

氏名	浅枝正司 あさ えだ まさ し
学位の種類	工学博士
学位記番号	論工博第804号
学位授与の日付	昭和50年9月23日
学位授与の要件	学位規則第5条第2項条該当
学位論文題目	Mass Transport Properties in Porous Materials and Freeze-Drying Characteristics (多孔性物質内の物質移動と凍結乾燥特性)
論文調査委員	(主査) 教授 桐柴良三 教授 水科篤郎 教授 吉岡直哉

論文内容の要旨

本論文は多孔性物質の凍結乾燥に関連した基礎的諸問題に関して、主として物質移動論の立場から理論的、実験的に検討したもので7章からなっている。

第1章(緒論)では凍結乾燥機構の解明には熱および物質の同時移動現象としての取扱いが重要であることを指摘し、以後の各章で取扱う問題を略述している。

第2章は凍結乾燥、分子蒸留等の真空下における物質移動操作に関連して、滞留ガス成分の分圧が非常に小さい場合の蒸発、凝縮を伴う平行平板間物質移動を論じている。すなわち Two-sided Maxwellian 速度分布関数を用いて Boltzmann 方程式のモーメント解を求め、既往の実験結果と比較検討したものである。

第3章は高真空下における昇華、凝結等の相変化を伴う場合の物質移動速度を論ずる際に考慮すべき因子である蒸発係数あるいは凝結係数と呼ばれているいわゆる物質移動適応係数を氷について実測した結果について述べたものである。同心球面間における氷の昇華、凝結実験を行ない、その昇華、凝結速度の実測および第2章で用いた理論手法の本問題への適用によって、氷の蒸発係数を求め、他の研究者の結果と比較検討することにより、本実験結果の信頼性を示した。またかかる蒸発係数を実測する際、わずか 10^{-3} mmHg 程度の滞留ガス分圧でもその物質移動速度に与える影響が無視できない事を指摘している。

第4章は多孔性物質内の気体流れに関する検討をおこなったものである。微粒子充填層内の気体のクヌーセン流動を空隙に注目する通常のポアモデルとは異なり、ここでは個々の粒子に注目するモデルに基づいて第2章および第3章と同様の手法によって解析した。特に充填粒子と気体分子の衝突積分項を厳密に計算することによってクヌーセン域における気体透過係数を表わす解析式を得、さらに実測値との比較でその妥当性を示した。次にクヌーセン域以外の流れの領域について検討し、分子-分子衝突頻度と分子-粒子衝突頻度の比を充填層内の気体の流れに関する見掛けクヌーセン数として定義し、それと無次元透過係数(透過係数をクヌーセン透過係数で割ったもの)をプロットすることにより、種々の粒径について得

られた流動データがすべて一つの曲線にまとまることを実験的に見出した。以上の知見に基づいて、非球形不均一径粒子層の比表面積平均径を決定する方法を提案し、この平均径と別に得られる屈曲係数を用いれば、均一球形粒子層の結果を非球形不均一径粒子層へ拡張適用できることを示した。

第5章は多孔性媒体中の二成分ガスの等圧相互拡散現象に関するもので、まず第4章と同様の解析手法を用いて、従来得られているものよりも、より一般的な気体拡散速度に関する解析式を導出した。さらに Wagner, Mc Carty らによって提案された多孔質固体の気体有効拡散係数の測定方法を改良、発展することによってより高精度の測定装置を考案製作し、本装置による実測結果を先の解析解と比較検討することによって、流れに関する屈曲係数が拡散に関するものと等しいという重要な結論を得た。

第6章は多孔質材料の伝導加熱方式による凍結乾燥機構に関するものである。最初、空隙のすべてが氷で満たされた状態の凍結試料を真空下で凍結乾燥すると、初期は昇華面について面後退モデルが成立するが、乾燥が進行して、昇華面がある程度内部に後退すると突然昇華面が不安定となり、いわゆるゾーン乾燥に移行する場合があることを実験的に見出した。そこでまず、昇華面の安定条件を理論的に検討し、これが乾燥条件と被乾燥試料の熱、物質移動物性値に依存していることを明らかにした。次に全乾燥期間を1) 面後退期間、2) 面が不安定となりゾーン乾燥で乾燥が進行する期間、および3) 乾燥部の最先端が加熱面に達し、加熱面直上に絶乾層が形成される期間の三つの期間に分ける乾燥過程のシミュレーションモデルを提案し、これが乾燥速度、試料温度分布および試料周辺空間の圧力変化について実測結果を説明しうることを示した。

第7章は第2章から第6章までの各章で得られた結論を総括したものである。

論文審査の結果の要旨

凍結乾燥法は各種食品、薬品等の特に熱に対して敏感な材料の乾燥法として、近年ますます広く用いられつつあるが、被乾燥材料の種類が多岐にわたり、かつその乾燥特性が複雑であるため、凍結乾燥装置の設計は多分に経験的要素に左右されているのが現状である。本論文は多孔性物質の真空凍結乾燥を多孔性媒体中の熱および物質の同時移動現象として捉え、被乾燥材料とその周囲の空間との間に起る熱、物質移動と、材料内部で起っているそれらとを別々に検討し、得られた知見を総合することによって多孔性物質の凍結乾燥の過程解析を試みたものであり、得られた成果は以下のごとくである。

1. Mott-Smith の Two-sided Maxwellian 速度分布関数を用いて Maxwell の積分輸送方程式を解き、減圧下で蒸発、凝縮を伴う平行平板間の気相物質移動速度に対する滞留ガス成分分圧の影響を論じ、既往の真空分子蒸留実験に関して提出されていた分子濤仮説に定量的な根拠を与えた。

2. 凍結乾燥は真空下での氷の昇華によって乾燥が進行するものであるが、特に高真空下では昇華の際の「蒸発係数」と呼ばれているいわゆる物質移動適応係数の大小が問題となってくる。著者は同心球面間での氷の昇華、凝結速度を実測し、解析結果と比較してその蒸発係数を種々の条件下で算出した。

3. 凍結乾燥機構の解明には多孔性物質内の昇華した水蒸気分子の流れおよび拡散速度の把握が不可欠である。著者は微粒子充填層を対象として、ダスティガスモデルに準拠し、1で用いた理論解析手法を適用して気体の流れおよび二成分等圧相互拡散現象を解析し、流れについてはクヌーゼン域における流動式

を、また拡散については全圧力域にわたって成立する拡散式を導出した。さらに分子-分子衝突頻度と分子-粒子衝突頻度の比として定義されるクヌーセン数に比表面積平均径および屈曲係数を導入することにより、一般の非球形粒子層中の流れの実測結果をも合理的に相関しうることを示している。また簡便で高精度な拡散実験装置を考案し、種々の粒子層についてその有効拡散係数を実測し、屈曲係数が流れおよび拡散で同一の値をとることを実験的に見出した。

4. すべての空隙が氷で満たされている凍結試料について伝導加熱方式による真空凍結乾燥実験を行ない、昇華面の安定条件の検討および、全乾燥期間をその機構に基づいて三つの期間に分割して考察することによって、その全過程をよくシミュレートする数式モデルを提案した。

以上要するに本論文は多孔性物質の真空凍結乾燥操作を、それを構成する数種の基本的現象に分解し、その個々につき精度の高い実験と詳細な理論的検討を行なうことによって、有益な知見を得たもので、学術上、工業上寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。