

微粉碎と造粒による緑茶茶葉の粉末素材化 (第2報)

日比野 剛*, 佐合 徹*

Improvement of Handling Properties for Green Tea Powders by Fine Grinding and Granulation (Part2)

Tsuyoshi HIBINO and Toru SAGO

The agglomeration of finely ground green tea powders was so strong that the dispersibility in water was poor. We tried improvement of handling properties of fine green tea powders by wet granulation. By a humidification in a thermo-hydrostat at 40 °C, 95%RH and a wet granulation with a sieve or a screen mill, fine green tea powders were made into soft granules with good dispersibility and good disintegratability in water. The degree of moisture absorption was a determinant to be able to make fine green tea powders soft granules or firm granules. By the same granulation process, “Mogacha” powders were made to softly aggregated granules, which have good dispersibility in water.

Key words: Green Tea Powder, Humidification, Wet Granulation, Agglomeration, Dispersibility

1. はじめに

機能性表示食品の開発において、機能性の担保、安全性の確保などエビデンスの確保が重要であり、中小企業等にとって、これが高いハードルとなっている。機能性が確認されている素材を使用して製品化を行えば、エビデンス確保のハードルをクリア又は若干低くすることが可能になると考えられる。

当所では、昨年度より、県内企業における機能性（表示）食品の開発を支援するために、6次機能強化を目指した食品・医薬品素材開発事業として、既知の機能性成分を豊富に含む天然資源を使用した機能性食品素材の開発、比較的簡便な方法で扱い易い形態の素材を得る加工技術について検討している。

前報¹⁾において、飲む以外に食べることが注目されている緑茶茶葉について、ジェットミル粉碎による微粉末化、造粒による微粉末の凝集防止・分散性向上を検討し、その結果を報告した。なお、

* 食と医薬品研究課

ジェットミルは、乾式で数 μm から1 μm の超微粒子が容易に得られる²⁾、粉碎時の空気の断熱膨張による温度降下のため、粉碎室での温度上昇が全くなく、低融点、弱熱性物質が粉碎できる²⁾などの特徴があり、食品等の微粉碎にも広く使用されるようになったことから、緑茶茶葉の微粉碎に使用した。

緑茶茶葉は、錠剤粉碎器、ハンマーミルによる予備粉碎の後、ジェットミルにより2回粉碎することにより、50%粒子径10 μm 程度まで微粉碎することが可能であった。また、緑茶茶葉微粉碎物は、デキストリン5%を添加し、錠剤粉碎器を使用して造粒する攪拌造粒法により、凝集防止、水への分散性を改善することができた。しかし、攪拌造粒法の特性により、全体としてサラサラした細かい粉末に加工できるが、造粒液が局所的に多い部分と少ない部分ができるために、一部に固い粒子ができ、口に含んだときの食感が問題であった。

そこで、本年度は、造粒により固い粒子ができ

にくい方法として、微粉碎した緑茶茶葉を恒温恒湿器内で加湿した後、ふるいやスクリーンを強制的に通過させる方法により造粒し、緑茶茶葉造粒物の凝集性改善及び水への分散性向上について検討したので、その結果について報告する。また、食品加工用とされるもが茶について、同じ方法を適用して造粒した結果を報告する。

2. 実験方法

2. 1 緑茶茶葉の微粉碎

原料として市販の緑茶茶葉(番茶)を使用した。緑茶茶葉は、前報¹⁾と同じ機器を使用して微粉碎した。予備粉碎は、錠剤粉碎机を使用し、1回約15 g ずつの茶葉を最大回転数(10000 rpm)で30秒間粉碎した後、ハンマーミルを使用して、0.5 mm スクリーン、回転数12000 rpm の条件下で、茶葉600 g を約20分間で粉碎した。ジェットミルによる微粉碎は、プッシャーノズル空気圧力、グライディング空気圧力ともに0.55~0.58 MPa の条件下で、微粉碎した。なお、ジェットミルによる粉碎では、試料の供給に振動フィーダーを使用しており、試料供給速度は粉末の流動性に影響を受けるため、前報¹⁾と同じ速度になるよう調整したが、1回目の粉碎では2.1~2.8 g/min、2回目の粉碎では1.9~3.0 g/min となった。微粉碎物は実体顕微鏡により粉碎状況を確認した。

