

## 生体凍結保存における誘電損率の応用

The Application of Dielectric loss on Cryopreservation of Biomaterials

白 檉 了\*・白 香 蘭\*\*・西 尾 茂 文\*

Ryo SHIRAKASHI, BAI Xianglan and Shigefumi NISHIO

## 1. 緒 論

水は生体や食品の主成分であり、生体や食品の冷凍保存においては凍結方法のみならず、解凍方法も解凍後の生体の生存率や品質に重要な影響を与える。解凍時間が長い場合、生化学的影響として、対象生体の変性、細菌の繁殖が考えられ、熱力学的影響として、再結晶による結晶粒巨大化がもたらす力学的ストレスが考えられる<sup>(1), (2)</sup>。上述の理由から、急速解凍が薦められているが、熱伝導による急速解凍は対象の内部に大きな温度ムラを起し、対象を均一に解凍することが極めて難しい。

均一加熱の一つとして、電子レンジで知られる様なマイクロ波の照射・吸収による加熱法は広く用いられている。例えば、家庭用電子レンジの周波数 (2.45 GHz) では、液体の H<sub>2</sub>O (水) やタンパク質の分子内振動を励起し、水の凝固点以上の温度域における急速且つ均一加熱を可能にしている。ところが、家庭用冷凍庫内で (-20°C 近傍) カチカチに凍結された食品を家庭用電子レンジで解凍しようとすると、食品の表面がかなり熱くなっているにもかかわらず、中は殆ど解凍されていない状態になる。これは、電子レンジの電磁波の周波数が、氷の吸収しやすい周波数とは異なる為であると推察できる。電磁波の吸収は、対象の電気物性、即ち、複素誘電率 ( $\epsilon' - i\epsilon''$ ) あるいは、誘電率と導電率 ( $\epsilon + i\sigma/\omega$ ) で表せるが、本研究では、複素誘電率による表記を用い、 $\epsilon'$  を誘電率、 $\epsilon''$  を誘電損率とする。氷の誘電損率が温度と電場の周波数によって変わる特徴があることは一部の温度と周波数で知られており<sup>(3), (4)</sup>、適当な周波数の電場を印加することにより、生体や食品解凍において、急速でしかも均一な解凍を実現できる可能性があるが、十分な周波数、温度範囲にわたる比誘電損率の測定はない。

\*東京大学生産技術研究所 第2部

\*\*東京大学大学院工学系研究科博士課程

そこで本研究では、まず数十 Hz ~ 数 MHz の周波数帯域、-60°C ~ -2°C の温度範囲にわたって氷の誘電損率を測定し、ついで誘電損失を考慮した一次元熱伝導の数値計算を行い、氷の昇温過程における各周波数の電場の効果を、急速解凍と均一解凍の両面から評価し、最適な周波数範囲を検討した。測定で低い周波数を選定した理由は、電磁波の波長が長くなることで、大きな対象に対して均一な電磁波を照射出来る可能性がある為 (電磁波の浸透深度が深くなる) である。

## 2. 氷の誘電損率測定

図1に示すように腐食しにくいステンレス板 (A, B) で二つの平行電極をつくり、両電極の周囲をアクリル板 (C, D, E, F, G) で囲んで、試料測定用の容器とした。上部は、水を入れるため開放状態にし、試料の水 (氷) の温度分布を均一にするため両電極の寸法は高さ 20 mm、幅 60 mm、電極間距離 2.5 mm とした。電場の影響を受けずに試料の

