

食品凍結乾燥における製品形状が乾燥挙動に及ぼす影響

渡辺 史¹, 戸張 雄太², 河野 晋治¹

1. 株式会社前川製作所, システムイノベーションセンター 凍結技術グループ, 〒302-0118 茨城県守谷市.
2. 株式会社前川製作所, ロボティクス開発センター 先端技術グループ, 〒302-0118 茨城県守谷市.

概要

フリーズドライ食品の品質向上には乾燥挙動の理解が重要である.本研究ではみそ汁の凍結乾燥を対象とした数値解析を行い,製品形状が乾燥挙動に及ぼす影響を検討した.比表面積および厚さを一定とした円形,六角形,四角形,三角形を比較した結果,製品形状が水分除去速度に及ぼす影響は小さかった.一方,角部を有する形状では,角部近傍で昇華界面の局所的な進行と温度上昇が生じ,品質低下につながる可能性が示唆された.特に鋭角を有する三角形では,角部における熱流束の局所集中により,凍結層端部の温度が円形比で約 1.8℃上昇し,昇華界面の歪みが約 9 mm に達した.これらの知見は,FD 食品の形状設計および乾燥条件設定の合理化に有用である.

キーワード: フリーズドライ,食品乾燥,製品形状,昇華界面,熱,物質移動.

はじめに

フリーズドライ (Freeze Drying: FD) は,凍結した製品中の氷を低温・真空中で昇華させる乾燥技術である.熱風乾燥などの加熱乾燥と比較して,乾燥中の品質劣化を抑制できるため,高品質な乾燥食品の製造に適した手法である[1].一方で,FD は乾燥時間が長くエネルギー消費が大きいことから,生産性向上および運転条件の最適化が重要な課題となっている[1].乾燥時間の短縮には加熱により製品温度を高く維持することが有効である.しかし,製品温度がガラス転移温度を超えると,乾燥層の崩壊(コラプス)が発生する可能性がある[2].コラプスは製品の収縮や構造変化を引き起こし,製品品質に影響を及ぼすことが報告されている[3].また,乾燥中には製品内部の温度分布や乾燥速度が不均一となる場合があり[1],局所的な温度上昇によってコラプス発生の危険性が高まる.そのため,製品品質を維持しながら乾燥時間を短縮するためには,製品の乾燥状態の把握が重要である.しかし,乾燥中の複雑な内部状態を実験のみで詳細にとらえることには限界がある.近年では,凍結乾燥における伝熱,物質移動および昇華界面の移動を再現可能な数値モデルが提案されており,数値解析ソフトウェアを用いた乾燥挙動の予

測が行われている[2,4-6].これらのモデルは,乾燥時間や製品温度の予測,装置設計および運転条件の最適化に有効である.

しかしながら,多くの先行研究は医薬品分野を対象としており,食品のように多様な製品形状が乾燥挙動に及ぼす影響については十分に検討されていない.実際の食品製造では,三角形,四角形,円形など様々な形状の製品が生産されている.これらの製品では,角部における熱流束の局所的な変化が,昇華界面の進行の均一性および内部温度分布に影響を及ぼす可能性がある.製品形状が凍結乾燥挙動に及ぼす影響を明らかにすることは,品質管理およびプロセス設計の観点から重要である.

そこで本研究では,数値シミュレーションを用いて,製品形状の違いが,水分除去速度,昇華界面の進行の均一性,内部温度分布に及ぼす影響をそれぞれ定量的に評価することを目的とした.

