

# 卒業論文要旨

## エタノール水溶液を用いた氷膜熱伝導率の評価

システム工学群

ものづくり先端技術研究室 1220038 岡田 眞美

### 1. 緒論

飲料水などの、液状食品を加工する操作法の1つに濃縮法がある。その中で凍結濃縮法は、低温下で操作が行えるため、水溶液中に含有する成分の変質や揮発性物質の損失を抑え、安心した状態で濃縮が可能となり、高品質な濃縮液を得ることができる。しかし、液状食品のように多成分混合水溶液の場合、製氷能力の試算は困難であり、氷膜の物性値の把握が必要とされている<sup>(1)</sup>。本研究では、多成分混合水溶液における氷膜物性値の解明を図る前段階として、エタノールを含有させた単成分水溶液をサンプルとし、熱物性値の1つである熱伝導率について実験的検証を行った。また、先行研究<sup>(2)(3)</sup>で得られたスクロース水溶液およびNaCl水溶液における氷膜の熱伝導率との比較を行い、水溶液濃度に加え、溶質特性の違いによる氷膜熱伝導率への影響について調べた。

### 2. 実験装置の検討および有効性の把握実験

本実験装置は、氷の物性値が既知である純水をサンプルに、先行研究<sup>(3)</sup>にて有効性が確認されている。しかし、本実験では改良を施したため、改めて有効性の確認を行った。

#### 2.1 実験装置

実験装置フローを図1に示す。2つのアクリル容器の間に厚さ10mmのアルミ板(材質 A5052, 熱伝導率 137W/(m・K))で仕切り、-20℃の冷媒(濃度60%, チレングリコール)により水溶液を冷却する。冷却部の側面にφ1.0mmのシース熱電対(CHINO製, 1HTF011)をアルミ板の上面から4mm, それ以上の高さは3mm間隔で8本設置し、伝熱面に表面温度センサ(アズワン製, MF-SP-T), 熱流センサ(HIOKI製, Z2012-01)を接着させ温度と熱流束を計測した。冷媒はサーモチラー(EYELA製, CAE-1020A)を用いて冷却した。氷膜厚さは、カメラ(Canon製, EOS Kiss X4)とリモートコントローラー(ロウジャパン製, Timing Remote Switch TC-2001)で撮影し、画像処理ソフトウェア ImageJ にて求めた。

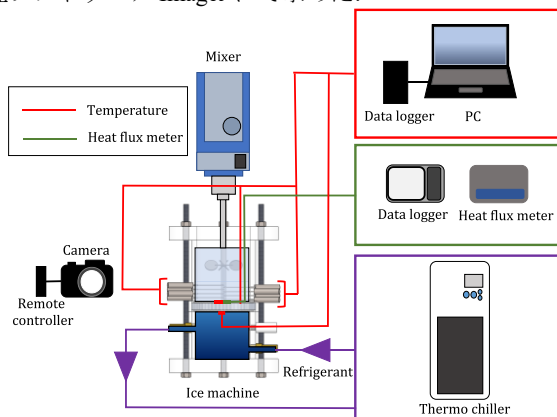


Fig. 1 Experimental flow

### 2.2 実験方法

#### 2.1.1 熱収支モデル

フーリエの法則に基づき、熱収支モデルを図2に示す。氷膜の熱伝導率 $\lambda$ [W/(m・K)]は、

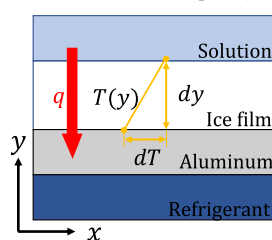


Fig. 2 Heat balance model

$$q = \lambda \frac{dT}{dy} \quad (2-1)$$

$$\lambda = \frac{q}{dT/dy} \quad (2-2)$$

$q$ : 熱流束[W/m<sup>2</sup>]

$T$ : 温度[K]

$\lambda$ : 熱伝導率[W/(m・K)]

$y$ : 伝熱面からの距離[m]

となる。本式より、氷膜間の熱流束と温度勾配を測定することで氷膜の熱伝導率を算出する。

#### 2.1.2 実験手順

冷却部に純水300mLを満たし、攪拌機(IKA製, EUROSTAR 20digital)と攪拌翼(翼スパンφ60mm)を用いて $Re_r = 0, 5000$ の攪拌状態にて60分間の製氷を行った。過冷却防止のため、温度が1℃付近になると種氷1mLを投入した。温度と熱流束は1秒毎、氷膜厚さは1分毎に測定し、雰囲気温度は20℃とした。また、測定部には結露防止のため、流量0.03L/minの乾燥エアを吐出させた。

