

封面：

分类号_____

密级_____

U D C _____

编号_____

厦 门 大 学

博 士 后 研 究 工 作 报 告

干燥工艺对烟丝热解条件下挥发分的影响研究

陈国钦

工作完成日期 2016年12月25日

报告提交日期 2017年1月5日

厦门大学

年 月

题名页

干燥工艺对烟丝热解条件下挥发分的影响研究

Study the effect of drying technology on the volatility component of cut tobacco under pyrolysis condition

博 士 后 姓 名 陈国钦

流动站（一级学科）名称 厦门大学化学化工学院

专 业（二级学科）名称 化学工程与工艺

研究工作起始时间 2015 年 1 月

研究工作期满时间 2017 年 1 月

厦 门 大 学

年 月

厦门大学博士后研究工作报告

著作权使用说明

本人完全了解厦门大学有关保留、使用博士后研究工作报告的规定。厦门大学有权保留并向国家主管部门或其指定机构送交该报告的纸质版和电子版,有权将该报告用于非赢利目的的少量复制并允许该报告进入学校图书馆被查阅,有权将该报告的内容编入有关数据库进行检索,有权将博士后研究工作报告的标题和摘要汇编出版。保密的博士后研究工作报告在解密后适用本规定。

本研究报告属于: 1、保密 (), 2、不保密 ()

纸本在 年解密后适用本授权书;

电子版在 年解密后适用本授权书。

(请在以上相应括号内打“√”)

作者签名: 日期: 年 月 日

导师签名: 日期: 年 月 日

摘要

干燥技术贯穿于烟叶原料、卷烟产品加工过程中的各个阶段，如制丝环节中的滚筒干燥。在干燥脱水过程中，烟丝经历了含水率和温度的变化直接影响着烟丝的物理结构、化学特性，进而对卷烟成品感官品质产生影响。本文旨在深入了解烟丝滚筒干燥过程传热传质规律基础上，系统研究干燥工艺对烟丝热处理/热解条件下挥发分的变化影响，为进一步深入认识干燥工艺对烟丝感官质量影响机制提供数据参考与理论支撑。项目主要研究成果如下：

1. 基于“微分”理念自行设计搭建了一座实验室小型滚筒干燥平台。该装置所能调节的操作参数范围与实际卷烟生产过程中的基本符合，可针对烟丝在滚筒中的传热传质特性进行相关实验研究。经过多次测试调节，表明所设计的实验设备结构合理、运行可靠，测量方法可行，能够为具体实验研究提供稳定的运行条件。

2. 建立烟草加热下挥发性香气物质捕集装置、检测系统及方法。该捕集装置能够在热解反应管中放置较多的烟草样品量，以及捕集香气物质含量更高；其次检测方法采用气相色谱-质谱联用法，能够得到准确的定性结果。

3. 利用湿度发生器联用热重装置，研究了不同温湿度条件下片烟的干燥特性，并利用 REA 模型及常规经验模型进行对比分析。结果表明 REA 模型可抓住物料干燥特性的独有特点，可以预测不同温湿度条件下烟草的干燥特性，弥补了常规经验模型的不足。

4. 研究并建立了烟丝滚筒干燥 REA 动力学模型。结果表明同一套 REA 动力学参数能够描述不同部位烟丝的滚筒干燥动力学。

5. 利用实验室小型滚筒干燥平台，系统研究了不同干燥工艺条件对烟丝干燥特性的影响规律，结果表明筒壁温度对烟丝的干燥特性影响最为显著。

6. 利用带阱顶空-气相色谱-质谱连用装置模拟烟丝干燥过程及后续热处理过程，并在线分析了干燥过程和热处理过程中挥发分的损失情况。随着干燥温度升高，干燥过程挥发分的损失量逐渐增加，热处理/热解过程不同香味成分的释放规律不同。通过对比分析干燥过程与热处理/热解挥发分的释放规律，提供了 18 种香味成分作后续补香参考。

