して詳細に説明するが、本発明は以下の実施形態及び例示物等に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において任意に変更して実施できる。

【 0 0 1 2 】

< 本発明の製造方法 >

本発明のたばこ原料の製造方法は、誘電率 1 以上 2.5 未満の溶媒を用いて葉たばこ材料を抽出して抽出液と抽出残渣を得る第一の抽出工程と、第一の抽出工程の後に、第一の抽出工程で得られた抽出残渣を誘電率 2.5 以上の溶媒を用いて抽出して抽出残渣を得る第二の抽出工程と、第二の抽出工程を経て得られる抽出残渣に、第一の抽出工程で得られた抽出液をかけ戻して葉たばこ原料とする工程とを含む。

本発明のたばこ原料の製造方法は、第一の抽出工程として、誘電率 1 以上 2.5 未満の溶媒を用いて葉たばこ材料を抽出して抽出液と抽出残渣を得る工程を含む。

本発明で用いられる葉たばこ材料について、その種類は特に限定されるものではなく、例えばニコチアナ属であり、ニコチアナタバカムの黄色種・パーレー種、ニコチアナルスチカのブラジリア種などを挙げることができる。

これらの葉たばこ材料は、粉碎機のような適当な手段を用いて適当な大きさに裁断され（粒径として 0.425 ~ 1.18 mm 程度）、公知の方法により乾燥されたものを用いることができる。

【 0 0 1 3 】

上記の処理を経た葉たばこ材料を、誘電率が 1 以上 2.5 未満の溶媒を用いて抽出することで、葉たばこ材料に含まれる所望の香喫味成分を抽出することができる。

第一の抽出工程で用いる溶媒としては、誘電率が 1 以上 2.0 以下であるものがより好ましい。

誘電率が 1 以上 2.5 未満の溶媒としては、エタノール、イソプロピルアルコール、酢酸エチル、直鎖または分岐鎖を有する炭素数 5 ~ 10 のアルカン、n - プロピルアルコール、ブタノール、ベンゼン、トルエン、キシレン、ベンジルアルコール、アセトン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、1,4 - ジオキサン、クロロホルム、ジクロロメタン

10

20

30

40

50

を挙げることができる。

前記のアルカンとしては、ペンタン、*n*-ヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン、オクタン、ノナン、デカンを挙げることができる。

上記の中では、酢酸エチルのような低分子の有機酸エステルを用いない態様を挙げることができる。

上記の中で好ましく用いることのできる溶媒として、エタノール、*n*-ヘキサン、ヘプタン、ジエチルエーテル、テトラヒドロフランをあげることができる。

上記の誘電率が1以上2.5未満の溶媒は、1種を用いても、複数種を混合して用いてもよい。混合された溶媒を用いる場合には、混合された溶媒の誘電率が1以上2.5未満になるように調製する。

#### 【0014】

抽出は常温常圧下で行ってもよいし、例えば40~80程度に加温して、加圧下1000~2000psiで行うこともできる。なお、SI単位系で圧力を示す場合、1psi 6894.757Paの換算式で計算する。

抽出時間は特に制限されないが、5分~1時間を挙げることができる。

抽出は1回でもよいし、複数回行ってよい。また、抽出は後述する高速溶媒抽出装置を用いて行ってよい。

第一の抽出工程において、抽出液と抽出残渣を分ける操作を適宜設けてもよい。例えば、抽出物を適当な孔径を有するろ紙やふるいにかけて、抽出液と抽出残渣に分ける方法を挙げることができる。

得られた抽出残渣は、適当な方法によって乾燥させる。乾燥方法として、凍結乾燥を挙げることができる。

#### 【0015】

上記の第一の抽出工程を経て得られる抽出残渣に対して、誘電率が2.5以上の溶媒を用いてさらに抽出操作を行うことで、第一の抽出工程で抽出されなかった、葉たばこ材料中の成分を抽出することができる。

