

論文内容要旨（和文）

平成 17 年度入学 大学院博士後期課程
物質生産工学専攻 エネルギー環境工学講座
学生番号 05522214
氏名 佐藤幾郎 

（英文の場合は、その和訳を（ ）を付して併記すること。）

論文題目 脱脂乳のナノろ過に関する工学的研究

乳業においては、圧力駆動型の膜分離技術であるナノろ過（Nanofiltration:NF）により牛乳・乳製品を脱塩濃縮する技術が近年普及している。NF の特徴は膜が荷電を持つことで、そのため NF での溶質分離は膜の静電効果や篩い分け効果、もしくは双方の効果の組み合わせにより行われる。このように NF の溶質分離機構は複雑なことから、牛乳・乳製品の NF において塩類が膜を透過する機構が解明されておらず、装置の設計などで重要な溶質透過流束の予測は経験的あるいは実験的に行われているのが実情であった。

そこで、本研究では牛乳・乳製品の NF における塩類の透過機構を明らかにし、装置設計や運用の際に重要な溶質透過流束の値の推算を可能とすることを目的として、乳業で最も一般的に扱われる液である脱脂乳を用いた NF 実験を行い、透過流束の測定と NF 膜の解析を行った。実験には代表的な NF 膜である Desal-5 膜の実用スパイラルワンド型モジュールを使用した。

1) 最初に小型の NF 実験装置を用い、脱脂乳の濃度一定での NF 実験を行い、基礎的に透過流束の測定と解析を行った。その結果、脱脂乳の主要な溶質で実質的に膜を透過するものはナトリウム、カリウム及び塩素の一価イオンであること、それ以外のタンパク質、乳糖、カルシウム、マグネシウムおよびリンはほとんど膜に阻止されることがわかった。透過するナトリウム、カリウムおよび塩素の見かけの阻止率はそれぞれ 50~60%、50~60%、-5~15% であった。カルシウムやマグネシウムが膜を阻止される理由は、それらが脱脂乳中においてサイズ的に膜を透過できない塩やコロイドの形態で存在する割合が高いためと推定された。また、塩素の阻止率が非常に低い理由は、タンパク質などの膜を透過できない負の電解質によって塩素が透過液側に Donnan 排除されることによると推察された。

また、透過液の組成から、透過液において電気的中性条件が成立すること、ならびに溶質透過において電流 0 の条件が成立することが確認された。

さらに、本実験結果について、NF 膜における電解質の透過理論である TMS モデルによってナトリウム、カリウムおよび塩素の透過流束を解析を行った。解析においては、膜内での荷電の均一性、膜面と外液の間での Donnan 平衡の成立、膜細孔内でのイオンの移動は「拡張された Nernst-Planck の式」で表現されること、イオンの移動に関して電流 0 の条件の成立、また膜内外での電気的中性条件の成立を TMS モデルに従って前提とし、さらに脱脂乳中のタンパク質などの膜を透過できない電解質を負の固定電荷として取り扱った。その結果、本モデルによりナトリウムなどの透過流束を説明できることがわか

った。

2) 上記の実験と同じ装置を用い脱脂乳を回分式に濃縮倍率 3.22 倍まで脱塩濃縮する実験を実施し、脱塩濃縮過程における塩類の透過流束の測定と解析を行った。その結果、濃縮倍率 3.22 倍脱塩濃縮後ににおいては、当初の脱脂乳に含まれていたナトリウム、カリウムおよび塩素のそれぞれ 56.7%, 57.7% および 79.4% が除去された。また、濃縮過程を通じて、透過液での電気的中性の条件および溶質透過流束に関して電流 0 の条件が成立していることが確認された。次に本実験結果についても TMS モデルで解析を行い、濃縮過程においてもナトリウム、カリウムおよび塩素の透過流束は本モデルで説明できることがわかった。また、解析により求められたパラメーターを使用して、脱脂乳の NF による脱塩濃縮のシミュレーションを行い、実測値と一致することを確認した。

3) 次に、実際の乳业での牛乳・乳製品の NF を想定し、実用の型式である連続式の NF 実験装置で脱脂乳の NF を行い、先の回分式の実験結果と比較検討した。乳业で使用される連続式膜装置は、膜モジュール、循環ポンプおよびループ配管で構成されるステージを直列多段に接続した構造となっており、装置内の脱脂乳の濃度上昇は階段状となる。従って、回分式とは異なった濃度上昇となる。

実験には二段連続式の NF 実験装置を使用し、濃縮倍率 1.85 倍から 2.16 倍までの間で脱脂乳の NF 実験を行った。また、連続式では装置内の濃度を一定とした運転が可能なので、連続運転の安定性についても検討した。