7. 系统研究了不同烟丝样品在不同干燥强度（筒壁温度）下的感官特性、烟丝热处理/热解挥发分的变化规律。结果表明：随着加工强度的增强，不同烟丝样品热处理过程挥发性释放规律有所差别，其中翠碧一号烟丝的香味成分呈先增加后降低的趋势，与感官评析结果变化趋势一致。津巴布韦的香味成分呈降低的趋势，而其它烟丝样品则呈增加的趋势。因此可根据不同的烟叶特性选择不同干燥加工强度以得到理想的卷烟香味风格。

关键词：烟草；微分滚筒干燥器；干燥动力学；REA 模型；热解；香味成分

Abstract

Drying process of cut tobacco using the rotary dryer is the one of important process in cigarette factory. The tobacco fibers' temperature and water content changes in the drying process, affecting the physical, chemical and sensory characteristics of the cigarette in the end. The purpose of this paper is to thorough understanding of the process characteristics of tobacco water content and surface temperature in the rotary dryer, and then system study the effect of drying process on the pyrolysis component of cut tobacco, in order to provide reference information and theoretical support to further understand the influence mechanism of drying process on tobacco sensory quality. The main results obtained are as follows:

1. Here, we show an idea that would only look at one differential section of a lab based rotary dryer that has similar diameter but is only a fraction of the length of that in industry. Ranges of the cylinder technical parameters which this device could adjust were in line with the actual process of cigarette production. The structure of laboratory equipment is reasonable, operation is reliable, and measurement method is feasible, which can provide a stable operating condition for experimental study.

2. A trap device, testing system and methods for volatile aromatic component of tobacco under heating was establish. The capture device can be placed more tobacco samples in the pyrolysis reaction tube, and the capture more aroma substances under heating not o combustion.

3. A modular humidity generator combined with TGA was applied to investigate the drying kinetic behavior of tobacco. Experimental data with REA model and eight thin layer drying models were evaluated at different temperature and humidity conditions. REA model is simple, robust and able to capture the drying characteristics of tobacco and unaffected by the drying conditions. REA model is more practical and universal than Two Term model.

4. Here, a 'differential' laboratory rotary dryer was designed to investigate the drying characteristics of cut tobacco to simulate that in industrial production. Uniquely, the drying kinetics was captured using the Reaction Engineering Approach (REA) on such a device. Though different settings were applied, the model can be used to describe the data well. This study shows the complex process can be describe using a simple model approach.

5. System studies the effect of tobacco drying conditions (wall temperature, air temperature, air

flow rate and relative moisture) on the tobacco drying properties. The result show that: cylinder wall temperature has a direct and significant impact on the heat and mass transfer characteristics of the tobacco in rotary.

6. The aroma components of cut tobacco dried under different intensities were determined by a purge and trap-gas chromatography-mass spectrometry method. The results showed that the numbers of aroma components released as the temperature rising, and the number and content of aldehydes and ketones compound increased in all. With the drying temperature rising, the total release quantity of volatile components decreased, but different release trend. Based on the compare analysis of volatile components to the drying process and pyrolysis process, 18 kinds of aroma components were provided as reference for subsequent filling incense.

7. The influence of different drying intensity on the sensory characteristics and pyrolysis components of tobacco were performed in a lab-scale cylinder dryer. The total quantity of flavor components increased at first and then decreased on “CB”, and the JinBaBuWei changed increased gradually, however, other samples decreased gradually with increased drying temperature. Therefore, it is recommended that for obtaining cigarettes of an ideal flavor style, cut strips should be dried by proper means under proper intensity according to the characteristics of tobacco leaves.