支配方程式

理論

本モデルでは,凍結乾燥中の食品は凍結層および乾燥層から構成される二層構造としてモデル化した.凍結層は固形分と氷で構成され,乾燥層は氷の部分が空隙となる.乾燥の進行に伴い,凍結層と乾燥層の境界である昇華界面が移動

する。また、昇華界面で生成した水蒸気は乾燥層内を移動し、外部へ排出される。そのため、凍結乾燥過程を解析するためには、熱移動、物質移動および昇華界面移動を連成して取り扱う必要がある。本モデルでは、これら 3 つの物理現象を考慮して乾燥挙動を表現した。

熱移動

凍結層および乾燥層における熱移動は熱伝導方程式によって表現した。

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k \nabla T)$$

ここで、 T は温度[K]、 ρ は密度[kg/m³]、 C_p は比熱[J/(kg·K)]、 k は熱伝導率[W/(m·K)]、 t は時間[s]である。外部から供給された熱は製品内部へ伝導し、昇華界面での氷の昇華に必要な潜熱として消費される。

水蒸気輸送

乾燥層内で発生した水蒸気の輸送はダルシー則により表現した。

$$\mathbf{u} = -\frac{\kappa}{\mu} \nabla p$$

ここで、 $\mathbf{u}$ は水蒸気速度ベクトル[m/s]、 κ は乾燥層の透過率[m²]、 μ は水蒸気粘度[Pa·s]、 p は水蒸気圧力[Pa]である。昇華によって生成した水蒸気は乾燥層内の多孔質構造を通過して外部へ排出される。

昇華界面移動

凍結層と乾燥層の境界である昇華界面では、熱力学的平衡を仮定し、水蒸気圧から昇華界面温度を算出した。また、昇華界面における熱収支および物質収支を満たすため、ステファン条件を用いて昇華界面移動速度を計算した。

$$V_s = \frac{Q_s}{\rho_{ice} L_s}$$

ここで、 V_s は昇華界面移動速度[m/s]、 Q_s は昇華界面に供給される熱流束[W/m²]、 ρ_{ice} は氷の密度[kg/m³]、 L_s は昇華潜熱[J/kg]である。昇華界面へ供給される熱量から昇華速度を求めることで、乾燥の進行を表現した。

手法

数値解析の基本設定

本研究では、COMSOL Multiphysics® Ver.6.4を用いて食品の凍結乾燥過程の数値解析を実施した。解析には Application Library に収録されている freeze_drying モデルを基礎として用いた。本モデルは伝熱モジュールと多孔質媒体流れモジュールを使用している。伝熱(多孔質媒体)、ダルシー則および変形ジオメトリ (ALE) を連成し、多孔質媒体内の熱移動、水蒸気輸送および昇華界面移動を同時に計算する。昇華界面にはステファン条件を適用した。

昇華界面の移動の追跡

計算開始時には製品上層を乾燥層、下層を凍結層の 2 領域に分割し、その境界を昇華界面として設定した。ステファン条件により算出された昇華界面移動速度を ALE 法に与え、メッシュを変形させながら非定常解析を実施した。これにより、乾燥の進行に伴う昇華界面の内部移動を追跡した。解析の進行に伴うメッシュ変形により要素品質が低下するため、要素品質が 0.01 以下となった場合には再メッシュを実施し、計算精度および収束性を維持した。

実験との検証

実験条件

本研究では、フリーズドライみそ汁を対象として凍結乾燥過程の数値解析を行った。構築したモデルの境界条件を設定するため、四角形試料を用いた凍結乾燥実験を実施した。上面からヒーターによる輻射加熱を与え、底面は断熱条件とした。試料寸法は(64 mm × 64 mm × 20 mm)であった。試料の重量変化を把握するため、電子天秤上に試料を設置し、乾燥過程における重量を計測した。また、庫内圧力および棚温度や空間温度を記録し、数値解析における境界条件として用いた。

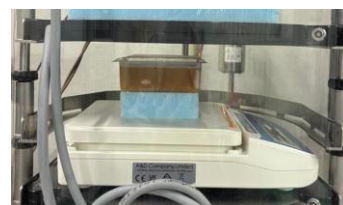


図 1. 四角形試料における実験重量測定

熱伝達率の決定

未知パラメータである側面の実効熱伝達率 h を変数として解析を実施し、実験挙動と比較した。図 2 に示すように、乾燥に伴う重量減少カーブは熱伝達率に強く依存し、 $h = 10 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ とした計算値が実験挙動と極めて良好に一致した。以降の各種形状の比較解析では、この h を基準条件として適用した。

