

三相攪拌流動型バイオリクター

Three Phase Fluidized Bioreactor with Agitator



技術開発本部
菊池 雅彦
Masahiko Kikuchi

Gas-liquid-solid three phase fluidized reactor for fermentation using urethane foam is studied on its major performance: K_{La} . As the results, K_{La} is more than two times higher than that of aerated column type reactor at the same aeration power. And also K_{La} can correlate over wide operation condition by using two region model which is proposed for gas-liquid agitation.

Minimum agitation power to fluidize the content fluid increases as the increase of urethane foam holdup.

まえがき

発泡体を菌体付着担体として用いる培養技術¹⁾のリアクターには、従来は懸濁気泡塔型培養槽が用いられていた。しかし、菌体濃度を高めて培養効率を上げる場合、担体添加率を高くする必要があり、その場合酸素供給能力や混合性能が低下し、最適操作条件が得にくかった。そこでこれらの問題を解決し、効率の高い培養が可能となる三相流動型リアクターとして、ドラフトチューブを有する通気攪拌槽をこの分野に適用することを検討し、良好な結果を得たので報告する。

1. 発泡体培養装置の概要

発泡体を菌体付着担体として用いる好気性培養法では、高濃度の発泡体を含む培養液を混合し、酸素供給を行う、気体・液体・固体の三相状態での操作が行われている。従来この培養に対しては、懸濁気泡塔、二重管式懸濁気泡塔通気攪拌槽などの培養装置が用いられている。懸濁気泡塔では発泡体の添加率を上げた場合、スラッシングがおりやすく、流動、混合が不十分となり、酸素供給も十分にできなくなる。これに対し循環能力を改良した二重管式懸濁気泡塔は、懸濁気泡塔よりも高濃度の粒子の流動が可能で、酸素供給能力も一般に大きい。懸濁気泡塔と同種の問題がある。

一方通気攪拌槽では酸素供給能力は高いものの、発泡体を含む培養液の流動特性が悪いため、翼近傍のみで攪拌が行われ、装置全体の流動混合が達成されにくい。また、これを解消するために攪拌強度

を上げると攪拌による剪断が強くなり付着菌体の剥離、微生物の損傷などの問題があった。

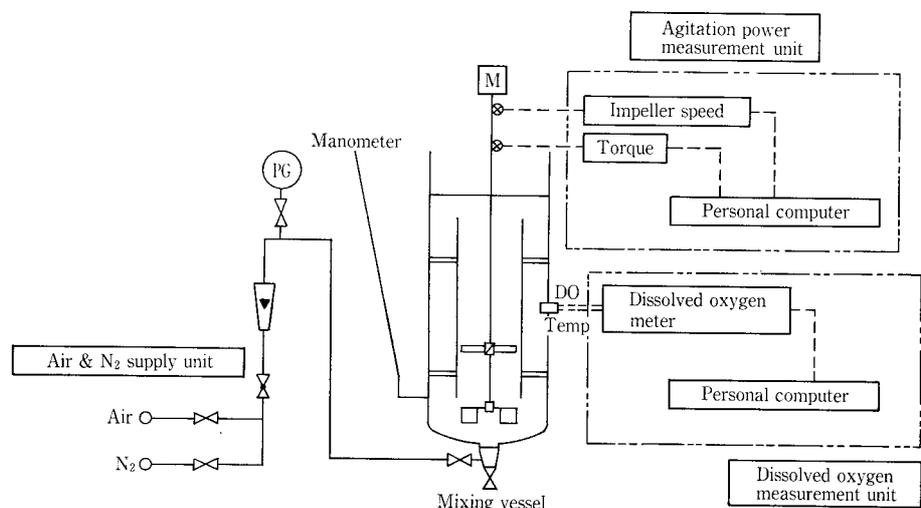
そこで今回前記装置の問題を解決するために、粒子懸濁と流動能力の高い二重管式懸濁気泡塔と、酸素供給能力の高い機械的攪拌装置を組合わせたリアクターの開発を行った。

2. 実験方法

発泡体培養装置（リアクター）内では、菌体増殖、菌体付着、生物反応、混合、酸素供給などが同時に起こっており、その評価は非常に難しい。今回リアクター開発の第一段階として、リアクターの基本形状を検討し、好気性バイオリクターの最も基本的な性能であるガス吸収能力（液側物質移動容量係数： K_{La} ）と攪拌動力特性を培養を伴わない水-発泡体系でのコールドテストにより把握した。

