

外部循環式エアリフト気泡塔の物質移動特性に及ぼす多孔質板材質の影響

宮原敏郎・小合康裕*

岡山理科大学工学部バイオ・応用化学科

* 岡山理科大学大学院工学研究科応用化学専攻

(2007年9月11日受付、2007年11月2日受理)

緒言

近年、簡単な構造、良好な液混合および低い消費電力などの利点を有することから、エアリフト気泡塔が大きな注目を集めている。エアリフト気泡塔は、廃水処理、吸収装置、発酵槽、触媒反応器および石炭の液化などの化学的および生物化学的な分野で広範囲に使用されている。とくに従来用いられている標準型気泡塔に比較して、液中での剪断力が小さいことから、菌糸体微生物、動物および植物細胞などを含む剪断に敏感で脆い細胞を用いるバイオリクターには有効である。エアリフト気泡塔は、塔内に形成される液循環ループの場所の観点から、内部循環式エアリフト気泡塔と外部循環式エアリフト気泡塔の二種類に分けられる。内部循環式エアリフト気泡塔は更にドラフトチューブエアリフト気泡塔とスプリット（パッフル）エアリフト気泡塔に分けられる。ガスがガス分散部（ライザー）に流されると、ライザーと非ガス分散部（ダウンカマー）の間の密度差により循環液流れが生じる。ガスと液はライザー部では上昇流れを呈し、ダウンカマー内の液は下降流を呈する。このエアリフト気泡塔の液循環の存在が標準型気泡塔と比較して、良好な熱移動および液混合を生じさせる。

外部循環式エアリフト気泡塔に関する研究としては、操作因子に基づくもの(Bello *et al.*, 1984, 1985; Hills, 1976; Choi and Lee, 1993; Miyahara *et al.*, 1997, 2001; Popović and Robinson, 1987, 1988, 1989)および幾何学的なパラメーターに基づくもの(Popović and Robinson, 1987; Mcmanamey *et al.*, 1984; Miyahara *et al.*, 1999)があるが、ガス分散板から発生する気泡の大きさ、上昇

速度および塔内での気泡の分散状態は流動特性や物質移動特性を左右し、これらの因子は、ガス分散板から発生する気泡の大きさにより異なる。しかし物質移動特性に及ぼす分散板材質の影響についてはこれまで全く報告が無い。

そこで本研究では、外部循環式エアリフト気泡塔の物質移動特性に及ぼすガス分散板材質の影響を明らかにする目的で、親水性材質の真鍮製の多孔質板(Miyahara *et al.*, 2001)に加え、疎水性材質のABS樹脂製の多孔質板を用い、空気-水系にて外部循環式エアリフト気泡塔の物質移動特性に及ぼす多孔質板材質の影響を親水性および疎水性の観点から実験的に検討した。

Table 1 Geometry of porous plates employed

Plate	d_H [mm]	F [%]	T_p [mm]	d_p [mm]	Remarks
BPF-5	500	36	19	2-4	Acrylonitrile-butadiene-styrene resin (ABS resin)
BPF-12	400	36	19	0.8-1.7	
BPF-23	300	36	19	0.5-0.8	
BPF-26	200	36	19	0.4-0.7	
P-150	400	45	5	1	Brass (Miyahara <i>et al.</i> , 2001)
P-120	300	43	5	0.828	
P-100	230	40	5	0.575	
P-70	165	38	5	0.461	
P-20	90	33	5	0.243	