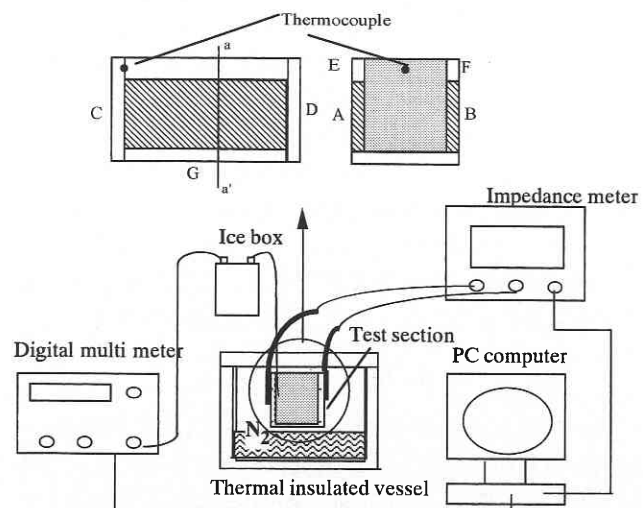


Fig. 1 Experimental apparatus

研究速報

正確な温度を測定するため、熱電対が両電極間の電場に入らないように、側面壁 (C) の試料に接する内面に溝を切って熱電対を取り付けた。実験試料は、充分に脱気したイオン交換水を超純水生成装置 (Millipore, Milli-QJR) を通し、比抵抗を 18 MΩ・cm にした超純水を使った。試料の水(氷)の温度は、円筒デュアービンの中に入れた液体窒素の水面からの距離により調整した。氷の比誘電損率の周波数変化は、インピーダンスメーター (日置電機, 3531 Z ハイテスタ) を使い、氷のインピーダンスと位相角を測り、以下の式により対応する比誘電損率を計算した。

$$\epsilon'' = \frac{\cos \theta d}{2\pi Z \epsilon_0 S} \dots\dots\dots (1)$$

3. 誘電損失を考慮した一次元熱伝導数値計算

計算では、氷を厚さ 2L の平板とし、境界は熱伝達率 h が一定で、一定温度 T<sub>e</sub> の流体と接している一次元熱伝導を仮定した。電場を印加しない場合と印加する場合について昇温計算を行った。電場を印加する場合は、電場による誘電加熱量を内部発熱とする。但し、電磁波の波長が容器より十分長い (λ ~ 6 m) ことから、電極からの距離に依存する電界強度の減衰 (吸収) は無視でき、エネルギー方程式は以下の様に表わせる。

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \pi f E^2 \epsilon_0 \epsilon'' \dots\dots\dots (2)$$

$$\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=L} = h(T_e - T) \dots\dots\dots (3)$$

但し、ρ : 密度 (kg・m<sup>-3</sup>)、c<sub>p</sub> : 比熱 (J・kg<sup>-1</sup>・K<sup>-1</sup>)、T : 温度 (°C)、τ : 時間 (s)、x : 氷の中心からの距離 (m)、E : 電界強度 (V/m)、λ : 熱伝導率 (W・m<sup>-1</sup>・K<sup>-1</sup>)、h : 熱伝達率 (W・m<sup>-2</sup>・K<sup>-1</sup>)、L : 氷の厚さの 1/2 (m)

電場の加熱効果は急速加熱係数 η = τ<sub>E</sub>/τ<sub>NE</sub> と均一加熱係数 θ = ΔT<sub>E</sub>/ΔT<sub>NE</sub> の二つの無次元パラメータを用いて評価した。但し、τ は解凍開始から x = ±L での温度が 0°C となるまでの解凍時間、ΔT は x = ±L での温度が 0°C となった時の氷内部最大温度差であり、添文字 NE、E はそれぞれ電場を印加しない場合、印加した場合を意味する。

4. 結果

本研究では温度が -2°C ~ -60°C、周波数が 50 Hz ~ 5 MHz の範囲にわたって比誘電損率 ε'' を測定した。電界強度が一定の場合、単位時間、単位体積の氷の発熱量は fε'' に比例するので、図 2、3 には比誘電損率の測定値に基づ

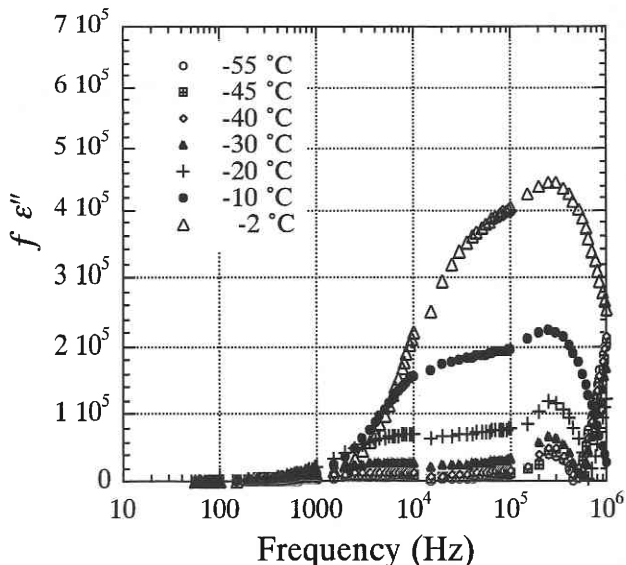


Fig. 2 Spectrum of dielectric loss of ice (frequency × ε'') (10 Hz ~ 1 MHz)