Keywords: Tobacco; ‘differential’ laboratory rotary dryer; Drying kinetic; REA model; pydrolysis; flavor component

说 明

博士后研究工作报告的排版以全国博士后管理委员会办公室制定的统一格式为准（参见以上排版范例），研究报告封面统一以彩色羊皮卡纸制作，颜色不限，内页用纸为普通 A4 打印纸，单面或双面打印不限，正文字体为宋体小四。

为更好地保护博士后研究报告的著作权，请各位博士后在博士后研究工作报告中文摘要前加做《厦门大学博士后研究报告著作权使用声明》（具体格式见附件 2），并在该声明中明确保密年限。

出站时，提交 1 份研究报告至厦门大学图书馆，2 份给厦门大学人事处博士后管理办公室（学校定期提交给国家图书馆）。

厦门大学博硕士论文摘要库

目录

摘要	I
Abstract	III
目录	VI
一、前言	1
二、国内外研究现状及趋势	2
2.1 烟草干燥动力学研究	2
2.2 干燥工艺对烟丝物理结构的影响研究	5
2.3 干燥工艺对烟丝化学成分的影响研究	5
2.4 干燥工艺对烟丝感官特性的影响研究	7
2.5 目前研究存在的问题	8
三、项目主要研究内容	14
四、项目研究平台的建立	16
4.1 微分滚筒干燥器的研制	16
4.1.1 微分滚筒干燥器的设计原理	17
4.1.2 滚筒的设计	18
4.1.3 湿热空气控制及输送系统	20
4.1.4 排潮系统	20
4.1.5 PLC 控制系统	21
4.1.6 装置运行过程参数监测情况	22
4.2 烟丝加热下香味成分的捕集装置及检测方法	24
4.3 小结	25
五、烟草热解燃烧过程香味成分的释放变化	27
5.1 材料、仪器与方法	27
5.1.1 材料和仪器	27
5.1.2 方法	28
5.2 结果与讨论	28
5.2.1 不同热解燃烧温度段后烟丝外观形态	28
5.2.2 烟丝的热重实验	29
5.2.3 不同温度段烟丝热解燃烧后的焦油释放量	30
5.2.4 不同温度段烟丝热解燃烧香味成分的释放量	31
5.2.5 不同香味成分的释放形式对比	36
5.3 小结	37
六、不同温湿度条件下片烟干燥动力学研究：REA 模型与薄层干燥模型的对比	39
6.1 材料、仪器与方法	39
6.1.1 材料和仪器	39
6.1.2 方法	40
6.1.3 REA 干燥模型	41
6.1.4 八种薄层干燥模型	43
6.2 结果与讨论	44
6.2.1 不同温湿度条件下片烟的干燥特性曲线	44
6.2.2 REA 干燥模型拟合结果	45

6.2.3 八种薄层干燥模型拟合结果	47
6.2.4 REA 模型与 Two term 薄层干燥模型的对比	49
6.3 小结	49
七、烟丝滚筒干燥特性.....	52
7.1 材料、仪器与方法.....	52
7.1.1 材料和仪器	52
7.1.2 方法	52
7.2 结果与讨论.....	53
7.2.1 筒壁温度对烟丝含水率的影响	53
7.2.2 热风温度对烟丝含水率的影响	54
7.2.3 热风风量对烟丝含水率的影响	54
7.2.4 相对湿度对烟丝含水率的影响	55
7.2.5 烟丝干燥过程中含水率与表面温度的关系.....	55
7.3 小结	57
八、烟丝在滚筒中的干燥动力学模型：REA 模型	58
8.1 材料、仪器与方法.....	59
8.1.1 材料和仪器	59
8.1.2 方法	59
8.1.2 REA 模型	60
8.2 结果与讨论.....	62
8.2.1 烟丝滚筒干燥特性	62
8.2.2 烟丝滚筒干燥的 REA 模型.....	66
8.2.3 REA 模型验证	70
8.3 小结	71
九、烟丝滚筒干燥加工强度的数值化表征方法.....	77
9.1 方法	78
9.2 结果与讨论.....	79
9.2.1 翠碧一号上部烟不同加工强度下的差异度.....	79
9.2.2 翠碧一号中部烟不同加工强度下的差异度.....	80
9.2.3 翠碧一号下部烟不同加工强度下的差异度.....	81
9.2.4 加工工艺对烟草差异度的影响程度分析.....	83
9.3 小结	83
十、加工强度对干燥与热处理/热解过程挥发分的释放影响	85
10.1 材料、仪器与方法.....	85
10.1.1 材料和仪器	85
10.1.2 干燥实验方法	86
10.1.3 气质联用分析条件.....	86
10.2 结果与讨论.....	86
10.2.1 分析方法重复性	86
10.2.2 顶空干燥条件的确定.....	87
10.2.3 热处理条件的确定.....	87
10.2.4 高温热解条件的确定.....	90
10.2.5 加工强度对干燥过程中挥发分的影响.....	91
10.2.6 加工强度对烟丝热处理挥发分的影响.....	93