第二の抽出工程に用いる誘電率が2.5以上の溶媒としては、特に制限されるものではないが、例えば水、メタノール、それらを含む混合溶媒などを挙げることができる。

第二の抽出工程では、第一の抽出工程と同様に、抽出の条件として常温常圧下で行うこともできるし、40~80程度に加温し、さらに加圧下1000~2000psiで抽出を行うこともできる。

抽出時間は特に制限されないが、5分~1時間を挙げることができる。

抽出は1回でもよいし、複数回行ってよい。また、抽出は後述する高速溶媒抽出装置を用いて行ってよい。

第一の抽出工程と第二の抽出工程において、第一の抽出工程で用いる溶媒よりも第二の抽出工程で用いる溶媒の方が誘電率が高いことにより、第一の抽出工程で抽出されなかった葉たばこ材料中の成分を第二抽出工程で抽出することができる。第二の抽出工程で得られた抽出液は、抽出残渣にかけ戻さない。

第二の抽出工程において、葉たばこ材料に含まれる不要な成分を第一の抽出工程で得られた抽出残渣から除去できる。

不要な成分としては、高極性の成分を挙げることができ、例えば低分子の有機酸やアンモニアなどが含まれる。

本発明の製造方法では、第一の抽出工程と第二の抽出工程の順序、つまり、最初の抽出に用いる溶媒として比較的low極性のものを採用し、次の抽出工程で用いる溶媒として、第一の抽出工程で用いる溶媒よりも誘電率が大きな比較的高極性の溶媒を用いることが重要である。この順序が逆であると、香嗅味が良好なたばこ原料を得ることができない。

#### 【0016】

第一の抽出工程を複数回行った後に、第二の抽出工程を複数回行ってよいし、第一の抽出工程と第二の抽出工程を連続して行い、その後また第一の抽出工程を行い、さらに第二の抽出工程を行うことの繰り返しでもよい。

10

20

30

40

50

製造工程の簡略化の観点からは、第一の抽出工程と第二の抽出工程の合計の工程回数は少ない方がよい。

【0017】

本発明の製造方法では、第二の抽出工程を経た後、第二の抽出工程を経て得られた抽出残渣に、第一の抽出工程で得られた抽出液をかけ戻して葉たばこ原料とする工程を含む。

この工程では、第一の抽出工程で得られた抽出液を、第二の抽出工程で得られた抽出残渣にかけ戻すことで、第一の抽出工程で抽出された、たばこ原料の香嗅味を良好にする成分がたばこ原料に戻される。

抽出液を抽出残渣にかけ戻す際には、抽出液が抽出残渣に均等にいきわたるようにすることが、たばこ原料としての品質の均一性を保つ観点から好ましい。

第一の抽出工程で得られた抽出液は、第一の工程で得られた抽出液は、そのままかけ戻してもよいし、溶媒だけを濃縮したものをかけ戻してもよい。また、抽出液については塩析処理を施してもよい。

また、抽出残渣に抽出液をかけ戻した後は、適当な方法により溶媒を除去する。

これにより、本発明のたばこ原料が得られる。

【0018】

本発明の製造方法により得られるたばこ原料は、その使用態様として、常温で使用する態様と、加温した状態で使用する態様を挙げることができ、そのいずれの使用態様においても香嗅味に優れる。

常温あるいは加熱した条件下で使用する態様としては、例えば0.7mm径の管に、上記処理による葉たばこを充填して用いる態様を挙げることができる。

加温した状態で使用する態様として、例えば40~70 程度まで加温させて使用する態様を挙げることができる。

【0019】

<本発明のたばこ原料>

本発明のたばこ原料は、n-ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物（以下、ヘキサン抽出物ともいう）と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物（以下、水抽出物ともいう）の重量の比が、水抽出物重量/ヘキサン抽出物重量の数値（W/H比ともいう）として、0以上1.5以下である。

たばこ原料が上記のようなW/H比を有することで、香嗅味が良好なたばこ原料になる。W/H比が1.5を超えると、つまり水抽出物の含有量が大きくなりすぎると、たばこ原料の香嗅味に雑味が混じるようになる。