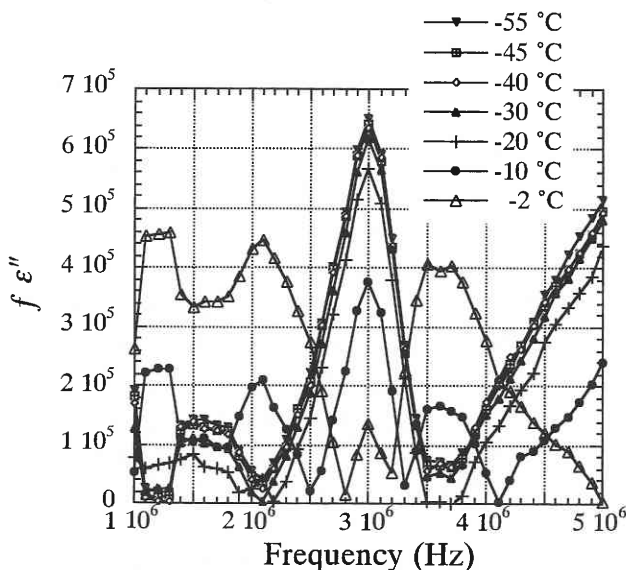


Fig. 3 Spectrum of dielectric loss of ice (frequency × ε'') (1 MHz ~ 5 MHz)

いて計算した各周波数と温度における fε'' の値を示した。

図 2 と図 3 の実験結果に基づき、周波数と電界強度をパラメータとして急速加熱係数と均一加熱係数を計算した。その結果を図 4、5 に示した。

5. 考察

図 2、3 から氷の比誘電損率が周波数と温度に強く依存していること、250 kHz と 3 MHz 程度に見られる fε'' のピークの温度依存性は逆であることがわかる。

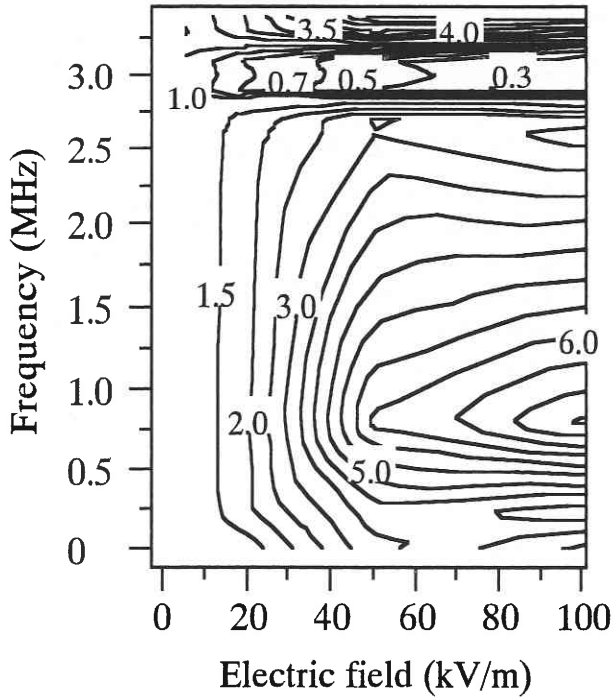


Fig. 4 Effects of frequency and electric field on rapidness factor  $\eta$  ( $L = 0.1 \text{ m}$ ,  $h = 5 \text{ W/m}^2\cdot\text{K}^{-1}$ )

図4より、50 Hz ~ 5 MHzの周波数範囲で $\eta < 1$ を満足しており、全周波数範囲で電場による急速加熱効果が現れることがわかる。

一方、既に述べたように $fe''$ の値は2.7 MHz ~ 3.2 MHzの周波数範囲で、温度の上昇につれて、だんだん小さくなる。(図3)したがって、図5に示したように、この周波数範囲では均一加熱係数 $\theta < 1$ になる。即ち、2.7 MHz ~ 3.2 MHz周波数範囲( $\eta < 1$ ,  $\theta < 1$ )の電場を印可することにより、氷はより急速且つ均一に解凍できる。特に3 MHz近傍の電場は $fe''$ の値がピークを表わすので、他の周波数の電場に比べ、急速、均一解凍効果が優れている。印可電場の電界強度を増加すると、急速均一加熱効果はより強くなる。

氷点下の物体を室温中におくと表面から中心にかけて温度勾配が生成されるので、外部から電磁波をかけると、表面温度は高くなりやすい。従って、高温で電磁波の吸収が低く、低温で高くなる様な周波数範囲が均一加熱の観点からは好ましい。図6に照射した電磁波のエネルギーが、物体中で半分になる深度(D:電力半減深度)の温度による変化を、冷凍牛肉(1)と氷(図3に基づき計算)について周波数をパラメータとして示した。今回測定した周波数のうち、3 MHzと5 MHzでは、氷点直下の温度で電力半減深度が大きく吸収が小さく、低温になるにつれ吸収されやすくなり、電力半減深度が小さくなっている。冷凍牛肉

