

# 水溶液を用いた氷膜の熱伝導現象に関する研究

システム工学群

ものづくり先端技術研究室 1180102 田村 健太

## 1. 緒言

濃縮とは、水溶液中の溶媒となる水分のみを回収することで水溶液濃度を高くする操作のことである。主な濃縮法として、加熱蒸発法、膜濃縮法、凍結濃縮法の3つがある。その中で、凍結濃縮法は、低温度下で濃縮操作を行えるため、食品分野において味や色、芳香成分の損失や微生物繁殖を抑えることができ、高品質な濃縮液が得られる。凍結濃縮法は、界面前進法と懸濁結晶法に分類され<sup>1)</sup>、両者の共通点として、濃縮装置の設計する上で、液状食品などの溶質全てを把握することが困難な水溶液において、形成される氷膜の物理的特性を予測する必要がある<sup>2)</sup>。しかし、形成される氷膜の物性値に関して十分に解明されておらず、氷膜の定量化が課題として挙げられる。このことより、本研究では氷膜の定量化を行う上で、多成分混合水溶液における氷膜の熱物性値の試算評価および試算モデルの確立を検討している。前段階として、氷膜の成長過程における水-氷界面温度の計測が困難であるため、氷の熱伝導率が既知である蒸留水を用いて、氷膜の水-氷界面温度の算出を試みた。その後、果汁の主成分の1つであるスクロース(C<sub>12</sub>H<sub>22</sub>O<sub>11</sub>)を用い、単成分水溶液における氷膜の熱物性値である熱伝導率の算出を検討した。また、攪拌時における氷膜内溶質含有率および氷膜熱伝導率への影響を調べた。

## 2. 氷膜の水-氷界面温度の算出実験

### 2.1 実験装置および方法

実験装置の概略を図1に示す。外部密閉系冷却水循環装置(ヤマト科学製, CF301)で冷却した冷媒で予冷し、断熱材(ダウ化工製)で覆った冷却装置に蒸留水 100ml 投入し、氷膜厚さを計測した。冷却面温度を温度センサ(アズワン製, MF-SP-T)とデータロガ(キーエンス製, NR-TH08, NR-500)を用いて1秒毎に、氷膜厚さについては1分ごとに計測した。また、蒸留水は氷膜内に蒸留水中に溶解した空気が含有しないように、真空ポンプ(アルバック機工製, DTC-21)を用いて脱気した。実験時間は30分間、実験場所は、5°Cの雰囲気温度管理下の恒温室で5回行った。

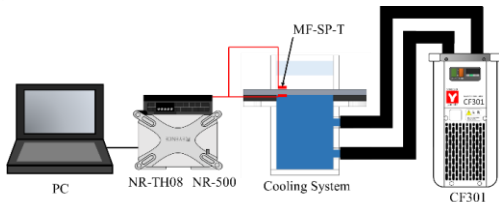


Fig.1 Schematic of experimental equipment

### 2.2 実験結果と考察

単純化された熱収支モデルを図2に示す。水-氷界面温度  $T'$  のとき、冷却面温度がそれより低い温度  $T_1$  の界面が時間とともに移動している。界面での熱移動は氷膜の熱伝導のみとし、水側からの熱移動はないものと仮定すると、界面での熱の釣り合いより、

$$\rho_i L \frac{ds}{dt} = \lambda_i \frac{(T' - T_1)}{ds} \quad (1)$$

と表され、境界条件  $t=0$  の時  $s=0$  で積分すると、

$$T' = T_1 + \frac{\rho_i L s^2}{2\lambda} \frac{1}{\tau} \quad (2)$$

$T'$ : 水-氷界面温[K]  
 $T_1$ : 冷却面表面温度[K]  
 $\rho_i$ : 氷膜密[Kg/m<sup>3</sup>]  
 $L$ : 潜熱量[kJ/kg]  
 $s$ : 氷膜厚さ[m]  
 $\lambda$ : 氷膜熱伝導率 [W/(m・K)]  
 $\tau$ : 時間[s]  
 と導出できる<sup>3)</sup>。

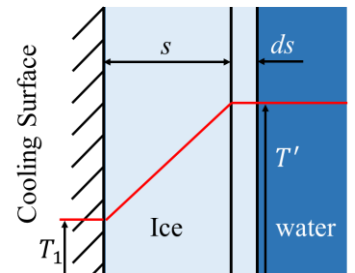


Fig.2 Heat balance model

表1に式(2)から得られた値を30分間の平均値とした水-氷界面温度を示す。得られた水-氷界面温度  $T'$  は、水の凝固点 273.15K とほぼ同様の値となった。蒸留水は、冷却すると過冷却状態を通過した後、凝固と伴って凝固熱が発生し、水-氷界面温度は凝固点まで上昇する。以上より、蒸留水の氷膜の水-氷界面温度は凝固点として考えられる。

