

穀物粉体の乾燥特性*

村田 敏**・河野俊夫**・田中史彦**

要 旨

穀物粉体の乾燥特性をTGA (Thermo Gravimetric Analyzer) を利用して測定, 解析を行った。その結果, 次のことが明らかとなった。

(1) 穀物粉体は, 含水率約20%まで減率乾燥第一段で乾燥し, その後, 減率第二段に入る。また, 減率乾燥第二段では拡散係数は一定ではなく, その拡散方程式は非線形となる。

(2) 減率乾燥第一段, 減率乾燥第二段各々の乾燥速度定数が求められ, 乾燥速度定数はいずれも, 穀物粒子同様に Arrhenius 型の温度依存関係があることが確認された。

(3) 減率乾燥第二段における乾燥速度が導入した非線形拡散方程式を CRANK-NICOLSON 法によって数値的に解析することによって求められた。その結果, 測定値ときわめてよく一致した。

Drying Characteristics of Cereal Powder*

Satoshi MURATA**, Toshio KAWANO**, Fumihiko TANAKA**

Abstract

Drying characteristics of cereal powder were measured and analyzed by using TGA (Thermo Gravimetric Analyzer). The results revealed that

- (1) The cereal powder with initial moisture contents above about 20% d. b. dried in the first falling rate period, followed by the second falling rate period. In the 2nd falling rate period the diffusion coefficients were not constant, and the diffusion equations became non-linear.
- (2) The drying constants in the first and second falling rate period were measured. It could be confirmed that the both drying constant had Arrhenius type temperature dependency.
- (3) The drying rates in the second falling rate period were estimated from the numerical solutions of the introduced non-linear diffusion equation by CRANK-NICOLSON method, and the results agreed well with the measured results.

[Keyword] drying, powder, simulation, TGA

* 平成元年9月農業機械学会九州支部例会にて講演
 ** 九州大学農学部 (〒812 福岡市東区箱崎6-10-1 ☎092-641-1101) Faculty of Agriculture, Kyushu Univ., Fukuoka, 812 Japan

I 緒 言

食品加工に際し, 穀物粉体のままでの乾燥工程があるが, 乾燥特性に関する研究はきわめて少ない。しかし, 乾燥装置の設計に当たって, その対

象物の乾燥特性は是非必要であり、また、実際の設計計算に当たっては、その特性が乾燥工学的に整理されていることが必要である。

著者らは、今日、穀物粉体乾燥装置設計上のこのような要求に応じて、7種類の穀物粉体の乾燥特性を、最近食品分析で活用され、多くの有益な結果を生み出している熱重量分析装置TGAを利用して測定し、解析したので、その結果を報告する。

II 測定方法

1. TGA とその原理 TGAとは、原理的には天秤やばねばかりと変わりのない重量測定装置であるが、図1に見られるようにビームやカンチレバーの傾き、トーションワイヤのねじれなどが重量変化に比例することを利用して(A)の零位法ではソレノイドコイルにより回復力を与え、変化を零に保つようにし、変化に比例している通電電流の大きさを、また(B)の変位法では重量変化を变化の大ききで測定・記録することによって精密に捉えようとするものである。零位法は装置の炉内における試料の位置が変わらないという利点があり、また、電子技術の向上により電氣的に捉えることが容易に行えるようになってからは、測定が

