乾燥中のシイタケ子実体の電気インピーダンス特性

河野俊夫¹・北野雅治¹・松岡孝尚¹・石川勝美¹・疋田慶夫²

¹ 高知大学農学部 783-8502 南国市物部乙 200

² 愛媛大学農学部 790-8566 松山市樽味 3-5-7

Electric Impedance Characteristics of 'Shiitake' Mushrooms during Drying

Toshio KAWANO¹, Masaharu KITANO¹, Takahisa MATSUOKA¹,

Katsumi ISHIKAWA¹ and Yoshio HIKIDA²

¹Faculty of Agriculture, Kochi University, Monobe 200, Nankoku, 783-8502 Japan

²Faculty of Agriculture, Ehime University, Tarumi 3-5-7, Matsuyama, 790-8566 Japan

Abstract

For the purpose of monitoring the interior state of 'Shiitake' mushrooms during drying, especially for estimating the moisture conditions, electric impedance of the cap was measured in a frequency range of 42Hz to 5MHz and in a moisture range of 133.1% d.b. to 1671% d.b.

Cole-Cole plots showed that the circular-arc shape in the plot-curve characteristic of agricultural products disappeared as drying progressed.

The dependency relationship plots of logarithmic resistance to moisture content were divided into two parts at the turning point; one showed linear relationships and the other exponential. A moisture estimating formula at 42Hz of measuring frequency was proposed and its parameters were calculated by the non-linear curve fitting method. The formula had an estimation error of 10.0% in the higher moisture region of more than 590.2%, d.b. and 17.4% in the areas with a moisture content below that threshold on an average relative error basis.

Keywords: drying, electric impedance, monitoring, 'Shiitake' mushrooms

緒 言

乾燥中のシイタケ子実体(以下、シイタケとする)の状態をモニタリングすることは品質の良い乾燥シイタケに仕上げるために欠かせない。シイタケはほだ木の置かれた環境や収穫時期によって、雨子や日和子と呼ばれるように、初期含水率にばらつきを生じやすいため、標準的な乾燥温度プログラムはあっても万能ではなく、乾燥するシイタケの状態をモニタリングしな

がら適切な乾燥処理を行わなければ良質の乾燥シイタケの歩留まりを高めることは難しい。乾燥過程での色や形のモニタリングは画像処理に行うことができる。しかし、乾燥中のシイタケの内部状態はNMRやその他の大型機器によらねば知ることとはできず、乾燥器のように小型で安価な機器にはそぐわない。

物体の内部状態を簡便にモニタリングする方法としてインピーダンス特性を利用する方法が多方面で活用されている。インピーダンスの等価回路モデルとして現在でもよく用いられるHaydenモデルを提案した、Haydenらによるジャガイモとアルファルファのインピーダンス特性に関する研究報告(Hayden *et al.*, 1969)を始めとして、梨(Kato, 1988)、リンゴ(Kato, 1989)、大根・かぼちゃ(Nakamura *et al.*, 1992)、炊飯米(Takeuchi and Toyoda, 2000)、カキ・桃(Kato, 1993)、人

2005年6月30日受付

2006年5月11日受理

Corresponding author: Toshio Kawano

(tkawano@kochi-u.ac.jp)

体 (たとえば Jakko and Robert, 1995), 魚肉 (Kato *et al.*, 2000a; 2000b), 樹木 (Yamaura, 2000; 2001a; 2001b) などである。これらのほとんどは高水分であり, Hayden の等価回路モデルによく適合するため, 得られた Hayden モデルのパラメーターを利用して鮮度や内部状態の推定が行われている。しかし, 乾燥の進行に伴い含水率が減少する乾燥シイタケの場合は, 乾燥の初期では Cole-Cole プロット上で Hayden モデルに特徴的な円弧状のインピーダンス特性を示すが, 含水率の低下に伴い Hayden モデルの適合性が低くなる。このため, シイタケの内部状態を非破壊でモニタリングするためには, 乾燥の進行に伴うインピーダンス特性の変化をもとに別の方法によって行う必要がある。

