熱尖端流を用いた凍結乾燥促進に関する研究*

北村 雅裕^{*1}, 蔦原 道久^{*2}, 田口 智清^{*3}
三谷 亮介^{*4}, 榎村 真一^{*5}, 張 曉 峰^{*5}A Study of Promotion of Sublimation Phenomenon
of Freeze Drying by Using Thermal Edge FlowMasahiro KITAMURA, Michihisa TSUTAHARA^{*6}, Satoshi TAGUCHI,
Ryousuke MITANI, Masakazu ENOMURA and XiaoFeng ZHANG^{*6} Graduate School of Engineering, Kobe University,
1-1 Rokkodaicho, Nada-ku, Kobe-shi, Hyogo, 657-8501 Japan

A blower driven by the thermal edge flow was shown to promote the freeze-drying processes. First, the pressure rise due to the thermal edge flow was confirmed by using an accumulation unit and the pressure rise of 5 Pa was obtained. Next, the effect of the blower for sublimation from frozen material was confirmed by using frozen sponges containing some amount of water. The necessary time for drying by using the blower was roughly half of that without the blower, and the efficiency of the sublimation was shown to depend on the combination of the effects of the blower and the surrounding vacuum pressure.

Key Words: Rarefied Gas, Thermal Edge Flow, Blower, Vacuum, Sublimation, Freeze Drying

1. 結 言

低圧下で温度勾配を持つ平板では、平板に沿って高温側に向かった流れが誘起される。この流れは、熱まふく流^{(1)~(3)}と呼ばれる。また、温度勾配のない均一に熱せられた平板の縁部(エッジ)においてもエッジ部付近の気体に温度勾配が生じるため、熱まふく流と同様にエッジに向かう流れが誘起される。これが熱尖端流^{(4)~(8)}と呼ばれる流れである。両側に縁を持つ平板の場合、両縁で誘起される熱尖端流は相殺し、全体としては一方に気体を輸送することはできない。杉元らはこの熱尖端流の工学的応用として、高温の平板と低温の平板を交互に設置することにより、一方向に流れるポンプを提案している^{(7)~(8)}。本研究では平板の一方の縁部を筒状に丸く曲げその縁部で熱尖端流が生じないようにすることで、加熱平板で一方向の流れを実現し、この丸めた筒状

の内部に平板を加熱するヒーターを組み込んだ熱尖端流を利用した送風器を製作した。

一方凍結乾燥は、加熱による被乾燥対象へ影響の少ない乾燥手段として医薬品や食品などの多くの分野で広く用いられている^{(9)~(11)}。凍結乾燥装置には、真空槽内に昇華により生じた蒸気を低温により再度凍結させ真空度を保つためのコールドトラップが設置されており、乾燥初期には被乾燥対象からトラップへの気流が生じる。しかし乾燥の最終段階では蒸気の発生も少なく、コールドトラップへの気流も弱くなる。すなわち、被乾燥対象からの蒸気を強制的に送り出すメカニズムが働かなくなることから、蒸気の境界層が形成され昇華が妨げられると考えられる。この段階で蒸気を含まない乾燥した気流を被乾燥対象に当てることで、最終段階での乾燥を促進することが可能であるが、現在の装置においてこの目的で送風器が設置されたものは見当たらない。

そこで熱尖端流を利用した送風器を、この凍結乾燥の送風機能として用いることで昇華速度を上昇させ、乾燥を促進するのが本研究の目的である。本提案の送風器は、一切の可動部分がなく、構造が単純であるだけでなく、運転に際しても後述するようにヒーターに通電するのみである。また可動がないことから、一切の潤滑を必要

* 原稿受付 2008年10月27日。

^{*1} 神戸大学大学院自然科学研究科(☎657-8501 神戸市灘区六甲台町1-1)。^{*2} 正員、フェロー、神戸大学大学院工学研究科。^{*3} 神戸大学自然科学系先端融合研究環。^{*4} 神戸大学大学院工学研究科。^{*5} 正員、エム・テック(株)(☎594-1144 和泉市テクノステージ2-2-16)。