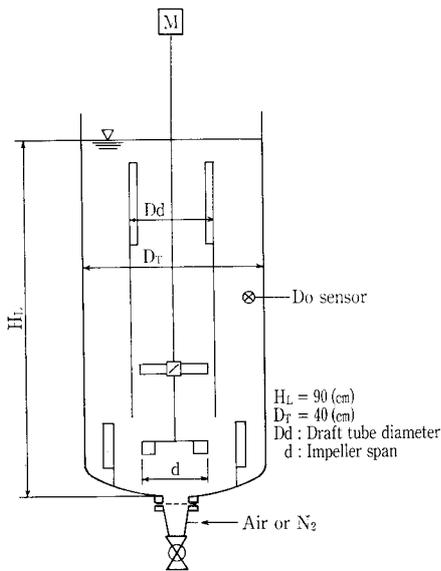
2.1 実験装置

第1図に実験に用いた装置の概要を示す。実験装置は攪拌槽、攪拌機、通気装置および攪拌動力測定系、溶存酸素測定系からなっている。また攪拌槽の詳細を第2図に示す。攪拌槽は透明塩ビ製で、槽底は2:1半楕円皿形とな



第1図 実験装置

Fig. 1 Experimental apparatus



第2図 攪拌槽
Fig. 2 Mixing vessel

っている。攪拌槽内径は40 cm、液深は90 cmで槽内には長さ65 cmのドラフトチューブを設置し、その内部に液循環目的の4枚45°傾斜パドル翼を、またドラフトチューブ下部に気泡分散目的の6枚片羽根ディスクタービン翼を設けた。実験に用いたドラフトチューブ径と攪拌翼スパンを第1表に示す。また、下部タービン翼の周囲には幅4 cm、長さ10 cmのフィンタイプバッフルが4枚軸対称に取り付けられており、ドラフトチューブ内上部にも、幅2 cm、長さ20 cmのインレットバッフルが軸対称に2枚取り付けられている。

通気は槽底部に設けた固液分離用の直径8 cmの20メッシュ金網を通して行った。また、無通気時のテストは攪拌翼のない状態でドラフトチューブ下部外側の環状部に、リングスパージャー(直径32 cm、散気孔直径1 mm×78個)を用いて行った。

2.2 攪拌所要動力

攪拌所要動力は、攪拌軸トルクと回転数を測定し、算出した。攪拌軸トルクは、攪拌軸に直結されたトルク検出軸(SUS 304製 検出部10φ)に固定されたストレインゲージの抵抗値の変化を動歪計を用いて測定した。トルク値は時間変動があるため、動歪計出力をパソコンに取り込み、10秒間(1000個のデータ)の平均値を用いた。

2.3 液側物質移動容量係数(K_{La})の測定

液側物質移動容量係数(以下、容量係数と呼ぶ) K_{La} の測定は酸素電極を用いた溶存酸素計(0-90%応答時間20秒)を採用したダイナミック法により求めた。

実験方法は、まず攪拌槽内液の溶存酸素を窒素ガスでページし、液中の窒素ガス気泡が消えた後、所定量の空気を通気し、溶存酸素濃度の経時変化を溶存酸素計により測定した。また、溶存酸素計の出力をA/D変換機を介してパーソナルコンピュータに取り込み表示および処理を行った。

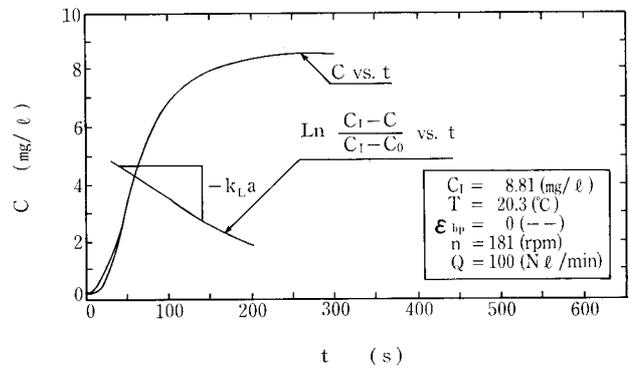
容量係数(K_{La})算出の基となる溶存酸素収支は式(1)で表される。²⁾

第1表 ドラフトチューブ径および攪拌翼スパン

Table 1 Draft tube diameter and impeller span of experimental apparatus

Aa/Ad (-)	Draft tube diameter D_d (cm)	Impeller span d (cm)
3/1	20	18
2/1	22.5	20
1/1	28	25