そこで本研究では, シイタケの内部状態のうち, 乾燥プロセスを制御する上で重要となる含水率をインピーダンス特性によって推定する方法について検討した。

材料および方法

実験材料のシイタケは平成 17 年 5 月高知県南国市で収穫したもの (初期平均含水率 1399% d.b., 標準偏差 116.5% d.b.) で, 1 回の乾燥実験で 25 枚使用し, 2 回反復して実験を行った。絶乾量の測定は, シイタケを 16 分割に裁断して 105℃・24h・0.009 kg/kg' 常圧定温乾燥する方法によりすべて行った。また, シイタケの大きさは 60 mm ± 3 mm のものを選別し, 計測径の位置に印をつけ, インピーダンス計測時の電極接触位置とした。未乾燥試料用の生シイタケ 5 枚を除く 20 枚の乾燥用シイタケは, プログラム制御乾燥器 (ASONE DO-450) 内で, 初期 40℃ から乾燥を始め, 2, 4 時間経過ごとにそれぞれ 10℃ 昇温させ, 7 時間乾燥を行った。この階段乾燥方式は, 生産現場での慣行乾燥方式に準じたものである。この乾燥の間, 温度のステップ上昇直前にシイタケを 5 枚ずつ, 室温 25℃ に設置した乾燥機内に図 1 に示す測定装置で 1 枚ごとのインピーダンスを測定し, その後質量計測を経て絶乾した。インピーダンス測定装置には非破壊接触式でインピーダンスを測定する方法を採用した。接触式のインピーダンスは, 接触圧力により変化するため, シイタケのかさ部直径方向を二枚の接触ステンレスシート (一辺 20 mm, 厚さ 0.5 mm) で挟み, 可動部横に取り付けたスケール (デジタルノギス, 日本測定具 PRO-MAX200R, 最小直読値 0.01 mm, 繰り返し精度 0.01 mm) によりバネの縮みが一定となるよう, ボルトの締め付けによってかさ部に荷重 (3.0N) を加える方式とした。なお, バネの縮みはあらかじめ荷重装置により測定したバネ定数をもとに 3.0N となる長さを計算により求めた。シイタケのインピーダンスは, 負荷電圧線と負荷電流線とを分離する 4 線方式のインピーダンス計 (HIOKI LCR HI-Tester Model

Fig. 1 Schematic diagram of the apparatus for measuring electric impedance of 'Shiitake' mushrooms

3532-50) により周波数 42Hz から 5MHz に亘る範囲で負荷電圧 0.5V で測定した。インピーダンス計測時には毎回, OPEN/SHORT 操作による計測系の寄生インピーダンス補正を行った。測定周波数は, 等間隔ではインピーダンス特性の一部に偏って計測をすることになるため, 42Hz から 5MHz の範囲を対数上で 100 等分した。

結果および考察

1. 慣行乾燥方式によるシイタケの乾燥特性

図 2 は, 慣行乾燥方式による階段昇温乾燥を行った場合の乾燥空気温度, 試料温度の変化及び初期含水率 1480% d.b. のシイタケの含水率変化である。また, 図 3 は含水率の経時変化から, 数値微分により求めたシイタケの乾燥速度特性である。40℃ から 60℃ まで温度をステップ上昇させる乾燥方法により乾燥速度が大きく変動することなく一定割合で乾燥速度が低下する傾向を示している。乾燥理論の点では, このような階段昇温方式による乾燥特性は, 各階段温度に対応した乾燥速度直線の折れ線をつづり合わせた形になるものと考えられる。しかし, 含水率の低下に伴い, 各階段温度での乾燥速度も順次低下し, また図 2 に見られるように, 乾燥空気温度の階段状の変化に対して試料温度の変化は緩やかなために, 理論から推察される折れ線の傾向が緩和され, 直線変化のように見えるものと考えられる。生産現場で行われる慣行の乾燥方式は経験的に乾燥速度が一定となることが知られている (e.g. Hirao, 1986) が, 乾燥速度曲線上からもその傾向が確認できる。図 3 によれば乾燥速度は 600% d.b. 前後を境として乾燥速度直線の傾きが変わっている。この傾向はシイタケの乾燥特性のモデル解析 (Kawano *et al.*, 2005) においても観測された結果である。乾燥速度の特性が変化す

Fig. 2 Changes of the sample temperature, moisture content and air temperature during drying (Sample initial moisture content: 1480% d.b.)

