



Title	凍結濃縮における氷晶の生成制御と分離に関する工学的研究
Author(s)	山崎, 浩
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/41507
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed 大阪大学の博士論文について

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	山 崎 浩
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 14736 号
学位授与年月日	平成11年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科化学系専攻
学位論文名	凍結濃縮における氷晶の生成制御と分離に関する工学的研究
論文審査委員	(主査) 教授 平田 雄志 (副査) 教授 久保井亮一 教授 田谷 正仁

論文内容の要旨

凍結濃縮は水溶液中の一部の水を氷として析出させ、分離することにより濃縮する方法である。加熱蒸発と比較して必要エネルギーが約1/7であり、低温操作による優れたサニタリーセンスなどから極めて有用な技術である。しかし、製氷と生成した氷晶の分離に技術的課題が多く、実用化が遅れている。そこで、本研究では、氷の晶析現象の解明と装置開発の両面から検討を進めた。

本論文はアイスライニング法の考案によるジャケット付き攪拌槽の製氷と分離を一体化した凍結濃縮装置への転用について述べた。本法は、予め晶析槽内壁に氷の膜を形成させ、膜上にのみ氷晶成長を行う方法である。晶析条件の中で、ブライン温度と溶液冰点との温度差 ΔT より攪拌回転数 N の方が溶質分の氷晶層中への取り込みに対して影響が大きいことが分配係数 K の比較から明らかになった。また、形成した氷晶層断面の微細構造の観察から、溶質分は氷晶間に取り込まれることが示された。このように、本法は氷晶成長の制御は可能ではあるが、溶質分の氷晶層への取り込みによる回収率の低下および氷晶成長に伴う伝熱抵抗の増大による製氷速度の減少が難点である。そこで、この難点を克服するため内壁に形成した氷晶層をスクラーペーで搔き取る方法について検討した。

氷晶層を搔き取る際のトルク変化から溶液の種類により、hard iceとsoft iceの存在が明らかになり、それが製氷機の安定稼働の重要な因子の一つであることを示した。Soft iceを形成するNaCl溶液では内包液として氷晶間に取り込まれていることを示すDSC測定結果を得ている。

次に生成した氷を分離するために搔面型製氷機に縦型円筒フィルターを組み合わせた装置を試作し、凍結濃縮実験を行った。フィルター上部から排出される氷晶ケーキは氷晶含有率が約50%であり、その生成過程において氷晶粒子間の接触・融合による氷晶の肥大化現象が観察された。この現象は新しい知見であり、今後の展開が期待される。また、氷晶ケーキからの濃縮液の回収法としてカラムフィルターによる押し出し冷水置換が遠心分離と比較して格段に高い分離性を示し、その分離にKozeny-Carman式が適用できることを明らかにした。

論文審査の結果の要旨

凍結濃縮は製品劣化が極めて少ない省エネルギー濃縮技術として注目されているが、製氷と生成した氷晶の分離に

技術的課題が多いためにその実用例は少ない。本論文は、分離に適した氷晶の生成制御と分離技術の開発を目的として、氷の晶析現象の解明と装置開発の両面から研究を行い、得られた成果をまとめたものである。

過冷却状態の水溶液から2次核発生が生じない氷晶の生成法として、冷却ジャケット付き攪拌槽の内壁に予め氷の膜を形成し、水溶液からの氷の成長を氷膜上に限定できるアイスライニング凍結濃縮法を考案した。抗生物質の合成出発原料であるセファロスボリンC、イソプロピルアルコール、グルコースの水溶液を用いて凍結濃縮実験を行い、氷晶中への溶質の取り込み量に対する操作条件の影響を調べた。氷層断面の顕微鏡写真から、溶質は柱状の氷晶間隙に濃縮液として取り込まれることならびに弱い攪拌条件下では氷層界面形状が複雑となり溶質の取り込み量が多くなることを明らかにした。また、蒸発濃縮法に比べて溶質の劣化が殆どないことも確かめている。

アイスライニング凍結濃縮法では氷晶の成長に伴う伝熱抵抗の増大によって製氷速度が減少する。この欠点を克服するために、壁に形成した氷晶層をスクリーパーで搔き取る製氷装置の稼働安定性について検討し、溶質の種類によって氷晶層がhard iceとsoft iceに大別できることを見出した。水やセファロスボリンCの水溶液では搔き取りトルクが時間とともに増大するhard iceが形成し、このような強固な氷晶層の生成は水素結合やアミノ構造によるものと推定した。一方、NaCl溶液、イソプロピルアルコール溶液、グルコース溶液では、安定操業が可能なsoft iceが形成され、これらのsoft iceでは水和した溶質分子が氷晶間に取り込まれることを示すDSC測定結果を得ている。

次に、搔面型製氷機と側面にフィルターを有する縦型フィルターを組み合わせた装置を開発し、凍結濃縮実験を行った。側面フィルターを用いることによって氷晶体積分率50%の高密度ケーキが得られ、濾過過程において氷晶間の接觸・融合が進行して氷晶が肥大化することを見出した。この肥大化現象は氷の凝集やオストワルド効果による結晶の熟成とは異なる機構で進行し、新しい氷晶高速成長技術として期待される。また、カラムフィルターを用いた冷水置換は、遠心分離器と比較して格段に高い分離性を示し、ほぼ定量的な回収が可能となることを示した。

以上述べたように、本論文は申請者が開発した新規な冷凍濃縮技術に関する研究成果をまとめたものであり、工学的に多くの有用な知見を与え、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。