Aa: Sectional area of annulus
Ad: Sectional area of draft tube



File name

900 112.002 DATA No. =300 40-140 $K_{La}=75.13(\text{hr}^{-1})$

第3図 溶存酸素濃度測定および K_{La} 算出例

Fig. 3 Example of dissolved oxygen concentration measurement and K_{La} calculation

$$\frac{dC}{dt} = K_{La}(C_1 - C)\phi \quad (1)$$

ここに、 C = 溶存酸素濃度

C_1 = 気泡中の酸素分圧と平衡な溶存酸素濃度

ϕ = 表面吸収補正の係数

本研究の通気攪拌における測定範囲では、表面吸収は無視できると考えて $\phi=1$ とした。

式1を積分し式(2)を得る。

$$\text{Ln}(C_1 - C) = -(K_{La})t + \text{Ln}(C_1 - C_0) \quad (2)$$

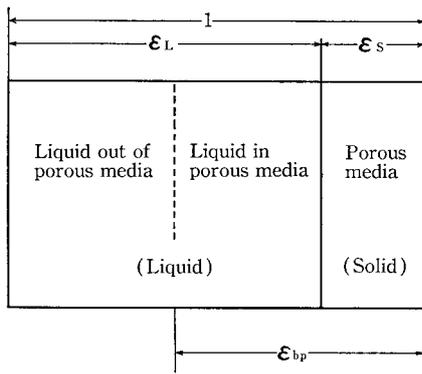
つまり、 K_{La} は $\text{Ln}\{(C_1 - C)/(C_1 - C_0)\}$ vs. t のグラフの傾きとして得られる。ここで C_0 は時刻 $t=0$ における溶存酸素濃度である。第3図に溶存酸素(DO)測定結果および K_{La} 算出結果例を示す。

ダイナミック法による K_{La} 測定法の誤差は溶存酸素計の応答遅れによるが、この遅れを検討するために溶存酸素計による測定と並行して攪拌液をサンプリングし、Winklerアジ化ナトリウム法(JIS K 0102に規定されている溶存酸素測定方法)により測定し、 K_{La} を算出した結果、 $K_{La} < 0.05[\text{s}^{-1}]$ の系ではほとんど遅れがないことが確認されたので、溶存酸素計による測定値から算出した K_{La} 値をそのまま採用した。また、 K_{La} は温度により異なるため、式(3)に従って20°Cの値とする温度換算を行った³⁾。

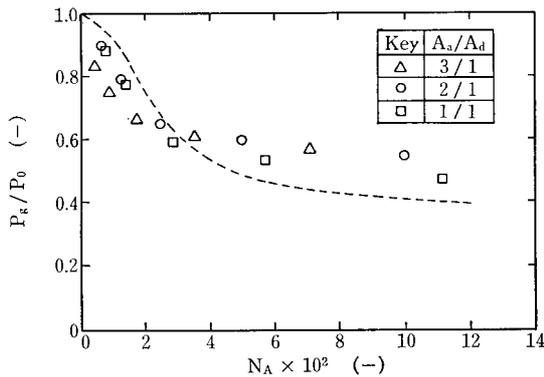
$$(K_{La})_{20} = 1.024^{(20-T)} (K_{La})_T \quad (3)$$

ここに、 $(K_{La})_{20}$: 20°Cでの K_{La}

$(K_{La})_T$: T°Cでの K_{La}



第4図 発泡体ホールドアップの定義
Fig. 4 Definition of porous media holdup



第5図 通気量と撹拌動力の関係
Fig. 5 Relation between agitation power and aeration rate
-----: Disk turbine with 6 blades⁴⁾

2. 4 撹拌液

撹拌液には、水道水に所定量の発泡体を添加したものをを用いた。発泡体としては、日東電工(株)製PM-ウレタンフォームを破碎したものをを用いた。また、通気時の発泡をおさえ、発泡体内部へ含水させるために、培養時消泡剤として用いるシリコンオイル(信越化学(株)製KM-70)を200 ppm 添加した。

