

J. G. P. Verhey

*Department of Dairy Technology, Agricultural University,  
Wageningen*

## Vacuolenvorming bij het verstuiivingsdrogen

**Summary:**

**Vacuole formation during spray drying**



*Centrum voor landbouwpublikaties en landbouwdocumentatie*

*Wageningen - 1973*

2062310

ISBN 90 220 0441 4

De auteur promoveerde op 11 mei 1973 aan de Landbouwhogeschool te Wageningen op een gelijk-  
luidend proefschrift tot doctor in de landbouwwetenschappen.

© Centrum voor landbouwpublicaties en landbouwdocumentatie, Wageningen, 1973.

Niets uit deze uitgave mag worden verveelvoudigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk,  
fotocopie, microfilm of op welke andere wijze ook zonder voorafgaande schriftelijke toestemming  
van de uitgever.

No part of this book may be reproduced or published in any form by print, photoprint, microfilm  
or any other means without written permission from the publishers.

## Abstract

Verhey, J. G. P. (1973). Vacuolenvorming bij het verstuijingsdrogen (Vacuole formation during spray drying). Versl. landbouwk. Onderz. (Agric. Res. Rep.) 793, ISBN 9022004414, (vii) + 7 p, Eng. summary.

Also: Doctoral thesis, Wageningen.

Experiments with a pilot spray drier showed that vacuoles in spray-powder particles originate from air bubbles. These are dispersed in the liquid during spraying, before actual atomization. During drying, the air bubbles expand as a result of gradual solidification of the droplet surface ('case hardening') before drying is complete. The vacuole volume is governed by the degree of air incorporation (related to type and design of atomizer and properties of the feed liquid) and the bubble expansion (related, for instance, to inlet air temperature).

Vacuoles do not develop as a result of spontaneous boiling phenomena. Vacuole-free powders can be produced by replacing the air in the atomizer by steam.

Deze publikatie is een samenvatting van een onderzoek dat uitvoerig wordt behandeld in de volgende tijdschriftartikelen:

- I J. G. P. Verhey & W. L. Lammers: A method for the determination of the residual gas volume in dried milk products.  
Neth. Milk Dairy J. 24 (1970): 96-105.
- II J. G. P. Verhey: Air penetration into milk powder.  
Neth. Milk Dairy J. 25 (1971): 246-262.
- III J. G. P. Verhey: Vacuole formation in spray powder particles. 1. Air incorporation and bubble expansion.  
Neth. Milk Dairy J. 26 (1972): 186-202.
- IV J. G. P. Verhey: Vacuole formation in spray powder particles. 2. Location and prevention of air incorporation.  
Neth. Milk Dairy J. 26 (1972): 203-224.
- V J. G. P. Verhey: Vacuole formation in spray powder particles. 3. Atomization and droplet drying.  
Neth. Milk Dairy J. 27 (1973): 3-18.
- VI J. G. P. Verhey & W. L. Lammers: A method for measuring the density distribution among spray powder particles.  
Neth. Milk Dairy J. 27 (1973): 19-29.

# Inhoud

<b>1 Inleiding</b>	1
<b>2 Methoden</b>	2
<b>3 Resultaten en discussie</b>	3
3.1 Het restgasvolume (artikelen I en II)	3
3.2 Een hypothese omtrent vacuolenvorming (artikel III)	3
3.3 Nadere aanwijzingen en proef op de som (artikel IV)	4
3.4 Nader onderzoek (artikelen V en VI)	4
<b>4 Summary</b>	
4.1 Introduction	6
4.2 Methods	6
4.3 Results and discussion	6
4.3.1 The residual gas volume (papers I and II)	6
4.3.2 A model on vacuole formation (paper III)	6
4.3.3 Further information and proof (paper IV)	7
4.3.4 Other aspects (papers V and VI)	7

# 1 Inleiding

Dit promotieonderzoek werd verricht van 1966 tot 1972 op de afdeling Zuivelbereiding en Melkkunde van de Landbouwhogeschool (nu sectie Zuiveltechnologie van de vakgroep Levensmiddelen-technologie). Voor de keuze van het onderwerp waren verschillende aanleidingen.

Het was bekend, dat in poederdeeltjes, bereid door het verstuivingsdrogen van vloeistoffen zoals melk, vrijwel altijd holle ruimten voorkomen (vacuolen genaamd). De gevolgen van dit verschijnsel zijn doorgaans nadelig. Zo vergroten de vacuolen het soortelijk volume van een poeder en bemoeilijken ze het verpakken van het produkt in een zuurstofvrije atmosfeer. Bovendien was uit praktijkervaring bekend, dat bij het instantizeren (snel oplosbaar maken) van verstuivingspoeder een laag vacuolenvolume gewenst is.

