疎水性多孔質膜を用いたクロレラによるガス交換システム^{*1}

Gas Exchange by Chlorella with Hydrophobic Microporous Membrane

松本 幹治^{*2}・小口 美津夫^{*3}

Kanji MATUMOTO, Mituo OGUTI

大矢 晴彦^{*2}・寺西 礼史^{*2}

Haruhiko OHYA, Hiroshi TERANISHI

山本 宏^{*2}・森 敬^{*4}

Hiroshi YAMAMOTO, Kei MORI

古畝 宏幸^{*5}・新田 慶治^{*3}

Hiroyuki FURUNE and Keiji NITTA

Key Words: Space Engineering, Chlorella Suspension, Gas Exchange,
Hollow Fiber, Microporous Membrane

Abstract

The absorption of CO₂ and O₂ gas into the chlorella suspension and the stripping of O₂ gas generated by photosynthesis of chlorella through the hydrophobic microporous hollow fiber membrane of polypropylene took place. The chlorella suspension flowed inside the hollow fibers and the gas mixture of CO₂ and air flowed outside them. The following results were obtained: (1) Overall mass transfer coefficient of CO₂ and O₂ gas for absorption depended only on the flow rate of suspension in the fibers, and was correlated by the dimensionless equation given below. $Sh = A(Re)^{1/3}$. (2) The photosynthetic reaction rate did not depend on the CO₂ concentration in the suspension in the range of 1.5 to 5.0 mol·m⁻³. (3) The supply of CO₂ gas and the stripping of O₂ gas generated by photosynthesis could be carried out with the same membrane module. (4) The membrane area required to get the maximum generation rate of O₂ gas can be estimated when overall mass transfer coefficient, chlorella concentration and CO₂ concentration in feed gas mixture were given.

1. 緒 言

宇宙ステーション内で長期間かつ多数の人間が滞在するためには、食糧や水、酸素等の自給自足が必要と

なってくる。そこで閉鎖された環境内で安定した物質循環を図りながら、人間を含めた動物系と植物系が共存していく生態系を作る技術を確立する必要がある。*Chlorella* や *Spirulina* などの光合成藻類は、食糧生産システムの一翼を担っていると同時に、高効率な光合成機能も有していることから、炭酸ガスを酸素に変えるガス交換システムとしても考えられている。このような研究は1960年前後に Bowman ら¹⁾が行った、クロレラを用いたガス交換装置から発生する酸素によるマウスの長期間飼育に始まり、その後1963年には、Hannan ら²⁾により、一日一人当りの要求酸素量を発生させるために必要な電気エネルギー、藻体量、培養液量等の算出が行われた。この研究によると、一人当り必要な電気エネルギーは52 kW、藻体量0.62 kg、培養液量 $4.5 \times 10^{-2} \text{ m}^3$ と算出されている。そしてその後も数々の研究が行われ、1984年には、Ward ら³⁾によって、この年までに報告された光合成藻類によるガス交換システムのデータがまとめられている。このデータによると一人当り必要な藻体量、培養液量は Hannan らが算出した値が、他のデータと比較しても、ほぼ最小の値となっている。しかし、電気エネルギーにおいては、電気エネルギーを光エネルギーに変える変換効率に関係し、Hannan らが算出した52 kWの1/3程度の電気エネルギーで要求酸素量を発生させることができたというデータが2, 3報告されている。最近では1987年に NASA⁴⁾が *Senedesmus* と *Spirulina* を用いたガス交換システムの設計を行っており、これによると、一人当り必要な電気エネルギー

^{*1} 昭和63年5月12日原稿受理^{*2} 横浜国立大学工学部物質工学科^{*3} 航空宇宙技術研究所^{*4} 慶応大学理工学部管理工学科^{*5} ラフォーレエンジニアリング(株)