Fig. 3 Drying rate characteristics of Shiitake mushrooms

る境界含水率を求めるため、600% d.b. 以上のデータおよび600% d.b. 以下のデータについて次の直線回帰式へ最小自乗法により当てはめ係数を求めた。

$$-\frac{dM}{dt} = kM + b \quad (1)$$

その結果、600% d.b. 以上の含水率領域では $k = 0.372 \text{ h}^{-1}$, $b = -138.0\% \text{ h}^{-1}$, 600% d.b. 以下の含水率領域では $k = 9.128 \times 10^{-2} \text{ h}^{-1}$, $b = 27.44\% \text{ h}^{-1}$ が得られた。これらの回帰直線の交点により乾燥速度特性の変化する含水率を求めると590.2% d.b. となった。

2. 乾燥に伴うインピーダンス特性の変化

図4は、測定周波数を42 Hz から5 MHz の範囲で測定した含水率1671%, d.b. (無乾燥試料), 1061% d.b., 836% d.b., 512% d.b., 407% d.b. のシイタケのインピーダンス Z のレジスタンス R と容量リアクタンス X との関係を示した、Cole-Cole プロットである。農産物に限らず含水率の高い物質のインピーダンス特性は、一般に円弧状の特性曲線を示すことが報告されている (Fujii *et al.*, 1984; Kato, 1988; Kato, 1989; Nakamura *et al.*, 1992; Kato, 1993; Jakko and Robert,

Fig. 4 Electric resistance and reactance changes of Shiitake mushrooms with frequency at five different moisture contents (Cole-Cole plot)

Cm: Cell membrane capacitance
Ra: Extracellular fluid resistance
Rm: Cell membrane resistance
Rs: Intracellular fluid resistance

Fig. 5 Equivalent circuits suitable for biomaterials

1995; Kato *et al.*, 2000a, 2000b) が、シイタケの場合も収穫直後の無乾燥試料では図中に示すように円弧状の特性を示した。乾燥によって含水率が低下するに従い、インピーダンス特性曲線の円弧部分は次第に消失し、インピーダンスは大きくなる。乾燥速度特性からは590.2% d.b. を境に乾燥速度に違いが見られた。一方、インピーダンスの特性では512% d.b. 以下の領域では曲線にS字状の曲線は見られないのに比べ、836% d.b. 以上の領域では低周波においてS字状の曲線傾向が強くなり、512 ~ 836% d.b. の間にインピーダンス特性が変化する境界含水率が存在することを示唆している。すなわち、含水率の変化とインピーダンスの特性変化との間に相互に関連性のあることがわかる。

ところで、インピーダンスの特性を分析する上では、シイタケ

の細胞組織構造を考慮した等価回路を考える必要がある。図 5(A) は、生物材料の等価回路として基本モデルとなった Hayden の等価回路モデル (Hayden *et al.*, 1969) である。細胞組織は一般に $R_m \gg R_a$, R_s であるので (e.g. Zhang *et al.*, 1993; Repo and Zhang, 1993), シイタケの場合も同様に図 5(B) の簡略型の Hayden モデルを等価モデルとするのが適当と思われる。この簡略型 Hayden モデルのインピーダンス Z は、周波数依存部分である C_m を Z_m とインピーダンス表記すると、次のように表される。

$$Z = R - jX = \frac{R_a R_s + R_a Z_m}{(R_a + R_s) + Z_m} \quad (2)$$

周波数 f がゼロ (直流) の場合, Z_m は無限大となり, 全体インピーダンス Z の値は R_a 単体に等しく, 周波数 f が無限大になるにしたがって Z は C_m を除いた R_a と R_s の並列回路となる。(2) 式を解いて周波数 f を消去すると, 最終的にインピーダンスのレジスタンス R と容量リアクタンス X との間の周波数軌跡の方程式として次式が誘導できる。

$$\left\{ R - \frac{R_a(R_a + 2R)}{2(R_a + R_s)} \right\}^2 + X^2 = \left\{ \frac{R_a^2}{2(R_a + R_s)} \right\}^2 \quad (3)$$