2. 5 発泡体ホールドアップ

発泡体添加率として次のような発泡体ホールドアップを採用した。つまり無通気時において、撹拌槽内液は第4図に示すように発泡体(固体部分)、発泡体内部にある液体および発泡体外部にある液体に分けて考えることができる。そこで、発泡体添加率として発泡体(固体部分)のホールドアップおよび、発泡体内部にある液体のホールドアップを 発泡体添加率(発泡体ホールドアップ: ϵ_{bp})とした。

3. 実験結果および考察

3. 1 撹拌動力

3. 1. 1 無通気時撹拌所要動力

撹拌槽内の液流動時における液単位質量当りの撹拌所要動力(P_{gv})は、発泡体ホールドアップにほとんど影響されなかった。これより、発泡体を含む液も流動している限り、水とほぼ同じ密度、みかけ粘度を示すものと考えられる。しかし、流動化のための必要撹拌動力は、発泡体ホールドアップの増加に伴って上昇することが観察された。第

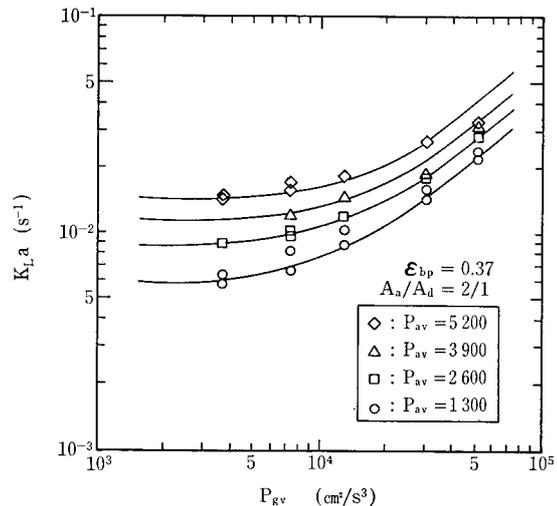
第2表 ϵ_{bp} の増加による流動化撹拌動力の増加

ϵ_{bp}	Agitation power per unit mass (cm^2/s^3)
0.37	0.2×10^4
0.46	0.4×10^4
0.55	0.8×10^4

for water: $10^4 (\text{cm}^2/\text{s}^3) \approx 1 \text{ kW}/\text{m}^3$

第3表 撹拌翼スパンおよびその動力数

Impeller span d (cm)	N_p (-)	Rem (-)
18	3.3	$1.0 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^5$
20	3.4	$1.0 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^5$
25	3.2	$1.0 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^5$



第6図 K_{La} と撹拌動力の関係
Fig. 6 Relation between K_{La} and P_{gv}

2表にその結果を示す。この撹拌所要動力の増加は発泡体どうしの摩擦の増加による流動性の悪化と考えられる。また、撹拌動力数(N_p)は、第3表に示すようにドラフトチューブ径によらずほぼ一定であった。

3. 1. 2 通気時撹拌所要動力

通気撹拌槽では、気泡群の存在によって撹拌翼周辺の流体の見掛け密度が低下するため通気量に応じて撹拌動力が低下する。通気撹拌動力の低下は、式(4)で定義される通気流量と撹拌翼吐出流量の比である通気係数 N_A を用いて一般に表される。

$$N_A = Q/nd^3 \quad (4)$$

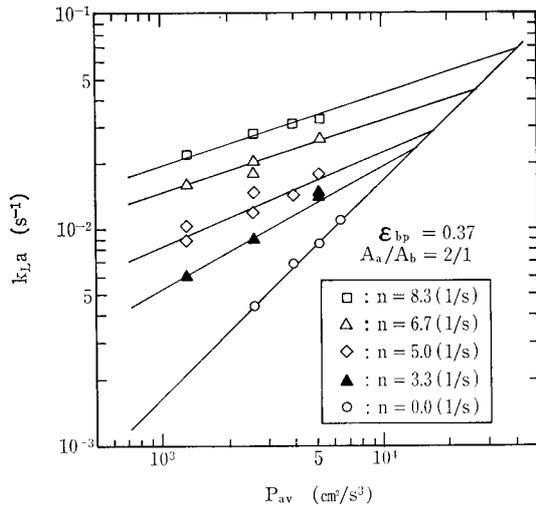
ここに、 Q : 通気量 (cm^3/s)
 n : 撹拌速度 (s^{-1})
 d : 撹拌翼スパン(cm)