は4kW となっている。

一方、我国でも1950年代には、宇宙利用を目的としたものではないが、田宮ら^{5,6)}によってクロレラ的大量培養に関する研究や、クロレラの光合成および細胞増殖に及ぼす光と温度の影響等について研究された。そしてこれらのデータを活用して、岩村ら⁷⁾によって藻類の宇宙利用に関する研究がなされ、一人当たり半径約2mの半球表面でのクロレラの液体培養で十分な酸素を獲得できるという結果を得ている。また、森ら⁸⁾は太陽光を光源とし、光ファイバーを用いて培養槽へ光を導入し、できるだけ多くの細胞に光を供給するシステムの研究を行っている。

しかし、宇宙空間では無重力環境で炭酸ガスを系内に供給し、発生する酸素を分離しなければならないという問題がある。この問題を解決するため、1960年にGaffordら⁹⁾は、ポリエチレンとポリスチレンの平膜をガス交換膜として用いた藻類によるガス交換システムの例を報告している。

そこで、我々はガス交換膜としてポリプロピレン製の疎水性多孔質中空糸膜を用い、その中空糸の内側にクロレラ懸濁液を流し、外側に空気と炭酸ガスの混合ガスを流すことで、炭酸ガスを系内に供給し、発生する酸素を同一膜モジュールを用いて、同時にガス側へ回収するというシステムを考えた。本報告ではクロレラの光合成作用を利用した場合のガス交換膜の物質移動特性を調べるとともに、光合成速度に及ぼす液中の炭酸ガス濃度の影響や異なる操作条件での必要膜面積の算出について述べる。

2. 実験装置および方法

装置の概念図を第1図に示した。本装置はクロレラ培養部とガス交換部から構成されている。使用したクロレラは *C. ellipsoidea* であり、光源(10)として10Wの蛍光灯を培養槽の中心にある外径4cmのガラス管内に1本、まわりに4本設置した。アクリル製培養槽の内径、外径および高さはそれぞれ8.8cm, 9.9cmおよび41cmである。クロレラ懸濁液量は $2.3 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ で、培養槽上部の空間体積は約 $1.0 \times 10^{-4} \text{ m}^3$ である。培養槽(8)中のクロレラ懸濁液は、チューブポンプ(2)を通して膜モジュール(1)に送られ、中空糸の内側にクロレラ懸濁液を流し、外側に空気と炭酸ガスの混合ガスを流すことにより、炭酸ガスを系内へ供給し、光合成により発生してくる酸素をガス側に回収した。この場合、混合ガスが膜を通して液内に気泡として供給されることを防止するために、液側すなわち中空糸膜内の圧力を混合ガスの圧力よりも、約0.02MPa高く保った。液中の炭酸ガスおよび酸素濃

1. 中空糸モジュール 2. ポンプ 3. 圧力計
4. 炭酸ガス濃度計 5. 酸素濃度計 6. pH計
7. トラップ 8. 培養槽 9. ガス計 10. 蛍光灯

第1図 実験装置の概略図

第1表 培地の組成

成 分		10 ³ kg/m ³
主要成分	KNO ₃	5,000
	MgSO ₄ ·7H ₂ O	2,500
	KH ₂ PO ₄	1,250
	FeSO ₄ ·7H ₂ O	2.8
微量成分	H ₃ BO ₃	2.85
	MnCl ₂ ·7H ₂ O	1.81
	ZnSO ₄ ·7H ₂ O	0.22
A ₈ 溶液	CuSO ₄ ·5H ₂ O	0.078
	Na ₂ MoO ₄	0.171

第2表 膜の特性

材 質	ポリプロピレン	
中空糸内径	[μm]	200
膜 厚	[μm]	22
開孔率	[%]	45
孔 径	[μm]	0.036
有効膜面積	[m ²]	0.4
バブルポイント	[kg·cm ⁻²]	12.5

度は、それぞれ炭酸ガス濃度計(4)、酸素濃度計(5)により測定した。また培養槽上部空間への酸素の放散量は湿式ガスメーター(9)により測定した。培養温度およびガス吸収温度は、*C. ellipsoidea*の最適培養温度である25°Cに保った。なお、クロレラ用培養液1リットル当りの培地組成は第1表に示すとおりである。また、使用した疎水性多孔質中空糸膜モジュール(三菱レーヨン(株)製)の特徴は第2表に示した。