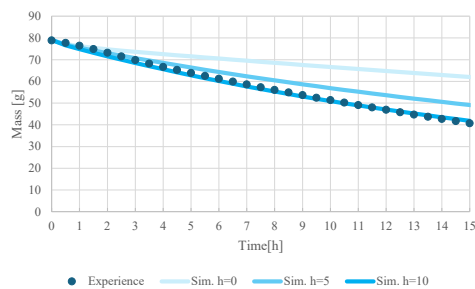


図 2. 四角形試料における実験値と計算値の重量比較

形状の選択

前提条件の検証

形状が乾燥挙動に及ぼす影響を純粋に比較するための前提条件を検討した。四角形製品を対象に厚さや幅を変化させた乾燥 10 h の事前解析を行った結果、体積や表面積単独では含水率との線形相関が見られなかった。一方、図 3 に示すように、比表面積（表面積／体積）は含水率との間に極めて強い相関が確認された。同一の比表面積においても含水率に差が認められたが、これは製品厚さの違いに起因するものと考えられる。比表面積および厚さが異なると乾燥速度そのものが大きく変化するため、形状の影響を適切に比較することが困難となる。そこで本研究では、形状の幾何学的特性のみが乾燥挙動に及ぼす影響を評価するため、すべての製品で比表面積および厚さを統一した。

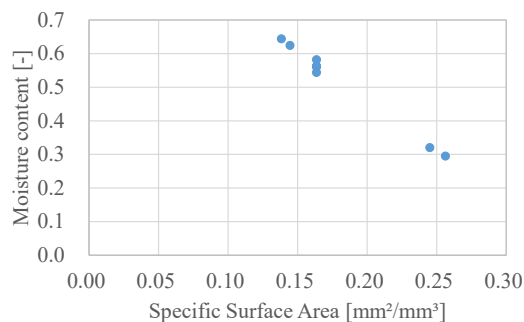


図 3. 比表面積と含水率の解析 (乾燥時間=10h)

解析対象

比表面積 $0.162 \text{ mm}^2/\text{mm}^3$ および厚さ 20 mm を一定に保ったまま、円形・六角形・正方形・三角形の 4 つのモデルを表 1 に示すように作成した。解析に用いた物性値は表 2 に、計算条件は表 3 に示した値を用いている。これにより、角を持たない円形から、徐々にエッジが鋭くなる三角形まで、幾何学的な角部の存在が乾燥挙動にどう影響するかを比較解析した。

表 1：解析対象形状と幾何学的パラメータ

Shape	Circle	Hexagon	Square	Triangle
Geometry				
Volume [mm³]	64721	71365	79225	103460
Surface area [mm²]	10505	11584	12860	16904
Specific surface area [mm²/mm³]	0.162	0.162	0.162	0.162
Thickness [mm]	20	20	20	20

表 2：解析に用いた物性値

Property	Water vapor	Ice	Solid matrix
Viscosity [Pa·s]	9.6×10^{-6}	—	—
Density [kg/m³]	—	920	1544
Thermal conductivity [W/(m·K)]	0.0181	2.385	0.16
Specific heat capacity [J/(kg·K)]	1863	1941	1520
Porosity [-]	—	—	0.85
Permeability [m²]	—	—	2.0×10^{-10}
Heat of Sublimation [J/kg]	—	2838700	—

表 3：計算条件

Parameter	Value
Initial temperature [°C]	-20
Heater temperature [°C]	40
Chamber pressure [Pa]	5
Heat transfer coefficient [W/(m²·K)]	40
Total simulation time [h]	15

シミュレーション結果および考察

製品形状ごとの水分除去速度のグラフを図4に示す。いずれの形状においても水分除去速度に大きな差は見られず、含水率0.5の到達時間は10-11hであり、形状間で顕著な差は認められなかった。本研究では形状比較を行うにあたり比表面積および厚さを同一条件とした。そのため、外部から供給される体積あたりの熱量がほぼ同程度となり、全体の水分除去速度に大きな差が生じなかったものと考えられる。