2. 2 錠剤粉碎机による造粒

微粉碎した緑茶茶葉は、粉末10 g に対し、造粒液2 mL を加え、錠剤粉碎机を使用して、前報¹⁾と同じ方法により造粒し、性状を確認した。造粒液は、蒸留水(以下、水とする)のみ、水:エタノール=1:1、水:エタノール=1:3 の3種類を使用した。

2. 3 加湿条件の検討

錠剤粉碎机を使用した造粒(攪拌造粒法)では、造粒液が均一に分散せず局所的に多い箇所ができるため、一部固い粒子ができる。そこで、造粒液を緑茶微粉碎物に均一に分散させるために、恒温恒湿器内で加湿し(吸湿させ)、造粒物に強い力が加わらないようにふるいを通過させる造粒方法を試みた。

予備試験として、次の方法により加湿、造粒し、緑茶茶葉微粉碎物への吸湿量及び造粒特性を調査した。緑茶微粉碎物を、秤量ビン(50×50 mm)、

シャーレ(内径85 mm、深さ20 mm)にそれぞれ10 g を量り取り、恒温恒湿器内(40 °C、95 %RH)で3、6及び9時間加湿した後、重量増加を測定し、ブラシを使用して850 µm のふるいを通過させ造粒した。造粒物は50 °C の乾燥機内で30分間乾燥後、再び850 µm のふるいを通過させた。

次に、シャーレに緑茶微粉碎物10 g を量り取り、恒温恒湿器内(40 °C、95 %RH)で、3、4、5及び6時間加湿し、予備試験と同じ方法で造粒物を得た。得られた造粒物は、100 mL のポリビーカーに約50 mL 熱湯を注ぎ、葉さじ3分の1程度の造粒物を投入し、5秒ずつ2回攪拌してから3分間後にビーカー底部に溜まった造粒物の性状を評価した。

また、加湿時間の短縮を図るため、恒温恒湿器内(60 °C、95 %RH)での1~6時間加湿、同様の方法で造粒物の性状を評価した。さらに、蒸し器を使用して100 °C で加湿(10、5、3及び1分間)し、造粒した。なお、100 °C での加湿の場合は、小型の金属製ざるにクッキングペーパーを敷き、その上に緑茶微粉碎物10 g を乗せて加湿したため、吸湿による重量増加は測定できなかった。

2. 4 緑茶造粒物の試作

2.3 節の結果を基に、緑茶微粉碎物の造粒物を試作した。緑茶微粉碎物は乾燥を均一にするため、目開き1 mm のふるいを通過させ、ステンレス製バットに広げ、50 °C の乾燥機内で16時間乾燥してから使用した。シャーレ(内径115 mm、深さ28 mm)に緑茶微粉碎物30 g を入れ、恒温恒湿器内(40 °C、95 %RH)で、3、4、5及び6時間加湿した後、重量増加を測定し、整粒機(パウレック、コーミル QC-197S)を使用して、スクリーン孔径1 mm、インペラ回転数1200 rpm の条件で造粒した。造粒時間は実質十数秒の短時間であり、ブラシによる試料投入口に付着した粉末の払い落としを含めて2分程度であった。造粒物は、ステンレス製バットに広げ、50 °C の乾燥機内で1時間乾燥後、850 µm のふるいを通過させた。造粒物の性状の評価は、2.3 節と同じ方法で行った。

