

왕복요동 교반조의 자유 표면에서의 산소흡수속도

고승태[†]

동양대학교 산학협력단
 36040 경북 영주시 풍기읍 동양대로 145
 (2020년 11월 9일 접수, 2020년 12월 11일 수정본 접수, 2020년 12월 25일 채택)

Oxygen Transfer Rate from Liquid Free Surface in Reciprocally Shaking Vessel

Seung-Tae Koh[†]

Industry-Academy Cooperation Foundation of Dongyang University, 145 Dongyangdae-ro, Punggi-eup,
 Yeongju-si, Kyungbuk, 36040, Korea
 (Received 9 November 2020; Received in revised from 11 December 2020; Accepted 25 December 2020)

요 약

왕복 요동 교반조의 액체 표면에서의 산소 전달 속도에 대해 연구하였다. 왕복 요동 교반조의 소요 동력은 선회요동 교반조와는 달리 요동 주파수에 비례하지 않았으며, 교반조 내의 유동양상이 선회요동의 선회류와는 다른 좌우 물결류인 관계로 어떤 진동수에서 갑자기 액면이 크게 흔들리며 움직이는 양상을 보이며, 3 s⁻¹ 이상의 요동 주파수부터는 소요 동력이 선회요동 교반조보다 적어지는 등 요동 주파수가 소요 동력에 미치는 영향은 매우 복잡하였지만, 생성되는 회전류의 범위에서의 왕복 요동 교반조 소요 동력은 회전 요동 교반조에 대해 보고된 식으로 상관시킬 수 있었다. 왕복요동 교반조에서의 $k_L a$ (물질이동 용량계수) 역시 교반 소요 동력이 단순한 형태로 소비되지 않았기 때문에 주파수의 증가에 따라 선형으로 증가하는 선회요동 교반조의 $k_L a$ 와는 달리 복잡한 형태로 증가하였다. 왕복요동 교반의 $k_L a$ 가 선회요동 교반의 $k_L a$ 보다 컸으며, $k_L a$ 값이 커질수록 그 차이도 급격히 커졌다. 결과적으로 왕복 요동에서의 산소 전달 속도는 회전 요동보다 컸으며, 단위 부피당 소요 동력과 상관시킬 수 있었다.

Abstract – The oxygen transfer rate at the liquid surface of the reciprocally shaking vessel was studied. The required power of the reciprocally shaking vessel was not proportional to the shaking frequency, unlike the rotational shaking vessel, and the liquid level suddenly fluctuated greatly at a certain frequency as the flow pattern in the vessel was a left and right wave flow different from that of the rotational shaking that has a rotational flow. The effect of the shaking frequency on the required power in the reciprocally shaking vessel was very complex, such as less power required than the rotational shaking vessel when the shaking frequency is more than 3 s⁻¹, but the required power for the range of the generated rotational flow in the reciprocally shaking vessel could be correlated with the equation that was reported for the rotational shaking vessel. The $k_L a$ (mass transfer capacity coefficient) in the reciprocally shaking vessel also increased in a complex pattern because the required power for shaking was not consumed in a simple pattern, unlike $k_L a$ in the rotational shaking vessel, which increases linearly with increasing frequency. The $k_L a$ of the reciprocally shaking vessel was larger than the $k_L a$ of the rotational shaking vessel, and as the $k_L a$ value increased, the difference between them increased sharply. As a result, the oxygen transfer rate in the reciprocal motion was greater than that of the rotational motion, and could be correlated with the required power per unit volume.

Key words: Reciprocal shaking, Liquid free surface, Oxygen transfer rate, Shaking frequency, Power consumption

1. 서 론

요동 교반은 플라스크 진동으로 대표되듯이 생물을 취급하는 실험실에서 균체 등의 스크리닝이나 전배양(preculture)에 폭넓게 사

용되고 있으나, 그 조작 조건을 결정하는 근거가 되는 데이터나 이론을 화학공학적인 견지에서 접근한 문헌은 거의 없었다. 근년에 와서야 선회운동에 의한 요동 교반에 대해서는 Anderlei and Büchs [1], Büchset 등[2], Liu and Hong [3], Mrotzek [4] 등에 의해 연구가 진행되어 왔지만, 왕복운동에 의한 요동 교반은 거의 연구되고 있지 않다. Kato 등[5]은 왕복요동 교반에 의한 원통 교반조에서의 혼합 시간에 대한 보고와 함께 교반조 내에서 일어나고 있는 유체 운동이 매우 복잡하다는 것을 보고하였다.

