

氏 名	矢 木 秀 治 や き ひで はる
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 博 第 444 号
学位授与の日付	昭 和 50 年 11 月 25 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	工 学 研 究 科 化 学 工 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	醗 酵 におけるガス交換に関する研究

論文調査委員 (主 査) 教 授 吉 田 文 武 教 授 橋 本 健 治 教 授 江 口 彌

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は深部培養による好気性醗酵において、醗酵液と気相との間に起るガス交換、すなわち酸素の吸収および炭酸ガスの放散について、主として物質移動論の立場から、実験的、理論的に研究したもので、緒論および4章からなっている。

緒論では好気性醗酵におけるガス交換機構の概念と既往の研究について述べている。気相中の酸素が培養液中の微生物の表面まで移動する際の抵抗には(1)気相境膜抵抗、(2)気泡周囲の液相境膜抵抗、(3)液本体における抵抗、(4)菌体周囲の液境膜抵抗の各段階が考えられるが、この中で律速段階は通常(2)の液相境膜抵抗であると考えられている。この段階の酸素移動の容量係数 $K_L a$ については幾つかの研究があるが、なお未解決の問題や疑問の点があり、それらを解明することが本研究の目的である。

第1章は酸素移動の液相容量係数 $K_L a$ に及ぼす醗酵液中の界面活性物質、消泡剤および菌体の存在の影響について研究した結果について述べている。通気攪拌槽や気泡塔の $k_L a$ に対する従来の相関は水や亜硫酸ソーダ水溶液を用いた実験に基づくもので、液の粘度や界面張力等を考慮しても、実際の醗酵液中の $k_L a$ には適用できないことが多い。これは液中に微量に存在する表面活性物質や醗酵の際用いられる消泡剤、さらに菌体の存在の影響によるものと考えて、著者は $k_L a$ を物質移動係数 k_L と比気液界面積 a に分離し、 k_L と a に対するこれらの諸因子の影響について調べた。まず定界面積型攪拌槽を用いて、脱酸素した水、界面活性剤を加えた水、死滅菌体を懸濁した水に空気中の酸素を吸収させる実験から k_L を求め、同一攪拌速度では、これらの3種の液に対する k_L はほとんど変わらないことを確めた。ついで透明な気泡塔を用いて脱酸素した水、界面活性剤を加えた水、および死滅菌体を懸濁した水に空気中の酸素を吸収させる実験を行い、 $k_L a$ を求めるとともに、ガスホールドアップを測定し、また写真撮影により気泡径分布を求めることにより、気泡の比界面積 a を求め、 $k_L a$ と a から k_L を算出した。その結果、与えられたガス速度における $k_L a$ もガスホールドアップも、界面活性剤や菌体の添加と共に急激に減少すること、しかしその減少は気泡径分布が変化し大気泡が生ずることによる a の減少のためであって、 k_L は

ほとんど変わらないことが判った。さらに通気攪拌槽を用いて、界面活性剤、消泡剤、死滅菌体添加による k_La の変化を調べたところ、気泡塔の場合と同様であることが判った。

第2章は醗酵における酸素吸収の反応係数に関する理論的ならびに実験的な研究の結果について述べている。化学反応を伴うガス吸収と物理吸収の物質移動係数の比、すなわち反応係数については、多くの研究がある。Tsao は微生物の呼吸による酸素の消費を考えて、醗酵液中への酸素吸収の場合の反応係数について研究しているが、彼の理論は妥当性を欠いている。著者は醗酵液中への酸素吸収を酸素濃度について零次の反応を伴うガス吸収と考え、数値解法を用いて反応係数の理論値を算出した。その結果、微生物濃度が均一な場合だけでなく、たとえ気液界面付近で微生物の濃度が高くなっても、醗酵における酸素吸収の反応係数は、實際上 1.0 に近い値であることが明らかになった。ついで著者は酵母の休止細胞懸濁液と実際に増殖している微生物を含む醗酵液による酸素吸収速度を測定し、その場合の反応係数は、理論から予想された通り、ほぼ 1.0 であることを確めた。

