

## 誘電特性を利用した食品加工プロセスの非破壊・連続測定 (平成15年度日本食品科学工学会奨励賞)

羽 倉 義 雄<sup>§</sup>

広島大学大学院生物圏科学研究科

### Non-destructive and Continuous Measurement of Food Process Using Dielectric Properties

Yoshio Hagura<sup>§</sup>

Graduate School of Biosphere Sciences, Hiroshima University, 1-4-4  
Kagamiyama, Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-8528

#### 1. はじめに

誘電特性の測定には、食品内部の物理的变化を直接観測できる利点がある。また、この測定方法では、非破壊、非接触、連続測定が可能である。従って、製造工程中の食品の誘電特性の変化を測定することができれば、加工中の食品の状態変化をリアルタイムでモニターすることも可能となり、食品の品質管理や製造ラインの工程管理に有効な計測手法になる。また、HACCP等に対応した食品製造工程の定量的な加工履歴のモニタリングも可能になる。

一般に、食品の誘電特性はマイクロ波領域(GHz帯域)で測定されることが多い。これは、食品のマイクロ波加熱特性を明らかにすることを主な目的としているからである。本稿では、低周波数領域(Hz~MHz)における食品の誘電特性に注目し、この誘電特性を利用した食品加工プロセスの非破壊・連続計測の事例を紹介する。

#### 2. 誘電特性を食品の計測に利用する利点

誘電特性とは、電場内において誘電体試料(例えば、食品)が示す性質であり、電気容量、誘電率、誘電損失、誘電分極、誘電緩和などがある。これらの誘電特性は、測定試料中の特定の原子団や分子の運動状態を直接反映している。従って、誘電特性の測定は、測定試料内の構成成分の分子状態やその変化を検出する有効な手段となる。さらに、測定周波数を変化させることにより、原子、分子から巨視的概念の相が集合した不均一集合体までの広いサイズレベルにおいて、構造、運動状態、およびその変化を捉え

ることができる。

相変化や熱変性などに伴う食品の誘電特性の変化を測定する場合、平行平板電極内でその食品の電気容量(キャパシタンス)を測定する方法が適している。電極板面積(S)と電極板間距離(d)が一定である平行平板電極内に食品が挟まっている場合、誘電率( $\epsilon$ )と電気容量(C)との関係は $C=\epsilon(S/d)$ で表される<sup>1)</sup>。従って、平行平板電極の面積と電極板間距離を固定することにより、食品の誘電率の変化を電気容量の変化として測定できる。電気容量の測定は、比較的安価なLCRメータにより簡単に計測できるため、食品産業における計測手段としても有効である。さらに、低周波数領域で誘電特性を測定する場合には、(1)低周波数領域での誘電特性の測定が高周波数領域の測定と比較して技術的に簡単である、(2)測定装置が安価である、(3)電極板の形状に自由度があり、食品の加工形態・加工装置の状況に応じた変更が容易である、などの利点がある。これらの利点を積極的に活用することにより、食品加工プロセスの非破壊・連続計測への適用範囲がより拡がると考えられる。

#### 3. 食用油脂の融点測定<sup>2)</sup>

##### 3-1 食用油脂の融点測定の方法

油脂の融解現象を定量的に測定する方法として、示差走査熱量計(DSC)を使用した熱分析法がある。DSCによる油脂の融解熱量測定では、DSC曲線とその基線で囲まれる部分の面積(吸熱ピーク面積)が油脂の融解熱量に相当する。従ってDSC曲線に現れる吸熱ピークから融解熱量や融点などの情報が得られる。ところで、DSC測定では微量(数mg程度)の試料を試料容器(サンプルパン)に封

〒739-8528 広島県東広島市鏡山1-4-4

<sup>§</sup> 連絡先 (Corresponding author), hagura@hiroshima-u.ac.jp

入し、測定を行う。このため、比較的大型の試料を用いる場合、試料の一部を切り取る必要がある。また、装置が大きく、比較的高価であることから、食品の生産ライン上での利用は困難である。そこで筆者らは、DSC を使用せずに油脂の融点を測定する方法として誘電特性の利用を検討した。