1. 実験装置と方法

実験には Figure 1 に示される外部循環式エアリフト気泡塔を用いた。エアリフト気泡塔は透明アクリル樹脂製である。ライザーとダウンカマーの高さは 2.67 m であり、内径はともに 14 cm である。ガス分散板として、Table 1 に示す真鍮製の多孔質板(Miyahara *et al.*, 2001)に加え、ABS樹脂製の多孔質板を用いた。塔全体の液側物質移動容量係数、 $k_L a_T$ は動的ガス吸収法(Chisti *et al.*, 1990; Popović and Robinson, 1989)によって決定した。まず、窒素ガスが塔に流され、水中の溶存酸素が除去される。その後、空気が塔内に流される。液中の溶存酸素濃度の時間的変化が溶存酸素計(YSI Japan 製 Model 58)にて測定され、ペンレコーダー(横河電機製 Model 3711)で記録された。溶存酸素計のプロブ(YSI Japan 製 Model 5739)はダウンカマーの上部に設置された。液相では完全混合を仮定し、時間に対する酸素濃度の片対数プロットの傾きから、 $k_L a_T$ が決定される。気泡径、 d_b 、ライザー中の局所ガスホルドアップ、 ε_{Gr} はガス分散板から 1.33 m 上方に設置

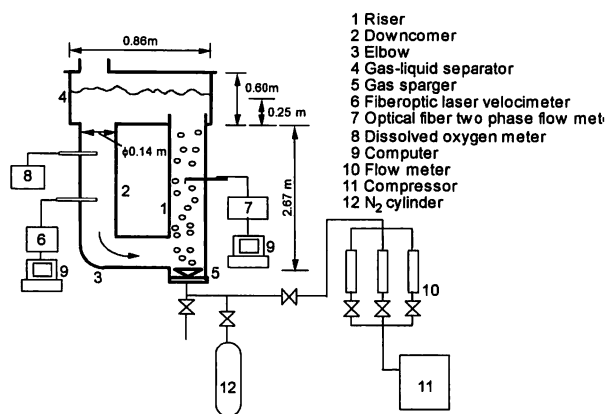


Fig. 1 Experimental apparatus

された光ファイバー二相流計測システム(日本カノマックス(株)製 System 7933)で測定された。この測定法では、 d_b は、気泡が光ファイバースローブを通過する時間、 Δt と気泡の上昇速度、 U_b から次式により計算される。

$$d_b = U_b \Delta t \quad (1)$$

U_b は上昇気泡のドップラー信号、 Δf_G から計算される。

$$U_b = \lambda \Delta f_G / 2n_G \quad (2)$$

ここで λ はHe-Neレーザーの波長であり、 n_G は空気の屈折率である。 ε_{Gr} は $\varepsilon_{Gr} = \Sigma \Delta t / T$ (T はサンプリング時間)で計算される。 d_b 、 U_b および ε_{Gr} はライザー中心から半径方向に7点($r=0, \pm 0.02, \pm 0.04, \pm 0.06$ m)で測定された。体面積平均気泡径は $d_{VS} = \Sigma N d_b^3 / \Sigma N d_b^2$ から計算され、ガスホールドアップの断面平均値、 ε_G を求めた。

空気流量はガス流れ系に取り付けられた校正済みのロータメータで測定した。

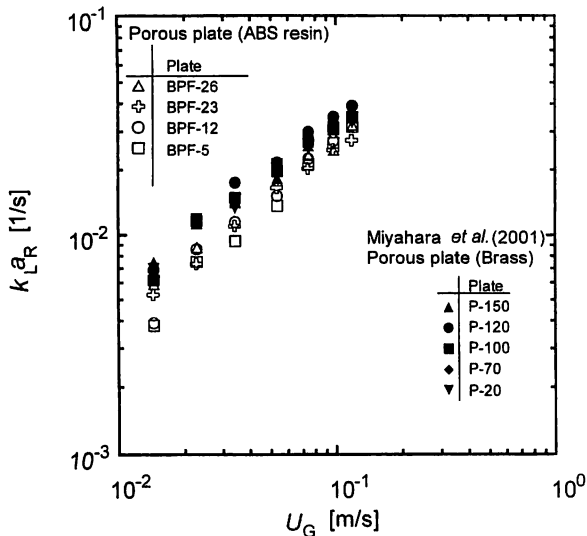


Fig. 2 Liquid-phase volumetric mass transfer coefficient

2. 結果および考察

本実験での外部循環式エアリフト気泡塔ではダウンカマーにはほとんど気泡は同伴されないことが観察された。そこで物質移動はほとんどライザーで起こると考えられるので、 $k_L a_T$ からライザーでの液側物質移動容量係数、 $k_L a_R$ を求めるのに次式を使用した(Popović and Robinson, 1989)。

$$k_L a_R = k_L a_T (1 + A_D / A_R) \quad (3)$$

ここで、 A_D および A_R はダウンカマーとライザーの断面積である。本実験では、全液量に対するライザーとダウンカマーの接続部の体積(3.4%)は無視した。それゆえ $A_D/A_R=1$ である。Figure 2は空塔ガス速度の増加