一方で、昇華界面の進行および製品温度分布については形状差が確認された。乾燥15hの円形と三角形の熱流束分布を図5に示す。この図は製品を上面からみた昇華界面のコンター図である。円形および三角形の昇華界面全体における平均熱流束は、ともに33 W/m²と同等であった。しかし、熱流束コンター図が示すように、円形では比較的均一に熱が分布しているのに対して、三角形では3つの角部に熱流束が顕著に集中していた。具体的には、最大熱流束は円形の162 W/m²に対し、三角形では236 W/m² (1.46倍)に達した。この角部への熱集中が、次に示す昇華界面進行の歪みを引き起こす原因となる。

乾燥に伴う昇華界面の移動を解析した結果を図6に示す。円形では昇華界面全体がほぼ水平を保ったまま均一に下降するのに対し、三角形では角部近傍において昇華界面が先行して移動する傾向が明確に観察された。昇華界面高低差（製品内における昇華界面の最高位と最低位の差）の経時変化を図7に示す。角を有さない円形と比較して、三角形では乾燥の進行とともに昇華界面高低差が急激に増加し、乾燥15hには約9mmの不均一性が生じた。一方、円形では三角形よりも小さい約4mmの高低差にとどまった。これは熱流束の不均一分布と直結している。熱流束分析から、三角形角部における熱流束集中により、その直下の昇華界面が優先的に進行することが明らかとなった。昇華界面における局所的な受熱は、昇華の進行を促進する。その結果、昇華界面の高低差が増加し、さらに凍結

部では局所的な温度上昇が生じると考えられる。

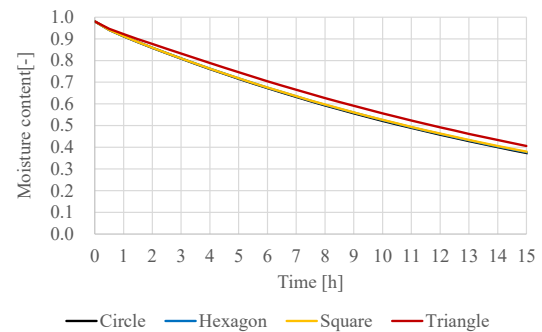


図4. 製品形状ごとの含水率の経時変化

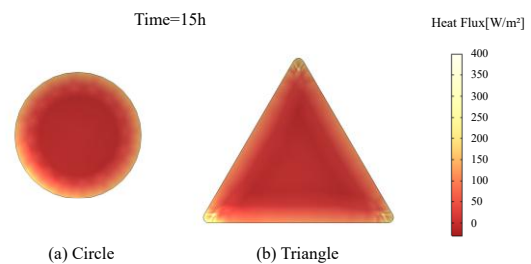


図5. 昇華界面の熱流束分布の比較(上面図)

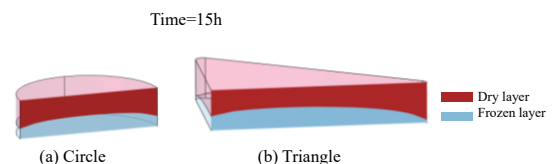


図6. 昇華界面状態の比較(断面図)

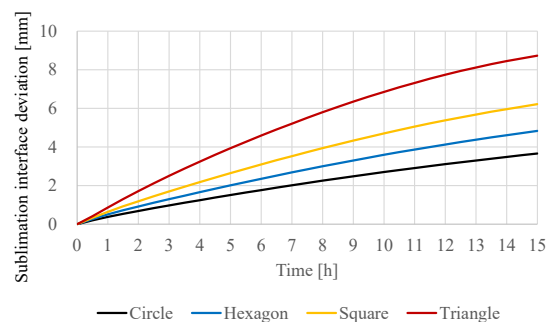


図7. 昇華界面の最大-最小高低差の推移

乾燥 15 h の内部温度分布を図 8 に示す。昇華界面進行状態と同様に、温度分布の均一性には形状による明らかな差異が認められた。特に三角形では角部近傍において顕著な温度上昇が観察された。凍結乾燥プロセスにおいて、昇華させるために加熱が必要となるが、過度の加熱は、コラプスを誘発し、製品品質の劣化を引き起こす。そのため、角部における局所的な温度上昇は品質低下の要因となる可能性があり、製品形状が品質の均一性に影響を及ぼすことが示唆された。