### 3-2 実験試料

油脂試料として、6 種類の食用油脂（オリーブ油、ダイズ油、ナタネ油、ピーナツ油、トウモロコシ油、ゴマ油）とトリオレインを使用した。油脂試料を薄膜状に保持する目的で、濾紙に油脂試料を含浸させた（以後、油脂含浸濾紙という）。この油脂含浸濾紙を  $-160^{\circ}\text{C}$  まで冷却し、約 30 分間  $-160^{\circ}\text{C}$  に保持した。冷却操作終了後、約  $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$  の昇温速度で試料を昇温させながら、 $1^{\circ}\text{C}$  ごとに油脂含浸濾紙の電気容量測定および DSC 測定を行った。

### 3-3 電気容量の温度依存性曲線と DSC 曲線との関係

食用油脂の電気容量の温度依存性曲線と DSC 曲線を比較したところ、融解温度付近で電気容量の温度依存性曲線が大きく変化していた。そこで、電気容量の温度依存性曲線の変曲点を明確にする目的で、温度変化に対する電気容量の変化を温度の増分で微分し、電気容量の一次微分曲線を作成した。電気容量の一次微分曲線と DSC 曲線を比較すると、両者の間に高い類似性が認められた。特に、融点付近の食用油脂結晶の融解変化に注目すると、メインピークの前後に現れている複数の微小なピークに対応した変化が電気容量の一次微分曲線上にも現れていた。そこで、電気容量の一次微分曲線および DSC 測定から、融解開始温度 ( $T_i$ )、融解ピーク温度 ( $T_p$ )、融解終了温度 ( $T_e$ ) を読み取った。電気容量測定により得られた融解温度は DSC 測定により得られた融解温度と良好に一致していた (図 1)。以上の結果より、電気容量の測定が食用油脂の融点測

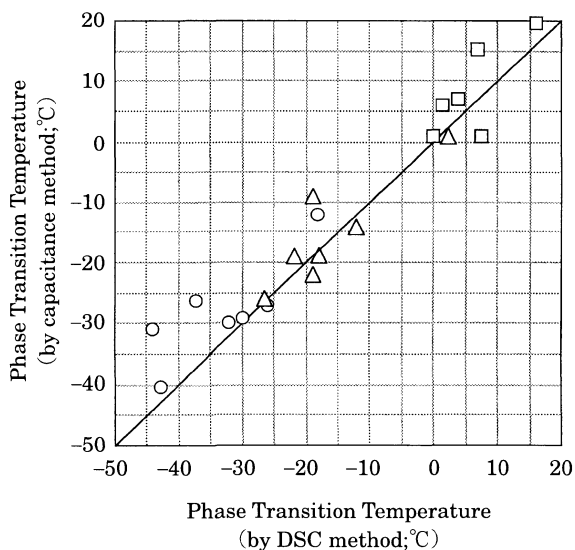


図 1 電気容量測定により得られた融解温度と DSC 測定により得られた融解温度の比較

定に有効であることが明らかとなった。

## 4. 炊飯過程における米の糊化変化の非破壊・連続計測<sup>3)</sup>

### 4-1 炊飯過程の非破壊・連続計測の目的

炊飯とは、乾物である米に適量の水を加えて加熱し、主成分のデンプンを糊化させ、約 65% の水分を含む飯とすることである<sup>4)</sup>。炊飯過程における米の状態変化を捕捉する方法としては、米粒内にあるデンプンの糊化を測定する方法が一般的である。炊飯過程における米の糊化度を測定する場合、一定時間毎に炊飯釜から米を数粒取り出し糊化度を測定する回分測定法か、数粒の米に水を加えてサンプル容器内で糊化度を測定する連続測定法のどちらかの方法を採用することになる。回分測定法では、糊化度の測定中に炊飯が進行してしまうため、測定結果をもとに操作条件（火加減、炊飯時間）を制御することは困難である。一方、連続測定では、サンプル容器内で起こる擬似的な炊飯過程における糊化度の連続的な測定は可能であるが、現実の炊飯釜内で起こる変化を捕捉することはできない。