2. 5 もが茶の微粉碎及び造粒

もが茶は農業研究所茶葉研究室で製造された茶葉を使用した。2.1 節、2.3 節と同様の方法で、茶葉の微粉碎、加湿・造粒、造粒物の評価を行った。ジェットミル粉碎時の試料供給速度は、1回目2.5

～2.8 g/min, 2 回目 2.3～2.4 g/min とした。もが茶微粉碎物の加湿は、目開き 1 mm のふるいを通過させ、50 °C の乾燥機内で 16 時間乾燥させた試料 10 g をシャーレ (内径 85 mm, 深さ 20 mm) に入れ、恒温恒湿器内 (40 °C, 95 %RH) で、1～6 時間加湿した。試料は加湿 2 時間後から 1 時間経過ごとに造粒した。

また、2.4 節と同じ条件により、もが茶微粉碎物 30 g を使用して、加湿後、造粒機を使用して造粒物を試作した。加湿時間は、吸湿量から判断し 3.5 時間と 6 時間とした。

3. 結果と考察

3. 1 緑茶茶葉の微粉末化

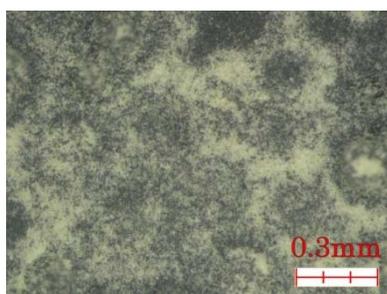
緑茶茶葉 (番茶) には、葉の部分の他に茎などの固い部分が含まれているが、錠剤粉碎器及びハンマーミルによる予備粉碎を行った後に、ジェットミルで 2 回粉碎することにより微粉碎することができた。微粉碎物は実体顕微鏡で観察し、前報と同様に、数十 μm の粗い粒子がほとんどない微粉末であることを確認した。これを、以下の造粒に使用した。図 1 に原料の緑茶茶葉 (番茶) の写真を、図 2 にジェットミルにより粉碎した緑茶微粉碎物の写真を示す。



図 1 緑茶茶葉 (番茶) の写真 (10 g)



(a) 微粉碎物外観 (10 g)



(b) 実体顕微鏡写真

図 2 緑茶茶葉微粉碎物の写真

3. 2 錠剤粉碎器による造粒

前報¹⁾では、緑茶茶葉微粉碎物に結合剤としてデキストリン 5 % を添加して造粒したが、味への影響を考慮して添加せず、水及びエタノールのみにより造粒した。水 2 mL により造粒した試料は、造粒によりサラサラした状態となり、凝集性が改善された。しかし、約 50 mL の温水に葉さじ 4 分の 1 程度の造粒物を入れ、10 秒間攪拌して性状を評価したところ、水へのなじみ及び分散性がやや悪く、一部に固い粒子が存在し、前報¹⁾と同様の性状であった。また、水とエタノールの混合液で造粒した試料についても、造粒によりサラサラした状態となったが、水のみで造粒した試料と比較すると、固い粒子の量は少なくなるが、試料の凝集性改善、水へのなじみ及び分散性はやや劣る性状となった。図 3 に水 2 mL で造粒した試料の実体顕微鏡写真を示す。

3. 3 加湿条件の検討

加湿条件の予備試験の結果を表 1 に示す。加湿時間の増加に従い、緑茶微粉碎物の吸湿量が増加した。加湿に使用した容器を比較すると、秤量ビンの方が恒温恒湿器内の雰囲気と接する面積が小さいため吸湿量が少なかった。吸湿量は緑茶微粉碎物の造粒性に影響を与え、秤量ビンを使用した試料 (吸湿量 10.8 % 以下) では、造粒に使用したふるいを容易に通過させることができ、乾燥後の造粒物は少し凝集性は認められるが細かくサラサラした粉末であった。一方、シャーレを使用した試料 (吸湿量 15.2 % 以上) では、ふるいを通過させることにより、一部に細かい粉末状の粒子は認められるが、顆粒状に造粒することができた。回収した造粒物を入れたポリ袋を振って観察した外観と見かけの流動性・凝集性に明らかな違いがあることから、吸湿量 10.8 % と 15.2 % の間に造粒