結論

本研究では、数値シミュレーションを用いて凍結乾燥プロセスにおける製品形状の影響を定量的に評価した。主な結果を以下に示す。全体の水分除去速度は形状間で大きな差を示さなかった。一方、製品内部の温度分布および昇華界面の進行には顕著な形状依存性が認められた。特に、三角形のような鋭角を有する形状では、角部への熱流束の集中により、凍結層端部の温度が円形と比較して最大約 1.8 °C 上昇した。一方、円形では熱流束、温度分布および昇華界面進行が比較的均一に維持された。以上より、製品形状は乾燥速度そのものよりも、内部温度分布および昇華界面の局所進行や品質低下に関与する可能性が示された。これらの知見は、FD 食品の形状設計および乾燥条件設定の合理化に有用である。

参考文献

- [1] C. Ratti, Hot Air and Freeze-Drying of High-Value Foods A Review, *Journal of Food Engineering*, Vol. 49, No. 4, pp. 311-319, 2001
- [2] E. Lopez-Quiroga et al., “Time-scale modeling and optimal control of freeze-drying,” *Journal of Food Engineering*, vol. 111, pp. 655–666, 2012.
- [3] M. K. Krokida et al., “Effect of Freeze-Drying Conditions on Shrinkage and Porosity of Dehydrated Agricultural Products,” *J. Food Eng.*, vol. 35, no. 4, pp. 369–380, 1998.
- [4] J. Ravnik et al., “Lyophilization model of mannitol water solution in a laboratory scale lyophilizer,” *J. Drug Deliv. Sci. and Tech.*, vol. 45, pp. 28–38, 2018.
- [5] 戸張雄太 et al., “食品フリーズドライの乾燥過程に関する実験と数値モデルの構築”, 化学工学会第 91 年会 (京都)
- [6] W.J. Mascarenhas et al., “A computational model for finite element analysis of the freeze-drying process,” *Computer Methods on Appl. Mech. And Eng.*, vol. 148, pp. 105–124, 1997.

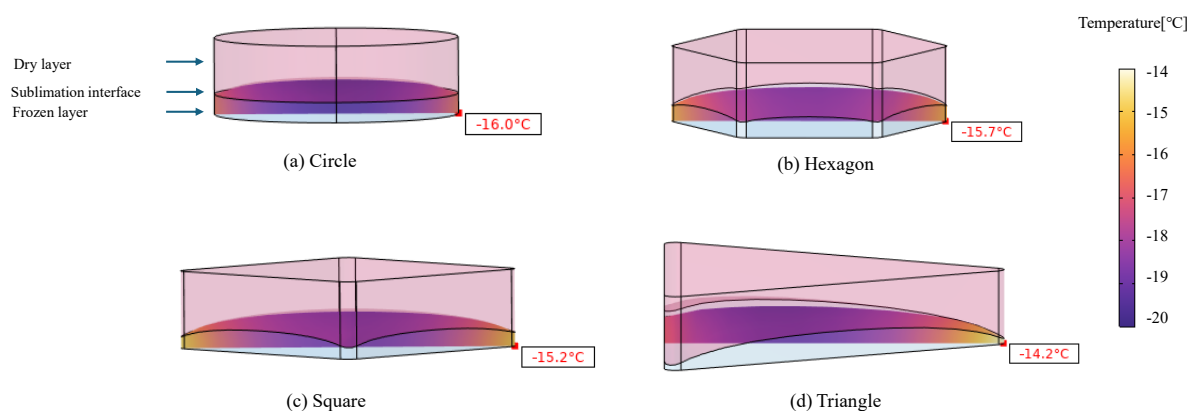


図 8. 乾燥 15 h における内部温度分布