本研究では、炊飯釜を構成するアルミニウム製の鍋と蓋に 2 枚の電極板としての機能を持たせることにより、炊飯過程における米の誘電特性の変化を非破壊・連続的に測定できると考えた。そこで、低周波数領域での米-水系試料の誘電特性の変化と糊化度との関係を明らかにし、誘電特性を利用した炊飯過程における米の糊化度の非破壊・連続測定の可能性を検討した。

### 4-2 誘電特性測定装置

炊飯過程における試料（米および水）の誘電特性の変化を連続的に測定するために、市販の鍋と蓋を電極板兼炊飯釜とした (図 2)。鍋と蓋の金属部分を LCR メータと接続し、誘電特性の測定を行った。測定周波数は、500 Hz, 1 kHz, 5 kHz, 10 kHz, 50 kHz, 100 kHz とした。鍋内の試料温度の測定には、熱電対温度計 (T タイプ) を使用した。

### 4-3 炊飯操作および糊化エンタルピーの測定

広島県産コシヒカリを使用した。炊飯操作では、既報の炊飯要領<sup>5)</sup>に準拠した。水浸漬の時間は 30 分間とした。加熱には、ガスコンロを使用し、常に一定の火力（中火）で加熱を行い、加熱開始後 16 分で消火し、その後 30 分まで (14 分間) 蒸らしを行った。

加熱開始から蒸らし終了までの炊飯過程における米の糊化の程度を把握するために、示差走査熱量計 (DSC) を使用し米の糊化エンタルピーを測定した。

### 4-4 炊飯過程における電気容量変化および糊化度変化

炊飯過程における電気容量は 5 分後から急激に増加し、沸騰が始まる 7 分付近でピークを示し、11 分以降は加熱前の水準に戻った。一方、水のみを加熱した場合には、電気容量に大きな変化は現れなかった。

炊飯過程における米の糊化エンタルピーを測定した。加熱開始 0 分の状態を糊化度 0% (未炊飯の状態) とし、30

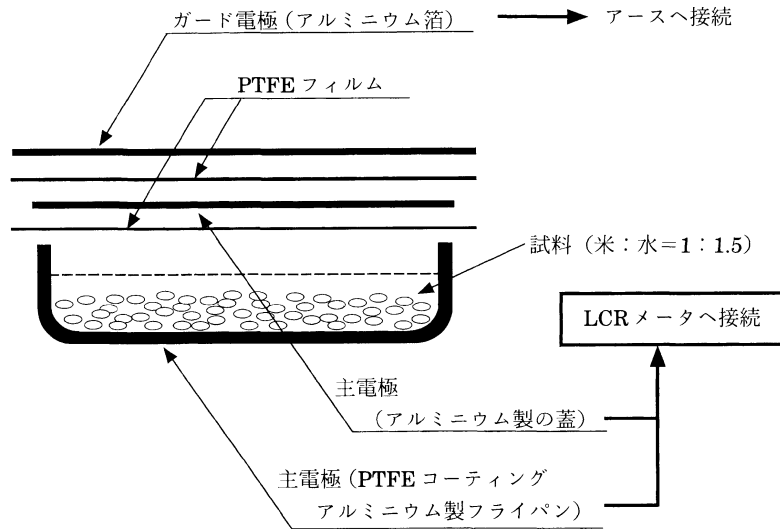


図 2 鍋と蓋を利用した炊飯過程測定装置 (電極部分)