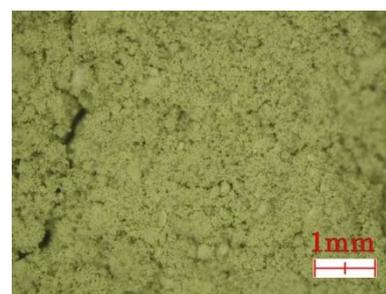


図 3 緑茶造粒物の実体顕微鏡写真
錠剤粉碎器, 水 2 mL で造粒

表 1 緑茶微粉碎物の加湿・造粒予備試験の結果

容器	加湿時間(h)	吸湿量(%)	造粒性等
秤量ビン	3	5.9	容易にふるいを通る, 造粒後は少しサラサラの粉末であるが一部顆粒状
	6	8.6	3時間加湿とほぼ同様, 顆粒状粒子が少し増加する
	9	10.8	3時間加湿とほぼ同様, 6時間加湿より顆粒状粒子が増加する
シャーレ	3	15.2	ふるいを通して造粒可能, 造粒後は一部顆粒状
	6	20.5	塊ができて, ふるいを通しにくくなった, 造粒後は一部顆粒状
	9	23.5	塊ができ, ふるいを通しにくい, 造粒後は粒状

試料は3試料ずつ用意し, 3時間加湿後に1試料ずつ造粒.

吸湿量は, 試料数の平均値を示す. (3時間後, N=3 → 9時間後, N=1)

性に影響する閾値があると考えられた. なお, これらの造粒物を水に入れて分散させたところ, 秤量ビンを使用した試料は, 一部の粉末が濡れずに水に浮き, かき混ぜても凝集体ができ, 水へのなじみ・分散がやや劣った. 一方, シャーレを使用した試料は, いずれも水に入れると直ちに吸水して沈んでゆき, かき混ぜると一部に顆粒状の形状が残るが, 凝集体はなく微粉末状に崩壊し, 水へのなじみ・分散が良かった. 3時間加湿した試料は, 口に含んだときに若干の顆粒状の感触はあるが, 造粒物の崩壊が最も良好であった. 6時間及び9時間加湿した試料は, 口に含むと固くはないが多くの顆粒状の感触が残っていた.

これらの結果より, 恒温恒湿器内で加湿後, ふるいを通りさせて造粒する方法により, やや粒子径が大きく顆粒状であるが, 水に分散させた時に

固い粒子ができにくいことが確認できた. 加湿により, 緑茶微粉碎物から溶出した成分を結合剤として利用することで, 造粒できたと考えられた. 以後, 顆粒状に造粒できる吸湿量を得るまでの時間が短いことから, シャーレを使用して加湿条件を詳しく検討することにした.

シャーレに 10 g の緑茶茶葉微粉碎物を入れて, 恒温恒湿器内で 3, 4, 5 及び 6 時間加湿後, 造粒した試料の結果を表 2 に示す. 加湿時間の増加に従い, 造粒し易さ (造粒時の塊のでき易さ, 通り易さ) が悪くなっていった. 熱湯へ薬さじ 3 分の 1 程度の試料を入れ分散性を評価した結果, 予備試験の結果と同様に, 3 時間加湿した試料が造粒物の崩壊が最も良好であり, 加湿時間が増加するとともに口に含んだときの顆粒状の感触が多くなった. 造粒性及び水への分散性の評価結果より,