E-mail: tutahara@mech.kobe-u.ac.jp

とせず、真空槽内および被乾燥対象を汚染することがない。

熱尖端流を利用した送風器での一方向の流れを確認するために、まず熱尖端流により送風器下流の圧力が上昇することを確認した。次にこの送風器の凍結乾燥促進効果の確認として、水を含ませたスポンジの凍結物を用いて真空槽内で乾燥の実験を行い、乾燥に必要な時間が約半分に促進されることを確認した。また熱尖端流を利用した送風器の移動する真空槽内の圧力が高い場合の方がスポンジの乾燥が早くなることを確認した。2章で昇圧確認について実験方法およびその実験結果を、3章で凍結乾燥実験について実験方法およびその実験結果を説明する。

2. 熱尖端流を利用した送風器による昇圧実験

熱尖端流を利用した送風器により生じる気流の風速を直接測定することは、低下下での気流を測定することとなり、常圧下で行われる方法(たとえば熱線流速計あるいはレーザードブラー流速計など)は使用できない。低下下での測定としては、手島ら⁽¹⁾⁽²⁾がレーザード蛍光を用いて流速測定を行っているが、きわめて高速の気流(超音速)への適用のみで、今回のような数十 m/s の流れに対して適用できない。曾根ら⁽¹⁾⁽⁵⁾は、軽量のファンを製作し熱ほふく流の確認に用いたが、流速等の定量的な測定ではない。

本実験では流速測定に替わる方法として、送風器下流での圧力上昇を計測する実験を行った。送風器の下流をせき止めることにより上昇した圧力により、上流方向へ流れが生じるが、これが熱尖端流とつりあうこととなる。

2・1 実験装置 長さ 185 mm、幅 65 mm、高さ 185 mm の L 字状の一端を開放し他端を閉じた容器に、その入口部分に厚さ 0.3 mm の鋼板で製作した、一方の縁部を筒状に丸めたプレート複数枚を、一定の間隔で多段に取り付けた。プレートの加熱のために各プレートの筒状の中空部に、プレート鋼板と絶縁してニクロム線のヒーターを設けた。容器の閉止端には、容器内部の圧力を計測するためのピラニー真空計を取り付けた。図 1 に実験装置の構造を示す。

実験はプレートの形状・枚数の異なる二つのケースで行った。Case 1 の場合には、長さ 90 mm、幅 48 mm のプレート 2 枚を図 1 に示す様に、プレート間隔 17 mm で上下 2 段に取り付けた。また Case 2 の場合は、長さ 50 mm、幅 60 mm のプレート 6 枚を前後の隙間 10 mm で 2 列にし、プレート上下の間隔 10 mm の 3 段に設けて実験を行った。

Fig. 1 Accumulation unit with heated plates that induce the thermal edge flow.

2・2 実験方法 縦、横、奥行き各 450 mm、容積約 0.09 m³ の矩形の真空槽内に図 1 の容器を設置し、真空槽内の圧力を真空ポンプにより下げ、圧力が 90 Pa に到達後に真空ポンプを停止し実験を開始した。真空槽内にも、真空槽内の圧力を計測するピラニー真空計を設置した。真空ポンプの停止と同時にプレートのヒーターの加熱を開始し、プレートのヒーター部温度、プレートのヒーター部と反対側縁部温度および真空槽内の温度の計測および真空槽内の圧力と容器端部の圧力の計測を行う。これらの計測は真空槽内の圧力が、真空槽のシールからの漏れにより約 400 Pa に上昇するまで行った。

容器端部の圧力と真空槽内の圧力との圧力差が、容器内部の圧力上昇分となる。本実験の計測範囲でのピラニー真空計の測定精度は±15%であり事前に計測範囲での両真空計の誤差の確認を行い圧力上昇結果の修正を行っている。

2・3 実験結果及び考察

2・3・1 各部温度変化 Case 1 での実験中のプレートヒーター部の温度、ヒーターと反対側のプレート縁部の温度および真空槽内での温度の時間変化を、図 2 に示す。実験終了時にはプレートヒーター部の温度は 240℃まで上昇し、またプレート縁部の温度は 150℃まで上昇している。一方真空槽の内部の温度は実験を通して約 20℃で安定している。