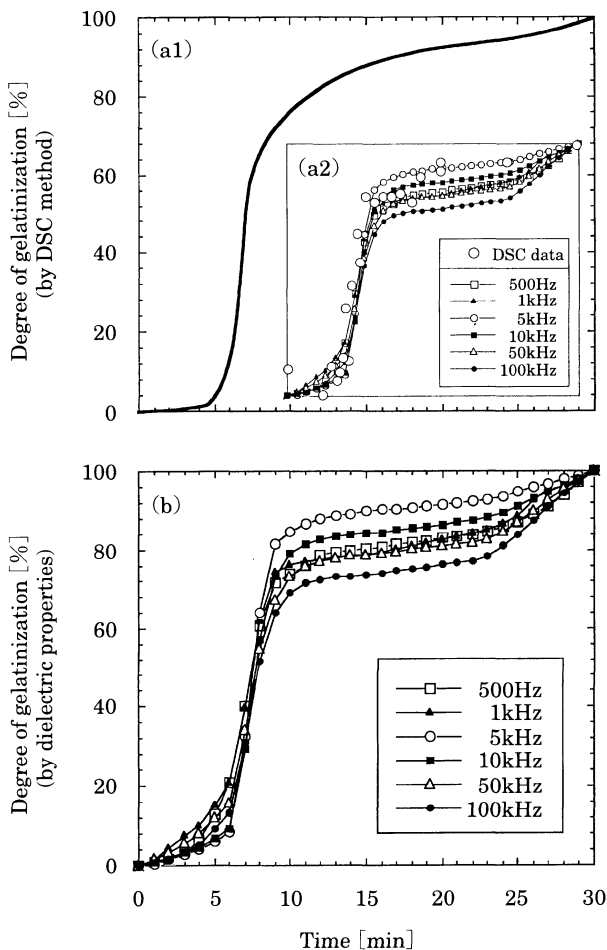


図 3 DSC 測定および誘電特性測定により求めた炊飯過程における糊化度の変化

分後の状態 (糊化エンタルピー : 0 kJ/kg) を糊化度 100% (炊飯終了の状態) と定義し<sup>5)</sup>, 糊化度で炊飯過程を表した結果を図3-a1 に示した. 糊化エンタルピーで定義した米の糊化度の変化は, 沸騰直前から急激に糊化が始まり, 7 分後に 50% のデンプンが糊化し, その後糊化速度が緩やかに減少する傾向を示した.

#### 4-5 炊飯過程における誘電体損と糊化度との関係

米の糊化温度付近で, 電気容量が大きく変化することから, 炊飯過程における糊化度の変化を誘電特性, 特に, 誘電体損を用いて表す方法を検討した. 誘電体損<sup>6)</sup>とは, 誘電体の単位体積・単位時間当たりの熱として奪われるエネルギー損失を表す指標である.

本研究では, 炊飯過程のある時刻における誘電体損が米の糊化速度を表し, 誘電体損の時間積分が糊化度の変化を表すと考えた. そこで, 加熱開始 0 分における誘電体損の時間積分を糊化度 0% とし, 30 分後の誘電体損の時間積分を糊化度 100% と定義した. 誘電体損の時間積分を用いて糊化度の変化を表した結果を図3-b に示した. 測定周波数により糊化度の絶対値は異なっているが, 全体的な曲線の形状は DSC 測定により得られた糊化度の変化 (図3-a1) と一致していた. さらに, DSC 測定により得られた糊化度の実測値と誘電体損の時間積分から得られた糊化度の関係をプロットした (図3-a2). DSC 測定により得られた糊化度の実測値にはバラツキがあるが, 概ね図3-b と一致した. 本研究では, 500 Hz の測定結果を用いて算出した糊化度が DSC 測定により得られた糊化度と最も良い相関であった. 以上の結果より, 炊飯過程における米の糊化変化を誘電特性を用いて非破壊・連続的に測定できることが明らかとなった.