これは円の方程式でその中心は R 軸上に存在することになる。しかし多くの測定例 (e.g. Sugiyama *et al.*, 1987; Nakamura *et al.*, 1992) が示すように, 一般には R と X の軌跡である Cole-Cole 円の中心は R 軸上にはなく, R 軸よりも下側となる。このような場合, 等価回路モデルのインピーダンス式は次式で表現できる (Yamamoto *et al.*, 1992)。

$$Z = R - jX = Z_\infty + \frac{Z_0 - Z_\infty}{1 + (j\omega\tau)^\beta} = Z_\infty + \frac{2r}{1 + (j\omega\tau)^\beta} \quad (4)$$

ここに,

Z_0, Z_∞ : 実測の R - X プロットから得られる Cole-Cole の円が R 軸上と交わる点 ($Z_0 > Z_\infty$)

α : Cole-Cole 円弧の中心角 ($^\circ$)

β : 中心角 α によって決まる係数 ($= \alpha / \pi, \Omega$)

ω : 角速度 ($= 2\pi f$, $\text{Rad} \cdot \text{s}^{-1}$) f : 測定周波数 (Hz)

τ : 時定数

r : Cole-Cole 円の半径 (Ω)

(4) 式中, r と β は Cole-Cole プロットの円弧の広がりを表す指標である。(3) 式と同様に (4) も同様に円の方程式であるが, 中心は R 軸より下となる。図 6 は試料のインピーダンス測定値全体のデータを用いて最小自乗法により計算した Cole-Cole 円の半径 r および β と含水率の関係を示したものである。半径 r , β 共に含水率の低下と共に増加し, Cole-Cole プロ

Fig. 6 Values of radius and β of Cole-Cole circle

ットの円弧が大きく広がると同時に中心点が R 軸上に近い位置に接近する傾向がある。

3. 含水率とリアクタンスの関係

試料インピーダンスは一般に含水率と温度との関数であるので, 温度変化による影響が少なからずあるが, ここでは温度履歴を生産現場での階段昇温方法を前提とすることで, 乾燥中のシイタケのインピーダンスを含水率の関数として求めることにする。

図 7, 図 8 に 42Hz, 13.66kHz, 1.536MHz におけるシイタケのリアクタンス X と含水率 M との関係, およびレジスタンス R と含水率との関係を示す。どちらの関係もきわめて傾向が似ており, 乾燥速度曲線で明らかになった, 乾燥特性の変化が起こる境界含水率である 590.2% d.b. 前後を境に曲線の傾向に変化が見られる。含水率とリアクタンスもしくは含水率とレジスタンスとの間の関係を定式化できれば, 含水率の推定に役立つと思われるが, 含水率変化に基づく等価回路素子の特性変化を考慮した等価回路の設計はたいへん困難である。そこでこれらの関係に対する実験式を求めて代用することとする。乾燥状態の変化に最も敏感な周波数は, 今回の測定範囲では 42Hz の時である。リアクタンスに比べ, レジスタンスは測定が容易であること, また 42Hz については低含水率でリアクタンスよりも, 電極分散による影響とも考えられるが, ばらつきが小さいことから, 含水率を推定する実験式の説明変数としてレジスタンス R を用いる。

図 8 のレジスタンス R の傾向は, 乾燥速度の低下傾向に変化の見られる境界含水率 M_{tp} を境として, 高含水率側では含水率 M の増加に対して指数関数的に R が減少する傾向を示し, 一方, M_{tp} よりも低含水率側では含水率の増加に伴い直線的に減少する傾向が見られる。そこでこれらの関係は次の実験式で表現できる。

$M > M_{tp}$ の時

$$\frac{\ln R - \ln R_\infty}{\ln R_{tp} - \ln R_\infty} = \delta \exp(-\varepsilon M) \quad (5)$$

Fig. 7 Relationships between electric reactance and moisture content of Shiitake mushrooms at three different measuring frequencies

Fig. 8 Relationships between electric resistance and moisture content of Shiitake mushrooms at three different measuring frequencies

$M \leq M_{tp}$ の時

$$\ln R = \ln R_0 - \gamma M \quad (6)$$

ここに、

R_{tp} : 境界含水率 M_{tp} の時のレジスタンス (Ω)

R_{∞} : 保水可能な最高含水率時のレジスタンス (Ω)

R_0 : 乾物のレジスタンス (Ω)