3. クロレラ懸濁液における炭酸ガスおよび酸素の物質収支式

培養槽内でクロレラに光合成を行わせ、膜により一定濃度の炭酸ガスをクロレラ懸濁液へ供給する場合、液中の炭酸ガス濃度 C_A は、膜から供給される炭酸ガス量、クロレラの光合成により消費される炭酸ガス量、および呼吸により発生する炭酸ガス量によって決まる。膜による炭酸ガス供給速度 R_A は、供給炭酸ガス分圧 P_A に対応する液中の平衡濃度 C_{SA} と液中の炭酸ガス濃度 C_A の差、気液界面積 a (膜面積 S /系内の液体の体積 V) および吸収における総括物質移動係数 K_{LA} の積として式(1)で表される。また光合成速度を R_P 、呼吸速度を R_R とすると、液中の炭酸ガス濃度の時間的変化は式(2)で表せる。

$$R_A = K_{LA}a(C_{SA} - C_A) \quad (1)$$

$$\frac{dC_A}{dt} = R_A - R_P + R_R \quad (2)$$

一方、光合成により発生した酸素は、一部は過飽和状態で溶存酸素となるが、残りの大部分は気泡の状態で培養槽上部空間へ放散するか、あるいは、膜モジュールに入る。膜モジュール内の大部分の気泡は中空糸膜内外の圧力差により、供給ガス側へ抜ける。また、過飽和の溶存酸素の膜からの放散速度 R_B は、供給ガス側の酸素分圧 P_B に対応する液中の平衡濃度を C_{SB} 、液中の酸素濃度を C_B 、酸素の放散における総括物質移動係数を K_{LB} とすると、式(3)で表せる。いま、供給される炭酸ガスがクロレラの光合成により全て酸素に変換される、すなわち同化率が1.0であると仮定すると、液中の酸素濃度の時間的変化は、炭酸ガスの物質収支式の場合に用いた光合成速度 R_P 、呼吸速度 R_R と培養槽上部空間への酸素の放散速度 R_T 、液中の気泡の膜からの放散速度 R_S の収支から式(4)で表せる。

$$R_B = K_{LB}a(C_B - C_{SB}) \quad (3)$$

$$\frac{dC_B}{dt} = R_P - R_R - R_T - R_S - R_B \quad (4)$$

4. 結果および考察

4.1 中空糸膜モジュールにおける炭酸ガスおよび酸素の物質移動係数¹⁰⁾ 中空糸膜モジュールを用いた場合の炭酸ガスおよび酸素の物質移動現象を調べるために、それぞれの総括物質移動係数 K_{Li} ($i=A$ または B) を求めることは重要である。そこで、光合成を行わない暗状態にクロレラ懸濁液を保ち、まず液中の炭酸ガスおよび酸素濃度を中空糸外側に窒素ガスを流すことにより低下させた。その後、一定濃度の炭酸ガスあるいは酸素を膜を通して供給した場合の、液中の

第2図 ベクレ数とシャーウッド数の関係

炭酸ガスおよび酸素濃度の経時変化から、総括物質移動係数の算出を行った。暗状態の場合、式(2)と(4)における R_P , R_T , R_S は酸素の発生がないため零となる。いま、呼吸速度 R_R が炭酸ガスおよび酸素の供給速度より十分小さく、 R_R を無視できるとすると、式(2)と式(4)は式(5)で表すことができる。

$$\frac{dC_i}{dt} = K_{Li}a(C_{Si} - C_i) \quad (5)$$

ここで、初期条件 $t=0$ において $C_i = C_{0i}$ とし、ヘンリーの法則 ($P=HC$) を用いて式(5)を解くと、式(6)のように表すことができる。

$$-\ln\left(\frac{P_i - P_{Si}}{P_i - P_{0i}}\right) = K_{Li}at \quad (6)$$

P_i は供給ガス中の i 成分の分圧であり P_{Si} は i 成分の C_i に対応するガス中の平衡分圧である。式(6)の左辺の値と時間 t との関係を示す直線の傾きから総括物質移動係数 K_{Li} が算出できる。