## 5. 食品の凍結乾燥過程の非破壊・連続計測<sup>7)</sup>

### 5-1 食品の凍結乾燥過程の非破壊・連続計測の目的

凍結乾燥は、凍結状態にある材料から水を昇華させて水分を除去するプロセスである<sup>8)</sup>。凍結乾燥食品には、色・香り・栄養素などの熱的変性が少ない、乾燥前の形状を維持する、水の付加による復元性が良い、などの特徴がある。しかし、他の乾燥法に比べて乾燥時間が長く、エネルギーコストも高いため、製品価格は割高になるなどの欠点もある<sup>9)</sup>。エネルギーコストを抑え、品質の一定した凍結乾燥食品を製造するためには、乾燥中の食品の水分変化を把握し、目的含水率に達した時点で乾燥を終了させる必要がある。

本研究では、凍結乾燥機内の加熱用の棚板を電極板として利用して、凍結乾燥過程における食品の電気容量変化を測定し、重量変化と電気容量変化との関係を調べ、電気容量測定による食品の凍結乾燥過程の非破壊・連続計測の可能性を検討した。

### 5-2 凍結乾燥試料

凍結乾燥試料として、デキストリンに水を加えた 10% デキストリン水溶液を使用した。試料充填量が異なる三種類 (500 g, 1300 g, 1500 g) の食品用トレーを使用した。

試料を食品トレーに分注し、 $-30^{\circ}\text{C}$  に設定した冷凍庫内で凍結した後、凍結乾燥機内で一定の操作条件 (真空度: 66.6 Pa 以下, 棚加熱温度:  $80^{\circ}\text{C}$ ) において凍結乾燥した。棚板の加熱には棚板に埋め込まれたニクロム線を用い、電圧の調節により棚加熱温度を一定に保った。

### 5-3 重量変化および電気容量変化の測定

凍結乾燥機内には、4 枚のステンレス製加熱用棚板が左右 2 枚ずつ設置されている (図 4)。本実験では、下側の棚板の上に凍結した試料をトレーごと置いて、凍結乾燥を行った。重量測定では (図 4: 左側の棚板)、上側の棚板を固定し、下側の棚板と試料を上皿ばね秤の上に置き、凍結乾燥中の試料の重量変化を測定した。

電気容量の測定では (図 4: 右側の棚板)、凍結乾燥機内の二枚の加熱用棚板 (ステンレス製) を電気容量測定用の電極板 (間隔 40 mm) とした。それぞれの棚板を電氣的に独立した絶縁状態とし、二枚の棚板を LCR メータに接続した。凍結した試料をトレーごと下側の棚板 (電極板) に置き、凍結乾燥中の試料の電気容量変化を測定した。

### 5-4 凍結乾燥過程における電気容量変化

重量が異なる試料 (10% デキストリン水溶液 500 g, 1300 g, 1500 g) を凍結乾燥した時の電気容量変化と含水率変化との関係を図 5 に示した。電気容量の絶対値は初期試料重量により異なっていたが、試料重量が異なる場合でも含水率変化と電気容量変化の間には直線関係が認められた。以上の結果より、食品の凍結乾燥過程における含水率変化を電気容量変化を用いて非破壊・連続的に測定できることが明らかとなった。