$\delta, \varepsilon, \gamma$: 係数

これらより、レジスタンス R から含水率 M を求める式として、次式を得る。

$R < R_{tp}$ の時 (R_{tp} は M_{tp} に対応するレジスタンス)

$$M = \frac{1}{\gamma} \ln \left(\frac{R_0}{R} \right) \quad (7)$$

$R \geq R_{tp}$ の時

$$M = \frac{1}{\varepsilon} \ln \left\{ \frac{\delta \ln \left(\frac{R_{tp}}{R_{\infty}} \right)}{\ln \left(\frac{R}{R_{\infty}} \right)} \right\} \quad (8)$$

Marquardt-Levenberg 法により M_{tp} を境とする二つの含水率領域の測定データをそれぞれ (7) 式と (8) 式に当てはめ、 R_{tp} , R_0 , R_{∞} , γ , δ , ε の値を推定した結果、 $R_{tp} = 1.491 \times 10^7$ (Ω), $R_0 = 1.236 \times 10^8$ (Ω), $R_{\infty} = 1.4426 \times 10^4$ (Ω), $\gamma = 3.583 \times 10^{-3}$, $\delta = 15.57$, $\varepsilon = 4.434 \times 10^{-3}$ を得た。図 8 にこれらの値を用いて (7) 式および (8) 式で計算した近似結果を実線で示す。図中の M_{tp} はシイタケの乾燥速度が変わり乾燥状態の変化の起こる境界含水率の推定値で、590.2% d.b. である。求められた係数を利用して実験式 (7) と (8) を使うことにより、シイタケのレジスタンスと含水率との間の傾向を表すことができた。実験式による含水率の予測値の、実測値に対する精度を評価するため、次式で表される平均相対誤差 E を求めることにする。

$$E = \frac{\sum_{i=1}^N \left| \frac{M_{est} - M_{mea}}{M_{mea}} \right|}{N} \times 100 (\%) \quad (9)$$

ここに、

M_{est} : 実験式による推定含水率 (% d.b.)

M_{mea} : 実測含水率 (% d.b.)

N : 直線部または曲線部のデータ数

E によれば直線部が $E = 17.4\%$ 、曲線部が 10.0% となり、含水率の低い領域で含水率の推定精度が低下している。

この方法を用いれば、たとえば乾燥機内にある複数枚のシイタケについてインピーダンスを代表的にモニタリングすることで、慣行の生産現場での階段昇温乾燥による乾燥中のシイタケの仕上がり具合 (乾燥速度や含水率のばらつき情報) を把握することができ、良質の乾燥シイタケを得ることができると思われる。

本研究ではかさ部直径間のみのインピーダンス特性からシイタケの含水率を推定する方法について検討した。今後の課題として、測定点として複数点とすることで含水率の推定精度を向上させる方法、および乾燥中のインピーダンス測定における温度の影響について検討することが必要である。この研究では、慣行の生産現場で行われている階段昇温乾燥法を前提に、含水率をインピーダンスのみの関数として検討し推定式を導き出した。一般にはインピーダンス特性は温度と含水率の関数と考えられるので、任意の乾燥履歴による含水率推定に用いるためには、多段階の恒温乾燥による乾燥特性と、それに伴うインピーダンス特性の変化に関する基礎データを蓄積し解析する必要がある。

また、低周波域での測定の場合、1) 電極と試料間の接触状態の影響を受けやすい、2) 測定系の近傍の誘電体や電磁誘導源の影響を受けやすい、3) 42Hzでの測定の場合には交流電源周波数に近く影響を受けやすいなどの、装置の構造や電磁的な環境に起因する外乱要素の影響が混入する可能性があるため、応用上はこれらの影響についても検討が必要である。

摘 要

乾燥中のシタケの内部状態、特に含水率状態をモニタリングする目的で、シタケのかさ部の電気インピーダンスを、周波数 42 Hz ～ 5 MHz、含水率 133.1% d.b. ～ 1671% d.b. の範囲について測定した。

Cole-Cole プロットの結果、農産物に特徴的なプロット上の円弧が乾燥の進行に伴い消失することがわかった。

電気インピーダンス対数値の含水率依存関係は、境界点で二つの部分、すなわち直線部分と指数関数の部分とに分割することができることがわかった。測定周波数 42 Hz に対する含水率推定式を提案し、パラメーターを非線形の当てはめにより求めた。その結果、提案した式は 590.2% d.b. 以上の含水率域で 10.0%、それ以下の含水率で 17.4% の相対誤差を持つことがわかった。

