

수소생산 고정화 생물반응기의 특성(III) -루프 반응기에서의 수소 생산-

이충곤 · 선용호 · 한정우 · 이현순¹ · 조영일*

연세대학교 공과대학 화학공학과 '성균관대학교 이과대학 생물학과'

Characteristics of the Bioreactors of Hydrogen-producing Immobilized Cells (III) -Hydrogen Production in a Nozzle Loop Reactor-

Lee, Choong-Gon, Yong-Ho Seon, Jeong-Woo Han, Hyun-Soo Lee¹ and Yung-il Joe*

Department of Chemical Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

¹Department of Biology, Sung Kyun Kwan University, Kyunggi 440-330, Korea

The continuous production of hydrogen in a nozzle loop reactor was investigated using Ca-alginate immobilized *Rhodospirillum rubrum* KS-301 with glucose, as the growth-limiting substrate.

The specific substrate consumption rate of the immobilized bacteria was expressed as follow;

$$-r_s = 0.114 S / (1.25 + S)$$

In the continuous reactor, the hydrogen production rate and residual glucose concentration were increased with increase of input glucose concentration, dilution rate, and recycle rate. The maximum production rate was 91 mL/L·h at dilution rate 0.4/h, input glucose concentration 5.4 g/L, and recycle rate 70/h in this experimental range.

광합성 박테리아의 대사기능을 이용한 수소생산에 있어서, 전보(1, 2)에서는 *Rhodospirillum rubrum*을 Ca-alginate로 포괄 고정화하였을 때의 고정화 담체의 물질전달 영향을 충전층 및 교반 탱크 반응기의 조작과 연관시켜서 고찰한 바 있다. 이 일련의 실험에서, 교반 정도가 어느 한계 이상이면 외부 물질전달을 거의 무시할 수 있으며, 담체 내부에서의 저항은 비드의 크기에 따라서 특정 범위의 값을 나타낼을 확인할 수 있었다.

본 연구에서는 루프 반응기를 사용하여, 기질 도입농도, 회석속도 및 순환속도가 수소 생성속도 및 기질 소비량에 미치는 영향을 측정하고, 그 조작 특성을 고찰하였다.

기질 소비속도와 전환율

고정화 균체의 기질 소비속도는 광합성 수소 생산

균일 경우 주생성물이 수소로서 생성물 억제작용이 없고, 기질을 저농도로 도입하여 기질 억제작용을 배제하는 동시에, 물질전달 저항의 영향이 일정하다고 가정하여 구할 수 있다(1, 6). 즉 복합효소계라고 Michaelis-Menten 형 속도식에 따른다고 가정하면, 다음 식으로 나타낼 수 있다.

$$-r_s = V_{m,a} S / (K_{m,a} + S) \quad (1)$$

이 식에서, $K_{m,a}$, $V_{m,a}$ 는 물질전달 영향을 포함하여 나타낸 결보기 Michaelis 상수(g/L) 및 결보기 최대 반응속도(g/L·h)를 의미한다.

따라서 유리균체의 경우와 마찬가지로 Lineweaver-Burk plot에 의하여 속도식 상수들을 평가할 수 있을 것이다.

균 주

Key words: Bioreactor, immobilized cell, hydrogen producing, *Rhodospirillum rubrum*, nozzle loop, production rate

*Corresponding author

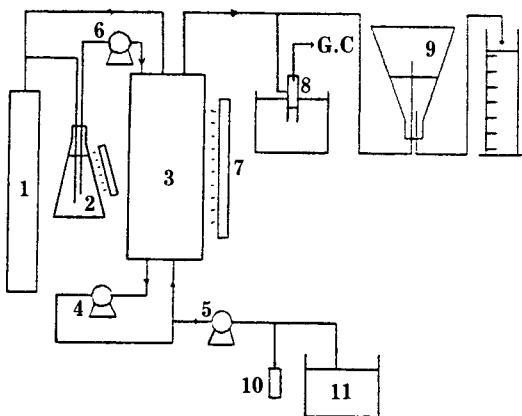


Fig. 1. Schematic diagram of loop reactor for immobilized *R. rubrum*.

- | | |
|----------------------------|------------------------|
| 1. Ar tank | 6. Inlet pump |
| 2. Feed tank | 7. 100 w lamp |
| 3. Reactor | 8. Gas sample port |
| 4. Medium circulation pump | 9. Gas collector |
| 5. Outlet pump | 10. Liquid sample port |
| | 11. Outlet tank |

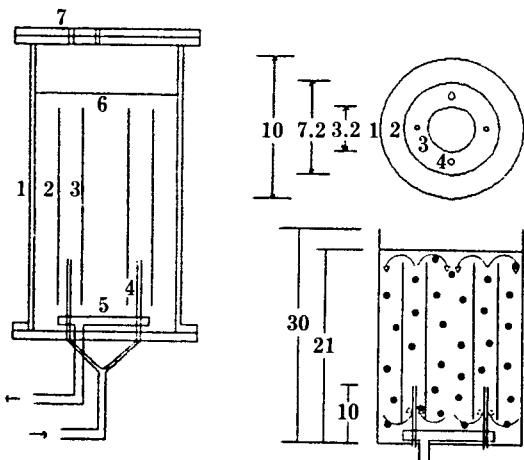


Fig. 2. Schematic diagram of loop reactor system.