## 6. 凍結乾燥におけるコラプス防止<sup>10)</sup>

凍結乾燥食品のコラプス (蒸発乾燥による発泡・収縮現象) 発生を防止するための非破壊測定法を検討した。実験試料として固形分含有量が異なる 3 種類の味噌汁を用い

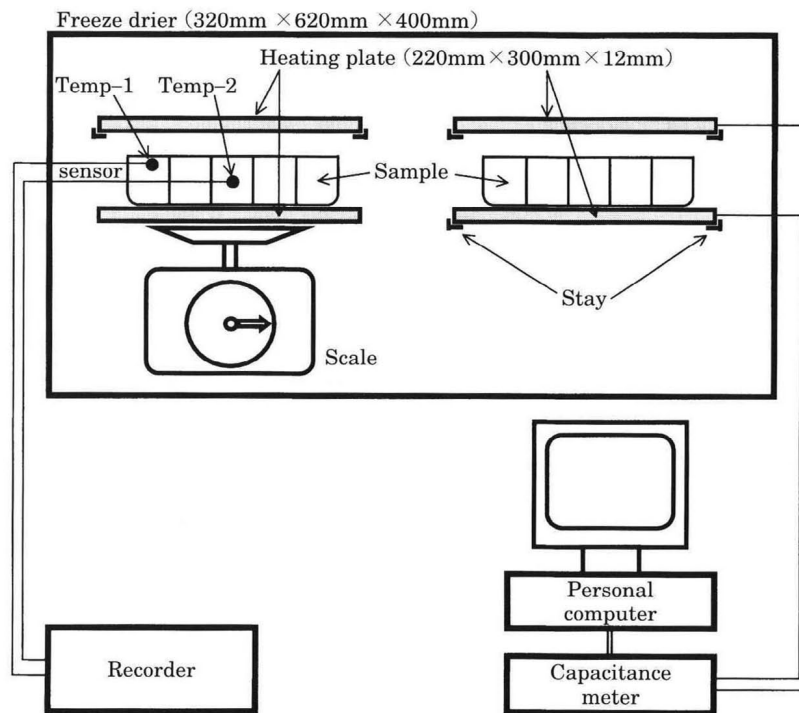


図 4 凍結乾燥過程測定装置

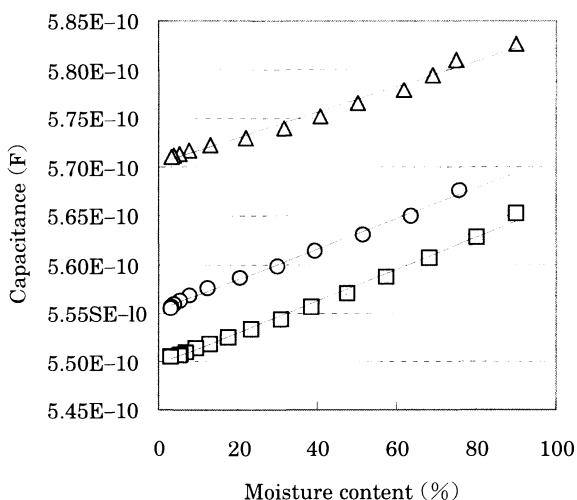


図 5 凍結乾燥過程における電気容量変化と含水率変化との関係  
試料，凍結 10% デキストリン水溶液。  
□, 500 g ; ○, 1300 g ; △, 1500 g.

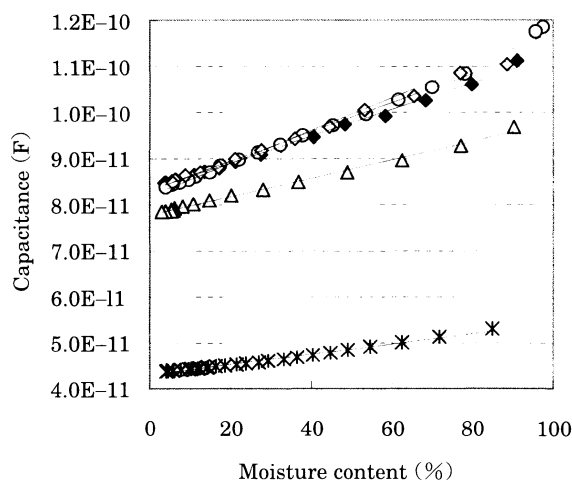


図 6 通風乾燥過程における電器容量変化と含水率変化との関係  
○, 寒天ゲル ; ◆, 大根 ; △, 人参 ; ＊, ササミ.

た. まず, 味噌汁の水結率を DSC 測定により調べ, さらに味噌汁を凍結乾燥し, コラプス発生率と水結率との関係を検討した. 次に, 味噌汁の凍結温度を変えて電気容量を測定し, コラプス発生率との関係を検討した.

水結率が約 95% 以上でコラプスの発生が抑えられることが明らかとなった. 味噌汁の電気容量変化のグラフを微分すると, 低温側の変曲点以下の凍結温度範囲ではコラプス発生率が 0% になることがわかり, このとき, 味噌汁の水結率が 95% に達していることが明らかとなった. 以上の結果より, 凍結過程の食品の電気容量を連続的に測定し, コラプスの発生を抑制できる温度まで冷却することで, 凍結乾燥過程のコラプス発生を防止できることが明らかとなった.