Het was niet bekend, hoe vacuolen ontstaan, ook al vermeldde de literatuur enkele ervaringsfeiten zoals de invloed van het type verstuiver (hogedrukverstuiving levert soortelijk zwaardere poeders dan centrifugaalverstuiving), van de aard van de uitgangsvloeistof (vet- en watergehalte van melk) en de procesomstandigheden (o.a. groter vacuolenvolume bij hogere droogluchttemperatuur). Deze kennis was ontoereikend om de vacuolenvorming naar wens te kunnen beïnvloeden. Naast deze praktische informatie waren er ook nog gegevens, afkomstig van theoretische berekeningen en modelproeven. Het is echter uiterst moeilijk om langs deze weg het proces dicht te benaderen en de vorming van vacuolen kan daarbij onvoldoende worden bestudeerd.

Besloten werd dan ook tot een zo fundamenteel mogelijke experimentele aanpak, gebruik makend van de op het laboratorium aanwezige kleine verstuivingsdroger, die daarvoor constructief gewijzigd werd.

## 2 Methoden

Als grondstof voor het verstuivingsdrogen werd meestal ondermelk gebruikt, hoewel ook andere melkprodukten werden gedroogd alsook koffieextract, ei, zeep. In de verticale droogtoren (die oorspronkelijk alleen van centrifugaalverstuiving was voorzien) werden ook pneumatische en drukverstuivers toegepast. Allerlei procesomstandigheden werden in velerlei combinaties gevarieerd.

Een uiterst belangrijk analytische techniek was de mikroskopie, waaraan vooral vele kwalitatieve gegevens werden ontleend. Ook andere reeds bekende analysemethoden werden toegepast, o.a. voor het bepalen van het volume van de vacuolen per 100 g poeder.

Verschillende nieuwe methoden waren echter nodig. Eén daarvan was van doorslaggevend belang voor de verdere ontwikkeling van het onderzoek, en wel de bepaling van de hoeveelheid lucht die aanwezig was per 100 g poeder. Hiertoe werd een monster van het poeder in heet water opgelost, waarna in daartoe ontwikkelde apparatuur het volume en het zuurstofgehalte van de vrijgekomen lucht werd gemeten. Een andere nieuwe methode was het bepalen van de hoeveelheid koolzuur, die aanwezig was in poeders welke bereid waren in aanwezigheid van dit gas in de verstuiver. Van de overige nieuwe methoden vermeld ik nog de toepassing van densiteitsgradiënten voor de bestudering van de dichtheidsverschillen tussen individuele deeltjes.

Het onderzoek culmineerde in een wijziging van het proces van verstuivingsdrogen waardoor de bereiding van vacuolenvrije poeders mogelijk werd. Dit zal in het volgende hoofdstuk behandeld worden.

### 3 Resultaten en discussie

#### 3.1 Het restgasvolume (artikelen I en II)

Microscopisch lijken vacuolen op luchtbellen. Laat men de holle poederdeeltjes in water oplossen, dan blijven er ook meestal luchtbellen achter. Men kan zich gemakkelijk voorstellen, dat het produkt lucht opneemt tijdens het vernevelen en drogen, dat zich immers geheel in lucht afspeelt. Anderzijds kan men vermoeden, dat vacuolen ontstaan als gevolg van kookverschijnselen in de drogende druppels (de ingaande drooglucht heeft een temperatuur boven 150 °C). Zulke vacuolen zouden dan aanvankelijk geen lucht bevatten.

De behoefte om de hoeveelheid lucht in de vacuolen te meten, bracht vele analytisch-technische problemen met zich mee, maar nadat de methode ontwikkeld was, kon het z.g. restgasvolume (het volume van het gas dat uit het poeder kan worden geïsoleerd) met dezelfde nauwkeurigheid worden bepaald als het vacuolenvolume.

Om een indruk te krijgen van het restgasvolume in vers bereide poeders en de wijzigingen die daarin optreden bij bewaring, werd een proef uitgevoerd met een zestal poeders. Daarbij bleek o.a. dat in 'drukpoeder' (verkregen door drukverstuiving) de gemiddelde luchtdruk in de vacuolen doorgaans beneden 0,2 kg/cm<sup>2</sup> ligt, terwijl deze in 'wielpoeder' (centrifugaalverstuiving) meestal rond 0,5 kg/cm<sup>2</sup> bedroeg. Een vrij diepgaande analyse van de zuurstof- en stikstofpenetratie tijdens deze proef leerde, dat zuurstof aanzienlijk sneller binnendringt dan stikstof en dat een laag vetgehalte in het produkt de penetratie sterk vertraagt.