Table 1 Experimental water-ice interface temperature

|           | 1st    | 2nd    | 3rd    | 4th    | 5th    | Ave.   |
|-----------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Temp. [K] | 272.91 | 273.68 | 273.23 | 274.28 | 272.77 | 273.37 |

### 3. スクロース水溶液を用いた氷膜熱伝導率算出実験

#### 3.1 実験装置および方法

実験装置の概略を図3に示す。CF301にて冷媒で予冷し、断熱材(日商エアロ製)で覆った冷却装置に、真空ポンプを用いて脱気したスクロース水溶液 125ml を投入し、攪拌機(IKA製, EUROSTAR 20 digital)と攪拌翼スパン 45mm で攪拌しながら氷膜厚さを計測した。アルミ板溶液冷却面温度を温度センサとデータロガを用いて1秒毎に計測し、氷膜厚さをカメラ(Canon製, EOS Kiss X4)とリモートコントローラー(ロジックジャパン製, Timing Remote Switch TC-2001)を用い、1分毎に撮影し、画像処理ソフトウェア ImageJ を用いて氷膜厚さを計測した。また、実験初期濃度、実験終了時濃度、氷膜を溶かした水溶液の濃度と質量を、デジタル屈折計(ATAGO製 RX-5000i-Plus)と電子天秤(AS ONE製, AXA)を用いて計測した。攪拌回転数は、表2に示す攪拌レイノルズ数を式(3)から決定した。実験時間は30分間、実験場所は5°Cの雰囲気温度管理下の恒温室で各条件3回ずつ行った。

Table 2 Stirred Reynolds Number

| $Re_r$ [-]   | 0 | 500 | 1000 | 1500 | 2000 | 2500 | 3000 |
|--------------|---|-----|------|------|------|------|------|
| $N_r$ [/min] | 0 | 47  | 74   | 110  | 147  | 184  | 221  |

$$Re_r = \frac{\rho N_r d^2}{\mu} \quad (3)$$

$Re_r$ : 攪拌レイノルズ数 [-]  $N_r$ : 回転数 [/min]

$d$  : 攪拌翼スパン[m]  $\mu$  : 粘度[Pa · s]

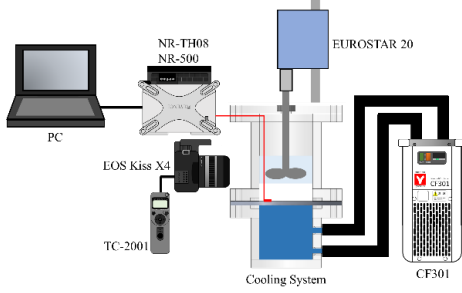


Fig.3 Schematic of experimental equipment

### 3.2 実験結果と考察

氷膜内スクロース濃度を図4に示す。スクロース初期濃度  $10^{\circ}\text{Brix}$  の時、 $Re_r = 0$  において平均  $9.84^{\circ}\text{Brix}$  のスクロースが含有しており、氷膜の成長により溶質が押し出されることなく、含有した状態で氷膜が形成されていることが確認された。また、攪拌レイノルズ数の増加に伴い、氷膜内のスクロース濃度は線形的に低下し、 $Re_r = 0$  と  $Re_r = 3000$  と比較すると、 $Re_r = 3000$  は約 30.5%氷膜内への含有を抑えられる結果となった。

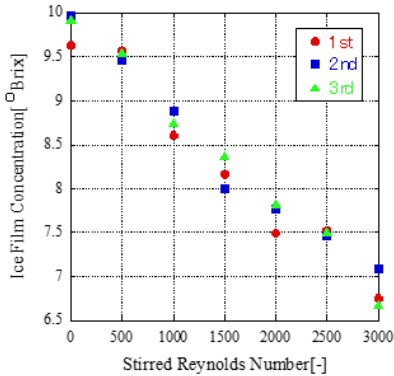


Fig.4 Sucrose concentration in ice

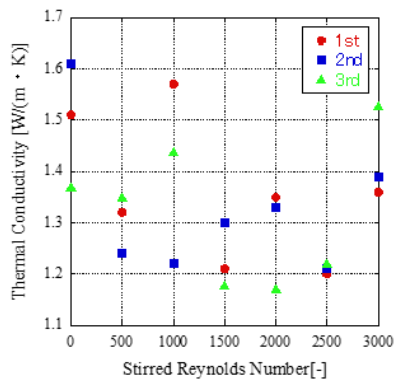


Fig.5 Ice thermal conductivity

水-氷界面温度を氷膜形成時のスクロース水溶液濃度における凝固点とし、計測氷膜厚さから算出した氷膜熱伝導率を図5に示す。 $Re_r = 0$  と  $Re_r = 3000$  を比較すると、攪拌レイノルズ数の増加に伴い、氷膜熱伝導率が低下した。これは、攪拌することで、氷膜内スクロース濃度が低下し、より純度の高い氷膜になることに矛盾する。このことより、氷膜内にスクロースと液体状態のスクロース水溶液が含有していると仮定して、計測した氷膜厚さから液体状態のスクロース水溶液を除き、補正をかける必要があると考えられる。

