

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 3月31日現在

機関番号：82111

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22780233

研究課題名（和文）高品質化と高効率化を実現する革新的粉末食品製造法の開発：気液二相バインダの利用

研究課題名（英文）Development of new method for granulation to improve quality and productivity of powdered food

研究代表者

五月女 格（SOTOME ITARU）

独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構・食品総合研究所・食品工学研究領域・主任研究員

研究者番号：90469833

研究成果の概要（和文）：粉末食品の造粒工程においてバインダ(水分)添加量を低減し、製造工程の効率化および粉末食品の高品質化を図る目的で、通常使用される液体バインダに代わり水蒸気と微細な水滴を粉末に添加し流動層造粒を行った。コーンスターチおよびデキストリン混合物の造粒において、127.4℃の水蒸気に約20～70%の質量割合の水滴を混ぜて粉末に噴霧することにより、液体バインダを二流体ノズルで噴霧した場合と比較して、水分添加量を40～80%に削減することが可能となった。

研究成果の概要（英文）：In this study, steam and micro droplets of water were used instead of liquid binder for fluidized bed granulation to improve the productivity and quality of powdered food by reducing the required amount of binder for the granulation. The amount of required binder water was 40 to 80 % smaller than that of conventional liquid binder when the steam at 127.4℃ with micro droplets of water (20 to 70% mass flow rate of the steam) was sprayed to mixed powder of maize starch and dextrin.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
2012年度	700,000	210,000	910,000
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：農学

科研費の分科・細目：農業工学・農業環境工学

キーワード：ポストハーベスト工学

1. 研究開始当初の背景

インスタントスープおよび飲料などの粉末食品ならびに医薬品などは、微粉末の状態では使用時に水や湯に溶解する際にランピング(ママコ、ダマ)を起こしやすく、また流動性が低く飛散性が高いため、ハンドリング性が悪いという問題がある。この問題を解決するために多くの粉末食品や医薬品に対して、粒子を結着させ顆粒状にする造粒操作が行われている。造粒方法には攪拌造粒、押し出し造粒など様々な方法があるが、その中の一

つに流動層造粒が挙げられる。流動層造粒では下方から気体を流し流動状態になった粉体に対して、バインダ(デンプン糊、グアガム溶液など)を噴霧し粒子同士を結着させた後、乾燥させる。流動層造粒は製造された顆粒の溶解性の高さなどから、食品や医薬品等に広く用いられている。流動層造粒ではバインダの時間当たり噴霧量を増加させると造粒に要する時間が短縮されるが粗大粒が形成されやすくなるため、バインダ噴霧量を小さく設定し、造粒品の粒度が設計値に達するまで

造粒を続ける手法が一般的である。また造粒後は顆粒含水率が高くなるため引き続き流動層により乾燥が行われるが、乾燥時における食品の変質を抑制するため、如何にバインダ添加量を減少させ乾燥時間を短縮するかが課題となっていた。

一方、これまで水蒸気をバインダとして粉末に噴霧し、粉末に凝縮した水をバインダとすることにより、造粒の効率化を図る試みが存在した。水滴を噴霧する場合は、水滴がバインダとして機能するためには、粉末粒子と水滴が衝突する必要があるが、造粒プロセスの進行に水滴と粒子の衝突確率が影響するが、水蒸気を噴霧した場合、粉末粒子全体に水蒸気が凝縮することにより、造粒効率が向上すると考えられる。しかしながら、現実には水蒸気をバインダとして噴霧すると造粒の進行は速くなるが、造粒開始からある一定時間経過すると粗大粒が急激に成長し、顆粒径の均一性が低くなり、径の制御が難しくなるという問題が知られていた。この理由としては、既に成長している大きな顆粒に、より水蒸気が凝縮しやすい事等が考えられた。

ところで、研究代表者等はこれまで、微細水滴を含んだ過熱水蒸気による食品加熱技術の開発に従事してきた。この技術では高圧下において 120~140℃で水を沸騰させ、水蒸気と熱水をノズルから常圧下に置かれた食品に噴霧する(図 1)。水蒸気はノズルによる絞りを受けて 110~115℃の過熱水蒸気となり、熱水は水蒸気噴流により微粒化され過熱水蒸気中に分散される。この加熱技術の利点は、加熱媒体として熱水や飽和水蒸気を用いた際に起こる食品からの成分の流出や食品の吸水、ならびに過熱水蒸気を用いた際に起こる食品の乾燥を同時に防ぐことが可能であり、過熱水蒸気中に分散させる熱水滴の量を制御することにより、食品の含水率を制御しながら加熱が行えることである。以後、この水蒸気と水滴を組み合わせた加熱媒体をアクアガスと呼ぶ。