本テスト装置の通気撹拌動力特性を通気係数を用いて示すと第5図になり、6枚羽根ディスクタービン翼に近い特長を示すことがわかる。⁴⁾これは本テスト装置の気泡分散が下部タービンによりのみ行われているためと考えられる。

3. 2 容量係数

3. 2. 1 撹拌動力による影響

第6図に K_{La} 値を単位質量当りの無通気時撹拌動力 P_{gv} に対して示す。なお、 P_{gv} は式(5)により算出される。



第7図 $K_{L,a}$ と通気動力の関係
Fig. 7 Relation between $K_{L,a}$ and P_{av}

$$P_{gv} = N_p n^3 d^5 / V \quad (5)$$

ここに、 V : 攪拌液容量 (cm^3)

攪拌強度が弱い場合は、 $K_{L,a}$ は通気の影響のみを受けることがわかる。この状態では $K_{L,a}$ が通気に支配される気泡塔的な状態と考えられ、

$$K_{L,a} \propto P_{gv}^0 \quad (6)$$

の関係にある。

しかし、攪拌強度を上げると $K_{L,a}$ は攪拌動力の影響を大きく受けることがわかる。この状態では $K_{L,a}$ が攪拌に支配される状態と考えられ、

$$K_{L,a} \propto P_{gv}^{0.8} \quad (7)$$

の関係にある。このように $K_{L,a}$ に対する攪拌の影響は通気量とのバランスにより、 P_{gv}^0 から $P_{gv}^{0.8}$ まで変化することがわかる。

3. 2. 2 通気による影響

第7図に $K_{L,a}$ 値を単位質量当りの通気動力 P_{av} に対して示す。なお、 P_{av} は式(8)により算出される。

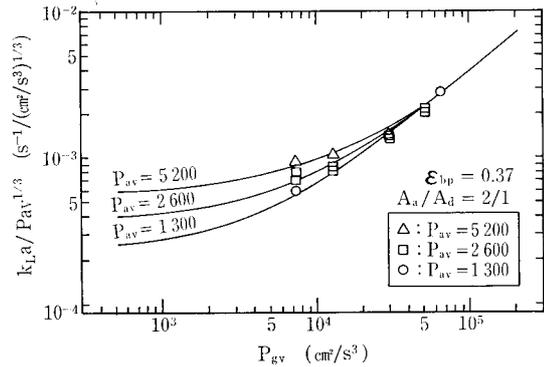
$$P_{av} = u_g g \quad (8)$$

ここに、 u_g : 通気線速度 (cm/s)
 g : 重力加速度 (cm/s^2)

攪拌強度が弱い場合には、 $K_{L,a}$ は通気の影響が大きく、攪拌のない完全な通気支配状態では、

$$K_{L,a} \propto P_{av}^{1.0} \quad (9)$$

の関係にあり、気泡塔の研究で得られた結果と同様の関係となる。しかし、攪拌強度を上げると通気の影響は小さく



第8図 2領域モデルによる $K_{L,a}$ の相関
Fig. 8 Correlation of $K_{L,a}$ by two region model

第4表 通気支配および攪拌支配状態に於ける $K_{L,a}$ 相関式

Table 4 $K_{L,a}$ correlation under the aerated tower condition and the agitation-controlling condition

Aerated tower condition : $(K_{L,a})_a = a (P_{av})^{1.0} (P_{gv})^0$
Agitation-controlling condition : $(K_{L,a})_g = b (P_{av})^{1/3} (P_{gv})^{0.8}$
 $A_a/A_d = 2/1$