10.2.7 干燥过程与热处理过程释放的挥发分的相关性.....	95
10.2.8 加工强度对烟丝高温热解挥发分的影响.....	98
10.2.9 加工强度对不同部位、产地和香型烟丝热处理过程挥发分的影响.....	98
10.2.10 加工强度对不同部位烟丝感官质量的影响.....	102
10.3 小结	103
十一、结论与展望.....	105
11.1 主要结论.....	105
11.2 创新点	107
11.3 项目展望.....	107
致谢	109
博士后期间发表的学术论文和专利.....	110
作者简介.....	111

一、前言

干燥作为一种古老而通用的单元操作。从农业、化工、医药、食品、陶瓷、矿产加工再到制浆造纸、木材加工等诸多领域都有广泛的应用。干燥技术直接影响到产品的性能、质量及过程的能耗等，在生产加工行业中扮演着举足轻重的角色。

干燥的主要目的是为了去除物料中的水分，以便储藏、运输及改善产品品质等。在卷烟加工过程中，干燥技术贯穿于卷烟生产过程中的各个阶段。烟草原料从采收后的初级农产品转变为适宜于卷制的成品烟丝，要经历多道干燥加工工序，如打叶复烤阶段对烟片、烟梗的干燥，制丝工段对叶丝、梗丝的干燥等等。在这些干燥加工过程中，一方面烟草原料在温湿度变化所产生的应力作用下，其填充性、弹性、尺寸分布和密度等物理性质方面会发生显著变化；另一方面热处理环境中烟草中部分低沸点化学分析出以及美拉德反应等化学过程也会使得其化学性质发生一系列变化。由于干燥工序对烟草物理和化学特性变化的影响，会最终影响卷烟产品的感官质量。长期以来，烟草干燥的研究和探讨一直受到国内外烟草工作者的高度重视。

二、国内外研究现状及趋势

2.1 烟草干燥动力学研究

干燥动力学实验的目的主要是测定物料平均含水率和平均温度（通常是测定物料的表面温度）随时间而变化的试验数据，再根据这些数据绘制出物料的干燥特性曲线。影响因素主要包括两个方面^[1]：一方面是干燥介质性质和外部环境条件，如热空气的温度、湿度、气速及外部给热条件等；另一方面是物料本身的性质、构造、形状和大小等。

干燥是一个复杂的多物理场耦合的现象，包括材料内部的能量、质量以及动量的传递过程和材料表面与外界环境之间的热质交换过程。理论上讲，干燥过程中发生的这些复杂物理过程均应展现在其相应的数学理论模型中，但是由于数值计算的复杂性，其中的某些过程往往会被简化。综观干燥理论的发展历史，科研工作者相继提出了液态扩散理论、毛细理论、蒸发冷凝理论、Luikov理论、Philip与De Cries理论、Krischer与Berger理论等来描述干燥中的质量传递过程。已成为众多研究人员建立不同物质干燥过程中热质传递理论模型的基础和依据。但用于描述不同物质的干燥过程时各有特点及局限性。上述连续介质理论的湿分迁移形态、迁移驱动力的比较见表1^[2]。

表1 干燥理论比较

理论类型	提出时间	代表学者	迁移形态	迁移动力
液态扩散理论	1921	W.K.Lewis	液态	浓度梯度
毛细管理论	1907	E.A.Buckingham m	液态	毛细势
蒸发-冷凝理论	1939	P.S.H.Henry	液态 蒸汽	压力梯度 温度梯度
Luikov 理论	1964	A.V.Luikov	蒸汽 液态	温度梯度 浓度梯度
Philip、DeVries 的理论	1957	J.R.Philip D.A.De Vries	蒸汽 液态	压力梯度 浓度梯度 温度梯度
Krischer、Berger 以及 Pei 的理论	1963	O.Krischer D.Berger	蒸汽	浓度梯度 压力梯度