次に式(6)から求まる炭酸ガスの総括物質移動係数 K_{LA} に及ぼす諸因子の影響を調べるため、我々は、供給ガス流量 Q_G 、供給混合ガス圧力 P_1 、供給炭酸ガス濃度 P_A 、クロレラ濃度 C_c 、循環液流量 Q_L をそれぞれ、 $Q_G(0.8 \sim 3.3 \times 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1})$, $P_1(0.5 \sim 2.5 \times 10^{-2} \text{ MPa})$, $P_A(5 \sim 15 \text{ mol}\%)$, $C_c(0 \sim 2 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3})$, $Q_L(2.9 \times 10^{-5} \sim 5.3 \times 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1})$ の範囲で変化させた場合の K_{LA} の変化を調べた。この結果、 K_{LA} は、供給混合ガス流量、供給混合ガス圧力、供給炭酸ガス濃度およびクロレラ濃度の影響を受けなかった。しかし、循環液流量の影響が見られたため、酸素の総括物質移動係数 K_{LB} に及ぼす循環液流量の影響も調べた。

第2図は循環液流量つまり中空糸膜内液流速が K_{Li} に及ぼす影響を K_{Li} 、中空糸膜内径 d_h 、および液相分子拡散係数 D_{Li} であらわされるシャーウッド数 $Sh(=K_{Li} \cdot d_h / D_{Li})$ と中空糸膜内液流速 v 、中空糸の長さ L 、 d_h および D_{Li} で表されるベクレ数 $Pe(=d_h^2 \cdot v / (D_{Li} \cdot L))$ の関係で示したものである。炭酸ガスと酸素の物

質移動特性は式(7)で近似され、 Pe 数の $1/3$ 乗に従い、円管内層流の物質移動に適用することのできる L の式¹¹⁾ (図中の直線 $A=1.62$) とほぼ同様の傾向を示しているが、式(7)の A の値は 1.62 よりも小さくなっている。

$$Sh = A \cdot Pe^{1/3} \\ = A \cdot (Re \cdot Sc \cdot d_h / L)^{1/3} \quad (7)$$

我々と同じ材質の中空糸膜モジュールを用いた他の実験では L の式に近い値が得られているが^{12,13)}、我々の結果では炭酸ガスの場合 $A=0.73$ 、酸素の場合 $A=1.3$ と小さくなった。この原因はモジュールの構造にあると考えられる。つまり我々が使用したモジュールは、単位断面積当りの中空糸膜の本数 N が 411 cm^{-2} と他の研究例 ($N=120^{12)}, 16^{13})$ に比較して非常に多く、密な状態となっている。そのためモジュールの中心部まで十分にガスが均一に供給されず、見かけ上、気液接触界面積の減少が生じ、 $K_L a$ が小さくなったと推定できる。また Pe 数が 10 以下の低流速域では、酸素および炭酸ガスの物質移動係数は急激に減少している。この原因は、低流速では、モジュール内に多数存在する中空糸膜内を液が均一に流れず、上記の場合と同様、見かけ上気液界面積の減少をおこしているものと考えられる。したがって、実際に宇宙利用として単位体積当りの膜面積が大きいモジュールを使用する場合には、あらかじめそのモジュールの物質移動特性を求めておく必要がある。