2・3・2 圧力上昇 Case 1, Case 2 の実験で得られた容器内下流部での上昇圧力と、真空槽内圧力の関係を図 3 に示す。図は Case 1 および Case 2 で各 3 回実施した平均を示している。

Case 1, Case 2 何れの場合にも容器内下流部での上昇圧力は、真空槽内の圧力の上昇に伴い徐々に上昇し真空槽内の圧力が 300 Pa をピークとして降下する。これは真空槽内の圧力の上昇に伴い容器内への流れ、すなわち熱

Fig. 2 Temperature histories in the case of two plates (90mm in length and 48mm in width each; Case 1) installed in the accumulation unit. Measuring points: (1) heater of the heated plate, (2) the opposite side of heated plate, and (3) the vacuum chamber.

Fig. 3 Pressure rise in the accumulation unit vs. the pressure in the vacuum chamber. Two plates (90mm in length and 48mm in width each) were installed in the unit in Case 1. Six plates (50mm in length and 60mm in width each) were installed in Case 2.

尖端流が増加するが、真空槽内の圧力が 300 Pa より高くなるにつれ熱尖端流が、徐々に弱まることによるものと考えられる。

今回の実験では真空槽内圧力 300 Pa 付近で圧力上昇が最大となっているが、これは今回用いた装置に固有のものであり、一般に熱尖端流を用いた送風器あるいはポンプがこの圧力で最大効果を出すものではない。たとえばエッジの鋭さ（曲率）あるいはプレートの上下面間隔などによって異なると考えられる。

図 2 の温度記録からプレートの両縁では約 90°C の温度差があり、この温度差によりプレートに沿う熱まふく流が生じているものと考えられる。ここで提案した送風器は、特に熱まふく流を効果的に利用することを目指したのではなく、特に温度勾配を大きくするような配慮はしていない。ただ一般的にクヌッセン数 Kn （気体分子の平均自由行程／系の代表長さ）が小さいとき、すなわち真空の圧力がそれほど低くないときには、熱まふく流の大きさは Kn に比例し、熱尖端流は $Kn^{1/2}$ に比例するとされており⁽⁶⁾、クヌッセン数 Kn が小さいときには熱まふく流よりも熱尖端流が卓越する。曾根らの熱まふく流の実験^{(1) (6)}でも、系の代表長さはわれわれのものと同様（cm オーダー）で真空度は数 Pa から数十 Pa で熱まふく流が顕著にあらわれており、今回提案した送風器の効果が顕著となる 300 Pa においては、熱尖端流が卓越していると考えられる。

また、Case 1 と Case 2 の上昇圧力を比較すると Case 2 の上昇圧力は Case 1 の 2 倍程度あり、プレートの取り付け枚数を増やすことにより熱尖端流を高めることができる。

2・3・3 流速 熱尖端流を利用した送風器により生じる気流の流速は、装置の構造は異なるが緒言で述べた杉元らの数値解析^{(6) (7)}では、約 30 m/s の気流が得られており、われわれの装置においてもほぼ同程度の気流が得られるものと考えられる。

3. 熱尖端流を用いた送風器による凍結乾燥実験

熱尖端流を利用した送風器により発生する気流により、凍結物の乾燥が促進されることを直接確認するため、真空槽内に送風器を設置して乾燥実験を行う。

3・1 実験装置 熱尖端流を生ずるプレートの平面図および断面図を図 4 に示す。図に示すようにプレートは長さ 250 mm、幅 120 mm の銅板（厚さ 0.5 mm）に長手方向に 18 mm 間隔で 4 箇所の 5 mm 幅の短冊状の切り込みと最下端部に 10 mm 幅の切り欠きを設けた。断面図に示すように各切り込み部の一方の縁部は丸く筒状にし、下端部を丸めた 5 枚の短冊状プレートが連続した形状の板を 1 枚のプレートとした。このプレート 4 枚を 20 mm 幅の間隔で高さ 120 mm、横幅 250 mm、奥行き 90 mm のアルミ製容器内に納めて送風器を製作した（図 5）。

Fig. 4 Plate of the blower to induce the thermal edge flow. The plate was made of a copper sheet (0.5mm in thickness).