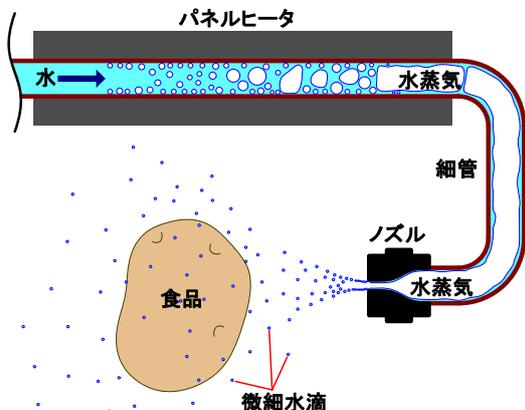


図 1 微細水滴を含んだ過熱水蒸気 (アクアガス) 発生装置の概略図

このアクアガスを流動層造粒におけるバインダとして用いることにより、水蒸気および水滴それぞれのバインダとしての特徴を利用することにより、流動層造粒における所要時間の短縮およびバインダ添加量の低減が図れると期待された。

2. 研究の目的

本研究では、粉末食品の流動層造粒におけるバインダとして、グアガム溶液などの通常のバインダ、およびアクアガスを用いて造粒試験を行い、それぞれの条件における造粒中の流動層含水率変化および顆粒の生成過程の違いについて明らかにすることを目的とした。

またそれぞれの条件において生成された顆粒のカサ密度など粉体物性測定を行い、バインダの違いが顆粒の性質に及ぼす影響について検討を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 実験材料

造粒の原料にはトウモロコシ澱粉 (ホワイト、日本コーンスターチ株式会社) 800.0 g およびデキストリン (サンデック#70 (DE: 6~8)、三和澱粉工業株式会社) 200.0 g を混合した試料を用いた。トウモロコシ澱粉は含水率を 10.0%w. b. に調整して用いた。

(2) 実験装置

実験に用いた造粒装置の概略図を図 2 に示す。造粒容器は厚さ 10 mm のアクリル樹脂製であり、上部は内径 250 mm の円筒形、下部は円錐台形で底部の内径は 100 mm となっている。容器の底部には整流板およびステンレス鋼網 (120 メッシュ) が設置されている。粉体試料を流動させる空気は、装置外部から空気圧縮機により供給される。空気圧縮機から送風された空気は、除湿された後、流量制御器を通して一定流量にて造粒装置に供給される。造粒装置に供給された空気は、ヒータにより加熱されて造粒容器に送風される。造粒容器内で粉体試料の流動に使用された空気は、造粒容器上部に設置された 4 本のバッグフィルタを通して装置外部に排出される。それぞれのバッグフィルタは 10 秒毎に圧縮空気により、付着した粉体が順次払い落とされる。

造粒容器には底部より高さ 200 mm の位置にサンプリングノズルが取り付けられている。サンプリングノズルは長さ約 150 mm、直径 10mm のステンレス鋼製であり、先端から 60 mm の位置に幅 6 mm、長さ 30 mm、深さ 6 mm の溝を有している。造粒中にサンプリングノズルを造粒容器側面の挿入孔より容器内に挿入すると、流動している試料の一部がサンプリングノズルの溝に入る。サンプリングノズルを造粒容器から引き出すと、溝に入った試料を造粒容器から取り出すことが可能で