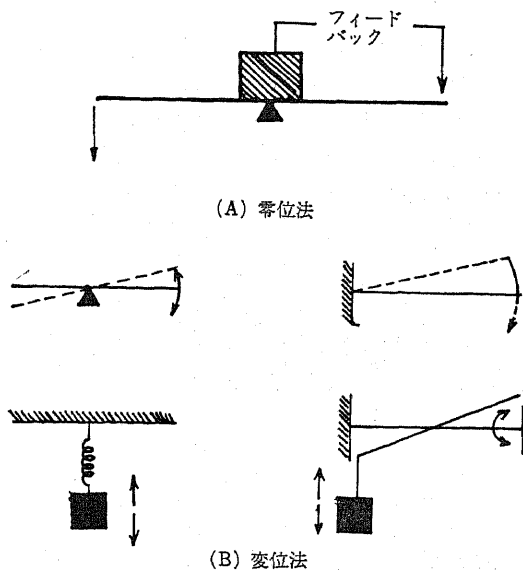


図1 TGAの基本構造

Fig.1 Basic structure of TGA

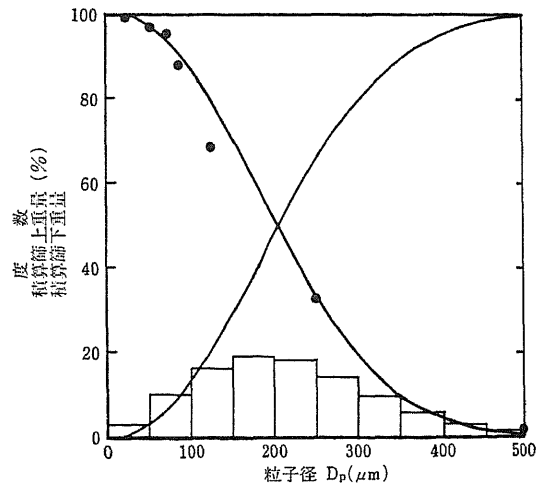


図2 大豆粉の粒度分布

Fig.2 Particle size distribution of soybean powder

表1 各穀物に対する式(1)のパラメータとその標準偏差

Table 1 Parameters in eq.(1) and its standard deviation evaluated for each powder

穀物粉体の種類	均等数n	粒度特性数D _e	標準偏差S. D.
米 粉	2.3821	137.84	11.5812
強力粉	2.9080	130.04	16.6118
薄力粉	4.1009	148.82	11.9133
大豆粉	2.2332	240.74	5.2979
ライ麦粉	2.7288	272.95	2.9611
じゃがいも澱粉	1.5875	78.100	16.7065
とうもろこし澱粉	4.2725	83.855	11.7720

精密でデータの取扱いが簡単となっている。今回使用した機器もこの方式を採用している。

2. 供試材料 本測定に供試した穀物粉体は、小麦粉（強力粉）、小麦粉（薄力粉）、米粉、じゃがいも澱粉、大豆粉、とうもろこし澱粉、ライ麦粉の7種類である。図2に大豆粉の粒度分布、表1に各穀物粉体に対する Rosin-Rammler 粒度分布式(1)¹⁾

$$R(D_p) = 100 \exp\{-(D_p/D_e)^n\} \quad (1)$$

への最小二乗法による当てはめの結果、得られた粒度特性数 D_e 、均等数 n 及び標準偏差 $S. D.$ を示す。粒度測定はメッシュ 32~500 の7個の標準篩による篩分け法によって行った。入手した穀物粉体は測定期間中の吸湿による含水率の増加を防止するために市販の保蔵瓶（相互理化学硝子製

作所 LABOWARE) に入れ、ぬれ縁にグリースを塗付して気密を図った。これらの穀物粉体の含水率はいずれも含水率約 10%, d. b. (以下特に断わりのない限り乾量基準表示とする) と低く、実際の乾燥処理において必要とされる 15~20% の範囲の乾燥特性を測定することはできないため、加水して含水率を約 50% にまで高めたものを供試材料とし、測定に使用した。含水率をこのように 50% もの高含水率にした理由は TGA の特性上、測定開始と同時に炉内の温度を設定温度まで上昇させることができず、設定温度に到達するまでに時間的なラグを生じ、この間に設定温度にもよるが約 20~30% もの水分が乾燥により消失するためである。

3. 含水率測定法 穀物粒子の含水率の標準的測定法は、代表的な穀物については農業機械学会においてもその測定方法が統一されている。しかし、穀物粉体の含水率測定方法については、小麦粉・ふすまなどを除いていまだに乾燥条件の規格が定まっていなのが現状であるため、今回著者らの行った TGA による穀物粉体の乾燥特性の測定においては次のような方法により含水率を測定した。すなわち、TGA 試料部セル (白金製内直径 ϕ 5.66mm, 高さ 2.4mm) いっぱいに穀物粉体を入れ、室内大気を流入させた状態で 105°C - 5 時間 - $0.0137\text{kg}/\text{kg}'$ 乾燥を行い、絶乾重量とする方法である。この時、乾燥開始と終了時の大気温度・湿度をアスマン乾湿計により測定し、この平均を乾燥中の大気の状態とする。