引用文献

- Fujii, Y., Hayashi, T., Yasuda, T. 1984. Nutritional diagnosis of phosphorus by electric impedance measurement in plant. *Japan. J. Soil Sci. and Plant Nutri.* 55(4): 305-310.
- Hayden, R. I., Moyse, C. A., Calder, F. W., Crawford, D. P., Fensom, D. S. 1969. Electric impedance studies on Potato and alfalfa tissue. *J. Experimental Botany* 20(63): 177-200.
- Hirao, T. 1986. The drying method of 'Shiitake' mushrooms. Nobunmyo, Tokyo, 1-172.
- Jaakko, M., Robert, P. 1995. Bioelectromagnetism: Principles and Applications of Bioelectric and Biomagnetic Fields. Oxford University Press. 1-512.
- Kato, K. 1988. Nondestructive measurement of fruits quality by electrical impedance (Part 1) -Relation between impedance parameters and freshness-. *J. Japan. Soc. Agr. Mach.* 50(6): 99-107.
- Kato, K. 1989. Nondestructive measurement of fruits quality by electrical impedance (2) -Influence of peel on measurement and calculation of internal properties-. *J. Japan. Soc. Agr. Mach.* 51(5): 55-61.
- Kato, K. 1993. Nondestructive measurement of fruits quality by electrical impedance (Part 3) -Internal quality evaluation by immersion comparison method-. *J. Japan. Soc. Agr. Mach.* 55(1): 75-83.
- Kato, K., Sakaguchi, M., OoI, Y., Maruo, S., Toyoda, K. 2000a. Measurement of the freshness of fish by impedance spectroscopy (Part 1) -Electrical characteristics of fish and selection of high frequency freshness indices-. *J. Japan. Soc. Agr. Mach.* 62(3): 76-83.
- Kato, K., Sakaguchi, M., OoI, Y., Maruo, S., Toyoda, K. 2000b. Measurement of the freshness of fish by impedance spectroscopy (Part 2) -Variation of high frequency freshness indices and estimation of ice storage time-. *J. Japan. Soc. Agr. Mach.* 62(5): 59-69.
- Kawano, T., Kitano, M., Matsuoka, T., Ishikawa, K. 2005. Analysis of the Drying Characteristics Model of 'Shiitake' mushrooms. *J. SHITA.* 17(3): 144-149.
- Nakamura, T., Yamamoto, Y., Song, Z., Yamamoto, T. 1992. New equivalent circuit for electrical impedance of botanical tissues. *The IEICE Trans. on Information and Systems, Part 2 (Japanese Ed.) Vol. J75 -D- II (No.11): 1975-1977.*
- Ousaka, T., Koyama, N., Osaka, T. 2003. Electrochemistry method -Basic measurement manual-. Kodansya Scientific, Tokyo, 1-199.
- Repo, T. and Zhang, M. I. N. 1993. Modelling woody plant Tissues using a distributed electrical circuit. *J. Exp. Bot.* 44(262): 977-982.
- Sugiyama, J., Hayashi, T., Hirouchi, H. 1987. Electrical impedance of Kiwi fruit (Studies on electrical quality evaluation of fruits and vegetables Part I). *J. Japan. Soc. Food Sci.* 34(11): 725-730.
- Takeuchi, R., Toyoda, K. 2000. Characterization of rice cooking process by electrical impedance measurements. *Bulletin of Gifu Woman' s College.* (29): 155-159.
- Yamaura, I., 2000. New century for human and plants (First Part). In: SAWS 2000 (Vol.11), ed. by Kikusui electric industry, Yokohama, 2-5.
- Yamaura, I., 2001a. New century for human and plants (Second Part). In: SAWS 2001 (Vol.12), ed. by Kikusui electric industry, Yokohama, 2-5.
- Yamaura, I., 2001b. New century for human and plants (Last part). In: SAWS 2001 (Vol.13), ed. by Kikusui electric industry, Yokohama, 2-5.
- Zhang, M. I. N., Willison, J. H. M., Cox, M. A., Hall, S. A. 1993. Measurement of heat injury in plant tissue by using electrical impedance analysis. *Can. J. Bot.* 71: 1605-1611.