4.2 光合成速度に及ぼす液中の炭酸ガス濃度の影響 液中の炭酸ガス濃度 C_A がクロレラの光合成速度に及ぼす影響については、1960 年に Gaucher ら¹⁴⁾ は供給ガス中の炭酸ガス濃度が $P_A=0.5 \text{ mol}\%$ という低い濃度の炭酸ガスを与えてもそれより高い濃度で与えた場合と同様に成長すると報告している。また *Senedesmus* を用いた NASA の実験においても、 $0.5 \text{ mol}\%$ 以上では、光合成速度は炭酸ガス濃度に影響されないが、 $0.5 \text{ mol}\%$ 以下では、光合成速度はほぼ炭酸ガス濃度に比例して増大すると報告されている。しかし、これらの報告では、炭酸ガス濃度は Gaucher らの場合 $P_A=5.5 \text{ mol}\%$ (P_A に対応する液中の炭酸ガス濃度 $C_{SA}=2.0 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$) 以下、NASA の場合、 $2.0 \text{ mol}\%$ ($C_{SA}=0.72 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$) 以下で実験を行っており、たとえば、宇宙船内の炭酸ガスを濃縮してクロレラ懸濁液に供給する場合を考えると、液中の炭酸ガス濃度 C_A が $2.0 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$ 以上における光合成速度への影響を調べる必要がある。そこで我々は供給炭酸ガス濃度が $5 \sim 15 \text{ mol}\%$ の間で、膜を用いて炭酸ガスを供給する場合の液中の炭酸ガス濃度と光合成速度の関係について検討した。

第3図 暗状態および明状態での液中の炭酸ガスと酸素濃度の変化

光合成作用時の液中の炭酸ガス濃度の物質収支式は式(2)で表されるが、 R_P を液中の炭酸ガス濃度の関数として $K_P(C_A)^n$ とし、 R_R は無視しうと考えると、式(2)は式(8)となる。

$$\frac{dC_A}{dt} = K_{LA}a(C_{SA} - C_A) - K_P(C_A)^n \quad (8)$$

ここで、 K_P はクロレラ濃度の項を含んだ光合成速度係数、 n は反応次数である。

第3図は暗状態と明状態を繰り返したときの、液中の炭酸ガス濃度および酸素濃度変化の一例として、 $P_A=10 \text{ mol}\%$ の炭酸ガスを含む空気と炭酸ガスの混合ガスをクロレラ培養液に供給した場合の、 C_A と C_B の過渡応答曲線を示したものである。クロレラに光合成を行わせない暗状態の場合は、液中の炭酸ガス濃度 C_A および酸素濃度 C_B は、供給ガス中のそれぞれのガス分圧における飽和溶存炭酸ガス濃度 C_{SA} および飽和溶存酸素濃度 C_{SB} で平衡に達する。次にこの状態からクロレラに光合成を行わせる明状態にすると、 C_A は光合成により消費されるため減少し、液中に供給される炭酸ガス量と同化される炭酸ガス量がほぼ等しくなる状態において一定濃度 C_A^* となる。逆に、 C_B は光合成により増加し、過飽和状態で一定濃度 C_B^* となる。

いま、液中に供給される炭酸ガス量と同化される炭酸ガス量が等しくなった定常状態を仮定すると、定常状態における液中の炭酸ガス濃度 C_A^* は式(8)から、

$$a) \quad n=1 \text{ のとき} \\ C_A^* = \frac{1}{1 + (K_P/K_{LA}a)} C_{SA} \quad (9)$$

$$b) \quad n=0 \text{ のとき} \\ C_A^* = C_{SA} - \frac{K_P}{K_{LA}a} \quad (10)$$

となる。ここで、 K_{LA} は4.1の結果より供給炭酸ガス

第4図 定常状態における液中の炭酸ガス濃度と供給ガス中の炭酸ガス分圧に平衡な液中の炭酸ガス濃度の関係

濃度、つまり液中の炭酸ガス濃度の影響を受けないから、同一操作条件においては、光合成速度が液中の炭酸ガス濃度に対して一次反応であれば、 C_A^* と C_{SA} の関係は原点を通る直線となる。また光合成速度が液中の炭酸ガス濃度に対して0次反応であれば、 C_A^* と C_{SA} は $C_A^* = C_{SA}$ の直線に平行となり、 C_A^* 軸切辺が、 $-K_F/K_{LA}a$ となる。