4. 測定方法 測定に使用した TGA システムの模式図を図 3 に示す。システムは主に (A) の測定部 (島津製作所 TG-30)、(B) の増幅部 (同社 DT

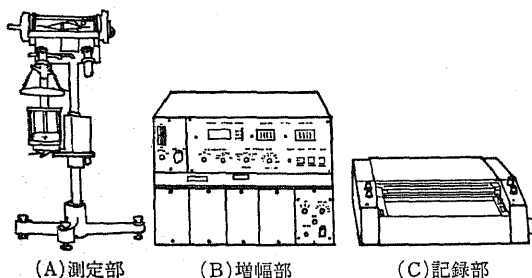


図 3 TGA システムの概略

Fig. 3 Schematic diagram of TGA system used in this study

-30), (C) の記録部 (同社 R-22T) の 3 つの部分より構成されている。測定は 30°C から 70°C まで 10°C ごとに 5 段階の設定温度について室温より昇温速度 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で上昇せしめ、一定温度における乾燥を行った。昇温速度をこのように最小にした理由は、観測すべき物理現象が乾燥であり、昇温速度が高い場合、装置の温度制御特性により、大きなオーバー・シュートが生じ、試料が設定温度よりも高温にさらされ、過乾燥となるのを防ぐためである。試料セルに入れた穀物粉末は、表面状態を一樣にするために数回タッピングを行い、またこの時、測定後の解析が容易なようにその試料重量を感量 0.1mg の精密天秤 (島津製作所 LIBROR L-160DTP) にて量り、各穀物ごとに一定重量となるようすばやく調整した。また通常、重量変化の大きな物質であれば、試料をセルに充填する前に空セルによる零調整を行うが、今回供試した穀物粉末の乾燥による重量の変化は極めて少ないため、この微量の重量変化を捉えられるよう試料充填済みのセル重量とほぼ等しい分銅を用いて零調整を行うことにより、記録上から重量の大部分を見かけ上消去し、秤量のフルスケールを $\pm 5\text{mg}$ まで高めて測定を行い、試料の重量変化が 2 時間で 0.05mg 以内となった時点をもって平衡と見なし終了した。

なお、乾燥気体は大気の代わりに窒素ガス (流量 $50\text{ml}/\text{min}$) を用いた。

III 測定結果及び考察

図 4 は米粉の 50°C における自由含水比の経時変化を示した図である。図のように一定温度で乾燥されてから 10 分程度、含水率にして 20% 前後までは、直線的に減少し、その直線の切片はほぼ 1 となっている。また、その後特性曲線は穀粒の乾燥特性と同じ下向きのなだらかな曲線を描いて減少する傾向を示している。この傾向は今回供試したどの穀物粉体についても同様に見られた。図 5 は米粉の 50°C における乾燥速度曲線であるが、含水率 20% 前後までは直線的に減少し、その後下に凸の曲線を描いて減少している。このことから穀物粉体の乾燥特性が含水率 20% 前後までの減率乾燥第一段とそれ以下の含水率における減率乾燥第二段の二つの特性を持つことが分かる。さらに、図