表 2 緑茶微粉碎物の加湿・造粒試験の結果

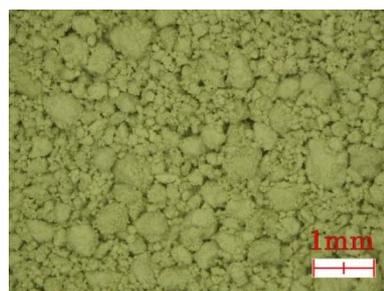
加湿時間(h)	吸湿量(%)	造粒性等
3	14.2	ふるいを通して造粒可能, 造粒後は一部顆粒状
4	16.4	ふるいを通して造粒可能, ふるい上に一部塊が残る, 造粒後は一部顆粒状
5	18.7	塊ができて, ふるいをやや通しにくくなった, 造粒後は一部顆粒状
6	21.5	塊ができて, ふるいを通しにくい, 造粒後は一部顆粒状

試料は4試料用意し, 所定の時間加湿後に1試料ずつ造粒.

吸湿量は, 試料数の平均値を示す. (3時間後, N=4 → 6時間後, N=1)



(a)3時間加湿



(b)6時間加湿

図 4 緑茶微粉碎物の造粒物の実体顕微鏡写真

加湿時間は3~4時間(吸湿量14~16%程度)が最適であると考えられた。図4に3時間及び6時間加湿後、造粒した試料の実体顕微鏡写真を示す。

加湿時間の短縮を図るため、恒温恒湿器内(60℃, 95%RH)で1~6時間加湿したときの吸湿量の測定結果を表3に示す。加熱温度が高くなったため、40℃で加湿した場合より短時間で吸湿した。また、ブラシとふるいによる造粒時には、1時間加湿した試料はふるいを容易に通すことができたが、2時間加湿(吸湿量16.4%)後から塊ができてふるいを通しにくくなり、粒状の造粒物が多くなった。熱湯に分散させて試料の性状を評価したところ、1時間及び2時間加湿した試料は、40℃で加湿した試料と同じ程度の吸湿量であるが、口に含んだときに固くはないが顆粒状の感触が多く感じられた。3時間以上加湿した試料は、顆粒状の感触がさらに多い不快な感触となり、60℃, 95%RHの条件による加湿は不適であると考えられた。

また、100℃で蒸した試料は、造粒性、顆粒の崩壊性が60℃の場合よりも悪くなった。加熱時間を10分から1分に短縮しても、試料は粒状であり、熱湯へ分散させたときも顆粒状の感触が多く、加湿条件として不適であった。

これらの結果より、恒温恒湿器内(40℃, 95%RH)での加湿、吸湿量14~16%程度が加湿条件として適当であるとした。

3. 4 緑茶造粒物の試作

緑茶微粉碎物の50℃, 16時間乾燥後の乾燥減量は1.6%であった。なお、他に数回、乾燥減量を測定したところ2.4~2.5%であった。

恒温恒湿器内(40℃, 95%RH)での3~6時間加湿したときの吸湿量の測定結果を表4に示す。加湿時間に対する吸湿量は、緑茶微粉碎物10g

を使用して加湿した場合と比較して若干少ない。試料の量を10gから3倍の30gとしたが、使用したシャーレの面積(恒温恒湿器内の空気に触れる面積)が3倍より狭いことから、緑茶微粉碎物の層が厚くなり、吸湿に時間を要したと考えられた。

造粒は吸湿量から3, 5及び6時間加湿後の試料を選択した。3時間加湿した試料は、整粒機を使用するため、吸湿量が若干少ない時点(吸湿量11.3%)で造粒したため、全体的に細かく造粒されたもしくは粉末状で、少しフワフワした様子を示した。5時間及び6時間加湿した試料は、顆粒状の粗い粒子が多く、3時間加湿した試料より流動性の良い様子を示した。