1. Reactor vessel	2. Outer draft tube
3. Inner draft tube	4. Nozzle
5. Suction side	6. Liquid level
7. Feed inlet port	

본 실험에서는 *Rhodospirillum rubrum* KS-301을 사용하였는데, 균주의 보관 및 배양은 전보(1)에서와 같다.

회분실험

회분반응기는 전보(1, 2)와 같은 유리용기를 사용하였으며 Ca-alginate 법으로 고정화한 평균 지름 0.3

Table 1. Operating conditions of the continuous loop reactor.

Item	Quantity
Reactor	
Vessel diameter (cm)	10.0
Inner draft tube diameter (cm)	3.2
Outer draft tube diameter (cm)	7.6
Height (cm)	30
Total volume (cm ³)	2,000
Working volume (cm ³)	1,500
Bead volume (cm ³)	400
4 Equally spaced liquid jet diamter (cm)	0.1
Inlet pH	7.0
Reactor temperature (°C)	30
Illumination (Lux)	12,000
Reactor pressure (atm)	1.0

Table 2. Conditions of the continuous experiments.

Case	Input glucose conc. (g/L)	Dilution rate (1/h)	Recycle rate (1/h)
1	10.0, 5.4, 1.0 (variable)	0.2 (constant)	70 (constant)
2	5.4 (constant)	0.2, 0.3, 0.4 (variable)	70 (constant)
3	5.4 (constant)	0.3 (constant)	{70, 50, 36} (variable)

cm 인 미생물 비드로 실험하였다. 기질의 초기농도는 0.5-5.4 g/L로 변화시켰으며, 장치는 항온조 안에서 30°C의 혼기성 상태로 유지하였다. 광 조사 강도는 12,000 Lux로 하였다.

연속실험

연속실험에서는 Fig. 1, 2에 보인 것과 같은 루프 반응기를 사용하였으며 이 반응기는 흡출관, 흡입부, 4 개의 제트(オリ피스 내경 0.1 cm)로 구성되어 있다. 하강 유로와 상승 유로의 면적비는 1 : 1이고 높이와 지름의 비는 3 : 1이며 조작조건은 Table 1과 같다.

연속실험에서는 기질 도입농도, 희석속도, 순환속도 등을 각각 변화시켰으며 이 때의 조건은 Table 2에 나타내었다.

분석

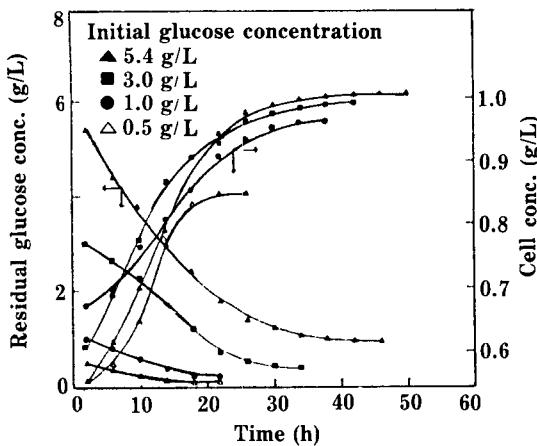


Fig. 3. Variation of glucose and cell concentration with initial glucose concentration.

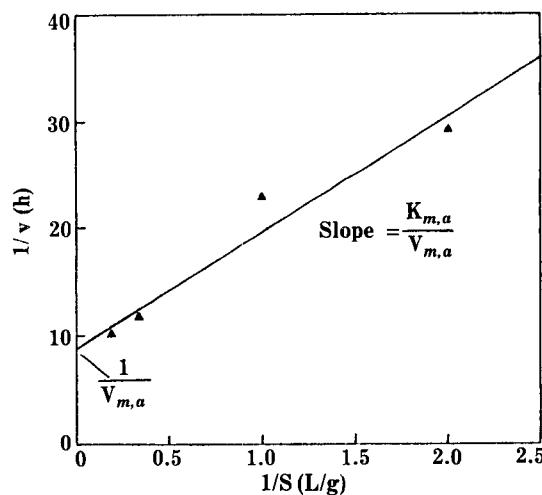


Fig. 4. Lineweaver-Burk plot of batch fermentation data using immobilized cells.