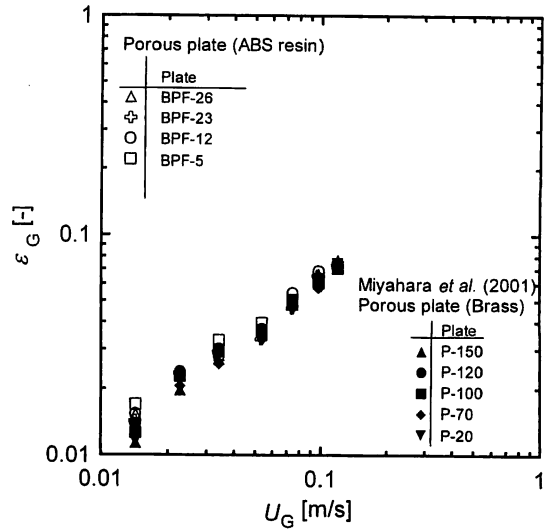


Fig. 3 Gas holdup

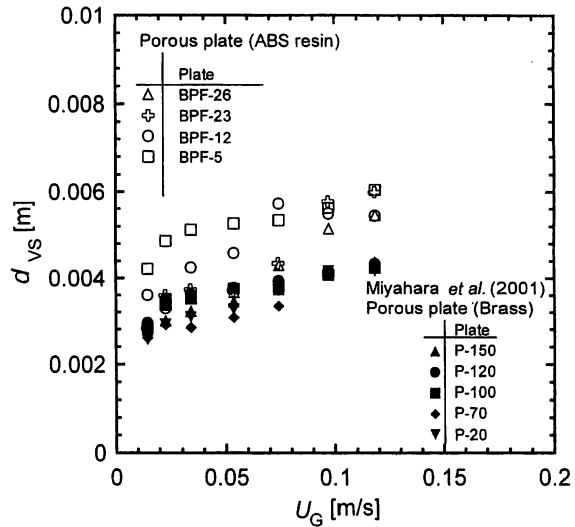


Fig. 4 Sauter mean bubble diameter

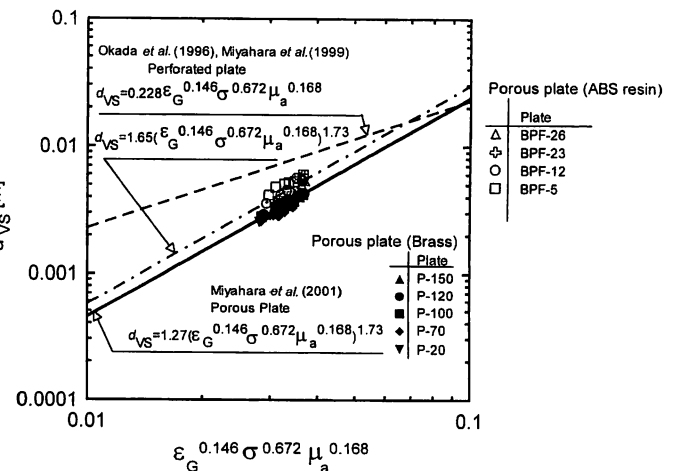


Fig. 5 Correlation of Sauter mean bubble diameter

による $k_L a_R$ への多孔質板の材質の影響を示している。この図より、 $k_L a_R$ は親水性の真鍮製の多孔質板を用いた場合、疎水性である ABS 樹脂製の多孔質板を用いた場合より倍近く大きい。これは容量係数中の気液界面積、 a_R 、液側物質移動係数、 k_L 、のいずれかの影響と考えられる。