ϵ_{bp}	a	a/a ₀	b	b/b ₀
0.00	3.5×10^{-6}	1.00	7.6×10^{-7}	1.00
0.37	1.8×10^{-6}	0.51	4.0×10^{-7}	0.53
0.46	1.3×10^{-6}	0.37	2.7×10^{-7}	0.36
0.55	1.1×10^{-6}	0.31	2.3×10^{-7}	0.30

a₀ : a at $\epsilon_{bp} = 0$

b₀ : b at $\epsilon_{bp} = 0$

なり、攪拌支配状態では、

$$K_{L,a} \propto P_{av}^{1/3} \quad (10)$$

の関係になることがわかる。このように $K_{L,a}$ に対する通気の影響も攪拌強度とのバランスにより、 $P_{av}^{1.0}$ から $P_{av}^{1/3}$ まで変化することがわかった。

3. 2. 3 $K_{L,a}$ 動力相関

前出の容量係数の攪拌および通気による影響の結果をまとめると、通気支配状態の容量係数： $(K_{L,a})_a$ および、攪拌支配状態の容量係数： $(K_{L,a})_g$ は、各々単位質量当りの通気動力 P_{av} と攪拌動力 P_{gv} を用いて式(11)、(12)で相関される。

$$(K_{L,a})_a = a (P_{av})^{1.0} (P_{gv})^0 \quad (11)$$

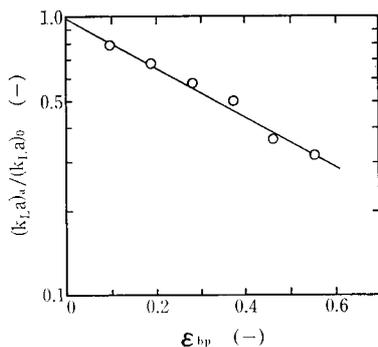
$$(K_{L,a})_g = b (P_{av})^{1/3} (P_{gv})^{0.8} \quad (12)$$

第4表に式(11)、(12)の係数 a, b を示す。

このような気・液・固三相系の通気支配状態から中間状態を経て、攪拌支配状態にわたる動力相関を行うために、通気攪拌槽のガス吸収容量係数の相関において、西川ら²⁾により提唱された二領域モデルの適用を検討した。

二領域モデルとは、気・液攪拌槽は攪拌と通気のエネルギの投入比率によって、

- (1) 槽内全体に攪拌効果が行きわたる攪拌支配状態
- (2) 攪拌効果が弱く気泡塔と類似の通気支配状態
- (3) 上記両状態が混在する中間状態



第9図 発泡体ホールドアップの変化に伴う $K_{L,a}$ の低下
Fig. 9 Decrease of $K_{L,a}$ by the porous media holdup

に分け、各領域の移動係数をそれぞれの容積比に補正したものを合わせて槽内総括移動係数とするモデルである。そして攪拌が支配的な流動領域の容積と通気が支配的な流動領域の容積の比は、攪拌動力と通気動力の比 P_{gv}/P_{av} によって変化すると考えられる。しかし、移動係数に及ぼす影響が、攪拌動力よりも通気動力の方が強いので補正係数 f を与えると、式(13)のようになる。

$$V_g/V_a = (P_{gv}/f)/P_{av} \quad (13)$$

f はガス吸収速度において $f = N_p$ となることが報告されており、²⁾ このモデルに従うと攪拌槽内の $K_{L,a}$ 総括値は、式(14)で表される。

$$K_{L,a} = (K_{L,a})_g + \{P_{av}/(P_{gv}/N_p + P_{av})\} (K_{L,a})_a \quad (14)$$

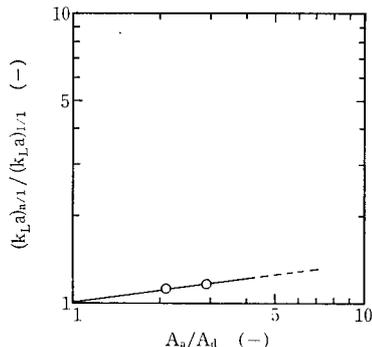
式14と前出の $(K_{L,a})_a$ と $(K_{L,a})_g$ の相関結果より最終的に槽内の $K_{L,a}$ 総括値は次式となる。

$$K_{L,a} = [aP_{gv}^{0.8} + (P_{av}/(P_{gv}/N_p + P_{av}))bP_{av}^{2/3}] P_{av}^{1/3} \quad (15)$$