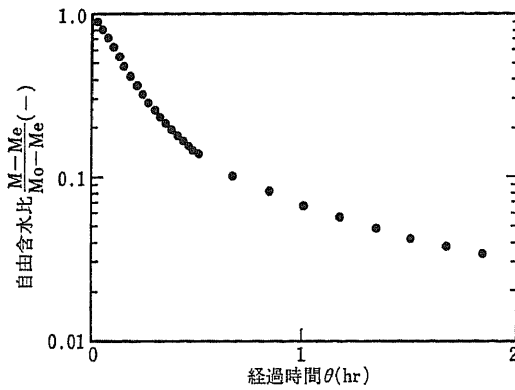


図4 米粉の相対含水率の経時変化
Fig.4 Moisture ratio plotted against times for rice powder

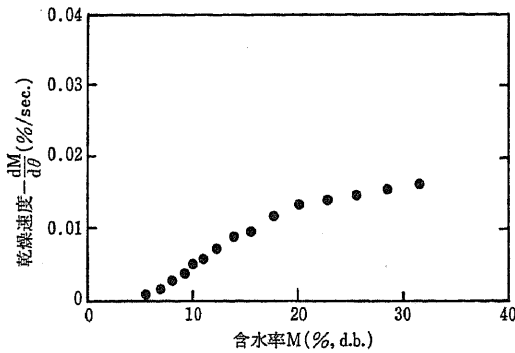


図5 米粉の乾燥速度曲線
Fig.5 Drying rate curves for rice powder

4の含水率20%以下の減率乾燥第二段部分には傾きの異なる二つの直線部が現れており、これはこの部分の乾燥速度が従来の拡散係数を一定と見なした線形の拡散方程式には従わないことを示している。したがって、これら穀物粉体の乾燥特性の解析に当たってはこれを減率乾燥第一段と減率乾燥第二段に分けること及び減率乾燥第二段の乾燥速度式には、非線形の拡散方程式を用いる必要がある。

1. 乾燥速度定数 減率乾燥第一段における乾燥速度定数すなわち乾燥速度曲線上の直線部の傾きは被乾燥物の表面がとところ乾いた状態であるため、一般に流体の状態(風速と物性値)の影響を受ける。しかし、今回行ったTGAによる乾燥特性の測定では、流速は一定(流量50ml/min, 空塔風速 8.70×10^{-3} m/min)なので、その影響は物性値を支配する温度に限られることが考

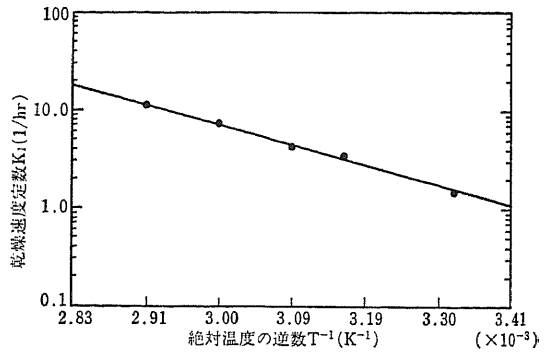


図6 米粉の減率乾燥第一段の乾燥速度定数に関する Arrhenius 型プロット

Fig.5 Arrhenius type plot of drying constant against the reciprocal of temperature in the first-falling rate period for rice powder

えられる。その温度との関数関係については次の Arrhenius 型の式(2)に当てはめを行ってみたいところ、

$$K = d \exp\left(-\frac{f}{T}\right) \quad (2)$$

図6に示すようによく一致した。他の穀物についても適合性の程度は同様であった。減率乾燥第二段における乾燥速度定数 K_2 は主に乾燥温度に依存し、式(2)の Arrhenius 型の関数関係が成り立つことが種々の穀物に対して立証されている²⁾。図7は米粉の減率乾燥第二段の一番目の直線部分の乾燥速度定数 K_{21} に関する Arrhenius 型のプロットであるが、測定値と式(2)で表される最小

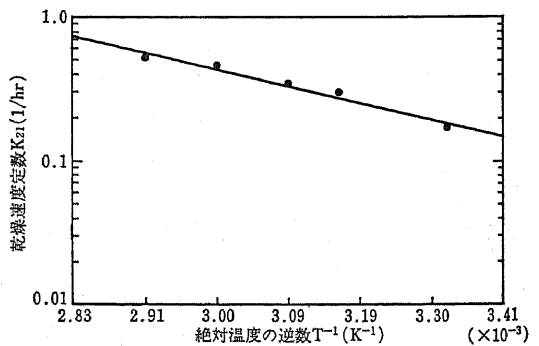


図7 米粉の減率乾燥第二段の乾燥速度定数 K_{21} に関する Arrhenius 型プロット

Fig.7 Arrhenius type plot of drying constant K_{21} against the reciprocal of temperature in the second-falling rate period for rice powder