そこで a_R と密接な関係にある ϵ_G の結果を Figure 3 に示す。本実験範囲内では、多孔質板材質の影響あまり見られない。また a_R と密接な関係にある体積平均気泡径、 d_{VS} 、を検討し、Figure 4 に示す。ABS 樹脂製の多孔質板で生成される d_{VS} はおよそ 4~6 mm、真鍮製の多孔質板では 3~4 mm の範囲にあり、ABS 樹脂製の多孔質板で生成される気泡は大きい。この原因としては、真鍮製の多孔質板は親水性のため、気液界面での多孔質板に対する接触角が小さくなり、実質の気泡生成に影響する多孔質板の孔径が小さく、小さな気泡の生成につながる。しかし、ABS 樹脂製の多孔質板では疎水性のため接触角が大きく、実質の孔径が大きく、大きな気泡の生成につながったものと推測される。

Figure 5 は d_{VS} を Okada *et al.* (1996) と Miyahara *et al.* (1999) の相関に倣い整理したものである。図中の実線は Miyahara *et al.* (2001) が真鍮製の多孔質板を用いて得た次式である。

$$d_{VS} = 1.27 (\epsilon_G^{0.146} \sigma^{0.672} \mu_a^{0.168})^{1.73} \quad (4)$$

ABS に対する結果は Miyahara *et al.* (2001) の結果より大きな値を示している。疎水性の場合として一点鎖線で示される以下の相関を得る。

$$d_{VS} = 1.65 (\epsilon_G^{0.146} \sigma^{0.672} \mu_a^{0.168})^{1.73} \quad (5)$$

なお図中の破線は Okada *et al.* (1996) および Miyahara *et al.* (1999) が多孔板に対して得た結果であり、比較のために示す。

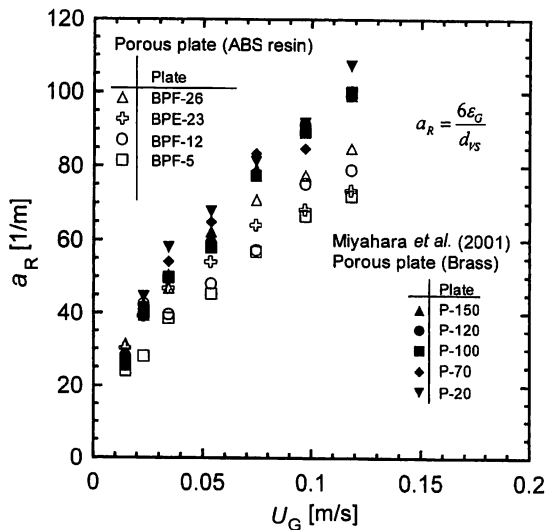


Fig. 6 Gas-liquid interfacial area

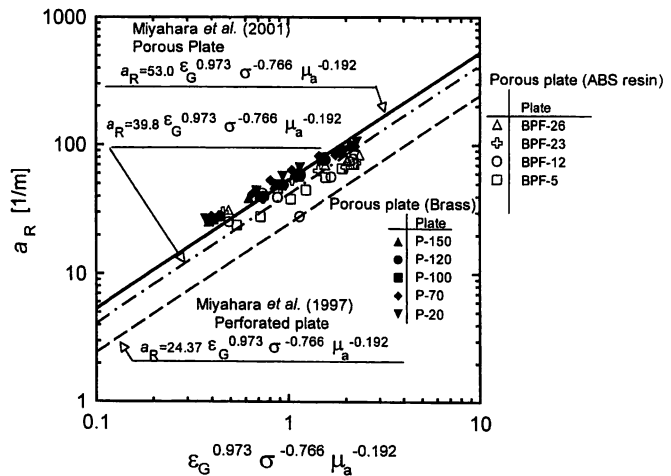


Fig. 7 Correlation of gas-liquid interfacial area

前述の ϵ_G および d_{VS} から算出された a_R を Figure 6 に示す。 a_R は ABS 樹脂製の多孔質板のほうがかなり小さい。Figure 7 は a_R を Miyahara *et al.* (1997) の相関に倣い整理したものである。図中の実線は Miyahara *et al.* (2001) が親水性である真鍮製の多孔質板に対して得た次式である。