ある。造粒容器への試料の投入および取り出しは、バッグフィルタを取り外して容器上部を通して行う。

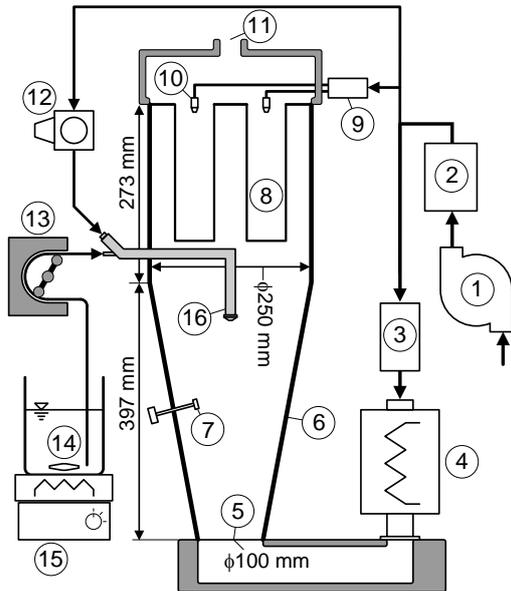


図2 流動層造粒乾燥機

1. 空気圧縮機、2. 除湿機、3. 流量制御器、4. 空気加熱器、5. ステンレス鋼網、6. 造粒容器、7. サンプリングノズル、8. バッグファイルタ、9. ソレノイドバルブ、10. フィルタ逆洗ノズル、11. 排気口、12. 圧力調整器、13. ポンプ、14. バインダ溶液、15. マグネティックホットスターラ、16. 二流体ノズル。

(3) 造粒操作手順および条件

造粒試験は、装置予熱、原料予備攪拌、造粒および乾燥の手順で行った。造粒容器に送られる空気の温度は、全工程において 80°C で一定とし、流量を 0.500 m³/min (大気圧、0°C換算)とした。予熱は、造粒容器に供給される空気温度が 80°C に達し、さらに造粒容器の温度がほぼ安定するまで行った。装置の予熱後、温度を 30°C に調整した原料を造粒容器に投入し、3 分間の予備攪拌を行った。予備攪拌の後、バインダを原料に対して所定の時間噴霧し造粒を行った。造粒工程の後、引き続き試料の流動層乾燥を所定の時間行った。

(4) バインダ噴霧条件

① 従来方法におけるバインダ

温度を 30°C に調整したグアガム (073-04615, 和光純薬工業株式会社) 0.15% 水溶液を、二流体ノズルにて造粒容器上方から下方に向かって噴射した。二流体ノズルのチップ口径は 1.0 mm であり、ノズル先端から容器底部までの距離は 335 mm であった。バインダ微粒化用の空気圧は図 2 中の 12. 圧

力調整器部分で 0.05、0.10、0.15、0.25 MPa (ゲージ圧)としたが、圧力降下によりノズル先端における空気圧はそれぞれ、0.0425、0.0891、0.1379、0.2343 MPa であった。バインダ供給速度は 10、15、20、30、40 g/min とした。

② アクアガスバインダ

アクアガスバインダによる試験においては、図 2 中の 16. 二流体ノズルを一流体ノズル (口径 1.0mm, HB1/8U-SS0003, スプレーイングシステム) に置き換え、アクアガス発生装置 (IR6000-200V, タイヨー製作所) を接続した。従来方法におけるバインダ噴霧条件のうち、供給空気圧力 0.15 MPa と同等の噴霧圧となるよう、アクアガス噴射ノズル内圧が 0.1379 MPa になるようアクアガス発生装置の出力を調整したところ、アクアガス噴射ノズル内温度は 127.4°C となり、ノズルから噴射される水蒸気流量は 18.83 g/min となった。水蒸気流量は 18.38 g/min で一定とし、水滴流量を 0 ~ 40 g/min の間で変化させた。

(5) 流動層含水率測定

流動層の含水率変化解析においては、各種バインダ噴霧条件にて造粒が行われている流動層から、サンプリングノズルを用いて 30 秒~3 分間毎に約 1 g の試料を取り出し、試料の含水率測定を行った。試料の含水率は、加熱乾燥式水分計 (MX-50、株式会社エー・アンド・デイ) を用いて測定し、測定温度を 160°C とした。含水率は乾量基準とし、試料の水分質量を乾物質量で除した値とした。

(6) 顆粒成長解析

顆粒の成長解析においては、各種バインダ噴霧条件にて、適宜バインダ供給時間を変化させ造粒を行った。造粒後には試料の含水率が約 7.5%w.b. になるまで流動層乾燥を行った。造粒により得られた顆粒の粒度分布をレーザー回折散乱粒度分布計 (LS 13 320、ベックマン・コールター株式会社) にて乾式測定した。なお試料の屈折率は 1.6 とした。