비드 중의 균체량은 담체를 인산나트륨으로 녹인 다음 전보(1)에 의한 방법으로 측정하였다. 글루코오스 농도, 수소 농도의 분석도 전보(2, 3)에서와 같다.

회분배양

고정화 균체를 사용하여 증식 세한 기질인 글루코오스의 초기농도를 달리하였을 때의 비드 내의 균체량과 잔류 기질농도의 시간적 변화를 측정한 결과를 Fig.3에 나타내었다.

이 결과를 Fig.4에서와 같이 Lineweaver-Burk plot으로 고정화 균체의 겉보기 속도상수들을 구하여 고정화 균체의 기질 소비속도식을 구하면 아래와 같다.

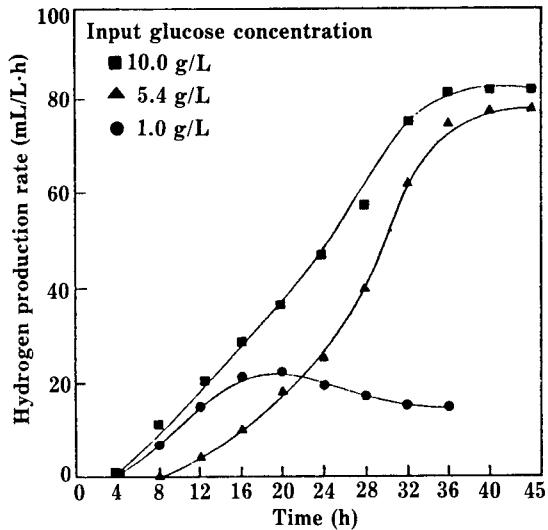


Fig. 5. Hydrogen production rate vs. time
(Dilution rate = 0.2 h⁻¹, Recycle rate = 70 h⁻¹).

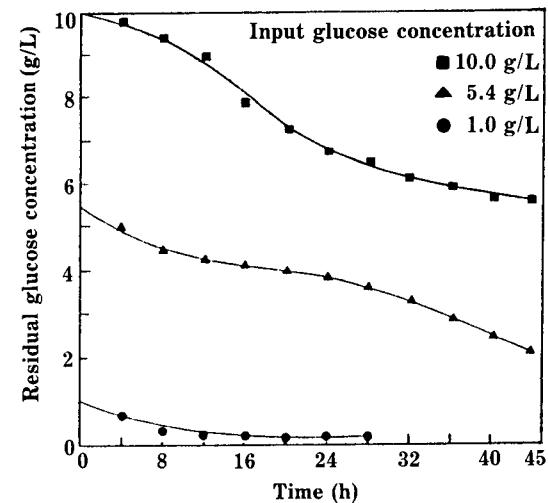


Fig. 6. Time course of residual glucose concentration with input glucose concentration.
(Dilution rate = 0.2 h⁻¹, Recycle rate = 70 h⁻¹).

$$-r_s = \frac{0.114S}{1.25+S} \quad (2)$$

연속배양

기질 도입농도의 영향 : 회식속도와 순환속도를 일정하게 하고, 기질 도입농도에 따른 수소 생성속도와 잔류 기질농도의 변화를 Fig.5-7에 나타내었다. 여기에서 보면, 도입 기질농도가 1.0g/L로 낮을 때에는 수소의 최대 생성속도가 현저하게 적은데, 이는 세포유지 대사에 기질이 주로 소비되는데 기인한

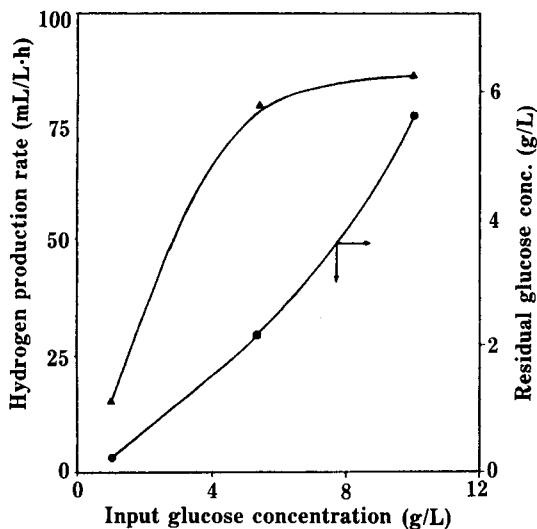


Fig. 7. Hydrogen production rate and residual glucose concentration at steady state vs. input glucose concentration.
(Dilution rate = 0.2 h^{-1} , Recycle rate = 70 h^{-1}).