D.C.T.Pei 液态 浓度梯度

许多学者^[3-6]在应用扩散理论对谷物和食品等的干燥过程进行数值预测的研究中,根据不同的研究对象,基于扩散模型开展了众多半经验与经验模型的研究(见表1.2所示),并通过非线性拟合的方法获取模型中相关关键参数,建立干燥条件和处理物料性质之间的相关联系。

表2 干燥动力学的半经验与经验模型研究汇总

Model name	Model	Reference
Newton	$MR=\exp(-kt)$	[7-10]
Page	$MR=\exp(-kt^n)$	[11-14]
Modified Page	$MR=\exp[-(-kt)^n]$	[15-18]
Modified Page	$MR=\exp[-(-kt)^n]$	[19-21]
Henderson and Pabis	$MR=a\exp(-kt)$	[22-26]
Logaritmnic	$MR=a\exp(-kt)+c$	[27]
Two term	$MR=a\exp(-k_0t)+b\exp(-k_1t)$	[28-30]
Two term exponential	$MR=a\exp(-kt)+(1-a)\exp(-kat)$	[31-34]
Wang and Singh	$MR=1+at+bt^2$	[35]
Thompson	$t = b \ln(MR) + b[\ln(MR)]^2$	[36, 37]
Diffusion approximation	$MR=a\exp(-kt)+(1-a)\exp(-kbt)$	[38, 39]
Verma et al.	$MR=a\exp(-kt)+(1-a)\exp(-gt)$	[40]
Modified Henderson and Pabis	$MR=a\exp(-kt)+b\exp(-gt)+c\exp(-ht)$	[41]
Midilli et al.	$MR=a\exp(-kt^n)+bt$	[23]

众多学者针对滚筒内物料的干燥特点,选择了上述一些薄层干燥模型来指导工业生产和滚筒设备设计。Math H G Jennekens^[42]考察了不同相对湿度条件下对物料的平衡含水率,通过热量衡算得出不同相对湿度条件下干燥过程需要的温度,滚筒进口气体的相对湿度。通过一定条件下物料脱水量的计算,获得滚筒的

设计参数,如长度、直径、加料速率、热源功率。Pelegrina A H 等^[43]设计了一种由多个批式干燥单元组合而成的半连续滚筒装置。通过回归的方法,建立了热风温度、热风湿度和含水率之间的简单经验方程作为描述滚筒干燥过程的模型。Rastikian K 等^[44]通过批式实验研究滚筒干燥过程物料的干燥动力学,利用批式实验物料含水率变化规律去表征滚筒中物料含水率变化。通过对批式实验数据的拟合,建立描述滚筒干燥过程物料含水率变化的模型。Murat Özdemir 等^[45]考察了滚筒烘焙过程中初始含水率对坚果干燥特性的影响,通过干燥对干燥过程中坚果各种关键指标成分变化量的分析,获得干燥时最佳的初始含水率。试验中发现水分扩散系数和温度之间的关系符合阿伦尼乌斯形式的关系式,Two-Term 薄层干燥模型能够准确描述坚果烘焙过程。顾中铸等^[46]利用自行设计、安装、调试了一座实验台考察了烟丝的滚筒干燥特性。实验特根据滚筒干燥过程中处于动态干燥的事实,加入了烟丝松散单元,更加贴近实际的模拟了滚筒内的热质交换规律。研究指出,烟丝干燥过程分为恒速和降速两个阶段,恒速阶段干燥速率主要取决于外部干燥条件,降速干燥阶段取决于烟丝本身的物料特性。Siew Kian Chin 等^[47]利用一种具有循环热风的干燥箱,考察灵芝的干燥动力学特性。针对生产中干燥灵芝的滚筒内部结构较大,难以取样获得灵芝干燥曲线的难题。此外,他们还利用这种具有循环热风系统的干燥箱模拟滚筒的内部干燥环境,得到不同干燥条件下的干燥曲线,并用 Newton、Page、Two-term 和 Midilli-Kunck 薄层干燥模型分别对试验数据进行拟合,通过统计方法,确定 Midilli 干燥模型可以较为准确的预测灵芝的干燥过程。王瑾等^[48]以辊式布料的单滚筒干燥机为对象进行南瓜浆滚筒干燥试验,探讨了滚筒干燥过程中物料的干燥动力学特性及其干燥动力学模型,测定了不同蒸汽压力下物料的含水率,分析了干燥速率随蒸汽压力和时间变化规律。结果表明:物料中的水分大部分在浆状区散失,蒸汽压力越高,干燥速率越快;物料在膜状区中为降速干燥阶段,蒸汽压力越高膜状区起始含水率越低,起始阶段的干燥速率越慢,干燥速率下降也越慢,干燥时间越短。Midilli-Kucuk 模型可以很好的预测南瓜浆滚筒干燥的动力学特性。