(7) 顆粒の構造観察および流動性測定

造粒終点に達した顆粒の粉体物性を、流動性を粉体物性試験機 (MT-1001、セイシン企業) にて測定した。

4. 研究成果

(1) 造粒時の流動層含水率変化

造粒時の流動層含水率変化の例を図 3 に示す。バインダの種類・噴霧圧を問わず、流動層含水率変化は図 3 と同様の結果となった。バインダ供給速度が遅い条件では流動層含水率は上に凸の曲線を描いて増加し、バインダ供給速度が速い条件では含水率は直線的に増加した。造粒中はバインダ添加による流

動層の湿潤と、噴霧されたバインダ液滴の蒸発や流動層からの水分蒸発が同時に起きていることから、流動層含水率 M の変化を次のように仮定した。

$$\frac{\partial M}{\partial t} = Sp - Ev - k(M - M_e) \quad (1)$$

t は時間 [min]、 Sp はバインダ供給速度を原料乾物質量で序した値であり、比バインダ供給速度 [min^{-1}] と定義した。 Ev は一定の水分蒸発を表す速度定数 [min^{-1}] であり、 k は流動層含水率と、流動層の平衡含水率 M_e (0.0337 d. b. decimal) の差に比例した水分蒸発の速度を表す定数 [min^{-1}] である。測定された含水率を式 1 にて回帰することにより、速度定数 Ev と k を得ることができる。

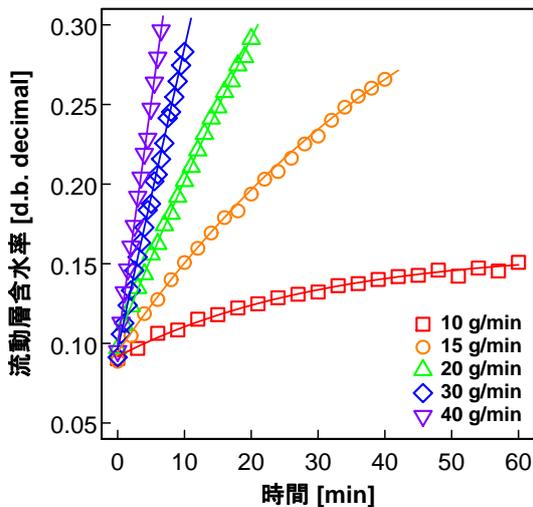


図3 造粒時の流動層含水率変化
グアガムバインダ、噴霧圧 0.25 MPa の例

(2) 水分蒸発速度定数

① 従来方法におけるバインダの場合

グアガムバインダによる造粒時の比バインダ供給速度に対する、速度定数 Ev および k の変化を図 4 および図 5 に示す。バインダ供給速度の増加に伴い、速度定数 Ev は増加し k は減少した。速度定数 Ev は噴霧されたバインダが粒子に付着せずに蒸発するなど、造粒への寄与が低かったバインダの蒸発を表しており、速度定数 k は粒子に強く吸着し、造粒への寄与が比較的高かったバインダの蒸発を表していると考えられた。バインダ供給速度が増えるに従い、粒子に付着せずに蒸発するバインダ液滴が増加することにより速度定数 Ev が増加し、またそれに伴い、流動層に供給されている温風の粒子に付着した水分を蒸発させる能力が減少し、速度定数 k が減少したと考えられた。

一方、供給されたバインダに対して、造粒に寄与せずに蒸発したバインダの割合 Ev/Sp を図 6 に示す。図 6 の縦軸は $(Ev - Ev_0)/Sp$ となっているが、ここでは Ev_0 は 0 であり詳細に

については後述する。 Ev/Sp はバインダ供給速度の増加と共に減少しており、バインダ供給速度が速い程、バインダが効率的に利用されていると言える。また図 6 より Ev/Sp は Sp に対して、直線で近似できるとみなせたことから、 Ev/Sp を Sp の一次関数 $Ev/Sp = \beta + \alpha Sp$ と仮定すると、

$$Ev = \beta Sp + \alpha Sp^2 \quad (2)$$

と表せる。式 2 によると Ev はある比バインダ供給速度 $Sp_c = -\beta/2\alpha$ で極大値 $Ev_{max} = -\beta^2/4\alpha$ をとるが、これは比バインダ供給速度 Sp_c 以上で、バインダ液滴の蒸発量が飽和していることを表している。またこのとき、温風が粒子に付着した水分を蒸発させる能力が無くなり、速度定数 k が 0 になったと考えられた。