$$a_R = 53.0 \epsilon_G^{0.973} \sigma^{-0.766} \mu_a^{-0.192} \quad (6)$$

疎水性である ABS 製の多孔質板に対する結果は、Miyahara *et al.* (2001) が得た結果 (Eq.(6)) よりも少し小さな値を示し、以下の相関式で続けられる。

$$a_R = 39.8 \epsilon_G^{0.973} \sigma^{-0.766} \mu_a^{-0.192} \quad (7)$$

なお比較のため、Miyahara *et al.* (1997) が得た多孔板に対する結果を図中の破線で示す。

実験的に得られた $k_L a_R$ と a_R から液側物質移動係数 k_L が算出される。Table 1 に示す親水性である真鍮製の多孔質板と疎水性である ABS 製の多孔質板の双方の

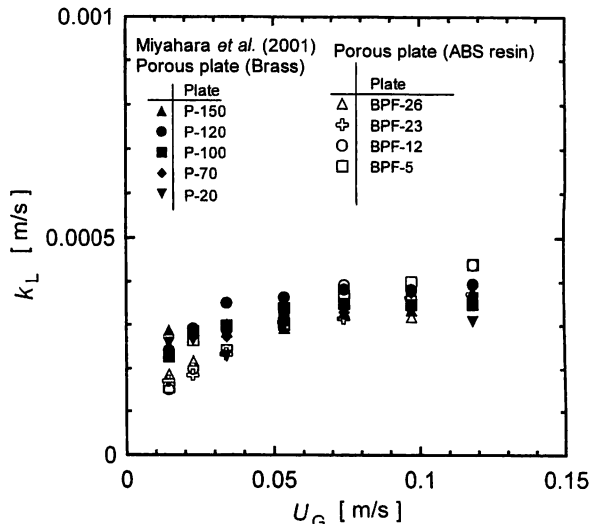


Fig. 8 Liquid-phase mass transfer coefficient

k_L を Figure 8 に示す。 U_G の小さい領域では、ABS 樹脂製の多孔質板の k_L のほうが小さい値を示し、若干の影響が見られるが、 U_G が大きくなると、傾向的な差はほとんど認められなく差異はない。以上のことより Figure 2 に示す $k_L a_R$ の多孔質板材質の差異による影響の主な原因は、発生気泡の大きさに起因し、 a_R の差が $k_L a_R$ の差として現れているものと推察される。

ところで、多孔質板の材質に関係なく、 $k_L a_R$ を求めることは、外部循環式エアリフト気泡塔の操作・設計に対し重要なことである。そこで、標準型気泡塔に対して Schügerl *et al.* (1977) によって提案された整理方法に倣い $k_L a_R$ を相関したものが Figure 9 である。図中の実線は以前 Miyahara *et al.* (2001) が親水性である真鍮製の多孔質板に対して得た結果