7. 食品の通風乾燥過程の非破壊・連続計測<sup>11)</sup>

通風乾燥における食品の重量変化(水分変化)の非接触・連続測定法を検討した. 乾燥試料として, 寒天ゲル, 野菜, 鶏肉を用いた. 誘電特性(電気容量)の測定には, LCR メータに接続した 2 枚の平行平板電極を使用した. 通風乾燥過程における試料の電気容量, 重量および品温の各変化を連続的に測定した.

測定した全ての試料において, 電気容量変化と含水率変化の間には良好な相関関係が認められた(図 6). 以上の結果より, 食品の乾燥過程を電気容量変化の測定により, 非破壊・連続的に測定できることが明らかとなった.

8. 食品の凍結・解凍過程の計測<sup>12)</sup>

食品の凍結および解凍過程のモニタリング法を検討した. 電気容量の測定には, LCR メータを使用した. 実験試料として, 蒸留水, エチルアルコール, ハンバーグパティ, パン生地を用いた. 各試料の凍結および解凍過程における

電気容量変化を測定し, 同時に試料の各部位の温度変化を連続的に測定した.

食品の電気容量と温度の間には, 相変化中を除き, 一定の関数関係があり, 凍結や解凍中の食品の温度を非接触で計測できる可能性が示唆された. また, 相変化(水の凍結, 油脂の結晶化)中では, 電気容量が急激に変化することが明らかとなった. 以上の結果より, 食品の凍結・解凍過程の計測に, 電気容量変化が有効であることが明らかとなった.

9. 食用油脂の多形転移測定<sup>13)14)</sup>

食用油脂結晶の多形転移の非破壊・連続測定法を検討した. 実験試料として高温で融解し, 急冷したカカオ脂を使用した. このカカオ脂を 10°C の恒温槽内で保存し, 電気容量の経時変化を測定した. また同時に, DSC を用いて多形転移の確認と多形の定量を行った.

融点が最も低い多形の体積分率の経時変化は, 電気容量の経時変化とほぼ同じ傾向を示した. これは, 電気容量の経時変化が, カカオ脂の多形転移と密接に関連していることを示している. そこで, カカオ脂の各成分の体積分率と電気容量との関係を用いて, 電気容量の経時変化から多形転移を測定する方法を検討した. 具体的には, 3 成分系複合誘電体モデルを用いて, 電気容量の経時変化から各成分の体積分率を直接算出する方法を検討した. その結果, モデルを用いた計算値は実測値と良好に一致した. 以上の結果より, 電気容量変化の測定により, 食用油脂の多形転移の測定が可能であることが明らかとなった.

10. 揚げ油の劣化過程の非破壊・連続計測<sup>15)</sup>

高温の揚げ油の品質変化(劣化)の非破壊・連続計測法を検討した. 揚げ油(大豆油)を 180, 200, 220 および

240°C の 4 種類の温度に保ち、各温度における誘電率変化を 8 日間にわたって、1 kHz~100 kHz の周波数範囲で連続的に測定した。誘電率の測定には、LCR メータを使用した。揚げ油の熱劣化の指標として、揚げ油の酸価、密度および相対粘度の測定を行った。

大豆油の誘電率は、加熱時間と伴に増加した。この誘電率の増加の傾向は、酸価、密度、相対粘度の変化とも一定の関数関係にあった。以上の結果より、高温の揚げ油の品質を非破壊・連続的に計測する手段として誘電率測定が有効であることが明らかとなった。