そこで、第4図は C_A^* と C_{SA} の関係を示したものである。この図より、同一操作条件では C_A^* と C_{SA} の関係は $C_A^* = C_{SA}$ の直線にほぼ平行な直線で近似できることがわかる。すなわち式(8)は $n=0$ と近似でき、光合成速度は本実験範囲内では C_A の影響を受けないと考えられる。

4.3 クロレラ懸濁液からの膜による酸素の回収空気と炭酸ガスの混合ガスを膜を通して一定濃度で供給し、明状態でクロレラに光合成を行わせた場合、光合成による酸素発生速度 R_P は、内生呼吸により消費される量を無視すると、定常状態では、式(11)で表すことができる。

$$R_P = R_T + R_S + R_B = R_T + R_M \quad (11)$$

ここで、 R_P は炭酸ガス同化商を1.0として、系内で消費される炭酸ガスの量から推算した。 R_T は、培養槽上部から出るガスはすべて酸素であると仮定して積算流量計で測定した。 R_M は膜から気泡として出る酸素量 R_S と溶存酸素の膜を通しての放散による量 R_B の和である。なお、 R_B を求めるにあたり、酸素の放散における物質移動係数 $\bar{K}_{LB}$ は吸収における物質移動係数 K_{LB} と等しいと仮定した。

光合成速度一定のもとで、循環液流量を増加させるにつれて R_M が増大し、 R_T が減少するという傾向がえられた。第5図は定常状態における中空糸膜細孔径

第5図 レイノルズ数と膜による酸素の回収率およびクロレラ懸濁液中の炭酸ガス濃度の関係

第6図 クロレラの増殖速度とクロレラ濃度の関係

基準の Re 数と膜による酸素の回収率および溶存酸素濃度の関係を示したものである。図中の□は光合成による酸素の発生速度に対する膜からの酸素の放散速度の比、すなわち、 R_M/R_P の値であり、■は過飽和の溶存酸素の膜から供給ガス側への放散速度の比、すなわち、 R_B/R_P である。第5図で、中空糸膜内液流速が増大するにつれて液中の酸素の過飽和度が減少しているにもかかわらず、溶存酸素の放散速度がほぼ一定であることがわかる。これは液流速が増大すると $\bar{K}_{LB}$ が増大するために結果として R_B がほぼ一定となったと考えられる。

ところで、□の値と■の値の差が R_S/R_P になるが、第5図から膜を通して回収される全酸素のうち気泡として回収される酸素の割合が大きいたことがわかる。したがって、発生した酸素の気泡が静止する無重力状態では、 $R_T \approx 0$ となるため、発生酸素のすべてを膜を介して回収することも可能になると推定される。

4.4 必要膜面積の算出 高効率なガス交換をさせるためには高濃度でクロレラを培養する必要がある、

第7図 クロレラ濃度と酸素発生量および定常状態での液中の炭酸ガス濃度の関係

そのためには光を十分に供給する必要がある。この研究については、1986年に森らが光ファイバーを用い、クロレラ懸濁液1リットルに対して照射面積0.58 m²で光を供給した実験が行われている。第6図は、この光供給装置を用いた装置において培養液中のクロレラ濃度と単位時間、単位体積当りの藻体の増加量（増殖速度）の関係を、供給する光の強さを変化させて行った実験の結果である。クロレラ濃度が低い場合には、藻体の増殖速度はクロレラ濃度の増加に伴い直線的に増加する。供給電力（E.P.）が35および52 kW·m⁻²において最高の増殖速度が得られるクロレラ濃度はそれぞれ5および10 kg·m⁻³である。

そこで、この藻体の増加量はC₆H₁₂O₆の増加に対応すると仮定し、式(12)を用いて酸素の発生量を算出した。

第7図は培養液量を5×10⁻² m³とし、E.P.が52 kW·m⁻²のときの、第6図の結果から算出できる酸素の発生量とクロレラ濃度の関係を示したものである。ここで、第7図で示した酸素発生量は液中の炭酸ガス濃度C_A*がクロレラの成長速度、つまり、酸素発生量を抑制しないC_A*=0.185 mol·m⁻³（P_A=0.5 mol%に対応する）以上の値である⁴⁾。炭酸ガスの供給速度と酸素の膜からの放散速度では、酸素のほうがクロレラ懸濁液中に含まれた微小気泡がそのまま膜の外へ放散するために大きいので、炭酸ガスの供給速度が律速になると考えられる。ここで、定常状態における炭酸ガスの透過速度J_AはSを膜面積とすると次式で表せる。