表2 各穀物粉体の減率乾燥第一段と減率乾燥第二段に対する乾燥速度定数の式(2)のパラメータとその標準偏差

Table 2 Parameters in eq. (2) and its standard deviation evaluated in the first and the second-falling rate period for each powder

	穀物粉体の種類	d (1/hr)	f (K)	S. D. (1/hr)
減率乾燥第一段	米 粉	0.2215×10 ⁸	0.4968×10 ⁴	0.2542
	強 力 粉	0.4560×10 ⁷	0.4460×10 ⁴	0.7902
	薄 力 粉	0.2307×10 ⁶	0.3533×10 ⁴	0.7625
	大 豆 粉	0.1044×10 ⁹	0.5496×10 ⁴	0.7579
	ライ麦粉	0.1426×10 ⁹	0.5605×10 ⁴	0.7579
	じゃがいも澱粉 とうもろこし澱粉	0.2256×10 ⁷ 0.6728×10 ⁸	0.4279×10 ⁴ 0.5336×10 ⁴	0.3509 0.4980
減率乾燥第二段	米 粉	0.2459×10 ⁵	0.2875×10 ⁴	0.2998
	強 力 粉	0.5639×10 ⁶	0.4012×10 ⁴	0.6330
	薄 力 粉	0.1006×10 ⁵	0.2694×10 ⁴	0.2862
	大 豆 粉	0.9936×10 ³	0.1942×10 ⁴	0.1865
	ライ麦粉	0.1264×10 ⁶	0.3434×10 ⁴	0.3248
	じゃがいも澱粉 とうもろこし澱粉	0.1675×10 ⁵ 0.2431×10 ⁶	0.2809×10 ⁴ 0.3652×10 ⁴	0.2305 0.2519

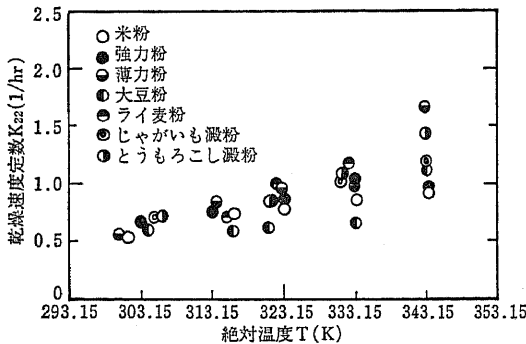


図8 各穀物粉体の減率乾燥第二段の乾燥速度定数 K_{22} と温度との関係
Fig. 8 Relationship between drying constant K_{22} in the second-falling rate period and the temperature for each powder

二乗法による回帰直線は標準偏差で0.2998とよく一致している。式(2)の適合性の良さは他の穀物粉体（小麦を除く）についても同様であった。一方、減率乾燥第二段の第二の直線部の乾燥速度定数 K_{22} については、Arrhenius 型の温度依存関係は見られなかったが、温度の上昇と共に大きくなる傾向が見られた（図8）。表2に各穀物粉体に対する減率乾燥第一段と減率乾燥第二段の式(2)への当てはめの結果得られたパラメータ d, f の値と標準偏差 S. D. を示す。

2. 乾燥特性とシミュレーション

穀物粉体の乾燥特性の解析では、減率乾燥第一段と第二段の二つに分けること及び減率乾燥第二段の乾燥速度式に非線形の拡散方程式を用いることの必要性については前述したが、減率乾燥第一段では、乾燥速度と含水率との間には、一般に次の直線関係が成り立つことが知られている。

$$-\frac{dM}{d\theta} = K_1(M - M_e) \quad (3)$$

したがって、初期含水率を M_0 とすれば、

$$\frac{M - M_e}{M_0 - M_e} = \exp(-K_1\theta) \quad (4)$$

となり、自由含水比を片対数軸上にとればその経時変化は直線となる。また、減率乾燥第二段では、乾燥速度は拡散方程式にしたがうことが、穀物粒子の乾燥に

おいて確認されている²⁾が、今回の穀物粉体の乾燥特性の解析には、その減率乾燥第二段における特性曲線の非線形性を考慮し、階段関数となった拡散係数による非線形拡散方程式(5)を採用した。