造粒物を熱湯に入れて評価した結果、いずれの試料も水へのなじみ・分散は良好であった。3時間加湿した試料は、造粒物の崩壊も良好で、口に含んだときに粒状の感触はほとんどなかった。一方、5時間加湿した試料(吸湿量13.8%)は、口に含んだときに若干粒状の感触があり、10gを使用して加湿・造粒したときの3時間加湿した試料と同じ程度であった。6時間加湿した試料は、粒状の感触が少し多くなった。なお、3時間及び5時間加湿した試料は、ふるい分け方により粒度分布を測定したところ、50%粒子径はそれぞれ241µm及び228µmであったが、いずれも微粉末の凝集、ふるい網面への付着により、正確な測定値は得られなかった。特に、3時間加湿した試料では、測定時の振動等による凝集が発生しており、目開き500µmのふるい上の粒子は微粉末の凝集したものであった。図5に3時間及び5時間加湿後造粒した試料の写真を示す。

整粒機を使用した造粒では、スクリーン孔径1mmであること、造粒物に負荷がかかることから、

表3 60℃, 95%RHで1~6時間加湿したときの吸湿量の測定結果

加湿時間(h)	吸湿量(%)
1	12.2
2	16.4
3	18.9
4	21.9
5	23.6

試料は5試料用意し、所定の時間加湿後に1試料ずつ造粒。吸湿量は、試料数の平均値を示す。(1時間後, N=5 → 5時間後, N=1)

表4 緑茶造粒物試作時の吸湿量の測定結果

加湿時間(h)	吸湿量(%)
3	11.3
4	13.3
5	14.9
6	17.3

試料は3試料用意し、所定の時間加湿後に1試料ずつ造粒。吸湿量は、試料数の平均値を示す。(3時間後, N=3 → 6時間後, N=1)



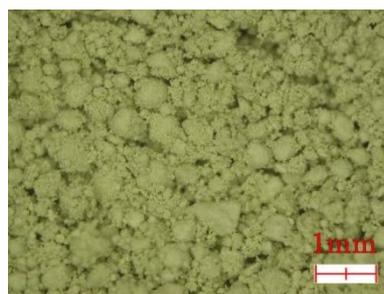
(a)造粒物外観 (3 時間加湿, 10 g)



(b)実体顕微鏡写真 (3 時間加湿)



(c)造粒物外観 (5 時間加湿, 10 g)



(d)実体顕微鏡写真 (5 時間加湿)

図 5 試作した緑茶造粒物の写真

少し固めの造粒物になることを予測していたが、造粒物の性状はふるいとブラシを使用して造粒した場合とあまり差がないことがわかった。また、吸湿量と造粒性から、顆粒状への造粒には吸湿量 15%程度が良好であったが、造粒物の崩壊性から判断すると、少しフワフワした粉末状で流動性はあまり良くないが、3 時間加湿した試料(吸湿量 11.3%)が最も良好であると考えられた。飲用など溶解して使用する場合は、吸湿量 11%程度での造粒、ふりかけて使用するなど多少粒状の顆粒が残っても良い場合は、吸湿量 14~16%程度での造粒が適していると考えられた。以上の結果より、微粉碎物を加湿後、整粒機を使用して造粒する方法により、凝集性の改善、水へのなじみ・分散性を向上させた緑茶粉末素材を得ることができた。

3. 5 もが茶の微粉碎及び造粒

もが茶の粉碎前後の様子を図 6 に示す。もが茶微粉碎物の 50 °C, 16 時間乾燥後の乾燥減量は 2.2%であった。試料 10 g を恒温恒湿器内(40 °C, 95%RH)で 1~6 時間加湿した時の吸湿量の測定結果を表 5 に示す。

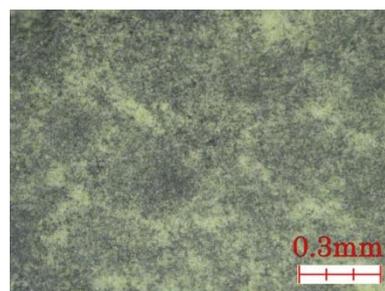
もが茶微粉碎物は、緑茶微粉碎物より吸湿性が高く、加湿 2 時間後に吸湿量 14.3%となった。造粒物は、食品加工において抹茶の代用品として使用されていることから鮮やかな緑色を示し、加湿時間の増加に従い色合いが少しずつ濃くなっていった。造粒物の性状は、2 時間加湿した試料は細かい粉末状の部分が多いが、流動性の良い顆粒であった。加湿時間の増加に従い、試料には顆粒状の部分が多くなり、流動性が高くなる傾向を示し