$$k_L a_R = 1.05 \times 10^{-3} (U_G / d_{VS})^{1.11} \quad (8)$$

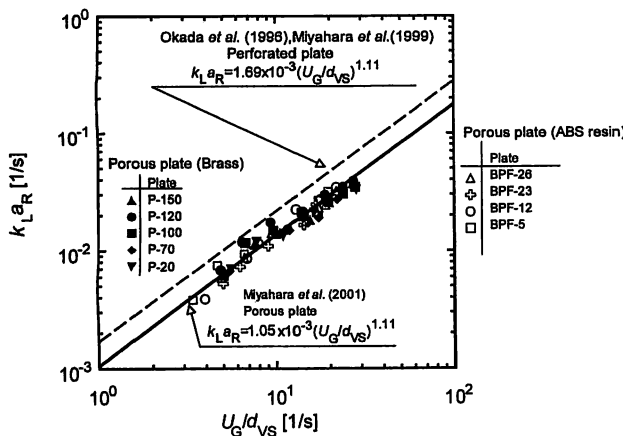


Fig. 9 Correlation of liquid-phase volumetric mass transfer coefficient

であるが、疎水性である ABS 樹脂性の多孔質板に対する結果も同じ相関式で表されることは興味深い。なお図中の破線は、Okada *et al.* (1996) と Miyahara *et al.* (1999) により得られた多孔板に対する結果であり、比較のため示す。

結 言

外部循環式エアリフト気泡塔の物質移動特性に及ぼす多孔質板材質の影響について、材質の親水性と疎水性の観点から実験的な検討を行い、以下の結果を得た。

- 1) 液側物質移動容量係数は、親水性材質の多孔質板を用いた場合、疎水性材質の多孔質板を用いた場合より倍近く大きな値を示す。
- 2) 液側物質移動容量係数に密接な関係がある体面積平均気泡径を検討したところ、親水性材質の多孔質板で生成される気泡よりも、疎水性材質の多孔質板で生成される気泡のほうが大きい。
- 3) 液側物質移動係数中の気液界面積を検討したところ、疎水性材質の多孔質板の場合、気液界面積は親水性材質の多孔質板の場合より小さい。
- 4) 親水性および疎水性材質の多孔質板での物質移

動係数には大きな差は見られない。

- 5) 親水性および疎水性材質からなる多孔質板を用いた場合の液側物質移動容量係数は同じ相関式で纏められる。

以上のことから、液側物質移動容量係数が、親水性材質の多孔質板を用いた場合、疎水性材質の多孔質板を用いた場合より大きくなる原因は、主として発生気泡の大きさに起因し、気液界面積の差が液側物質移動容量係数の差として表れると考えられる。

Nomenclature

A_D	= cross-sectional area of downcomer, m^2
A_R	= cross-sectional area of riser, m^2
a_R	= specific interfacial area per unit gas-liquid dispersion volume in riser, m^{-1}
a_T	= specific interfacial area per unit gas-liquid dispersion volume in column, m^{-1}
d_b	= bubble diameter, m
d_H	= hole diameter of porous plate, m
d_p	= particle diameter, m
d_{VS}	= Sauter mean bubble diameter, m
F	= free area
Δf_G	= Doppler signal of rising bubble, $1/s$
k_L	= liquid-phase mass transfer coefficient, m/s
$k_L a_R$	= liquid-phase volumetric mass transfer coefficient based on gas-liquid dispersion volume in riser, $1/s$
$k_L a_T$	= liquid-phase volumetric mass transfer coefficient based on gas-liquid dispersion volume in column, $1/s$
N	= number of bubbles
n_G	= refractive index of air
T	= total time of sampling, s
T_p	= plate thickness, m
Δt	= time, s
U_b	= bubble rise velocity, m/s
U_G	= superficial gas velocity, m/s
ε_G	= gas holdup in riser
ε_{Gr}	= local gas holdup in riser
μ_a	= liquid viscosity, $Pa \cdot s$
λ	= wave length of He-Ne Laser, m
σ	= surface tension, N/m

Literature Cited

- Bello, R. A., C. W. Robinson and M. Moo-Young; "Liquid Circulation and Mixing Characteristics of Airlift Contactors," *Can. J. Chem. Eng.*, **62**, 573-577 (1984)
- Bello, R. A., C. W. Robinson and M. Moo-Young; "Gas Holdup and Overall Volumetric Oxygen Transfer Coefficient in Airlift Contactors," *Biotechnol. Bioeng.*, **27**, 369-381 (1985)
- Chisti, Y., M. Kasper and M. Moo-Young; "Mass Transfer in External-Loop Airlift Bioreactors Using Static Mixers," *Can. J. Chem. Eng.*, **68**, 45-50 (1990)
- Choi, K. H. and W. K. Lee; "Circulation Liquid Velocity, Gas Holdup and Volumetric Oxygen Transfer Coefficient in External-Loop Airlift Reactors," *J. Chem. Tech. Biotechnol.*, **56**, 51-58 (1993)
- Hills, J. H.; "The Operation of a Bubble Column at High Throughputs I. Gas Holdup Measurement," *Chem. Eng. J.*, **12**, 89-99 (1976)
- McManamey, W. J., D. A. J. Wase, S. Raymahassay and K. Thaynithy; "The Influence of Gas Inlet Design and Gas