Fig. 5 Diagrammatic illustration of the blower driven by the thermal edge flow. There were four plates to induce the thermal edge flow in the blower.

送風器の吸気口は上部に設け、装置の下部には高さ 15 mm、横幅 250 mm の開口を設けて送風口とした。各短冊状プレートは筒状の中空部分には絶縁のために石英管を挿入し、その石英管の中にプレートを加熱するためのヒーターとしてニクロム線を設けた。

実験に用いる試料は、一辺1 cmの立方体（重量約0.09 g）のスポンジに約0.1 gの水を含ませ、冷凍凍結させたものを用いた。

熱尖端流を利用した送風器を設置する真空槽内の圧力は次の二つの場合を設定した。Case 1 は真空槽内圧力を約 10 Pa に、また Case 2 は約 100 Pa に設定し乾燥実験を行った。Case 1 の実験には直径 1m、奥行き 1m、容積約 1 m³ の円筒状真空槽を、一方 Case 2 の場合には前述の予備実験で用いた容積約 0.09 m³ の矩形状真空槽を用いた。

円筒真空槽内に熱先端流を利用した送風器を設置した Case1 の実験状況を図 6 に示す。送風器のプレート温度、送風口の出口前方の温度および真空槽内の温度を計測するために熱電対を設置し、送風器にはプレートの加熱ヒーターへの電源ケーブルを接続している。

Fig. 6 Test apparatus in the vacuum chamber at the test in the pressure range of 10Pa. Temperature of the plate of the blower, temperature in front of the ventilation opening of the blower, and temperature in the vacuum chamber were measured by thermo-couples.

3・2 実験方法 真空槽内では送風器の送風口前方にスポンジ試料2個を間隔をあけて設置する。送風口の右側のスポンジは設置位置 1、左側のスポンジは設置位置2として区別する。各スポンジ試料の重量は実験の開始前および終了後に計測し、その差をスポンジ試料からの昇華水分量とする。

各実験での乾燥時間は、5 分間～50 分間で各実験時間での昇華量を調べる。また Case 1 および Case 2 の各実験時間で送風のある場合および送風の無い場合の二つのケースの実験を行う。送風の無い実験とは、真空槽内に設置した送風器のヒーターへの加熱を行わず、送風機の機能を停止した場合の実験である。

実験の手順は次の通りである.

- (i) 任意の2個のスポンジ各々に水を約 0.1 g 含ませ、冷凍庫にて 15 分～20 分間冷却凍結させる。冷凍庫内の温度は -13°C である。
- (ii) 試料を冷凍庫から取り出し重量を計測する。
- (iii) 2個の試料を真空槽内送風器の送風口前 1 cm に 10 cm の間隔で設置し真空引きを開始する。送風器を使用する実験の場合は、真空引き開始と同時にプレートヒーターの加熱を開始する。ヒーターの加熱電圧は一定に設定する。
- (iv) 5～10 分ごとに真空槽内の圧力と温度、プレート温度および送風器出口の温度を記録する。
- (v) 予定した乾燥時間が経過した後加熱を停止し、真空槽内を復圧し試料を取り出し、試料の重量を計測し昇華量を求める。
- (i)～(v) を 10 回繰り返し、昇華量の平均値を求める。

3・3 実験結果及び考察

3・3・1 真空槽内の圧力 各乾燥時間における真空槽内の平均圧力を図7に示す。真空槽内の圧力はCase 1の場合には10-30Paの範囲で、またCase 2の場合には50-250 Paの範囲であった。なお、Case 2の場合には真空槽に接続する真空配管の抵抗により圧力が下がるのが遅いため乾燥時間が5分の場合には真空槽内の圧力は260 Paと十分に下がっていない。

3・3・2 各部温度変化 Case 1の乾燥時間40分の場合における真空槽内の温度、プレートの温度、および送風器出口前の温度の時間変化を図8に示す。40分経過した実験の終了時にはヒーターを設けたプレート部の温度は240℃に送風器出口前の温度は70℃に上昇している。真空槽内の温度は25℃で上昇はない。

Fig. 7 Average pressures in the vacuum chamber of each experiment in the pressure range of 10Pa (Case1) and in the pressure range of 100Pa (Case2).