### 2.3 実験結果

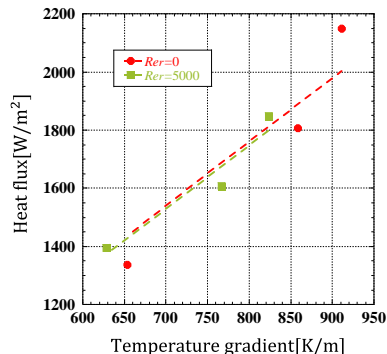


Fig. 3 Relationship between temperature gradient and heat flux

実験データから算出した温度勾配と熱流束の関係を図3に示す。フーリエの法則に準じ、線形近似式を求め、熱伝導率 $\lambda$ [W/(m・K)]を算出した。 $Re_r = 0, 5000$ において、それぞれ $\lambda = 2.1977$ W/(m・K), 2.1861W/(m・K)となり、純水の氷の熱伝導率2.2W/(m・K)に対して、0.10%, 0.63%の誤差であり、ほぼ同様の値といえる。したがって、実験装置および熱伝導率の算出法の有効性を得られた。

### 3. エタノール水溶液における氷膜熱伝導率算出実験

#### 3.1 実験目的

エタノール水溶液にて生成された氷膜の熱伝導率を実験的に求め、濃度および攪拌条件の変化が熱伝導率に及ぼす影響について検証した。また先行研究<sup>(2)(3)</sup>と比較し、含有する溶質が及ぼす影響の考察を行った。

### 3.2 実験方法

実験の熱収支モデルおよび方法は前章と同様である。

#### 3.2.1 濃度の決定

本研究では、先行研究<sup>(2)</sup>のスクロース水溶液と質量モル濃度が一致するように、エタノール水溶液の濃度を1.47, 3.26, 5.46wt%とした。また、デジタル屈折計(ATAGO製, RX-5222i-Plus)により検量線を作成し、屈折率の測定値より濃度の算出を行った。

#### 3.2.2 凝固点降下の確認実験

水溶液の凝固点 $T_f$ [K]は、

$$T_f = 273.15 - iK_f C_m \quad (3-1)$$

$i(=1)$ : ファントホッフ係数[-]

$K_f$ : 水のモル凝固点降下[K・kg/mol](=1.85K・kg/mol)

$C_m$ : 質量モル濃度[mol/kg]

より算出できる。また、実験的に凝固点を調べ、算出値および実験値を表1に示す。

Table 1 Freezing point of ethanol aqueous solution

	Concentration[wt%]			
	0	1.47	3.26	5.46
Calculated value	0	-0.600	-1.35	-2.31
Test results	0.0341	-0.550	-1.35	-2.38

#### 3.2.3 密度および粘度決定

エタノールは温度によって密度が変化するため、国際法定計量機関(OIML)<sup>(4)</sup>より温度と密度の関係を図示し、近似線より算出した。また、音叉振動式レオメータを用いて各濃度における粘度を測定し、攪拌条件を決定した。

#### 3.2.4 実験手順

冷却部でエタノール水溶液300mLを攪拌状態で冷却した。凝固点に到達すると種氷1mLを投入し、60分間の製氷を行った。攪拌レイノルズ数は、 $Re_r = 0 \sim 5000$ (1000 間隔)の6パターンとした。温度と熱流束は1秒毎、氷膜厚さは1分毎に測定し、雰囲気温度は20°Cとした。各条件で3回の実験を行い、平均値を得た。

#### 3.3 実験結果と考察

攪拌レイノルズ数に対する熱伝導率および氷膜内濃度の変化をそれぞれ図4、図5に示す。攪拌レイノルズ数の増加に伴い熱伝導率は増加し、氷膜内濃度は低下した。これは、水溶液と氷膜の境界面において攪拌レイノルズ数が影響したと考えられる。マイクロスコープおよび装置側から撮影した氷膜を図6、図7に示す。攪拌レイノルズ数の上昇に伴い針状氷が減少する。密度の低いエタノールが針状氷の先端側へ上昇し、攪拌による強制対流が発生したことで高濃度のエタノール水溶液を氷膜から除去することができたため、氷膜内濃度が低下したといえる。また、氷膜内濃度と熱伝導率の関係を先行研究の結果を併せて図8に示す。生成された氷膜は純水であると仮定すると、熱伝導率は $2.2\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ となる。ここで、0°Cにおけるエタノール水溶液の濃度と熱伝導率の関係<sup>(5)</sup>を図9に示す。0°Cにおけるエタノール水溶液の濃度 $x$ [mol/kg]と熱伝導率 $\lambda_{\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}}$ [W/(m・K)]の関係は、

$$\lambda_{\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}} = 0.56671 - 0.020067x + 0.00038344x^2 \quad (3-2)$$