第8図に二領域モデルを適用した相関結果の妥当性を確認するために、縦軸に $K_{L,a}/(P_{av})^{1/3}$ を、横軸に P_{gv} を取り実測値との比較を示した。図中の曲線は、式(15)の計算値を表す。図より、実験範囲全域つまり通気支配状態から攪拌支配状態にわたる広い範囲で、実測値は二領域モデル値に一致しており、気・液・固三相系の攪拌槽のガス吸収に対しても二領域モデルが適用できるものと判断される。

3. 2. 4 発泡体添加の影響

発泡体を添加すると $K_{L,a}$ は減少する。これは発泡体の存在により、通気した気泡の合一が促進され気液界面が減少すると同時に、気泡上昇速度が大きくなり気泡滞留時間が短くなるためと考えられる。各支配状態における $K_{L,a}$ 減少の違いを知るために第3表に示した各支配状態の相関式の係数 a , b の減少（つまり第3表中の a/a_0 と b/b_0 の減少）を比較すると、ほぼ同じ値となっていることから通気支配状態、攪拌支配状態共に発泡体添加により同様な影響を受けていると考えられる。第9図に発泡体添加による $K_{L,a}$ の減少を示す。縦軸に発泡体添加時容量係数と発泡体無添加時容量係数の比 $(K_{L,a})_a / (K_{L,a})_0$ を、横軸に発泡体ホールドアップ ϵ_{bp} を示している。第9図の結果より発泡体添加の影響は式(16)で表される。



第10図 ドラフトチューブ径の変化に伴う $K_{L,a}$ の変化
Fig. 10 Relation between $K_{L,a}$ and draft tube diameter

$$\frac{(K_{L,a})_a}{(K_{L,a})_0} = \exp(-2.0 \epsilon_{bp}) \quad (16)$$

3. 2. 5 ドラフトチューブ径の影響

二重管式気泡塔（環状部ガス吹込み）における $K_{L,a}$ は、環状部断面積（容積）に影響を受けることが報告されている。⁵⁾ これはガス吹込み部である環状部ガスホールドアップが液下降部であるドラフトチューブ内ガスホールドアップよりも大きいためである。本実験装置においても、ドラフトチューブ外環状部断面積とドラフトチューブ内断面積の比 (A_a/A_d) が大きくなるほど $K_{L,a}$ は大きくなる。第10図に同一 P_{gv} , P_{av} 下で行った実験の結果を示すが、ほぼ同様の傾向が得られた。第10図にその結果を示す。実験は同一 P_{gv} , P_{av} 下で行った。この結果 $K_{L,a}$ のドラフトチューブ径 (A_a/A_d) の影響は式(18)で表されることがわかった。

$$(K_{L,a})_{n/1} = (A_a/A_d)^{0.18} (K_{L,a})_{1/1} \quad (18)$$

$(K_{L,a})_{n/1} : A_a/A_d = n/1$ の $K_{L,a}$
 $(K_{L,a})_{n/1} : A_a/A_d = 1/1$ の $K_{L,a}$

4. ま と め

本テストの結果より、発泡体を含む気・液・固三相攪拌流動型リアクターは、小容量通気状態でも気泡塔型リアクターよりも同じ通気動力下で2~5倍の優れたガス吸収能力がある。このため発泡体を菌体付着メディアとして投入しても酸素供給能力の低下は小さく優れた発酵装置として用いることができる。

む す び

本テスト結果より、発泡体付着培養に対して攪拌流動型リアクターの有用性が確認できた。今後発泡体培養技術の実用化に取り組んでいる当技術開発本部バイオグループと共同でホットテスト（実培養テスト）などを通じて、本リアクターの開発を進めて行く予定である。

最後に、本研究の $K_{L,a}$ 相関に関して御指導いただいた九州大学工学部応用原子核工学科 西川正史 助教授に感謝の意を表します。

【参考文献】

- 1) 小林ら, 化学工学協会第51年会講演要旨集, 1303 (1986)
- 2) Nishikawa, M., et al : J. Chem. Eng. Japan, 14, 219 (1981)
- 3) W. W. Eckenfelder, Jr., D. J. O'Connor, 岩井重久訳, 廢水の生物学的処理, コロナ社 p. 88, p. 108 (1961)
- 4) 化学工学便覧, 第5版 p. 901 (1988)
- 5) 化学工学テクニカルレポートNo. 9 気泡塔・懸濁気泡塔の設計 p. 95 (1985)