#### 3.2 Een hypothese omtrent vacuolenvorming (artikel III)

Een aantal sterke aanwijzingen omtrent het mechanisme van vacuolenvorming werd verkregen door het verband na te gaan tussen bepaalde procesvariabelen enerzijds en de volumina van vacuolen en rest-gas anderzijds.

Zo bleek dat het restluchtvolume (in vers poeder bestaat het restgas uit lucht) wel afhankelijk is van de eigenschappen van de te drogen vloeistof, en ook van de omstandigheden tijdens het vernevelen, maar niet van de omstandigheden tijdens de daarop volgende droging. Het restluchtvolume nam vooral af bij stijgende viscositeit van de vloeistof en het was voor wielverstuiving veel groter dan voor drukverstuiving. Het vacuolenvolume was altijd groter dan het restluchtvolume en het onderlinge verschil werd vooral bepaald door de droogomstandigheden: bij hogere inlaattemperaturen van de drooglucht nam het vacuolenvolume toe.



Hieruit kwam het volgende beeld naar voren: vacuolen bestaan uit luchtbelletjes die vóór de eigenlijke droging in de vloeistof geraken en tijdens het drogen nog uitzetten. Het vernevelen gaat blijkbaar gepaard met 'schuiming' en de mate van 'schuimvorming' hangt af van het type vernevelaar en van de vloeistof-eigenschappen, waaronder vooral de viscositeit. Het uitzetten van de luchtbelletjes wordt verklaard uit het krimpen van de drogende vloeistof. Dit klinkt tegenstrijdig, maar men moet zich voorstellen, dat tijdens de zeer snelle droging het oppervlak van de druppels verstart ('korstvorming') zoals door andere onderzoekers reeds was gevonden. Als er dan nog water verdampt uit het inwendige, terwijl de buitenkant niet meer krimpt of indeukt, wordt het volumeverlies binnen in de druppel gecompenseerd door expansie van de luchtbelletjes. Dit mechanisme treedt sterker op, naarmate de droging sneller geschiedt (hogere luchttemperatuur).

Aldus konden de eerdergenoemde waarnemingen verklaard worden.

### **3.3 Nadere aanwijzingen en proef op de som (artikel IV)**

Uit de voorgaande proeven waren reeds aanwijzingen verkregen, die er op wezen, dat de luchtinslag plaats vindt terwijl de vloeistof door de verstuiver stroomt, dus vóórdat ze in druppeltjes uiteenvalt. Om hieromtrent zekerheid te verkrijgen, werd in de verschillende verstuivers de lucht verdreven door koolzuurgas in te leiden. In de aldus bereide poeders vonden we dan inderdaad voornamelijk koolzuurgas in plaats van lucht.

Inmiddels was uit de hypothese reeds de conclusie getrokken, dat vacuolenvorming geheel zou kunnen worden voorkomen door de opname van gasbelletjes in de vloeistof te vermijden. Dit werd gerealiseerd door stoom in plaats van koolzuurgas in de verstuiver te injecteren. Er konden dan wel waterdampbelletjes in de vloeistof geraken, maar deze zouden daar snel condenseren. Inderdaad konden op deze manier vrijwel vacuolenvrije poeders worden bereid met elk type verstuiver. Deze gemodificeerde werkwijze die de naam 'luchtvrije verneveling' kreeg, trekt in de praktijk veel belangstelling.

Wellicht zal het ook mogelijk blijken om de lucht uit de verstuiver te verdrijven met vloeistof in plaats van stoom.

### **3.4 Nader onderzoek (artikelen V en VI)**

Experimenteel was aldus het ontstaan van vacuolen genoegzaam verklaard, maar toch werd daarnaast ook nog getracht om vanuit een theoretische benadering het proces beter te begrijpen. Hierbij bleek, dat de luchtinslag naar alle waarschijnlijkheid kan worden beschreven met de z.g. Kelvin-Helmholtz-instabiliteit, die kan optreden aan het lucht-vloeistof-grensvlak in de verstuivers.

Ook kon uit theoretische overwegingen worden afgeleid, dat de spontane vorming van dampbelletjes (koken) in de drogende druppeltjes nauwelijks een rol kan spelen. Dit stemt overeen met de resultaten van het luchtvrij vernevelen.

