

[醸酵工学会誌 第69巻 第6号 477-481. 1991]

ノ ー ト

乳酸発酵液の中空糸膜モジュールによるろ過に及ぼす 逆洗とバブリング操作の影響

松本 幹治*・北林 一俊・大矢 晴彦

横浜国立大学工学部物質工学科
〒240 横浜市保土ヶ谷区常盤台156

(平成3年3月11日受付 平成3年8月9日受理)

Effect of backwashing and bubbling operations on the filtration of lactic acid fermentation broth with hollow fiber membrane module. —Note— KANJI MATSUMOTO,* KAZUTOSHI KITABAYASHI, and HARUHIKO OHYA (*Department of Material Science and Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Yokohama National University, Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240*) *Hakkokogaku* 69: 477-481, 1991.

The membrane filtration of lactic acid fermentation broth related to miso production was carried out using a hollow fiber membrane module. The effect of backwashing and/or bubbling operations on the filtration performance was examined. The following results were obtained: (1) The backwashing/bubbling operations were not so effective in maintaining a high filtration rate in the case of a dense cell broth, but were considerably effective for a lower cell concentration broth. (2) Bubbling after backwashing was more effective than employing both operations at the same time. (3) There was an optimal applied pressure for the backwashing/bubbling operations. (4) Only backwashing is recommended, in order to simplify the operation and to prevent contamination; the effect of bubbling was not so significant compared with backwashing.

膜を用いる連続発酵は、従来行われてきた回分式発酵に比較して、リアクター内を高菌体濃度に保持することができ、かつ発酵段階で発酵の阻害代謝物を連続的に引き抜くことができるという特長をもつ。このため発酵液の生産性をいちじるしく増大させることが可能である。¹⁻³⁾しかし、長期間における膜ろ過においては膜面汚染（ファウリング）による膜透過流量の低下が生じ、これに伴う発酵液の生産性の低下が問題となる。

従来、ファウリングを抑える手段として、クロスフローろ過方式においては、膜面線流速の増大、^{4,5)}逆洗、⁶⁾超音波処理⁷⁾などの方法が有効であると報告されている。また、気相と液相の混相流体による乱流促

進効果を利用して膜透過流量の低下を抑えようという実験も行われている。⁸⁾しかし、いずれの方法においてもその有効性の検討は単管型のセラミック膜および薄層流型の高分子平膜に対してなされており、単位体積あたりの膜面積の大きい中空糸膜モジュールのファウリング防止方法として、これらの方法が有効であるかどうかの定量的な検討⁹⁾はほとんどなされていないのが現状である。

そこで我々は味噌関連乳酸発酵液を中空糸膜モジュールでろ過する際に逆洗と気液混相流の特性を利用したバブリングの併用が透過流束の向上に有効であるのではないかと考え、ろ過操作因子として菌体濃度、ろ過圧力を変化させた場合に逆洗・バブリング操作の透過流束向上の有効性について主に検討した。

供試菌はイチビキ（株）保存株から選抜した耐塩性

* 連絡先, Corresponding author.

乳酸菌 *Pediococcus halophilus* No. 11 を用い、培地は MGL 培地 (浸透ろ過水 1000 ml につき、生引しょう油 50 ml, グルコース 10 g, 塩化ナトリウム 101 g, pH 7.2) を用いた。

実験に使用した膜は、中空糸膜モジュール STN327HZ (三菱レイヨン社製、公称細孔径 $0.1\ \mu\text{m}$, 膜面積 $0.3\ \text{m}^2$, ハウジング体積 $0.35\ \text{l}$) を用いた。本モジュールは外径 $335\ \mu\text{m}$, 膜厚 $55\ \mu\text{m}$, 長さ $66\ \text{cm}$ の中空糸 456 本がループ状になっており、原液は中空糸外側を下方から上方に流れ、ろ過は中空糸外側から内側に行われる。膜の再生は 100 ppm の次亜塩素酸ナトリウム水溶液で逆洗とバブリングを併用しながら、1 時間行った。本実験に使用した膜の初期純水透過流束 J_0 は、ろ過圧力 $\Delta P = 23\ \text{kPa}$ のときに $J_0 = 2.37 \sim 2.42\ [\text{m/h}]$ で、 $\Delta P = 37\ \text{kPa}$ のとき $J_0 = 2.75 \sim 2.80\ [\text{m/h}]$ である。発酵液中のグルコースの定量はグルコース C テスト (和光純薬製)、乳酸と酢酸は F-キット (ペーリンガー・マンハイム社製) を用いて行った。

ろ過実験の前段階として、乳酸菌 *Pediococcus halophilus* No. 11 を MGL 培地が入った 30 l の発酵槽に植菌し、pH 7.2, 液温 30°C に保ち、窒素置換しながら 3 日間回分培養を行った (これは 3 日間で培地中