- Holdup Values for Water and Various Solutions in a Loop-Type Airlift Fermenter," *J. Chem. Tech. Biotechnol.*, **34B**, 151-164 (1984)
- Miyahara, T., H. Hamanaka, T. Takino, Y. Akagi and K. Okada; "Gas Holdup, Gas-Liquid Interfacial Area and Mass Transfer Coefficient in External-Loop Airlift Bubble Column Containing Low Density Particles," *J. Chem. Eng. Japan*, **30**, 958-961 (1997)
- Miyahara, T., H. Hamanaka, T. Umeda and Y. Akagi; "Effect of Plate Geometry on Characteristics for Fluid Flow and Mass Transfer in External-Loop Airlift Bubble Column," *J. Chem. Eng. Japan*, **32**, 689-695 (1999)
- Miyahara, T., T. Umeda and Y. Akagi; "Gas Holdup, Gas-Liquid Interfacial Area and Mass Transfer in an External-Loop Airlift Bubble Column with a Porous Plate," *The Bulletin of Okayama University of Science*, No.37A, 179-182 (2001)
- Okada, K., Y. Nagata and Y. Akagi; "Effect of Packed Bed on Mass Transfer in External-Loop Airlift Bubble Column," *J. Chem. Eng. Japan*, **29**, 582-587 (1996)
- Popović, M. and C. W. Robinson; "The Specific Interfacial Area in External-Circulation-Loop Airlift and a Bubble Column-I Aqueous Sodium Sulphite Solution," *Chem. Eng. Sci.*, **42**, 2811-2824 (1987)
- Popović, M. and C. W. Robinson; "External Circulation-Loop Airlift Bioreactors: Study of the Liquid Circulating Velocity in Highly Viscous non-Newtonian Liquids," *Biotechnol. Bioeng.*, **32**, 301-312 (1988)
- Popović, M. and C. W. Robinson; "Mass Transfer Studies of External-Loop Airlifts and a Bubble Column," *AIChE Journal*, **35**, 393-405 (1989)
- Schügerl, K., J. Lücke and U. Oels; Biotechnology, in Adv. Biochem. Eng., Edited by T. K. Ghose, A. Fiechter and N. Blakebrough, Vol.7, pp. 1-81, Springer Verlag, Berlin, Germany (1977)

Effect of Porous Plate Material on Mass Transfer in External-Loop Airlift Bubble Column

Toshiro MIYAHARA and Yasuhiro OGO*

Department of Applied Chemistry and Biotechnology, Faculty of Engineering,

** Graduate School of Engineering,*

Okayama University of Science,

1-1, Ridai-cho, Okayama 700-0005, Japan

(Received September 11, 2007; accepted November 2, 2007)

Experiments were carried out to understand the effect of gas distributor material on mass transfer characteristics in external-loop airlift bubble column with a porous plate in air-water system. As a result, the use of hydrophilic porous plate causes the remarkable increase in liquid-phase volumetric mass transfer coefficient compared with hydrophobic one. This is probably due to the fact that small bubbles, being based on the small contact angle of gas-liquid interface at the plate, are formed at hydrophilic porous plate, leading to the formation of large gas-liquid interfacial area. The liquid-phase volumetric mass transfer coefficient for both hydrophilic and hydrophobic porous plate, however, can be correlated with the same correlation equation.

Keywords: external-loop airlift bubble column; mass transfer; porous plate; porous plate material.