また、W/H比は、0.3以上0.6以下の態様を挙げることができる。

【0020】

また、本発明のたばこ原料におけるヘキサン抽出物と、水抽出物の合計の重量が、抽出前のたばこ原料の重量に対して5~17重量%である態様を挙げることができる。また、5~14重量%である態様を挙げることができる。

【0021】

上記のようなW/H比を有するたばこ原料を製造するために、例えば上記の本発明のたばこ原料の製造方法を用いることができる。

【0022】

なお、たばこ原料中のn-ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物量と、その後の水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物量の測定方法については、以下の方法を用いる。具体的には高速溶媒抽出装置（DIONE X社・ASE200）を用い、22mlの体積を耐圧金属製抽出セルに、たばこ原料を1.0g/cellとなるように入れ、試料が充填されたセルを準備する。当該セルを前記高速溶媒抽出装置に備え付け、以下の表に示す条件で抽出を行う。

【0023】

10

20

30

40

【表 1】

表 1

溶媒	PREHAT (min)	STATIC (min)	FLUSH% / CYCLES	PURGE (sec)	PRESSURE (psi)	温度 (°C)	Vial 数
n-ヘキサン	0	10	150% / 3cycles	90	2000	70	1
超純水	0	10	150% /3cycles	90	2000	100	3

10

## 【0024】

上記の抽出では、抽出液は装置専用のガラス製 V i a l に移送されるが、これを抽出後に回収し、抽出量の測定に使用する（方法については下記参照）。溶媒抽出は、溶媒の加圧充填、加温、静置、パージ（溶媒を V i a l に移送）、再度の溶媒の加圧充填で 1 サイクルとなっており、n-ヘキサンの場合は 3 サイクル繰り返し、1 つのセルから得られた全液量を 1 つの V i a l に回収する。引き続き実施する水抽出の場合は、合計 9 サイクル繰り返し、3 サイクルから得られた全液量を 1 つの Vial に回収し、合計 3 V i a l を 1 つのセルから得ることができる。

20

## 【0025】

n-ヘキサン抽出物量の測定については、以下の方法により行う。

1 バイアル / 1 セルの n-ヘキサン抽出液を、n-ヘキサン、酢酸エチル、エタノールを用いて、あらかじめ秤量した 100 ml ナスフラスコに移し、さらにバイアルを洗い込み、全ての抽出物をナスフラスコに回収する。ナスフラスコをロータリーエバポレータで減圧濃縮後、さらに 3 時間減圧オイルポンプにて常温・減圧下乾燥する。濃縮には、トラップ球をつけたロータリーエバポレータを用い、水槽の液温は 25 以下の設定とする。乾燥後のナスフラスコの重量を測定し、差分を n-ヘキサン抽出物量とする。

## 【0026】

水抽出物量の測定については、以下の方法により行う。

3 バイアル / 1 セルの水抽出液を、超純水を用いて、あらかじめ秤量した 500 ml 凍結乾燥用共通すり合せナスフラスコに移し、さらにバイアルを洗い込み、全ての抽出物をナスフラスコに回収する。ナスフラスコを凍結乾燥装置の予備凍結槽で凍結した後、凍結乾燥装置に接続し乾燥する。乾燥後のナスフラスコの重量を測定し、差分を水抽出物収量とする。

30

## 【実施例】

## 【0027】

本発明を実施例によって更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例の記載に限定されるものではない。

以下、本発明を実施例によって、さらに具体的に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例の記載に限定されるものではない。

40

## 【0028】

## &lt; 実施例 1 &gt;

葉たばこ材料（国産パーレー種）を粉砕機で粉砕した。

粉砕機は協立理工（株）製のサンプルミル S K - M 1 0 を使用した。

続けて篩にかけることで粒径が 0.425 mm から 1.18 mm となる粉砕葉たばこ材料が得られた。この粉砕葉たばこ材料 2 g を正確に量りとり、金属製のセルに充填した。

充填時に生じる空隙はステンレス製のビーズを使用して穴埋めした。セルは DIONEX（株）製の 22 mL 抽出セルを使用し、ビーズはセントラル科学貿易の粒径 2.2 mm を使用した。このセルに溶媒を送り込み粉砕葉たばこ材料の抽出を行うため高速溶媒抽出機を使用