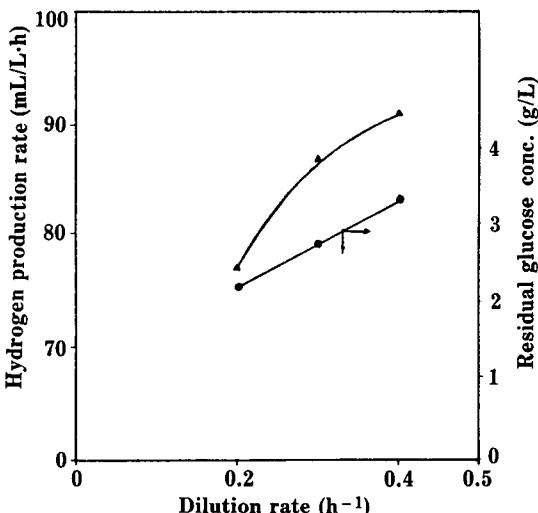


Fig. 8. Hydrogen production rate and residual glucose concentration at steady state vs. dilution rate.
(Input glucose concentration = 5.4 g/L , Recycle rate = 70 h^{-1}).

다고 볼 수 있다. 도입 기질농도가 5.4 및 10.0g/L 이었을 때는 다같이 약 40 시간 정도에서 정상상태에 도달하였으며, 이 때의 최대 수소 생성속도 값도 거의 비슷하였다. 따라서 잔류 기질농도를 참고할 때, 기질 도입농도 10.0g/L 는 너무 과잉량임을 알 수 있다. 즉 기질 도입농도 10.0g/L 에서는 기질 저해작용을 받고 있으며 이 영역은 농도 포화영역임을 알 수

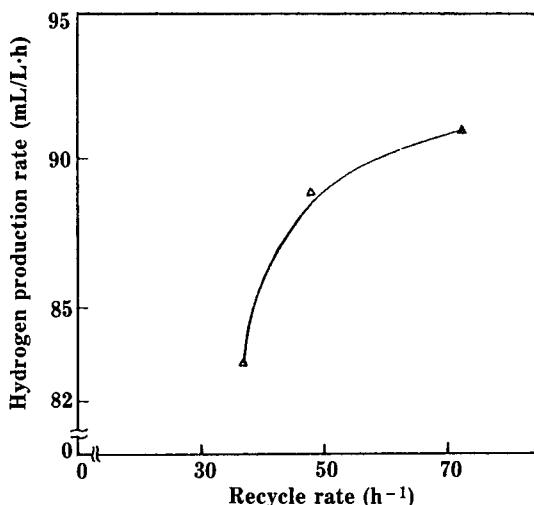


Fig. 9. Hydrogen production rate and residual glucose concentration at steady state vs. recycle rate.
(Input glucose concentration = 5.4 g/L , Dilution rate = 0.3 h^{-1}).

있다.

회석속도의 영향 : 기질 도입농도와 순환속도가 일정할 때 회석속도의 변화에 따른 수소 생성속도와 잔류 기질농도의 변화를 Fig.8에 나타내었다. 여기에서 보면, 회석속도의 증가에 따라 수소 생성속도와 잔류 기질농도가 같이 증가한다.

순환속도의 영향 : 기질 도입농도와 회석속도를 일정하게 하고 순환속도를 변화시켰을 때의 수소 생성속도의 변화를 Fig.9에 나타내었다. 순환속도의 증가에 따라 수소 생성속도가 커짐을 알 수 있다. 이는 오리피스에서의 비드 유동속도는, 순환속도 70, 50, 36/h 일 때 각각 6.64, 4.63, 3.31 m/s로서, 유동속도가 빨라지면 물질전달 저항이 감소하는데 기인한다고 볼 수 있다.

사사

이 연구는 1986년도 한국과학재단의 연구비 지원에 의하여 수행된 것으로써, 당 재단에 감사드립니다.

참고문헌

- 선용호, 백남준, 조영일 : 한국생물공학회지, 1(2), 25(1987).
- 이명재, 선용호, 한정우, 조영일 : 산업미생물학회지, 16(6), 510(1988).

3. 조영일, 선용호: 산업미생물학회지, **13**(3), 303(1985).
4. 박돈희, 조영일: 화학공업과 기술, **1**(2), 13(1984).
5. Pimental, D.: *Solar Energy*, **30**(1), 1 (1983).
6. Kim, J.K., K. Ito and H. Takahashi: *J. Ferment. Technol.*, **59**(3), 185 (1981).
7. Miyamoto, K. and Y. Miura: *Proc. Biochem.*, **65**(6), 23 (1980).
8. Schlegel, H.G. and K. Schneider: "Comprehensive Biotechnology", Vol.1, 439 (1985).
9. Kim, B.G. and C.Y. Choi: *Kor. J. Chem. Eng.*, **1**, 13 (1984).
10. Karube, I., H. Matsuoka, H. Murata, K. Kajiwara and S. Suzuki: *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, **434**(Enzyme Eng.), 427 (1984).

(Received September 29, 1989)