Fig. 8 Temperature histories at (1) heater of plate, (2) in the vacuum chamber, and (3) in front of the ventilation opening during the test of 40 minutes drying time at the pressure range of 10 Pa.

送風器を用いない場合には真空槽内の温度、プレート温度および送風器出口前の温度は20 - 25℃で温度の上昇はない。

3・3・3 スポンジの残水率 スポンジの残水率は、実験の前にスポンジに加えた水 (平均約0.1 g) に対し乾燥実験の終了後にスポンジに残った水の割合をパーセンテージで示す。Case 1の場合でスポンジの設置位置1および設置位置2での残水率を、乾燥時間ごとに図9に示す。本図に見るように試料の設置位置による残水率の違いは見られない。これは送風口から送りだされる熱尖端流に偏りが少ないことを示している。

3・3・4 熱尖端流を用いた送風器の有効性 各乾燥時間における設置位置1および設置位置2を合わせた総スポンジの残水率の平均値をCase 1およびCase 2について図10に示す。

本図には、Case 1, Case 2の各場合で送風器を作動させない場合、および送風器を作動させた場合を示す。送風器を用いない場合には、Case 1およびCase 2いずれの場合にも、乾燥時間40分を経過してもスポンジ内に水が残るが、送風器を用いた場合にはCase 1およびCase 2いずれの場合にも、乾燥時間40分でスポンジはほぼ乾燥する。送風の有無による乾燥の違いは、残水量が少なくなるにつれて、すなわち乾燥の終段階においてより顕著になっている。Case 1で残水率10%に達するためには、送風がない場合には約20分の乾燥時間が必要であるが、送風のある場合には約15分でこの残水率に達する。同様に残水率5%の場合には送風のない場合には約40分の乾燥時間が必要なのにに対し送風のある場合には約20分まで到達しており、送風器を用いることで乾燥に必要な時間は、送風器を用いない場合のほぼ半分となる。

Fig. 9 Remaining water ratio of sponges on the right side of ventilation opening (position1) and on the left side of ventilation opening (position2) at the pressure range of 10Pa in case of test using the blower driven by the thermal edge flow.

Fig. 10 Remaining water ratio versus drying time in the case of the pressure range of 10Pa (Case 1) and that in the case of the pressure range of 100Pa (Case 2), and the comparison of the results between the experiments using the blower (filled symbols) and those without the blower (unfilled symbols). In the case of without the blower, the heaters attached to the plates are simply switched off so that there is no thermal edge flow induced.

Case 1 および Case 2 いずれの場合にも熱尖端流を利用した送風器を用いた場合の方が、送風器を用いない場合に比べてスポンジの乾燥が早いことから、本送風器が凍結されたスポンジからの昇華・乾燥に効果的であることがわかる。

3・3・5 真空槽内の圧力の影響 送風を用いない場合には、乾燥時間 15 分および 20 分では、残水率は Case 1 の場合が Case 2 に比べわずかに少ない。これは真空槽内圧力が低い場合に乾燥が早く進むというよく知られた事実を表している。

一方、送風器を用いた場合には、送風器の無い場合とは逆に Case 2 の場合が Case 1 の場合に比べ同じ乾燥時間では残水率が少なく乾燥の進みが早い。Case 2 の場合には、25 分の乾燥時間で残水率はほぼ 0% となるが、Case 1 の場合では 40 分の乾燥時間が必要になる。このことから真空槽内の圧力が Case 1 の低圧力域よりも Case 2 の高圧力域で熱尖端流を利用した送風器が凍結乾燥の促進により効果的に働くことが分かる。