50

した。

抽出器はDIONEX(株)製の高速溶媒抽出装置ASE-200を使用した。

抽出にはn-ヘキサン(誘電率:2)、エタノール(誘電率:24)のような誘電率が1以上25未満の溶媒を使用した。

【0029】

これらの溶媒を使用した上記抽出機による抽出では、セル中にまず溶媒を充填し、加温した後静置し、セル内の溶媒を押し出すという手順を三回繰り返す手順をとった。なおこの加温時の温度と静置時の圧力条件は各溶媒で以下の通りとした。

n-ヘキサン:70、2000psi

エタノール:80、2000psi

10

得られた上記溶媒による抽出液はおよそ40mLとなるが、エバポレーターを使用することで濃縮し、抽出時に使用した溶媒と同じ溶媒を使用して6.25mLとなるよう懸濁状態で定溶した。続けて溶媒である水(誘電率:80)で抽出を行った。抽出の際には、誘電率が1以上25未満の溶媒による抽出と同様の手順をとるが、加温時の温度と静置時の圧力条件は100、2000psiとし、誘電率が1以上25未満の溶媒による抽出時には3回のサイクルであったところを、水による抽出では9回のサイクルとした。抽出液の総量は概ね120mLとなった。

抽出後のセルに残留している抽出残渣は取り残しなく回収し、予備凍結した後に凍結乾燥に供した。予備凍結および凍結乾燥はEYELA製のFREEZE DRYER FD-81を使用した。

20

乾燥後の抽出残渣に対して上記で作成した低極性溶媒による抽出液全量をむらなくかけ戻すことで、本発明のたばこ原料が得られた。

各実施例で用いた溶媒は以下の通りである。

n-ヘキサンを用いた例:実施例1

エタノールを用いた例:実施例2

また、第一の抽出工程でメタノール(誘電率:33)を溶媒として用いて得られたたばこ原料を用いた例を比較例1とした。

【0030】

実施例1、2及び比較例1のたばこ原料について、アンモニアの含有量を測定した。たばこ原料中のアンモニアの含有量の測定は以下の手順に従って行った。

30

【0031】

<アンモニア分析>

未処理原料(180mg)あるいは処理原料(未処理原料180mgを処理した際の重量)を純水5mLにて30分間浸透抽出した。その後抽出液を10KDaの限外濾過膜により濾過した。濾液をAgilent Technologies製キャピラリー電気泳動クロマトグラフィーにて分析した。吸光度は波長280nmとし、アンモニアは塩化アンモニウム水溶液を適当な濃度に希釈した標準溶液を使用してアンモニウムイオンとして定量した。

定量した値を原料重量あたりに換算した結果を表2に示す。なお、処理原料については未処理時の原料重量を用いて換算した。(処理による重量減少の差異に起因する影響を除くため。)

40

【0032】

【表2】

表2

	Ctrl	n-ヘキサン	エタノール	メタノール
国産バーレー種	3066.9	0.0	483.8	1564.6
ブラジル黄色種	365.3	0.0	-	-

\*-は未測定。表中のコントロール以外の数値は、定量値を原料の重量あたりに換算した値(ppm(W.B.))である。

【0033】

50



上記の表 2 の結果から、誘電率 1 以上 2.5 未満の溶媒を第一の抽出工程で使用し、第二の抽出工程を経た後に、第一の抽出工程で得られた抽出液を抽出残渣にかけ戻した場合は、第一の抽出工程で誘電率が 2.5 以上の溶媒を用いた場合に比べて、アンモニアが選択的に多く除去されることが分かった。

【0034】

<官能評価>

本発明の製造方法により得られたたばこ原料について、実施例 1 と同じ条件で作製したもの（実施例 3）、実施例 1 において、第一の抽出工程を経て得られた抽出液をかけ戻す操作のみを行って得られた（第二の抽出工程がない）比較例 2、実施例 1 において、葉たばこ材料としてブラジル産黄色種を用いたこと以外は同じ操作を行って得られた実施例 4、実施例 4 において、第一の抽出工程を経て得られた抽出液をかけ戻す操作のみを行って得られた（第二の抽出工程がない）比較例 3、実施例 3 と同じ葉たばこ材料および操作を経て得られた実施例 5 と、比較例 2 と同じ葉たばこ材料および操作を経て得られた比較例 4 について、以下のような官能評価を行った。官能評価に際し、以下の操作を行った。