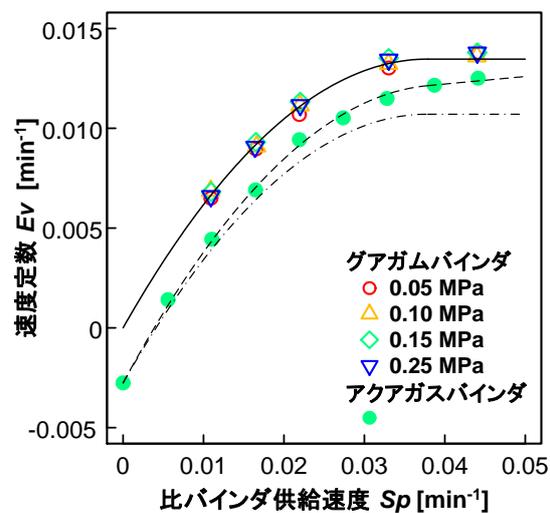


図4 バインダ供給速度による速度定数 Ev の変化

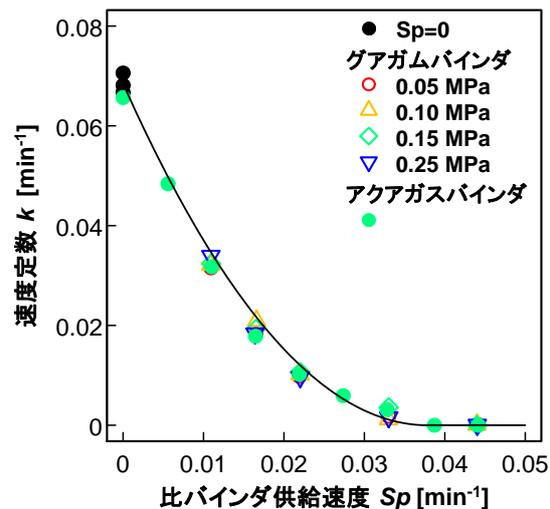


図5 バインダ供給速度による速度定数 k の変化

図 6 の Sp が Sp_c 以下の区間に対して Ev/Sp を回帰した結果を図 6 中を実線で示す。この

とき、

$$Ev/Sp = \beta + \alpha Sp \quad (Sp < Sp_c) \quad (3)$$

$$Ev/Sp = Ev_{\max}/Sp \quad (Sp \geq Sp_c) \quad (4)$$

と表せ、また、

$$Sp_c = 0.0379[\text{min}^{-1}] \quad (5)$$

$$Ev_{\max} = 0.0135[\text{min}^{-1}] \quad (6)$$

となった。式3および式4から得られる Ev を図4中の実線で示す。また Ev の増加に対して k が線形的に減少し Sp_c で0になると仮定した場合に得られる曲線を図5中の実線で示す。