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: kohnet@dyu.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

왕복요동 교반에서는 진동수의 변화에 따라 ①액 표면이 진동하는 경우, ②선회류가 발생하는 경우, ③큰 물결이 발생하는 경우가 있다는 것을 밝혔으며, 그 혼합 거동은 선회요동 교반과 비교하여 크게 다르다는 것을 밝혔다. 또한 선회류가 발생할 때의 진동수는 원통 교반조의 고유진동수에 비례하고, 그때의 Fr수는 일정 값을 가져, 진폭에 의존하지 않는다는 것도 밝혔다.

요동 교반으로 세포 배양을 할 경우, 액 자유 표면에서의 산소 흡수 속도와 액체에서 세포 표면으로의 물질이동 계수의 추산은 매우 중요한 것으로 알려져 있다. Kato 등[6]에 의해 선회요동 교반조에 관한 액 표면에서의 산소 흡수 속도와 Kato 등[7]에 의해 액과 부유 입자 간의 물질이동 속도에 대해서는 이미 보고되었으나, 왕복요동 교반조에 관한 산소 흡수 속도는 아직 보고된 바가 없다.

교반조 내 수송 현상의 기초가 되는 단위 부피당 교반 소요 동력 P_V 는 교반조 내에서 소비되는 액체 에너지이며, 교반 조작의 최적화에 가장 중요한 인자로 작용한다. 특히 기하학적 형상이 복잡한 임펠러를 사용하는 교반의 경우, 날개폭, 날개 높이, 날개 수, 날개 부착 위치, 각종 방해판 조건 등의 기하학적 조건이 모두 P_V 에 포함되어 있어서, P_V 는 물질이동계수와 상관이 매우 편리한 것으로 Caldarbank and Moo-Young [8]에 의해 보고된 바 있다.

이에 본 연구는 왕복요동 교반조에서의 산소 흡수 속도와 조작 조건과의 관계 확립을 목적으로, 교반 소요 동력을 사용하여 액 자유 표면에서의 물질이동 용량계수의 상관을 시도하였다.

2. 실험

교반조는 지름 $D=14, 17, 21$ cm의 아크릴 투명 평바닥형 원통조를 사용하였으며, 교반액으로는 25 °C의 이온교환수를 사용하였다. 액 높이 H 는 각각 교반조 지름의 0.5, 0.75, 1.0배로 하였다. 교반조는 진동기(NR-80, TAITEC Ltd)를 사용하여 왕복 요동시키며, 진폭 $d=10, 20, 30, 40$ mm, 진동수 $N=1.3\sim 3.6$ sec⁻¹로 조절하였다. 용존 산소 측정기의 Probe는 지름이 1.5 cm로, 교반조 바닥에서 액 높이의 1/5위에서 교반조 안쪽으로 1.0 cm 들어오게 설치하였으며, 장치의 개요는 Fig. 1에 나타냈다.

2-1. 교반 소요 동력

교반 소요 동력 P 는 Kato 등[9]이 보고한 선회요동 연구에서 사용한 전력법으로 측정하였다. 즉, 교반 소요 동력은 open vessel과 closed vessel의 전력 차로서, 순수하게 액체의 유동에 소비된 에너

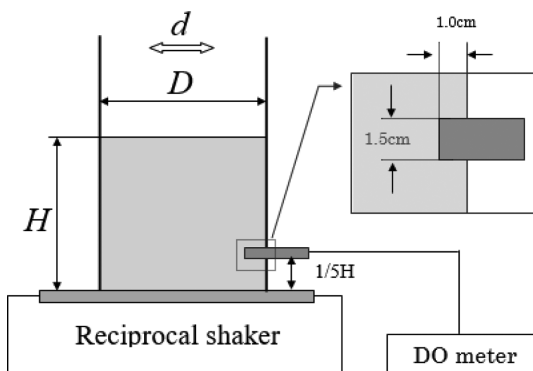


Fig. 1. Schematic diagram of the experiment.

지로 정의하였다. Closed vessel이란 뚜껑으로 액체의 자유 표면을 없앤 액의 유동을 억누른 상태의 Vessel이다. 소비전력은 전력계로 측정하였다.