10

【0035】

（実施例 3、4 及び比較例 2、3）

粉碎し、篩にかけた未処理材料（粒径 0.425 mm から 1.18 mm）及び各たばこ原料（実施例 3、4、比較例 2、3）を石英管（外径 9 mm × 内径 7 mm × 長さ 55 mm）に充填した。

充填量は未処理原料ならびに抽出物の除去が無い場合は 180 mg とし、抽出物の除去を工程に含む処理原料の場合は水抽出分をかけ戻さないことによる重量減少分を考慮し、109 mg（180 mg の原料を処理した時に得られる原料重量）とした。石英管の両端はステンレス製の網で封をし、吸引を伴う評価時にサンプルが飛散しないようにした。これらの石英管について、60 に加熱して、石英管の一端から吸引し、未処理の原料と比較した結果について調査した。

20

【0036】

<官能評価の方法>

官能評価（吸い応えの変化）の基準は以下の通りである。変化割合は未処理の原料と比較して下記のワードで表現される 7 段階評価をもって判断した。なお被験者数は全ての評価において 10 名とした。評価結果については最小有意差法（LSD）を利用して、処理方法による官能評価結果差異の有意性の判定をした。結果を図 1 及び 2 に示す。

30

- （1）非常に強くなった：+ 3
- （2）強くなった：+ 2
- （3）やや強くなった：+ 1
- （4）変わらなかった：± 0
- （5）やや弱くなった：- 1
- （6）弱くなった：- 2
- （7）非常に弱くなった：- 3

【0037】

図 1 及び 2 の結果から、最小有意差法による検定では、実施例と比較例の間に 95% 有意差があり、本発明の製造方法による効果が見られた。

40

このことから、国内産パーレー種及びブラジル産黄色種のような葉たばこ材料の品種の差に関わらず、本発明の製造方法により得られたたばこ原料は、優れた香喫味を奏することが分かった。

【0038】

（実施例 5 及び比較例 4）

粉碎し、篩にかけた未処理原料（粒径 0.425 mm から 1.18 mm）および各たばこ原料（実施例 5 及び比較例 4）をプラスチック管（外径 9 mm × 内径 7 mm × 長さ 110 mm）に充填した。

充填量は未処理原料ならびに抽出物の除去が無い場合は 360 mg とし、抽出物の除去

50

を工程に含む処理原料の場合は水抽出分をかけ戻さないことによる重量減少分を考慮し、218 mg (360 mgの原料を処理した時に得られる原料重量)とした。プラスチック管の両端は不織布の網で封をし、吸引を伴う評価時にサンプルが飛散しないようにした。このプラスチック管を室温にて、プラスチック管の一端から吸引し、未処理原料と比較した結果について調査した。結果を図3に示す。

【0039】

実施例3及び4、比較例2及び3と同様に実施例5と比較例4についても評価を行った。その結果、最小有意差法による検定では、実施例5と比較例4の間に95%有意差があり、本発明の製造方法による効果が見られた。

【0040】

<実施例6>

第一の抽出工程で抽出に用いる溶媒として、テトラヒドロフラン(誘電率:8)を用いたこと以外は実施例1と同様の手順によりたばこ原料を作製した。

【0041】

実施例6のたばこ原料(104.94 mg)と、比較例1で作製したたばこ原料(第一の抽出工程で抽出に用いる溶媒として、メタノールを使用)(134.55 mg)について、実施例3、4及び比較例2、3と同じ方法で官能評価(吸い応えの変化)を行った。