(材料形状は平板モデルを仮定)

$$\frac{\partial m}{\partial \theta'} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D(m) \frac{\partial m}{\partial x} \right) \quad (5)$$

$$\text{初期条件 } \theta' = 0, m = M_0', 0 \leq x \leq 1 \quad (6)$$

$$\text{境界条件 } \theta' > 0, m = M_e, x = 1 \quad (7)$$

$$\frac{\partial M}{\partial X} = 0, x = 0 \quad (8)$$

$$D(m) = 4K_{21}/\pi^2 (m \geq m_b)$$

$$4K_{22}/\pi^2 (m < m_b) \quad (9)$$

ただし、 θ' は減率乾燥第一段終了時を起点とした時刻であり、 M_0' はその時の含水率を表し、拡散係数の関数中の2番目のサフィックス1, 2はそれぞれ減率乾燥第二段直線部の1番目と2番目の傾きである。また、ここで言う含水率 M は粒子全体の平均含水率である。

なお、式(6)は減率乾燥第二段の開始時含水率が第一段終了時点の含水率 M_0' で、粒子内全体について均一であるという仮定で行っていることを示す。著者らは先にソバの乾燥特性の解析に、この非線形拡散方程式を用いた結果を示した³⁾が、今回は減率乾燥第一段の解と、ソバと同様、非線

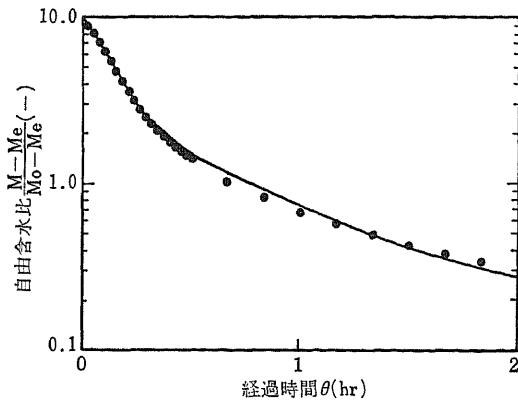


図9 米粉の乾燥シミュレーション(50°C)
Fig. 9 Drying simulation for rice powder
(50°C)

形拡散方程式(5)を6分割モデルによってCRANK-NICOLSON法により差分近似した式とを組み合わせ、乾燥シミュレーションを行ってみた。図9は、米粉の50°Cにおける乾燥シミュレーション結果である。測定値と計算値は高含水率から低含水率までの広い範囲に亘ってきわめてよく一致し、著者らの穀物粉体の乾燥に対する理論づけが適当であったことが立証されると同時に、実際の乾燥施設設計に耐え得る精度を確保できたことが分かる。

IV 摘 要

これまで研究の行われていなかった穀物粉体の乾燥特性を熱重量分析装置TGAを利用して測定、解析した結果、以下のことが明きらかとなった。

(1) 穀物粉体は、含水率20%前後を境に減率乾燥第一段と減率乾燥第二段の二つの乾燥特性を持ち、かつ、減率乾燥第二段の乾燥速度は従来の拡散係数を一定と見なした線形の拡散方程式には従わない。

(2) 減率乾燥第一段、減率乾燥第二段各々の乾燥速度定数が求められた。その結果、乾燥速度定数はいずれも穀物粒子同様にArrhenius型の温度依存関係があることが確認された。

(3) 減率乾燥第一段と減率乾燥第二段を組合せ、減率乾燥第二段部分の乾燥速度支配方程式に非線形の拡散方程式を用い、CRANK-NICOLSON法による差分近似により乾燥シミュレーション

を試みた結果、測定値と計算値はきわめてよく一致し、穀物粉体に対する乾燥理論が確立されると同時に、コンピュータによる乾燥施設設計に耐えうる精度を確保することが可能となった。

なお、各種の穀物粉体を提供して頂いた日清製粉株式会社に感謝の意を表する。

V 記号 (Nomenclature)