综上所述,研究者考察了不同干燥条件下样品水分传递规律的影响,多数研究是基于扩散模型或根据修正的扩散模型描述了不同干燥条件下物料的传质传热特性。其次,在滚筒干燥过程中,由于受设备结构的限制,无法在线监测滚筒

内部物料的干燥过程。目前,研究者依据滚筒干燥过程特点,采用离线分析的方法,即通过设计与工业设备干燥原理接近的小型实验装置,模拟工业装置的内部干燥环境,进行离线的干燥动力学试验。通过试验得到相应的干燥动力学曲线,并通过选择最优的薄层干燥模型来表征物料的干燥过程水分迁移规律。

2.2 干燥工艺对烟丝物理结构的影响研究

烟丝干燥过程中,除了会引起烟丝含水率和温度的变化外,同时也会使其物理性质发生较大的改变。温湿度变化产生的应力也会导致叶丝物理结构及力学性能的变化,进而影响填充性、弹性、结构等物理质量。叶丝结构变化影响烟丝在烟支中的燃烧状态(燃吸过程中温度分布),进而可能影响燃烧中化学反应的进行,从而影响卷烟的感官质量。目前较多的研究主要是关注叶丝填充性、弹性、叶丝尺寸分布等宏观物理性质的变化方面的研究。姚光明等人^[49]研究了了烤烟在滚筒和气流2种干燥方式不同加工强度条件下的叶丝填充值和整丝率变化。结果表明:在滚筒干燥过程中,较高的加工强度(即增大筒壁温度或热风温度)有助于增加烟丝填充值,但会导致烟丝耐加工性和整丝率降低。王岩等指出叶丝弹性随着筒壁温度的升高而降低,叶丝填充值随着筒壁温度的升高而升高。

在烟草加工过程中,叶丝孔隙结构与叶丝导热性及叶丝内部的流体透过性(渗透性)密切相关,叶丝孔隙结构的变化一方面会影响烟草热湿处理环节中传热传质过程及加香加料环节料液的吸收特性;另一方面,孔隙结构也与叶丝的燃烧特性密切相关。许冰洋等^[50]考察了叶丝干燥过程中内孔容积、叶丝体积、孔径分布及孔隙形貌等微观孔隙结构的变化特征,结果表明:滚筒干燥过程中内孔容积随含水率的降低均呈减小趋势,表明内部孔隙存在收缩现象,这与文献报道的果蔬、木材等热风干燥特性一致^[51]。生物多孔介质的干燥收缩现象多被归因于毛细管收缩应力^[52],即干燥过程物料内部孔隙内水分蒸发形成弯曲液面,液面表面张力使得孔内形成毛细管收缩应力,致使多孔材料产生收缩形变。

2.3 干燥工艺对烟丝化学成分的影响研究

烟丝作为典型的热敏性物料,在干燥脱水过程中,热处理显著影响其内部的美拉德反应、致香成分析出等化学过程。干燥工序对烟丝化学特性的影响方面,

Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to etd@xmu.edu.cn for delivery details.

廈門大學博碩士論文摘要庫