結果を図4に示す。

【0042】

<比較例5及び6>

国産パーレー種の葉たばこ材料を実施例1と同じように粉碎処理し、第一の抽出工程を行わず、第二の抽出工程のみを行い(水による抽出のみを行い)、その第二の抽出工程により得られた抽出液を、抽出残渣にかけ戻すことで比較例5のたばこ原料を作製した。

また、国産パーレー種の葉たばこ材料を実施例1と同じように粉碎処理し、最初に第二の抽出工程(水による抽出)を行い、次に第一の抽出工程(n-ヘキサンによる抽出)を行った後、水による抽出を行って得られた抽出液のみを、抽出残渣にかけ戻すことで、比較例6にたばこ原料を作製した。

比較例5及び6のたばこ原料について、上記と同じ方法で官能評価(吸い応えの変化)を行った。官能評価に用いた比較例5のたばこ原料の重量は180 mg、比較例6のたばこ原料の重量は172.9 mgであった。

結果を図5に示す。

【0043】

<比較例7>

国産パーレー種の葉たばこ材料を実施例1と同じように粉碎処理し、第二の抽出工程を先に行い(水による抽出を先に行い)、その後、第一の抽出工程を行って(n-ヘキサンによる抽出を後で行って)得られた抽出液(n-ヘキサンによる抽出液のみ)を、抽出残渣にかけ戻すことで比較例7のたばこ原料を作製した。

比較例7のたばこ原料について、実施例3、4及び比較例2、3と同じ方法で官能評価(吸い応えの変化)を行った。官能評価に用いた比較例7のたばこ原料の重量は83.8 gであった。

結果を図6に示す。

【0044】

<各たばこ原料のW/H比>

実施例1(第一の抽出工程でn-ヘキサンを用いたもの)、実施例2(第一の抽出工程でエタノールを用いたもの)及び実施例6(第一の工程でテトラヒドロフランを用いたもの)、比較例1(第一の工程でメタノールを用いたもの)の各たばこ原料のW/H比を測定した。また、参考として、未処理のたばこ原料(パーレー種)についても参考例としてW/H比を測定した。

その測定方法は上記記載の通りである。

抽出に用いる試料の充填は、以下の手順により行った。

10

20

30

40

50

純正ろ紙を耐圧金属製抽出セルにセットし、予め洗浄し秤量したステンレス球10gを充填した。次いで、実施例1、2、6、比較例1及び参考例の各たばこ原料について、上皿天秤で1.0g/cellを薬包紙上に秤量し、粉末用漏斗などの適当な補助具を用いて、予めろ紙・ステンレス球を入れ準備した22mlのセルに秤量した試料を入れ、薬包紙上に残った試料をステンレス球で何回か拭うようにしてセルに加えた。さらに空隙をステンレス球でセル上部まで詰めて一杯にする。一杯になったらセルの上側部を密閉し、机上で叩き隙間を埋め均一し、空いたところにステンレス球を詰めた。

次に、表1に示す条件で、n-ヘキサンと水(MilliQ水)による抽出を、それぞれ3サイクルと9サイクル行い、それぞれの溶媒により抽出された抽出物の重量を求めた。測定は各たばこ原料について2回ずつ行い、抽出物の重量はその平均値を示す。

また、得られた抽出物重量から、W/H比と、抽出処理前のたばこ原料に対する抽出物重量の割合を求めた。結果を表3に示す。

【0045】

【表3】

表3

	実施例1	実施例2	実施例6	比較例1	参考例
n-ヘキサン抽出物重量割合(%)	7.23	10.38	8.60	7.80	6.75
水抽出物重量割合(%)	2.55	5.43	2.70	16.45	39.55
W/H比	0.4	0.5	0.3	2.1	5.9
抽出物重量/たばこ原料重量(%)	9.8	15.8	11.3	24.2	46.3

【0046】

実際に使用した装置、溶媒、物品については以下の通りである。

< 使用装置 >

高速溶媒抽出装置(DIONEX社・ASE200)

上皿天秤(METTLER・PM2500)

予備凍結槽つき凍結乾燥装置(東京理科機械(株)・FD-81)

減圧オイルポンプ(ULVAC KIKO Inc.・ULVAC GCD-051X)