図6に氷膜内簡易モデルを示す。氷膜内に液体状態として含有する水溶液体積  $V'$  と氷膜体積  $V$  で構成されているとする。氷膜内温度を氷膜の水-氷界面温度  $T'$  と溶液冷却面温度  $T_1$  の平均温度  $T$  とすると、液体状態として含有するスクロース水溶液濃度  $x'$  は、先行研究で得られたスクロース水溶液の濃度別凝固点<sup>4)</sup>から得られた二次の多項式回帰曲線より、

$$x' = \frac{-0.03103 + \sqrt{0.00096304 - 0.00773(T - 273.01)}}{0.00386} \quad (4)$$

と表され、液体体積  $V'$  と氷膜体積  $V$  の比率より、

$$s' = \frac{\rho x}{\rho' x'} s \quad (5)$$

$\rho$  : 計測氷膜内スクロース濃度 [ $\text{kg}/\text{m}^3$ ]

$\rho'$  : 氷膜内に液体状態として含有するスクロース濃度

$x$  : 計測した氷膜内スクロース濃度 [ $^{\circ}\text{Brix}$ ]

$x'$  : 氷膜内に液体状態として含有するスクロース水溶液濃度 [ $^{\circ}\text{Brix}$ ]

$T$  : 氷膜内温度 [K]

$s$  : 計測氷膜厚さ [m]

$s'$  : 含有するスクロース水溶液厚さ [m]

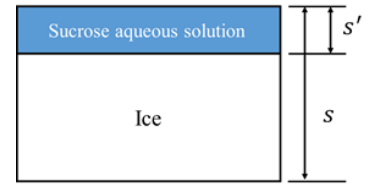


Fig.6 Simple model in ice

となり、計測氷膜厚さ  $s$  から液体高さ  $s'$  を除くことで氷膜厚さに補正をかけることができる。

補正をかけた氷膜

厚さから算出した氷

膜熱伝導率を図7に

示す。攪拌レイノルズ

数の増加に伴い、氷

膜熱伝導率は高くなり、

氷の熱伝導率

$2.2\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$  に近づく

ことが確認された。また、

攪拌することで氷

膜内スクロース濃度

が低下し、純度の高い

氷膜が形成され、氷

膜熱伝導率が高くな

るため、伝熱面と水溶液間の熱交換が向上することが確認された。

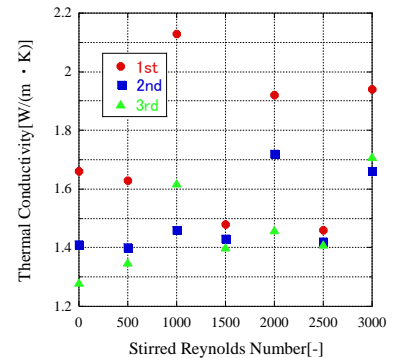


Fig.7 Corrected ice thermal conductivity

### 3. 結言

本研究では、初めに蒸留水を用いて、氷膜の水-氷界面温度を得た。実験より、氷膜の水-氷界面温度は、蒸留水の凝固点として考えられる。これにより、スクロース水溶液における氷膜の水-氷界面温度を氷膜形成時のスクロース水溶液濃度における凝固点とした。

次に、スクロース水溶液を用いて、攪拌レイノルズ数における氷膜内スクロース含有率と氷膜熱伝導率への影響を検討した。計測氷膜から算出した氷膜熱伝導率は、氷膜内スクロース濃度の低下と比較すると矛盾が生じた。したがって、氷膜内に液体状態のスクロース水溶液が含有していると仮定し、氷膜厚さに補正をかけて再度氷膜熱伝導率を算出した。氷膜熱伝導率は攪拌レイノルズ数の増加に伴い、氷の熱伝導率に近づき、伝熱面と水溶液間の熱交換が向上する結果となった。

今後は、計測データのばらつきが見られたため、実験回数を増やすことでデータの蓄積を行い、加えて NaCl 水溶液や多成分混合水溶液に変えての氷膜熱伝導率を明らかにしていく必要がある。

### 参考文献

- 1) 宮脇長人ほか: 水~基礎・ヘルスケア・環境浄化・先端応用技術~, NTS(2006)pp.392-404
- 2) 松本泰典:FOOMA 技術ジャーナル, Vol.11, No.1, pp.35-44
- 3) 福迫尚一朗ほか: 冷凍空調工学, 森北出版(株)(1990)pp.148-150
- 4) 竹内悠規: 懸濁結晶法による凍結濃縮システムの伝熱面に形成される氷膜の性状に関する研究, (2015)pp.33