となる。上式より、エタノール水溶液の濃度と熱伝導率に2次関数の関係があることがいえる。したがって、水溶液にエタノールが含まれる場合、エタノール水溶液の濃度と熱伝導率の関係が非線形であるため、生成した氷膜の熱伝導率に影響を及ぼし2次関数の関係を示したと推測される。しかし、本研究では3つの濃度での実験しか行っておらず、低濃度でのデータは少ないため、今後は更なるデータ蓄積を行い、精査していく必要がある。

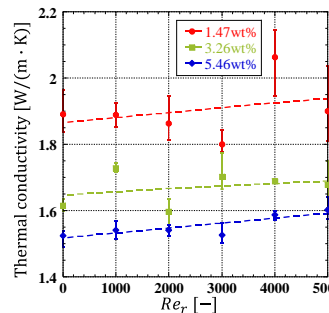


Fig. 4 Variation of thermal conductivity with stirring Reynolds number

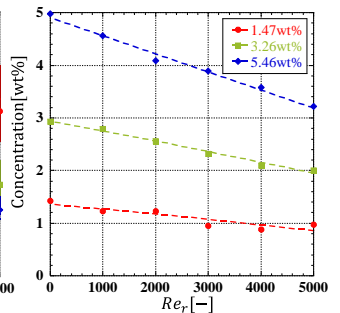


Fig. 5 Change of ice film concentration with stirring Reynolds number

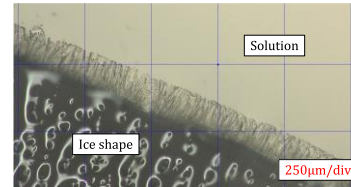


Fig. 6 Microscope ice film image

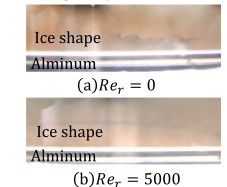


Fig. 7 Camera ice film image

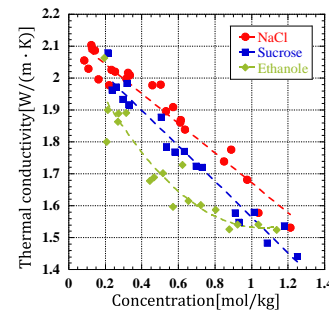


Fig. 8 Changes of thermal conductivity with ice film concentration

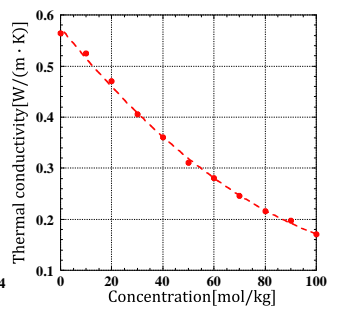


Fig. 9 Changes of thermal conductivity with concentration of ethanol aqueous solution at 0°C

## 4. 結論

本研究では、スラリーアイス生成部における多成分混合水溶液の製氷量の試算や装置の設計条件の基礎データとして、エタノール水溶液をサンプルとし、氷膜の熱伝導率についての評価を行った。実験結果より、攪拌レイノルズ数の増加に伴い氷膜の熱伝導率は増加し、氷膜内濃度は低下した。これは、攪拌状態により氷膜上部の形状が変化し、氷膜の熱伝導率および濃度に影響したと考えられる。また、溶質特性が氷膜内濃度と熱伝導率の関係に影響を及ぼし、エタノール水溶液は田村と片岡の報告<sup>(2)(3)</sup>と異なり、2次関数の関係を示した。ただし、3つのサンプル濃度のエタノール水溶液を用いた結果の考察であるため、今後は更に初期濃度が異なる水溶液をサンプルとした実験を行い、更なるデータの蓄積と検証が必要である。

## 文献

- (1) 松本泰典：スラリー生成技術を用いた凍結濃縮システムの開発, Fooma 技術ジャーナル(2016), 11(1), pp35-44
- (2) 田村健太：水溶液を用いた氷膜の熱伝導現象に関する研究, 高知工科大学修士論文(2020)
- (3) 片岡遥渚：単成分水溶液を用いた氷膜物性値の評価, 高知工科大学修士論文(2022)
- (4) 国際法定計量機関(OIML): 国際アルコール表(日本語版)(1977), p.23-35
- (5) アルコール専売事業特別会計研究開発調査委託費：アルコールの冷媒・蓄冷剤への応用技術に関する研究開発(2000), p.14