2-2. 액 자유 표면에서의 물질이동 용량계수

물질이동 용량계수 $k_L a$ 는 Kato 등[6]이 선회요동 교반에 대해 실시한 보고와 같은 방법으로 측정하였다. 먼저 교반조 안의 액체 속으로 질소를 통기하여 탈산소시키고, 탈산소가 완료되면 질소 통기를 멈추고 용존산소계로 시간 변화에 대한 산소농도 변화를 연속적으로 측정하였다. 자유 표면에서의 물질이동 속도는 $k_L a$ 로써, 다음 식에 의해 얻었다.

$$k_L a = -\ln(1 - C_b/C_s)/t \quad (1)$$

이때, 산소 흡수 속도가 느린 관계로 전극의 응답 지연은 고려하지 않았다.

3. 결과와 고찰

3-1. 교반 소요 동력

왕복요동 교반에서의 교반 소요 동력은 Fig. 2에 보이는 바와 같이 진동수에 대해 단조롭게 증가하지 않고, 대단히 복잡하게 변동하므로, 교반 소요 동력과 진동수와의 상관은 매우 어렵다. N (진동수)이 3 이하의 범위에서는 왕복요동의 P (소요 동력)는 선회요동의 P 보다 크나, 3을 넘으면 선회요동의 P 보다 작게 되는 것을 알 수 있다. 이러한 현상은 왕복요동에서 N 이 3이상에서는 교반조 내의 액이 좌우 흔들림의 진동수를 따라갈 수 없게 되어 큰 물결이 발생하지 않고 작은 물결로 되어 버리는 현상이 발생하였는데, 그 결과 동력이 작게 되는 것으로 생각된다. 한편, 3 이하의 N 에서는 왕복요동은 선회요동과는 달리 어떤 진동수의 경우, 갑자기 액면이 크게 흔들리며 움직이는 조건이 있었다. 액면이 크게 움직인다는 것은 그만큼 큰 동력이 액체에 전달된다는 것으로 판단할 수 있다.

Kato 등[5]의 보고에 따르면, 왕복요동 교반에서는 3가지 임계 진동수가 관찰되는데, 교반조와의 공진에 의해 ①큰 물결이 발생하는 진동수(N_{tr1}), ②선회류가 발생하는 진동수(N_{tr2}), ③선회류가 소실되는

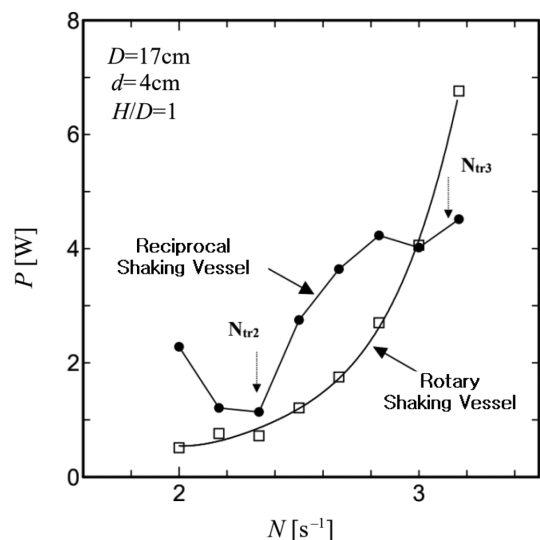


Fig. 2. The effects of frequency on mixing power consumption.

진동수(N_{tr3})가 그것이다. 왕복요동 교반에서의 교반 소요 동력의 거동은 Fig. 2에 나타난 2개의 진동수로 변화하였으며, 이때 N_{tr2} 와 N_{tr3} 은 다음 식으로 상관되었다(Kato 등[5]).

$$N_{tr2} = 0.31(g/D)^{0.5}(Fr_{tr2} = 0.095) \quad (2)$$

$$N_{tr3} = 0.30(g/D)^{0.52}(d^2/\nu)^{0.041}(Fr_{tr3} = 0.095Re_{tr3}^{0.078}) \quad (3)$$

여기에서 유체의 관성력과 점성력의 비로 정의되는 Reynolds No는 $Re = Nd^2/\nu$, 유체의 관성력과 중력의 비로 조파 저항의 분석에 이용하는 무차원수 Froude No는 $Fr = N^2D/g$ 로 정의되며, g 는 중력 가속도이다. 또 N_{tr2} 는 다음 식에 의해서도 상관할 수 있다.

$$N_{tr2} = 0.156\omega_1 \quad (4)$$

여기에서 ω_1 은 원통조의 고유진동수로, Eq. (5)로 나타낸다[10].