$$J_A = K_{LA}S(C_{SA} - C_A^*) \quad (13)$$

つまり、炭酸ガスの透過速度J_Aは気液間の炭酸ガスの濃度差と、K_{LA}Sの積で表すことができる。

そこで第7図には、クロレラ濃度と酸素発生量の関係と同時に、供給の炭酸ガス濃度P_Aを、人間に害を与えない限界とされるP_A=3 mol%、（C_{SA}=1.12 mol·m⁻³）の場合と、炭酸ガスを濃縮して系内に供給すると考えて、P_A=10 mol%（C_{SA}=3.73 mol·m⁻³）とした場合の、定常状態における液中の炭酸ガス濃度C_A*とクロレラ濃度の関係をK_{LA}Sをパラメータとして示した。たとえばいま、C_C=10 kg·m⁻³、P_A=3 mol%であるとすると、K_{LA}Sが2.0×10⁻⁴ m³·s⁻¹の場合では、炭酸ガスの膜からの供給が律速となり、C_A*を0.185 mol·m⁻³以上に保つためには、最高でクロレラ濃度3 kg·m⁻³の場合に相当する酸素発生量14 mol·day⁻¹しか得ることができないことを示している。したがって、炭酸ガス供給律速とならずに最大の酸素発生速度を得るためには、K_{LA}Sが3.2×10⁻⁴ m³·s⁻¹あれば良いことがわかる。また、P_Aを10 mol%とすると最大の酸素発生量を得るためにはK_{LA}Sが8.2×10⁻⁵ m³·s⁻¹以上あればよく、P_A=3 mol%の場合の約1/4程度となる。

以上の方法よりK_{LA}、クロレラ濃度および供給の炭酸ガス濃度が与えられれば第7図からその条件で、最大の酸素発生速度を得るための必要膜面積の算出ができる。

5. 結 言

ポリプロピレン製疎水性中空糸膜を用いて、クロレラによるCO₂とO₂のガス交換を行い、以下の結果が得られた。

(1) CO₂およびO₂の物質移動係数は中空糸膜内の液流速についてのみ影響を受け、10<Pe<52の範囲において式(7)で近似できた。

(2) 液中の炭酸ガス濃度C_Aが1.5~5 mol·m⁻³の間では光合成速度はC_Aの影響を受けないと考えられる。

(3) クロレラの光合成による酸素発生下において、同一モジュールを用いてCO₂の供給と発生するO₂の回収が同時に行うことができた。

(4) K_{LA}、クロレラ濃度および供給炭酸ガス濃度が与えられれば、その条件で最大の酸素発生速度を得るための必要膜面積の算出ができる。

記 号

A : coefficient in Eq. (7) [—]

a : interfacial area per unit volume of liquid [m²·m⁻³]