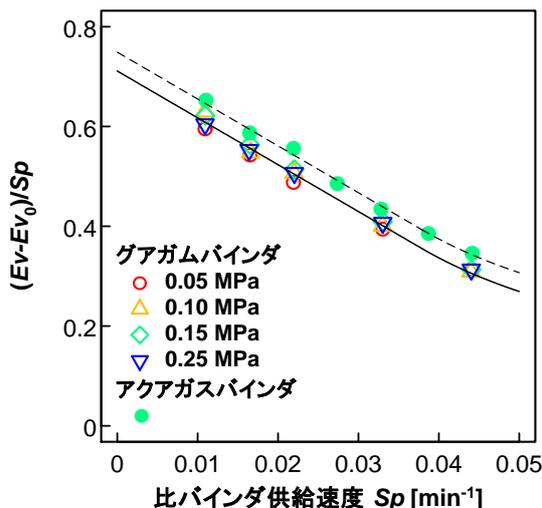


図6 バインダ供給速度による Ev の Sp に対する比率の変化

②アクアガスバインダの場合

アクアガスバインダにより流動層造粒を行った場合においても、グアガム溶液バインダを使用した場合と同様の、流動層含水率変化が確認された。含水率測定結果を式1で回帰し、得られた速度定数 Ev および k を図4および図5に示す。速度定数 k についてはグアガムバインダによる造粒時との差異は見出されなかったが、速度係数 Ev はグアガムバインダ使用時と比較して小さかった。また、 $Sp = 0$ すなわちアクアガスバインダの水蒸気流量を 0 g/min とし、水蒸気のみを流動層に対して噴霧した場合、負の $Ev (-0.00276 \text{ min}^{-1})$ が得られた。これは、水蒸気が粉末に凝縮したことによるものと考えられた。

アクアガスバインダによる試験条件においては、水滴流量によらず水蒸気流量は一定であることから、常に一定量の水蒸気が凝縮していると仮定すると、 Ev は式3および式4から得られる Ev に Ev_0 を加えた値となり、図4中の一点鎖線で表される。しかしながら得られた Ev は図4一点鎖線で表された値より大きくなった。これは、アクアガスバインダではノズルから噴霧される直前の水滴温度

は 127.4°C と高温であるため、噴霧直後に一定量が蒸発したことによるものと考えられた。 Ev から Ev_0 を差し引いた値、すなわち $(Ev - Ev_0)/Sp$ を図6に示した。アクアガスバインダにおいては噴霧された液滴の一部がバインダ供給速度によらず常に蒸発していると仮定すると、

$$(Ev - Ev_0)/Sp = \beta + \alpha Sp + \gamma \quad (Sp < Sp_c)$$

(5)

$$(Ev - Ev_0)/Sp = Ev_{\max}/Sp + \gamma \quad (Sp \geq Sp_c)$$

(6)

と表せる。 γ はアクアガスバインダの液滴が高温であるため、蒸発する割合を示している。式5および式6により $(Ev - Ev_0)/Sp$ を回帰した結果、 $\gamma = 0.0377$ となった。また式5および式6から

$$Ev = Ev_0 + (\beta + \gamma)Sp + \alpha Sp^2 \quad (Sp < Sp_c)$$

(7)

$$Ev = Ev_0 + Ev_{\max} + \gamma Sp \quad (Sp \geq Sp_c)$$

(8)

が得られる。式7および式8を図4に破線で示す。得られた式7および式8は測定値によく一致した。

(3)バインダ噴霧条件と顆粒成長

グアガム溶液バインダおよびアクアガスバインダを使用した造粒による顆粒の成長過程を図7および図8にそれぞれ示す。それぞれの条件にてバインダを噴霧するノズル内の圧力は同等である。アクアガスバインダによる試験では、水蒸気の凝縮による粉末の含水率増加分を差し引き、グアガムバインダ使用時と同等の流動層含水率増加となるよう、バインダ供給速度を設定した。すなわち比較対象となるグアガム溶液バインダの供給速度が Sp' であった場合、アクアガスバインダの液滴供給速度 Sp は、

$$Sp = (Sp' + Ev_0)/(1 - \gamma) \quad (9)$$

となるよう設定した。

いずれのバインダにおいてもバインダ供給速度が速いほど、添加バインダ質量に対する顆粒の成長が速い傾向がみられたが、これは前述した、バインダ供給速度が速い条件ほど、造粒に寄与せずに蒸発するバインダの割合が低下することと関連していると考えられた。

また、アクアガスバインダを使用した場合、グアガム溶液バインダを使用した場合と比較して、約40~80%のバインダ添加量にて同等径の顆粒が形成された。これは水蒸気の凝縮により、粉末の粒子表面が均等に濡れ、粒子同士が結着する確率が上昇したためと考えられた。

グアガム溶液バインダを使用した場合は、バインダ供給速度が速くなると粗大粒の形成がみられたが、アクアガスバインダにおいては、バインダ供給速度が遅い条件ほど、粗大粒が多くみられた。アクアガスバインダにおいてはバインダ供給速度が遅い条件では、水蒸気供給量が水滴と比較して多くなることから、水蒸気バインダによる造粒条件に近くなったためと考えられた。