< 使用溶媒 >

n-ヘキサン(和光純薬工業(株)・高速液体クロマトグラフ用(HPLC))

水(超純水製造装置MQ GradientによるMilliQ水・日本ミリポア(株))

酢酸エチル(和光純薬工業(株)・高速液体クロマトグラフ用(HPLC))

エタノール(和光純薬工業(株)・高速液体クロマトグラフ用(HPLC))

\* 酢酸エチルとエタノールはn-ヘキサンによる抽出液をナスフラスコに移しこむ際に使用

< 使用物品 >

薬包紙10センチ四方

共通すり合せナスフラスコ/100ml(柴田科学(株))

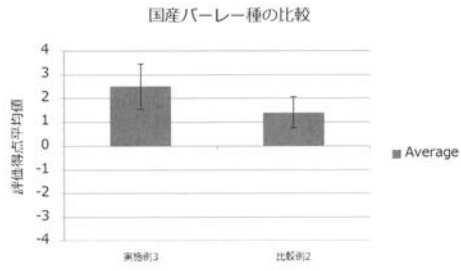
凍結乾燥用共通すり合せナスフラスコ/500ml(EYELA(株))

耐圧金属製抽出セル22ml(DIONEX社(株))

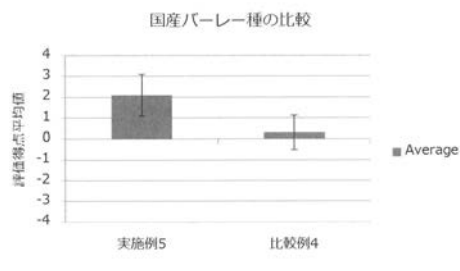
抽出セル用純正ろ紙(DIONEX社(株))

ステンレス球粒径2.3mm(セントラル科学貿易(株))

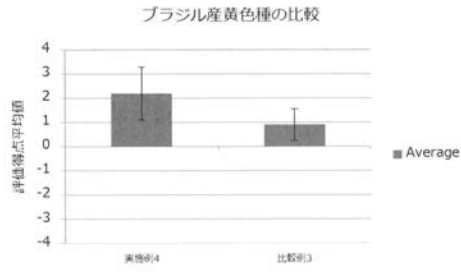
【 図 1 】



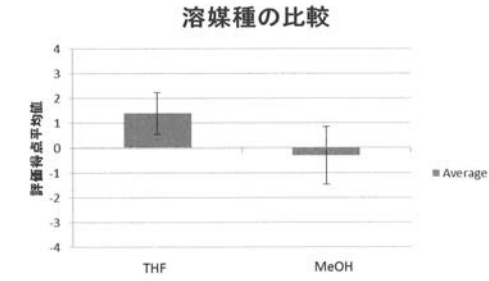
【 図 3 】



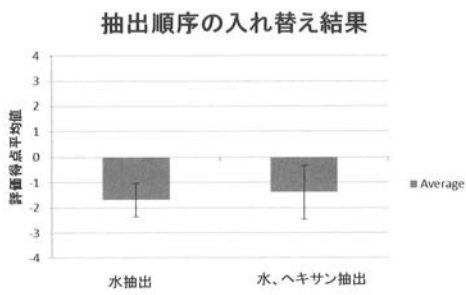
【 図 2 】



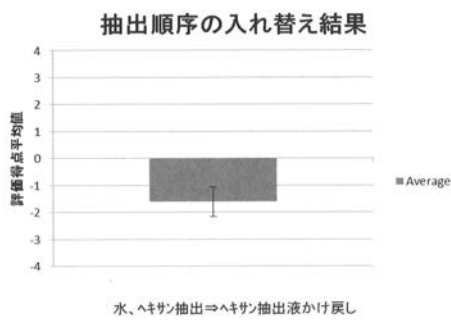
【 図 4 】



【 図 5 】



【 図 6 】



【手続補正書】【提出日】平成28年10月3日(2016.10.3)【手続補正1】【補正対象書類名】特許請求の範囲【補正対象項目名】請求項1【補正方法】変更【補正の内容】【請求項1】

n - ヘキサンを溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出により得られる抽出物の重量の比が、水抽出物重量 / ヘキサン抽出物重量比で、0 以上 1 . 5 以下である、たばこ原料であって、たばこ原料の抽出条件が以下の(1)で示される条件であり、抽出物重量の測定法が以下の(2)と(3)で示される条件により行われる、たばこ原料。