その結果、同一濃縮倍率においては連続式と回分式の濃縮乳の組成が同等であること、また、操作圧 1.5MPa では安定した連続運転が可能なことがわかった。

(10pt 2,000 字程度 2 頁以内)

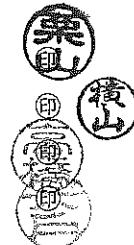
学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成 20 年 2 月 1 日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 栗山 雅文
副査 横山 孝男
副査 高橋 幸司
副査 宮戸 昌広



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

1. 論文申請者

専攻名 物質生産工学専攻
氏 名 佐藤 幾郎

2. 論文題目

脱脂乳のナノろ過に関する工学的研究

3. 審査年月日

論文審査 平成 20 年 1 月 23 日 ~ 平成 20 年 1 月 30 日
論文公聴会 平成 20 年 1 月 30 日
場所 ベンチャー・ビジネス・ラボラトリ一 3 階 秦ホール
最終試験 平成 20 年 1 月 30 日

4. 学位論文の審査及び最終試験の結果（「合格」・「不合格」で記入すること。）

- (1) 学位論文審査 合格
(2) 最終試験 合格

5. 学位論文の審査結果の要旨 (1,200 字程度)

別紙のとおり

6. 最終試験の結果の要旨

別紙のとおり

別 紙

| | | | |
|---|----------|-----|-------|
| 専攻名 | 物質生産工学専攻 | 氏 名 | 佐藤 幾郎 |
| 学位論文の審査結果の要旨 | | | |
| <p>本論文は、膜技術のひとつで近年普及したナノろ過 (NF)を、牛乳や乳製品の脱塩濃縮に応用する際の溶質透過流束に関するものである。NF 膜は荷電を持つことから、溶質に対し静電効果、篩い分け効果あるいは両効果が作用すること、また牛乳は複雑な多成分溶液であることから、牛乳の NF における溶質透過の機序は明らかにされていなかった。しかしながら、溶質透過流束の値の予測は装置やプロセス設計の際に極めて重要であり、それを可能とすることを目的に本研究が行われた。</p> | | | |
| <p>本論文は 7 章からなる。</p> | | | |
| <p>第 1 章は緒論であり、本研究の背景として乳業界での膜分離技術による乳成分分離の概況、牛乳・乳製品の NF における課題、本研究の目的をまとめている。</p> | | | |
| <p>第 2 章では、既往の研究について調査・検討した結果を述べている。荷電膜における電解質透過については多くの理論やモデルが存在するが、そのなかから本研究の解析に適した透過モデル (TMS モデル) の選択に成功している。</p> | | | |
| <p>第 3 章では、代表的な乳製品である脱脂乳を用い濃度一定条件で NF 実験を行った結果と考察、および本系に適用するため一部改変した TMS モデルを用いた解析について述べている。そして、実質的に透過する溶質はナトリウム、カリウム、塩素であること、透過液では電気的中性条件が成立していること、タンパク質など膜を透過できない電解質を固定電荷とすることによりナトリウム、カリウム、塩素の透過流束が改変した TMS モデルで説明できることを示し、その結果、牛乳の NF での溶質透過機構が明らかになった。</p> | | | |
| <p>第 4 章では、脱脂乳を NF で回分式に脱塩濃縮する場合について検討し、脱塩濃縮過程においても、第 3 章の知見が成立することを示した。</p> | | | |
| <p>第 5 章では、実用の膜装置に多く採用されている多段連続的方式で脱脂乳を NF 処理する場合について検討を行い、回分式とは濃度履歴が異なるものの、同等の組成の濃縮乳が得られることなどを示した。</p> | | | |
| <p>第 6 章では、第 3 章の補足として僅かに膜を透過するカルシウムとマグネシウムの透過機構について検討し、脱脂乳中でこれらのイオンの形態にあるものが透過に関与していることを示した。</p> | | | |
| <p>第 7 章では本論文の総括を行っている。</p> | | | |
| <p>以上のように本論文は、実用分野に関する研究成果であるが、学術的にも価値が高い。本論文の内容は化学工学論文集などに論文 3 篇として公表済みである。以上のことから、博士（工学）学位論文として合格と判定する。</p> | | | |
| 最終試験の結果の要旨 | | | |
| <p>本学の規定に従い、本論文および関連分野に関して口頭により最終試験を行った。その結果、申請者は関連分野を含め広い分野での基礎学力を有し、特に物理・化学的な解析力に優れており、また研究についても十分な実行能力を持っていると認められた。以上のことから、申請者は博士に相当する十分な学力を有しており、博士（工学）の学位授与に関する最終試験に合格であると判定する。</p> | | | |