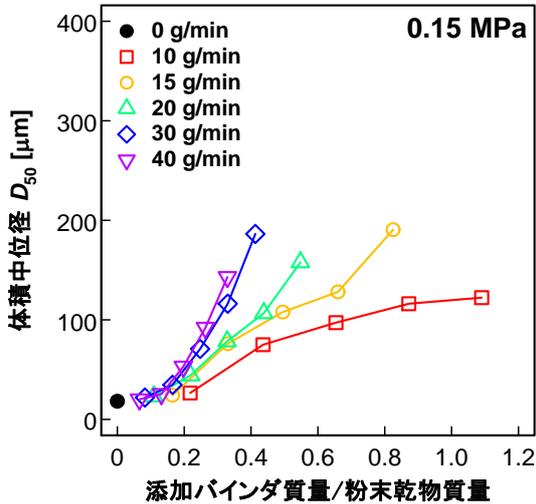


図7 顆粒成長(グアガム溶液バインダ)

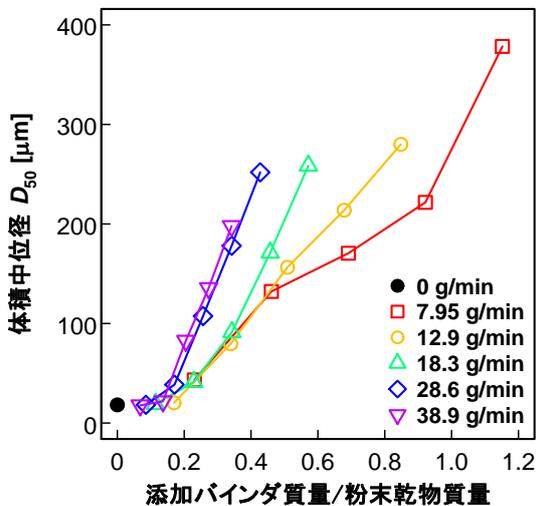


図8 顆粒成長(アクアガスバインダ)

アクアガスバインダの添加量は水滴添加量に水蒸気凝縮量を加えたものである。

(4) 粉体物性

顆粒のゆるめかさ密度はグアガムバインダ使用時には $0.40 \sim 0.47 \text{ g/cm}^3$ の間でバインダ供給速度が速くなるほど大きくなった。一方、アクアガスバインダ使用時には $0.43 \sim 0.49 \text{ g/cm}^3$ と高くなり、またバインダ供給速度が速くなるほど小さくなった。

顆粒の分散度はグアガムおよびアクアガ

スバインダ使用時においてそれぞれ、 $0.35 \sim 0.65$ 、および $0.66 \sim 0.76$ となが、バインダ供給速度との関連性は見出されなかった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計1件)

- ① 五月女格、井上孝司、片桐孝夫、竹内博一、津田升子、竹中真紀子、岡留博司、五十部誠一郎、トウモロコシ澱粉の流動層造粒工程の解析ーバインダ供給速度および噴霧圧が流動層含水率および顆粒の成長に及ぼす影響ー、日本食品工学会誌、査読有、13巻4号、2012、127-136

〔学会発表〕(計3件)

- ① 五月女格、井上孝司、片桐孝夫、竹内博一、津田升子、竹中真紀子、岡留博司、五十部誠一郎、トウモロコシ澱粉の流動層造粒工程における含水率予測モデル、農業環境工学関連学会 2012 年合同大会講演要旨集、平成 24 年 9 月 13 日、宇都宮大学、2012、C25
- ② 五月女格、井上孝司、片桐孝夫、竹内博一、津田升子、竹中真紀子、岡留博司、五十部誠一郎、バインダ噴霧条件がトウモロコシ澱粉の流動層造粒工程に与える影響、日本食品工学会第 13 回年次大会講演要旨集、平成 24 年 8 月 9 日、北海道大学、2012、p. 27
- ③ 五月女格、井上孝司、片桐孝夫、竹内博一、津田升子、竹中真紀子、岡留博司、五十部誠一郎、水蒸気と微細水滴をバインダとしたトウモロコシ澱粉の流動層造粒、日本食品工学会第 12 回年次大会講演要旨集、平成 23 年 8 月 5 日、京都テルサ、2011、p. 36

6. 研究組織

(1) 研究代表者

五月女 格 (SOTOME ITARU)

独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構・食品総合研究所・食品工学研究領域・主任研究員

研究者番号：90469833