(a)茶葉外観(10 g)



(b)微粉碎物外観(10 g)



(c)微粉碎物の実体顕微鏡写真

図 6 もが茶の写真

表 5 もが茶の吸湿量測定結果(10 g)

加湿時間(h)	吸湿量(%)
1	10.3
2	14.3
3	17.1
4	19.4
5	21.9
6	24.9

試料は5試料用意し、2時間加湿後より1試料ずつ造粒。吸湿量は、試料数の平均値を示す。(2時間後, N=5 → 6時間後, N=1)

た。

造粒物を熱湯に入れて評価した結果、いずれの試料も水へのなじみ・分散は良好であった。2時間加湿した試料は、熱湯への分散後、口に含んだときに顆粒状の感触がほとんどなく良好であった。加湿時間の増加に従い、口に含んだときの顆粒状の感触(固い粒子ではない)が少しずつ増加していったが、6時間加湿した試料においても、顆粒状の不快感はあまり多くなかった。口に含んだときの顆粒状の感触が少ないことから、加湿時間は4時間まで(吸湿量20%以下)が適切と考えられた。

もが茶造粒物の試作では、加湿1時間後から30分経過ごとに吸湿量を測定し、造粒するタイミングを選定した。吸湿量が14.2%となった加湿時間

(3.5時間)と17.9%となった加湿時間(6時間)で造粒した。3.5時間加湿した試料は、やや細かい粉末状であるが流動性が良く、熱湯に分散させたときに顆粒状の粒子がほとんどない良好な性状を示した。6時間加湿した試料は、流動性の良い顆粒状であり、熱湯に分散後、口に含んだときに顆粒状の感触が少ない良好な性状を示した。

これらの結果より、もが茶についても、加湿条件を適切に設定することにより、凝集性の改善、水へのなじみ・分散性を向上させた粉末素材を得ることができた。図7に試作したもが茶造粒物の写真を示す。

4. まとめ

緑茶茶葉をジェットミルで微粉碎した粉末を使用して、凝集性を改善し、水へのなじみ・分散性を向上させた取り扱い易い素材への加工方法を検討した。緑茶茶葉微粉碎物を恒温恒湿機内(40°C, 95%RH)で加湿後、ふるい又は整粒機を使用して造粒することにより、水のみでの添加で、凝集性を改善して流動性が良い、水へのなじみ・分散性が良く、固い粒子の少ない造粒物を得ることができた。また、吸湿量を適切に設定することにより、ややフワフワした粉末から、顆粒状の粉末まで、性状の異なる素材を得ることができた。



(a)造粒物外観(吸湿量14.2%, 10g)



(b)実体顕微鏡写真(吸湿量14.2%)



(c)造粒物外観(吸湿量17.9%, 10g)



(d)実体顕微鏡写真(吸湿量17.9%)

図7 試作したもが茶造粒物の写真

また、三重県産もが茶（食品加工における抹茶の代用品）においても、同様に加湿，造粒することにより，凝集性を改善し，水へのなじみ・分散性を向上させた素材を得ることができた。

謝辞

実験を行うにあたり，もが茶の茶葉を提供していただいた三重県農業研究所茶業研究室の稲垣卓次主幹研究員に感謝します。

参考文献

- 1) 日比野剛ほか：“微粉碎と造粒による緑茶茶葉の粉末素材化”. 三重県工業研究所研究報告, 40, p49-53(2016)
- 2) 中山仁郎ほか：“ジェットミルによる超微粉碎と精密気流分級技術”. 資源処理技術, 33(4), p189-198(1986)