の菌体量、有機酸量が安定するため)。次にこの発酵液を 8000 r.p.m. で 15 分間遠心分離を行い液体と菌体とに分離し、菌体濃縮液を得た。

ろ過実験には Fig. 1 に示す多機能型膜分離装置¹⁰⁾を用いた。実験を始めるに際して、発酵液中の残留グルコース濃度と生成有機酸量を測った。次に所定菌体濃度に調節した乳酸発酵液をポンプ (8) により発酵槽 (9) から引き抜き、流量計 (6) で循環流量を測定した後に中空糸膜モジュール (5) による分離を行った。この際、ろ過圧力は調圧弁 (4) により調節し、ろ過方式は全循環方式でろ液も濃縮液も全量発酵槽に戻した。また、透過流束は上下 2 つの光センサーと電磁弁 V_1 の開閉操作の連動を利用した自動ろ液流量測定装置 (1), (光信理化学(株)製) により測定した。

逆洗は電磁弁 V_3 の開閉により一定量のろ液 (本実験においては 50 ml) を貯めて、一定時間間隔 (本実験においては 1 分間) に電磁弁 V_4 を開いて圧縮窒素を送り込み、ろ液を膜透過側から供給側に押し流して行った。またバブリングは逆洗終了後に電磁弁 V_6 を一定時間 (本実験では 3 秒間) 開き、モジュール内に圧縮窒素を押し流す事により行った。なお、電磁弁 $V_2 \sim V_7$ の開閉の制御はコントローラーにより行われている。(逆洗・バブリング操作の概念図を Fig. 2 に示した。)

実験に使用した発酵液の残留グルコース濃度は、 $0.0\ \text{g/l}$, 乳酸濃度は $3.6\ \text{g/l}$, 酢酸濃度は $1.2\ \text{g/l}$ であった。

供給液の循環流量に関しては予備実験において同一ろ過圧力では循環流量を 1, 2 および $3\ [\text{l/min}]$ に変化させても透過流束の値にほとんど影響が見られなかったため、より広範囲にろ過圧力を変化させることが

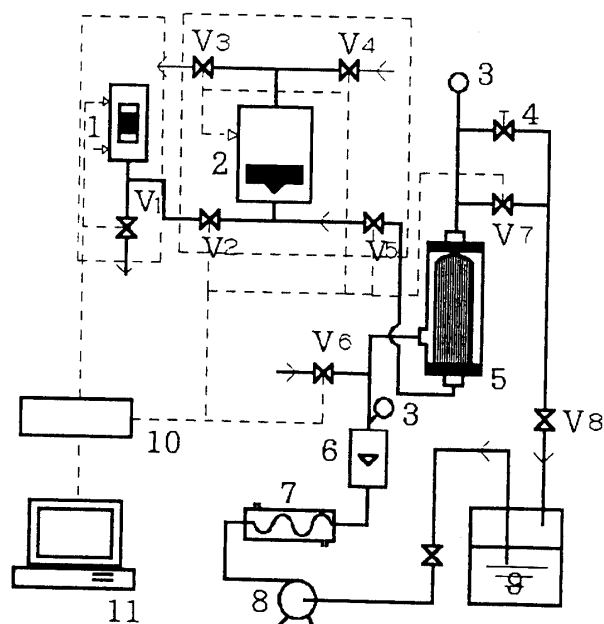


Fig. 1. Schematic diagram of filtration system. 1. Automatic filtrate flux meter; 2. backwashing device; 3. pressure gauge; 4. pressure control valve; 5. hollow fiber membrane module; 6. flow meter; 7. heat exchanger; 8. feed pump; 9. fermentor; 10. system controller; 11. computer; V: solenoid valve.

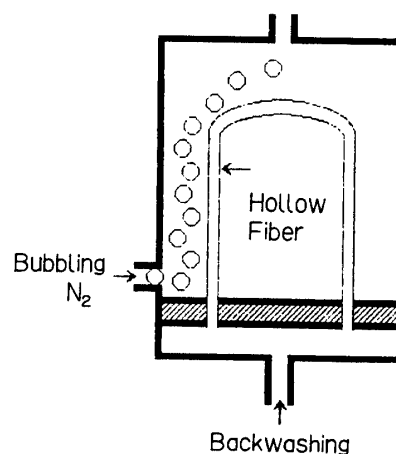


Fig. 2. Schematic view of backwashing and bubbling operations.