- D_e : 粒度特性数 (Absolute size constant, μm)
- $D(m)$: 拡散係数 (Diffusivity, m^2/hr)
- D_p : 粒子径 (Size of particles, μm)
- d : 式(2)中のパラメータ (Parameter in eq. (2), 1/hr)
- f : 式(2)中のパラメータ (Parameter in eq. (2), K)
- K : 乾燥速度定数 (Drying constant, 1/hr)
- K_1 : 減率乾燥第一段の乾燥速度定数 (Drying constant of the first falling-rate period, 1/hr)
- K_{21}, K_{22} : 減率乾燥第二段の乾燥速度定数 (Drying constant in the second falling-rate period, 1/hr)
- M : 含水率 (Moisture content, %, d. b.)
- M_e : 平衡含水率 (Equilibrium moisture content, %, d. b.)
- M_0, M_0' : 初期含水率 (Initial moisture content, %, d. b.)
- m : 局所含水率 (Local moisture content of the particle, %, d. b.)
- m_b : 拡散係数変動境界含水率 (Boundary moisture content of diffusivity change, %, d. b.)
- n : 均等数 (Distribution constant, -)
- $R(D_p)$: 積算篩上重量% (Percent of weight of cumulative residue, %)
- T : 絶対温度 (Absolute temperature, K)
- x : 長さ (Length, m)
- θ, θ' : 経過時間 (Time, hr)

参 考 文 献

- 1) 三輪茂雄: 粉粒体工学, 朝倉書店, 98-99, 1972.

2) 村田敏：穀物の特性と乾燥速度の予測，農機誌，44 (3)，517—523，1982.

性の測定，農機誌，52 (3)，61—67，1990.

3) 村田敏，河野俊夫，小出章二，田川彰男：ソバの乾燥特

(原稿受理平成2年1月9日・質問期限平成3年5月31日)

コメント

〔読者のコメント〕

穀物粉体の乾燥特性に関して測定と解析方法の工夫により，貴重な資料を得た点を評価します。

食品工業における穀物粉体の調理加工では， α 化した穀物澱粉の水分移動特性に装置設計上の関心がありますが，これに対して基本的に本研究成果の利用は可能ですか。

〔コメントに対する著者の見解〕

著者らが既に本誌において報告したDTAによる穀物澱粉の α 化温度の測定結果によれば， α 化は50～55°Cで起こることがわかっています。DTAの測定の場合には， α 化に十分な水が与えられていましたが，今回のTGAの場合は乾燥特性の

測定であったために，60°C以上の高温でも水分の蒸散が早く， α 化した穀物粉体と，していないものが混在した状態で乾燥していると考えられます。したがって，完全に含有澱粉が α 化した穀物粉体の水分移動特性に対して，本研究の結果を適用できるとは言えません。しかし，60°C以上における拡散係数が，それ以下の温度で α 化していない状態における拡散係数と同じアレニウス式に重なっているもので，完全に α 化したものも，近い乾燥特性を持つことが想像出来ます。なお，完全に α 化した穀物粉体の水分移動特性についても研究を進めたいと考えています。

コメント

〔読者のコメント〕

TGAのうちの重量測定と温度制御の機能を使用して乾燥特性を調べていますが，恒温状態で精密天秤で測定する方法と比べての優位な点は何ですか。この方法では，昇温のために，計算上の初期含水率よりもはるかに高い50%の含水率から始めなくてはならないようですが，計算上の初期含水率から恒温で乾燥を始めた時の乾燥速度曲線と，全く同じ乾燥速度曲線となる保証がありますか。

〔コメントに対する著者の見解〕

(1) 粉体の基礎乾燥特性を測定するためには，その測定量は微量でなくてはならぬし，又連続測

定が必要です。その点TGAは精密天秤（感度0.1mg）に対して，2桁大きい感度（0.001mg）を有し，また連続測定が可能です。精密天秤では，今回行ったような微量の連続測定は無理と思います。

(2) 結局，計算上の初期含水率で乾燥を始めるときは，含水率分布が一様であると考えられますので，この測定における計算上の初期含水率において，含水率分布が一様かどうかの問題となります。しかし，減率第一段に達する前の恒率乾燥では，含水率分布は一様です（亀井，1937）から，理論的には，同じ乾燥速度曲線が得られるはずで