(1) n - ヘキサンを溶媒として用いた抽出と、その抽出後にさらに水を溶媒として用いた抽出は、以下の手順で行う。

高速溶媒抽出装置を用い、22mlの体積を耐圧金属製抽出セルに、たばこ原料を1.0g/cellとなるように入れ、試料が充填されたセルを準備する。当該セルを前記高速溶媒抽出装置に備え付け、以下の表1に示す条件で抽出を行う。

【表1】

溶媒	PREHAT (min)	STATIC (min)	FLUSH% / CYCLES	PURGE (sec)	PRESSURE (psi)	温度 (°C)	Vial 数
n - ヘキサン	0	10	150% / 3cycles	90	2000	70	1
超純水	0	10	150% /3cycles	90	2000	100	3

上記の抽出では、抽出液は装置専用のガラス製 V i a l に移送されるが、これを抽出後に回収し、抽出物重量の測定に使用する。溶媒抽出は、溶媒の加圧充填、加温、静置、バージ(溶媒を V i a l に移送)、再度の溶媒の加圧充填で1サイクルとなっており、n - ヘキサンの場合は3サイクル繰り返し、1つのセルから得られた全液量を1つの V i a l に回収する。引き続き実施する水抽出の場合は、合計9サイクル繰り返し、3サイクルから得られた全液量を1つの V i a l に回収し、合計3 V i a l を1つのセルから得る。

(2) n - ヘキサン抽出物重量の測定については、以下の方法により行う。

1バイアル / 1セルの n - ヘキサン抽出液を、n - ヘキサン、酢酸エチル、エタノールを用いて、あらかじめ秤量した100mlナスフラスコに移し、さらにバイアルを洗い込み、全ての抽出物をナスフラスコに回収する。ナスフラスコをロータリーエバポレータで減圧濃縮後、さらに3時間減圧オイルポンプにて常温・減圧下乾燥する。濃縮には、トラップ球をつけたロータリーエバポレータを用い、水槽の液温は25 以下の設定とする。乾燥後のナスフラスコの重量を測定し、差分を n - ヘキサン抽出物重量とする。

(3) 水抽出物重量の測定については、以下の方法により行う。

3バイアル / 1セルの水抽出液を、超純水を用いて、あらかじめ秤量した500ml凍結乾燥用共通すり合せナスフラスコに移し、さらにバイアルを洗い込み、全ての抽出物をナスフラスコに回収する。ナスフラスコを凍結乾燥装置の予備凍結槽で凍結した後、凍結乾燥装置に接続し乾燥する。乾燥後のナスフラスコの重量を測定し、差分を水抽出物重量とする。



国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 7 2 2 4 4	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. A24B15/26(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. A24B15/26			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2014年 日本国実用新案登録公報 1996-2014年 日本国登録実用新案公報 1994-2014年			
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	
X A	JP 2011-10656 A (ノボザイムス アクティージェルスカブ) 2011.01.20, 段落【0015】-【0032】、【0098】-【0101】 & US 6298859 B1 & WO 2000/002464 A1	1-2, 7 3-6	
A	JP 52-1098 A (エイエムエフ、インコーポレーテッド) 1977.01.06, & US 4200113 A & GB 1532083 A & DE 2613569 A & FR 2314677 A & CH 603082 A	1-7	
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。		<input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。	
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献	
国際調査を完了した日 21.11.2014		国際調査報告の発送日 02.12.2014	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 豊島 ひろみ 電話番号 03-3581-1101 内線 3337	3 L 9 4 2 6

## フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG

(72)発明者 石田 直之

日本国東京都墨田区横川一丁目17番7号 日本たばこ産業株式会社内

Fターム(参考) 4B043 BC06 BC34

(注)この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。