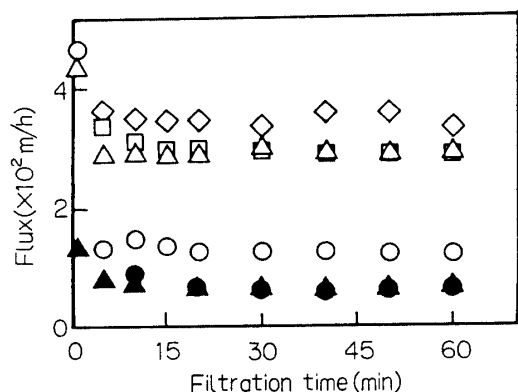


Fig. 3. Time-dependence of filtration flux under the different operating conditions. Feed rate, 2 l/min; filtration pressure, 23 kPa.

Symbols	Cell concentration (g/l)	Backwashing pressure (kPa)	Bubbling pressure (kPa)	Operating condition*
○	3	—	—	①
△		100	—	
□		100	40	
◇		100	40	
●	50	—	—	②
▲		100	—	

* ①, Backwashing and bubbling operations applied at the same time; ②, bubbling operation applied after backwashing.

でき、かつポンプの負荷が小さい2 l/min で以下の実験を行った。

Fig. 3 にろ過操作条件を変化させた場合の透過流束の経時変化を示した。この結果から、菌体濃度 3 g/l, 50 g/l の時はいずれのろ過操作条件下においても1時間以内にほぼ定常とみなされる透過流束に達するのが分かった。そこで、ろ過操作条件が透過流束に及ぼす影響を調べるためにろ過開始1時間後の透過流束（以下定常透過流束と略す）の値について調べた。

次に Fig. 4 にろ過圧力が定常透過流束に与える影響について示した。これより、菌体濃度 3 g/l, 7 g/l, 50 g/l のいずれの場合もろ過圧力が 37 kPa 以上ではろ過圧力は透過流束の値にほとんど影響を及ぼさないことが分かった。また Fig. 4 から菌体濃度 3 g/l のときはろ過圧力 23 kPa において逆洗・バブリング操作の影響が顕著にあらわれており、しかも膜に対する負荷が小さいので主にこの圧力での逆洗・バブリング操作の影響をみた。

Tables 1 および 2 に菌体濃度 3 g/l, 50 g/l のときに逆洗およびバブリング操作が透過流束に及ぼす影響につ

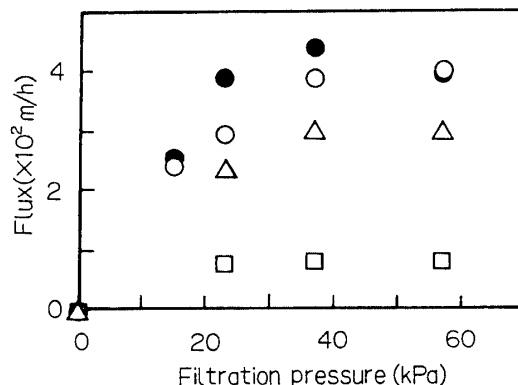


Fig. 4. Dependence of filtration pressure on filtration flux. Flow rate, 2 l/min.

Symbols	Cell concentration (g/l)	Backwashing pressure (kPa)	Bubbling pressure (kPa)	Operating condition*
○	3	100	40	①
●		100	100	②
△	7	100	40	①
□	50	100	40	①

* ①, Backwashing and bubbling operations applied at the same time; ②, bubbling operation applied after backwashing.

いて示した。バブリング操作においては窒素液量は 0.10 l (バブリング圧力 40 kPa) と 0.34 l (バブリング圧力 100 kPa) であり、バブリング操作におけるバブリング圧力は窒素ポンプの2次減圧弁における圧力である。

なお、Tables 1 および 2 における透過流束の比率は循環流量 2 l/min でろ過圧力 23 kPa における定常透過流束の値（基準値=1.0）と比較して示した。Table 1 から次のことが分かる。菌体濃度 3 g/l の場合は逆洗のみを行うことで、透過流束で2倍から2.5倍程度の増加が得られた。逆洗を行う場合の逆洗圧力の影響に関しては、逆洗圧力 100 kPa と 150 kPa では定常透過流束の値にはほとんど差が見られなかった。しかし、逆洗圧力を 50 kPa に下げることにより増加がみられたが、その理由は不明である。また逆洗とバブリングを併用する場合、同時に行うよりも時間をずらせて逆洗後にバブリングを行うほうが有効であった。この理由はバブリング操作中にモジュール内に圧力 (10~20 kPa) が加わるため、逆洗とバブリングを同時に行うことによって、中空糸の内外に圧力がかかり、この結果中空糸の収縮が生じ、逆洗効果が低下されたためと考えられる。さらにバブリング操作においては

Table 1. Effects of backwashing and bubbling operations on filtration flux.