Een ander interessant aspect van het verstuiwingsdrogen is het temperatuurverloop in de drogende druppeltjes, ook al heeft dit met vacuolenvorming slechts zijdelings te maken. Ook hieromtrent werden proeven genomen, waarbij de tijdens het drogen optredende thermische inactivering van enzymen werd gemeten, waarvoor alkalische fosfatase en stremsel werden gekozen. De resultaten hiervan, aangevuld met andere gegevens, maakten het mogelijk om de 'drooggeschiedenis' van druppeltjes globaal grafisch weer te geven (het verloop van vochtgehalte en temperatuur als functie van de tijd). Er werden sterke aanwijzingen verkregen, dat het grootste deel van de waterverdamping plaats vindt bij zeer gematigde druppeltemperaturen, waarbij kookverschijnselen niet te verwachten zijn.

Tenslotte zij nog vermeld, dat tijdens het onderzoek op vele manieren is gebleken, hoezeer individuele deeltjes kunnen verschillen in diverse eigenschappen, zoals grootte, vorm, oppervlaktestructuur, breekbaarheid etc. Ook het vacuolenvolume van afzonderlijke deeltjes varieert sterk, en wel volgens bepaalde patronen die vooral samenhangen met het type verstuiver.

## 4 Summary

### 4.1 Introduction

Spray-dried powder particles are not usually solid, but hollow, because they contain vacuoles. The presence of vacuoles is a disadvantage, for instance, with gas packing and 'instantization' of the product.

The mechanism of vacuole formation had not seriously been studied, even though several empirical data were available. Theoretical calculations and model experiments have also yielded certain data. However I decided to investigate vacuole formation by a mainly experimental approach, making use of the modified pilot spray drier, available at the Dairying Laboratory of the Agricultural University, where these studies were carried out.

### 4.2 Methods

Most of the experiments consisted of spray drying concentrated skim milk under various conditions. Atomization took place with rotating discs, high pressure nozzles and two-fluid atomizers.

Of the different analytical techniques used in these studies, microscopy was most important. The development of a new method for measuring the residual gas volume of spray powders was of paramount importance. Several other new methods were employed, such as the measurement of residual carbon dioxide volumes and the application of density gradients for studying the density distribution over individual particles.

### 4.3 Results and discussion

#### 4.3.1 *The residual gas volume (papers I and II)*

Since atomization and spray drying take place in the presence of air, vacuoles might be just air bubbles. On the other hand boiling phenomena inside droplets could cause vacuole formation. Thus the amount of air present in the vacuoles immediately after drying, was measured.

It was found that the initial air pressure in the vacuoles was always well below atmospheric. Further measurements during storage of the powders yielded a better insight into the penetration of oxygen and nitrogen into milk powders.

#### 4.3.2 *A model on vacuole formation (paper III)*

A study of the relationships between certain process variables and the volumes of vacuoles and air resulted in some valuable indications. The volume of residual air was a function of properties of the feed liquid (especially viscosity) and of the conditions during atomization. This suggested a process of 'foaming' that occurs during atomization.

The vacuole volume was always larger than the residual air volume and the mutual difference mainly depended upon the drying conditions: higher air temperatures resulted in larger vacuole volumes. Apparently the air bubbles incorporated into the feed liquid during spraying, expand during drying. This could be explained by 'case hardening'. Shrinkage of the droplet surface becomes increasingly difficult as the surface solidifies during drying. The removal of water from the droplet's interior will then cause the air bubbles to expand.

#### 4.3.3 *Further indications and proof (paper IV)*

Carbon dioxide was flushed into the various atomizers. Powders prepared in this way were found to contain mainly this gas rather than air.

When steam was introduced into the atomizers instead of carbon dioxide, the powders contained hardly any vacuoles. Apparently the steam bubbles condensed before they could cause vacuole formation.

This modified process was called 'air-free atomization' and is expected to be applied in practice in the near future.

#### 4.3.4 *Other aspects (papers V and VI)*

In addition to the experimental studies some brief theoretical considerations proved useful. The incorporation of air during atomization as well as the absence of spontaneous boiling during drying agreed with theoretical expectations.

The results of experiments on enzyme inactivation during spray drying, together with a combination of literature data, allowed an approximation of the 'drying history' of droplets. There were clear indications that most of the water evaporates while the droplet temperature is rather low.

Individual powder particles may differ in many properties. The distribution of the vacuole volume among particles shows certain patterns that are primarily governed by the type of atomizer.