醗酵液はしばしば非ニュートン性を示すが、第3章では通気攪拌槽を用いて高粘度のニュートン流体および非ニュートン流体中からの酸素の放散の実験を行った結果を述べている。従来非ニュートン流体中と気泡との間の物質移動の k_La に対しては Perez らの誤った相関式があるのみである。著者は高粘度のニュートン流体として種々の濃度の水飴またはグリセリンの水溶液を、非ニュートン流体としてカルボキシメチルセルロースおよびポリアクリル酸ソーダの水溶液を用いて、通気攪拌槽中の酸素移動の k_La を測定した。非ニュートン流体中では攪拌翼付近で、環状の気泡が生ずるという珍しい現象を観察した。さらにニュートン流体にも非ニュートン流体にも適用できる通気攪拌槽の k_La に対する無次元相関式を得たが、この式は、非ニュートン流体の見かけ粘度のみならず、液の弾性効果をも考慮したもので、特性物質時間（緩和時間）と攪拌回転数の積である Deborah 数を含んでいる。

第4章は醗酵液から通気中への炭酸ガスの放散速度に関する研究の結果を述べている。微生物の呼吸によって生ずる炭酸ガスは醗酵液中で物理的に溶けている他、重炭酸イオンおよび炭酸イオンとしても存在するが、通気中の炭酸ガスの放散を適度に行い、液中の pH を適当な値に保つことが必要である。この場合の炭酸ガス放散速度に関する研究は、理論的にも実験的にも、見るべきものがほとんどなかったが、著者はまず、理論的な計算から、この場合の炭酸ガス放散の反応係数もほとんど 1.0 に近いという結論を得た。ついで通気攪拌槽を用いて、酵母および細菌の培養を行い、その間の炭酸ガスの放散の k_La を求めた。醗酵液の中に浸したシリコンゴム管の壁を透過して管内に流入する炭酸ガスを測るという方法により、液中に物理的に溶けた炭酸ガスの濃度を分析し、炭酸ガス放散の k_La を求めたところ、重炭酸イオンの脱水反応の影響は少なく、単なる物理的な放散として取扱ってよいことが確められた。また醗酵槽が大型になると、排気ガス中と液中の炭酸ガスの濃度はほぼ平衡にあることが明らかになった。

論文審査の結果の要旨

好気性醗酵を工業的に行う場合に、醗酵液中の微生物の呼吸に必要な酸素は気相から液中に吸収され、また呼吸によって生ずる炭酸ガスは液から気相中に放散される。そのガス交換の速度を推算し、制御することは重要な技術的課題であるが、本論文はこの問題を化学工学的見地から実験的、理論的に研究し、幾

つかの新しい知見を得たもので、主な成果は次の通りである。

(1) 醗酵槽の代表的な型式である通気攪拌槽や気泡塔における醗酵液と気相との間の液相物質移動容量係数 $k_L a$ は消泡剤など表面活性物質の極少量の添加や菌体の存在により著しく低下するが、これは気泡径分布の変化に基づく比気液界面積 a の減少によるもので、物質移動係数 k_L はほとんど影響を受けないことを示した。

(2) 醗酵液による酸素吸収を微生物の呼吸という一種の反応を伴うガス吸収と考え、反応係数、すなわち反応を伴う場合と伴わない場合の物質移動係数の比を理論的に求めた。微生物が液中に均一に分布している場合、反応係数の値は1.0に近く、また微生物が気液界面付近に集中すると仮定しても、反応係数の増加は僅かで、醗酵液による酸素吸収は實際上物理吸収として扱っても差支えないことが判った。

(3) 酵母の休止細胞懸濁液、および増殖しつつ菌体を含む実際の醗酵液による酸素吸収速度を測定し、それらが物理吸収の速度と差がないことを確めた。

(4) 醗酵液はしばしば非ニュートン性を呈するが、流動曲線が擬塑性を示す粘弾性流体および高粘度のニュートン流体を用いて通気攪拌槽の $k_L a$ を測定し、それらの実測値のすべてに適用できる一般性のある無次元相関式を作成した。

(5) 醗酵液からの炭酸ガスの放散は重炭酸イオンの脱水反応を伴うが、その反応の影響は無視してよく、放散の反応係数は實際上1.0と考えてよいことを理論的な計算によって示した。さらに実際の通気攪拌槽を用いて酵母および細菌の培養を行い、炭酸ガス放散の液相物質移動容量係数は酸素吸収のそれに拡散係数の補正を行った値と一致し、重炭酸イオンの脱水反応や pH によってはほとんど影響されないことを確めた。

以上要するに本論文は好気性醗酵における気液間のガス交換に関する幾つかの問題を、化学工学的手法により、解明したもので、学術上、工業上寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。