Filtration pressure (kPa)	Operating condition*	Backwashing pressure (kPa)	Bubbling pressure (kPa)	Flux at steady state (m/h) × 10 ²	Flux ratio (—)
23	—	0	0	1.30	1.00
	—	50	0	3.49	2.68
	—	100	0	2.90	2.21
	—	150	0	2.84	2.18
	①	100	40	2.94	2.26
	①	100	100	3.30	2.54
	②	100	40	3.50	2.69
	②	100	100	3.90	3.00
37	①	100	40	3.82	2.94
	②	100	40	4.06	3.12
	②	100	100	4.40	3.39

* ①, Backwashing and bubbling operations applied at the same time; ②, bubbling operation applied after backwashing. The cell concentration was 3 g/l.

Table 2. Effects of backwashing and bubbling operations on filtration flux.

Filtration pressure (kPa)	Operating condition*	Backwashing pressure (kPa)	Bubbling pressure (kPa)	Flux at steady state (m/h) × 10 ²	Flux ratio (—)
23	—	0	0	0.60	1.0
	—	50	0	0.86	1.4
	—	100	0	0.72	1.2
	—	150	0	0.66	1.1
	①	100	40	0.76	1.3
	②	100	40	0.76	1.3

* ①, Backwashing and bubbling operations applied at the same time; ②, bubbling operation applied after backwashing. The cell concentration was 50 g/l.

バブリング圧力は高い方が、よりいっそう効果があることが分かった。しかし、逆洗圧力 100 kPa とバブリング圧力 40 kPa を時間をずらせて併用した場合の透過流束の増加割合は逆洗のみを 50 kPa で行った効果とほとんど同じであるので、本実験の結果からは操作の簡略化や雑菌汚染の問題を考えると逆洗のみで行ったほうが有利であると考えられる。また菌体濃度 50 g/l の高濃度の場合は Table 2 より逆洗・バブリング操作の効果は小さかった。なお、バブリング操作によって、モジュール内の中空糸の束が揺らされて、中空糸の束の外側においては膜面の菌体のケーキ層とモジュール下部の菌体のたまりが明らかに除かれているのが観察された。しかしながらバブリング操作は膜性能の回復に大きく寄与する膜細孔内の汚染物質の除去効果が逆洗よりも小さくそのためバブリングの効果が

ほとんどあらわれなかったと推定される。

要 約

味噌関連乳酸発酵液の中空糸膜モジュールによるろ過について以下の結果が得られた。すなわち菌体濃度が小さいほど、透過流束はろ過圧力の影響を大きく受け、逆洗・バブリング操作が透過流束の低下を抑えるのに有効であった。逆洗とバブリングは同時に行うより時間をずらせたほうが、またバブリング圧力は高いほうが透過流束の低下を抑えるのに有利であったが、同様な効果は適切な逆洗圧力条件下での逆洗操作のみにより得られるので、操作の簡略化や雑菌汚染を考慮に入れると逆洗のみで行うのがよいと考えられる。

本実験を研究するに当たって御助力を頂いた芝浦製作所（株）の方々に深く謝意をあらわします。

文 献

- 1) 沼田 忠, 松本幹治, 中村 洵, 福安繁機, 輪竹宏昭, 山口征治, 河内恭三, 木下 斌, 中村忠正: 醸酵工学, 68, 205-209 (1990).
- 2) Ohleyer, E., Wilke, C. R., Blanch, H. W.: *Appl. Biochem. and Biotechnol.*, 11, 457-463 (1985).
- 3) Richter, K., Becker, U., Meyer, D.: *Acta Biotechnol.*, 7, 237-245 (1987).
- 4) Patel, P. N., Mehaia, M. A., Cheryan, M.: *J. Biotechnol.*, 5, 1-16 (1987).
- 5) Sims, K. A., Cheryan, M.: *Biotechnol. and Bioeng. Symp.*, 17, 495-505 (1986).
- 6) Matsumoto, K., Kawahara, M., Ohya, H.: *J. Ferment. Technol.*, 66, 199-205 (1988).
- 7) 藤原嗣郎, 高木義之, 国眼孝雄: “無機分離膜の現状と新展開”, 55, 化学工学協会「膜分離技術研究会編」(1989).
- 8) 今坂卓男, 兼国伸彦, 輪島尚人, 吉野 成: 化学工学論文集, 15, 306-311 (1989).
- 9) 松本幹治, 永井洋一, 大矢晴彦, 沼田 忠, 木下斌: 醸酵工学, 68, 391-398 (1990).
- 10) 松本幹治, 北林一俊: ケミカルエンジニアリング, 35, 40-44 (1990).