## 11. おわりに

本稿では、食品の低周波数領域 (Hz~MHz) における誘電特性を利用して、加工プロセス中の食品の変化を非破壊かつ連続的に捉える方法について紹介した。食品製造には、熱変性や相変化などを伴う加工プロセスが多く、これらの加工プロセスでは、食品の誘電特性も同時に変化することが多い。従って、加工プロセス中に起こる食品の変化 (相変化、糊化など) と誘電特性の変化との関係を明らかにし、測定装置 (特に、電極の構造) を測定対象に合わせて工夫することにより、食品加工プロセス中に起こる変化を比較的容易に検出できるようになると考えられる。本稿で紹介した誘電特性を利用した測定手法は、非破壊・連続計測が可能で、しかも、安価であるため、加工中の食品の状態変化をリアルタイムでモニターする手法として、食品の品質管理や製造ラインの工程管理に有効な計測手法になると考えられる。さらに、HACCP 等に対応した食品製造工程の定量的な加工履歴の記録にも利用できると考えられる。

本研究を遂行するにあたり、ご助言、ご指導、ご支援を賜りました広島大学名誉教授 久保田 清先生、広島大学教授 鈴木寛一先生に心より感謝申し上げます。また本研究成果は、広島大学 生物生産学部・大学院生物圏科学研究科 食品工学研究室において、卒業研究の学部 4 年生、

修士・博士課程の大学院生、その他多くの方々のご協力により得られたものであります。ここに記して、ご協力頂きました多くの共同研究者への感謝の意を表します。

## 文 献

- 1) 奥澤隆志, 「電磁気学」, (近代科学社), p. 30 (1993).
- 2) 羽倉義雄, 鈴木寛一, 電気容量を用いた食用油脂の融点測定, 食科工誌, **49** (4), 272-276 (2002).
- 3) 羽倉義雄, 鈴木寛一, 炊飯過程における米の糊化変化の非破壊・連続計測, 食科工誌, **49** (6), 416-421 (2002).
- 4) 調理科学研究会編, 「調理科学」, (光生館), p. 245 (1984).
- 5) 松永暁子, 石田信昭, 貝沼圭二, 日食工誌, **32**, 797 (1985).
- 6) 内野研二, 「セラミストのための電気物性入門」, 第 2 版 (内田老鶴圃), p. 69 (1992).
- 7) 土肥貞夫, 羽倉義雄, 鈴木寛一, 食品の凍結乾燥過程における重量と電気容量の変化, 食科工誌, **49** (11), 726-730 (2002).
- 8) 野口 駿, 「食品と水の科学」, (幸書房), p. 213 (1992).
- 9) 高薄一弘, 「凍結乾燥技術」, (技術情報協会), p. 3 (2001).
- 10) 土肥貞夫, 羽倉義雄, 鈴木寛一, 凍結乾燥食品のコラプス防止のための電気容量変化を用いた氷結率の設定, 食科工誌, **50** (8), 356-360 (2003).
- 11) Tohi, S., Hagura, Y., Suzuki, K., Measurement of change in moisture content during drying process using the dielectric property of foods, *Food Science and Technology Research*, **8**(3), 257-260 (2002).
- 12) 成宮正興, 羽倉義雄, 非接触式電気容量センサーによる食品の品質評価 (第 1 報: 凍結解凍における電気容量と温度の関係), 日本冷凍空調学会論文集, **16** (1), 23-35 (1999).
- 13) 羽倉義雄, 山崎礼子, 鈴木寛一, 久保田 清, 誘電特性を利用した食用油脂結晶の多形転移の測定に関する研究, 「食品工学 4 (化学工学シンポジウムシリーズ 47)」, 化学工学会「食品工学」特別研究会編, (化学工学会), pp. 89-91 (1995).
- 14) Hagura, Y., Suzuki, K. and Kubota, K., Non-destructive and continuous measurement of the polymorphic ratio of crystalline edible fats from their dielectric properties, "Proceedings of 7th International Congress on Engineering and Food", Part 1, pp. A97-100 (1997).
- 15) Inoue, C., Hagura, Y., Ishikawa, M. and Suzuki, K., The dielectric property of soybean oil in deep-fat frying and the effect of frequency, *J. Food. Sci. FoodDSC*, **67**(3), 1126-1129 (2002).

(平成 15 年 11 月 10 日受理)