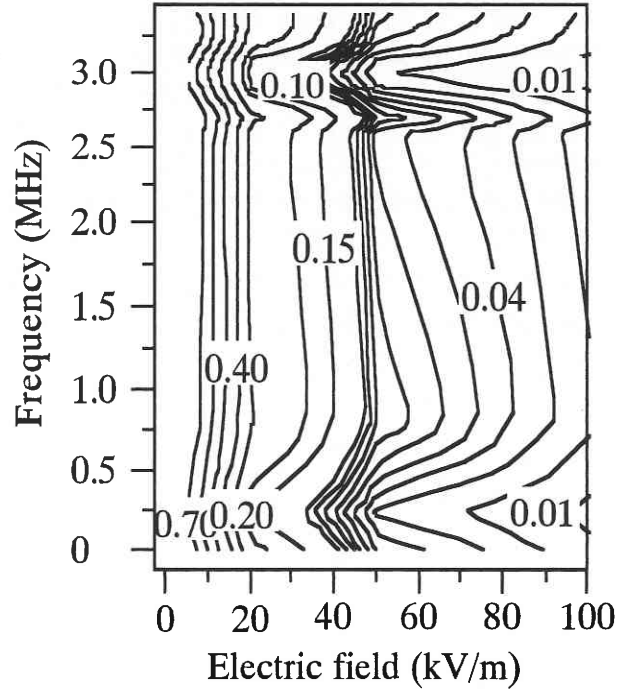


Fig. 5 Effects of frequency and electric field on uniformity factor  $\theta$  ( $L = 0.1 \text{ m}$ ,  $h = 5 \text{ W/m}^2\cdot\text{K}^{-1}$ )

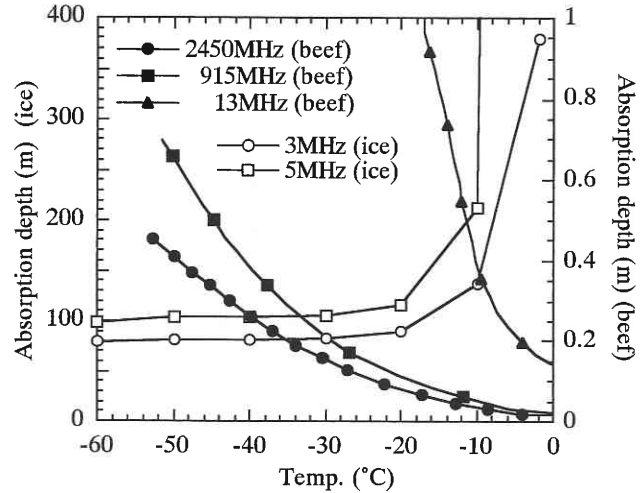


Fig. 6 Absorption depth vs. temperature

と氷では必ずしも比較し得ないが、商用や家庭用で用いられている13 MHz以上の電磁波は温度について逆の傾向をもっており、均一加熱の観点からは、3, 5 MHzの方が有利といえる。

## 6. 結 論

ある特定な周波数の電場を印可することにより、氷結晶の急速、均一加熱が実現される可能性があることを示した。また、誘電損率と周波数の積の値が温度に対して単調減少

## 研 究 速 報

であることが、均一加熱に好ましことを示した。

生体や食品中の水は結合水や水溶液状態で存在する方が多く、それらが凍った場合、みかけの誘電損率のスペクトルは純水と違うことが多い。したがって、凍結保存された生体の解凍や凍結食品の解凍において、それぞれの解凍品に最適な周波数の電場を印可するためには、解凍品の誘電損率特性をより詳しく把握することが望ましい。今後は、5 MHz でみられている、誘電損率と周波数の積の値が温度に対して単調減少の傾向がどの程度の周波数まで成立するのかを見極めると共に、実用上の応用として、実際の冷

凍食品の複素誘電率についての計測も視野にいれていきたい。

(1999 年 3 月 26 日受理)

## 参 考 文 献

- (1) 阿曾 好修, 冷凍, 70-809, 1995, 13.
- (2) 野口 駿, 食品と水の科学, 幸書房, 1992
- (3) G. Evrard, Breakdown, Physics and Chemistry of Ice, Published by Royal Society of Canada, (1973), 199.
- (4) 草野 日出男, 根岸 照雄, 工学院大学研究報告第 75 号, (1993), 241.