C : concentration in liquid [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$ or $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]
 D : diffusion coefficient [$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$]
 d_h : inner diameter of hollow fiber [m]
 H : Henry's law constant [$\text{Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{mol}^{-1}$]
 J : flux [$\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}$]
 K : overall mass transfer coefficient for absorption [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
 $\bar{K}$: overall mass transfer coefficient for stripping [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
 K_F : photosynthetic reaction rate coefficient [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ or s^{-1}]
 L : length of hollow fiber [m]
 N : number of fibers per unit cross-sectional area [m^{-2}]
 n : order of photosynthetic reaction rate [—]
 P : partial pressure in gas mixture [Pa]
 Pe : Peclet number, $d_h^2\cdot v/(D_{L,i}\cdot L)$ [—]
 P_T : total pressure of gas mixture [Pa]
 Q : flow rate [$\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$]
 R_A : absorption rate of carbon dioxide through membrane [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$]
 R_B : stripping rate of dissolved oxygen through membrane [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$]
 R_M : stripping rate of oxygen gas through membrane [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$]
 R_F : photosynthetic reaction rate [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$]
 R_R : respiration rate [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$]
 R_S : stripping rate of oxygen bubbles through membrane [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$]
 R_T : stripping rate of oxygen gas leaving for the top of bioreactor [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$]
 Re : Reynolds number, $d_h\cdot v/\nu$ [—]
 S : membrane area [m^2]
 Sc : Schmidt number, $\nu/D_{L,i}$ [—]
 Sh : Sherwood number, $K_{L,i}\cdot d_h/D_{L,i}$ [—]
 t : time [s]
 V : volume of liquid [m^3]
 v : liquid velocity in hollow fiber [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
 ν : kinematic viscosity of liquid [$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$]
 添字
 A : carbon dioxide
 B : oxygen
 C : chlorella

G : in gas
 i : i component
 L : in liquid or suspension
 S : at equilibrium state
 0 : at $t=0$
 $*$: at steady state

参考文献

- 1) Bowman, R. O. and Thomae, F. W. : Long-term Nontoxic Support of Animal Life with Algae, Science, 134 (1961), pp. 55-63.
- 2) Hannan, P. J. and Patouillet, C. : Gas Exchange with Mass Cultures of Algae, Appl. Microbiol., 11 (1963), pp. 446-452.
- 3) Ward, C. H. and Miller, R. L. : Algal Bioregenerative Systems for Space Life Support, Physiologist, 27 (1984), S 21-24.
- 4) Radmer, R., Behrens, P., Arnett, K., Gladue, R., Cox, J. and Lieberman, D. : Algal Culture Studies for CELSS, NASA, CR-177448 (1987).
- 5) Tamiya, H., Iwamura, T., Shibata, K., Hase, E. and Nihei, T. : Correlation between Photosynthesis and Light-independent Metabolism in the Growth of Chlorella, Biochem. Biophys. Acta, 12 (1953), pp. 23-40.
- 6) Nihei, T., Sasa, T., Miyachi, S., Suzuki, K. and Tamiya, H. : Change of Photosynthetic Activity of Chlorella Cells during the Course of Their Normal Life Cycle, Archiv. Microbiol., 21 (1954), pp. 156-166.
- 7) Iwamura, T. : Feasibility of Chlorella for the CO_2 - O_2 Exchanger and Biomass Producer, Proc. of the First ISAS Space Utilization Symp. (1984), pp. 76-79.
- 8) Mori, K. : Photosynthetic Bioreactor Using Visible Solar Rays Condensed by Fresnel Lenses and Transmitted through Optical Fibers, Biotechnol. Bioeng. Symp., 15 (1985), pp. 331-345.
- 9) Gafford, R. D. and Richardson, D. E. : Mass Algal Culture in Space Operations, J. Biochem. Microbiol. Technol. Eng., 2 (1960), pp. 299-310.
- 10) Matumoto, K., Teranishi, H., Yamamoto, H. and Ohya, H. : Mass Transfer of CO_2 and O_2 Gas in Chlorella Suspension through Hydrophobic Microporous Hollow Fiber Membrane, Membrane, 13 (1988), pp. 177-183.
- 11) Porter, M. C. : Concentration Polarization with Membrane Ultrafiltration, Eng. Chem. Prod. Res. Develop., 11 (1972), pp. 234-248.
- 12) Zhang, Qi and Cussler, E. L. : Microporous Hollow Fiber for Gas Absorption, J. Membrane Sci., 23 (1985), pp. 321-345.
- 13) Yang, M. C. and Cussler, E. L. : Designing Hollow Fiber Contactors, AIChE J., 32 (1986), pp. 1910-1916.
- 14) Gaucher, T. A., Benoit, R. J. and Bialecki, A. : Mass Propagation of Algae for Photosynthetic Gas Exchange, J. Biochem. Microbiol. Technol. Eng., 2 (1960), pp. 339-359.