今回実験した二つの圧力域での熱尖端流による凍結乾燥への効果は圧力が高い場合の方がより有効であり、この傾向は前節の予備実験での上昇圧力の傾向と同じである。この事実は、提案した送風機により、冷凍乾燥に用いる真空槽の圧力を低く設定する必要がな

いこととなり、用いる真空ポンプの負荷を軽減しうることを示している。

4. 結 語

本研究では熱尖端流を利用した送風器による気流の発生を、容器内下流部の圧力の上昇により確認し、また凍結させたスポンジ試料を用いて、同送風器が凍結乾燥の促進に有効であることを確認した。凍結乾燥においては、稼働圧力により送風器の促進効果に違いがあることを確認したが、送風器は、食品の乾燥に用いられる圧力域から医薬品などの分野で用いられる圧力域までの範囲で、被凍結物の乾燥に効果的であることが明らかになった。

なお、この熱尖端流はプレートに固有のエッジの鋭さ（曲率）あるいはプレートの上下の間隔などによっても影響があるものと考えられる。今後これらの影響を確認し送風器の改良を行うとともに、熱尖端流を利用した送風器を実機の凍結乾燥装置に組み込みその効果の確認を行う。

以下に結果の概要を記す。

1. 一端を開放した容器に一方の縁を丸く筒状に曲げたプレートを複数枚取り付け真空槽内に設置し、このプレートを加熱することで容器内下流部圧力の上昇を確認した。

圧力の上昇は真空槽内の圧力が高くなるにつれ上昇し 200–400 Pa の領域で顕著に認められた。

2. 熱尖端流を利用した送風器の凍結乾燥への利用実験で、送風器を利用することにより凍結乾燥に要する時間がほぼ半減した。

3. 熱尖端流を利用した送風器の凍結乾燥での稼働圧力として 10 Pa 程度の圧力域の場合よりも 100 Pa 程度の圧力域での場合が送風器の乾燥促進効果が大きい。

本研究の一部は財団法人内藤泰春科学技術振興財団からの助成金によりなされた。ここに記して謝意を表する。

文 献

- (1) Sone,Y., Aoki,K., Molecular Gas Dynamics, (1994), Asakura. (in Japanese)
- (2) Sone,Y., Waniguchi,Y., Aoki,K., One-way flow of rarefied gas induced in a channel with a periodic temperature distribution, *Phys.Fluids*, (8), (1996), pp.2227-2235.
- (3) Sone,Y., Sugimoto,H., Vacuum Pump without a Moving Part and its Performance, in *Rarefied Gas Dynamics*, (A.D.Ketsdever and E.P.Muntz), (AIP, New York,2003) , pp.1041-1049
- (4) Sone,Y., Yoshimoto,M., Demonstration of rarefied gas flow induced near the edge of a uniformly heated plate, *Phys.Fluids*, 9(11) , (1997), pp.3530-3534.
- (5) Sone,Y., Kinetic Theory and Fluid Dynamics, (2002), BIRKHAUSER.
- (6) Japan Society of Fluid Mechanics ed., *Handbook of Fluid mechanics*, (1998), Japan Society of Fluid Mechanics .(in Japanese)
- (7) Sugimoto,H., Sone,Y., Vacuum Pump without a Moving Part Driven by Thermal Edge Flow, in *Rarefied Gas Dynamics*, (M.Capitelli), (AIP, New York,2005) , pp.168-173
- (8) Sugimoto,H., Numerical Analysis of the Rarefied Flow in a Vacuum Pump Driven by Thermal Edge Flow, *J.Vac.Soc.Jpn.* Vol.49, (2006), pp.481-487. (in Japanese)
- (9) ULVAC,Inc., *Handbook of Vacuum*, (2006), Ohosha, Ltd. (in Japanese)
- (10) Takano,T., Tadano,T., Drying of food industries, (1968), KORIN publishing Co., Ltd. (in Japanese)
- (11) Matsuno,R., et al., Concentration and drying, (1988), KORIN publishing Co., Ltd. (in Japanese)
- (12) The Japan Society of Mechanical Engineers ed., *Flow of atom and molecule*, (1996), Kyouritsu Shuppan Co.,Ltd. (in Japanese)