$$\omega_1 = \{2g/\varepsilon_1 \tanh(\varepsilon_1 2H/D)\}^{1/2} \quad (5)$$

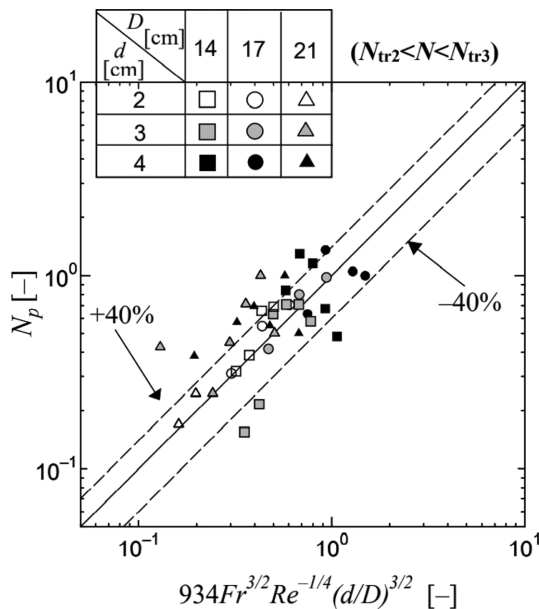


Fig. 3. Comparison of power consumption between experimental value of reciprocal shaking vessel and estimated value from correlation for rotational shaking vessel.

ε_1 은 1번째 Bessel 함수의 해로, $\varepsilon_1=1.841$ 을 사용하였다. N_{tr2} 와 N_{tr3} 사이의 진동수로 조작될 때, 교반조 내에는 안정적인 선회류가 발생하는데, 이는 선회요동 교반의 유동 상태와 매우 유사한 현상이다. 또 이 안정된 선회류는 다른 진동수에서는 관찰되지 않았다. 이 결과는 진동수가 N_{tr2} 와 N_{tr3} 사이에서만 액 혼합에 적합한 것을 의미한다. 따라서 Eq. (6)로 나타난 선회요동 교반에서의 교반 소요 동력의 상관은 이 범위에서 사용할 수 있음을 알 수 있다.

Fig. 3은 왕복요동 교반에서의 교반 소요 동력의 측정치와 Eq. (6)로 구한 선회요동 교반에서의 교반 소요 동력의 상관치(Kato 등[9])를 비교한 그래프이다.

$$Np = 934Fr^{3/2}Re^{-1/4}(d/D)^{3/2} \quad (6)$$

여기에서 Np 는 동력수로 $P/(\rho N^3 D^5)$ 로 정의된다. Fig. 3에 나타난 점선은 선회요동 교반(Kato 등[9])에서의 실험 오차이다. 왕복요동 교반이 N_{tr2} 와 N_{tr3} 사이에서 조작될 때, 그 교반 소요 동력은 대체로 Eq. (6)으로 상관할 수 있는 것으로 나타났으나, 그 외의 진동수 범위에서의 교반 소요 동력의 상관은 분산도가 너무 커서 곤란한 수준이었기에 이후의 과제로 남겨야 할 것 같다.

3-2. 액 자유 표면에서의 물질이동 용량계수

Fig. 4에 Kato 등[6]이 수행한 선회요동 교반과 왕복요동 교반에서 측정된 각각의 물질이동 용량계수와 진동수 관계의 한 예를 나타내었다. 선회요동 교반조에서의 $k_L a$ 는 진동수의 증가와 함께 선형으로 증가하지만, 왕복요동 교반조에서의 물질이동 용량계수 $k_L a$ 는 단순한 형태의 증가를 보이지 않았다. 이는 앞에서 기술한 바와 같이 교반 소요 동력이 왕복요동 교반에서는 단순한 형태로 소비되지 않기 때문이다.

Fig. 5에는 왕복요동 교반의 물질이동 용량계수 $k_L a$ 측정값과 Eq. (7)로 추산한 선회요동 교반의 $k_L a$ 값(Kato 등[6])의 비교를 나타내었다.

$$k_L a = 6 \times 10^{-5} P_v^{0.4} D^{-0.25} H^{0.6} \quad (7)$$

여기서 P_v 는 단위 체적당 교반 소요 동력($5 \sim 600 \text{ W/m}^3$)이며, D 는 교반조의 지름($0.12 \sim 0.15 \text{ m}$), H 는 액 높이($0.06 \sim 0.23 \text{ m}$)이다. Fig.

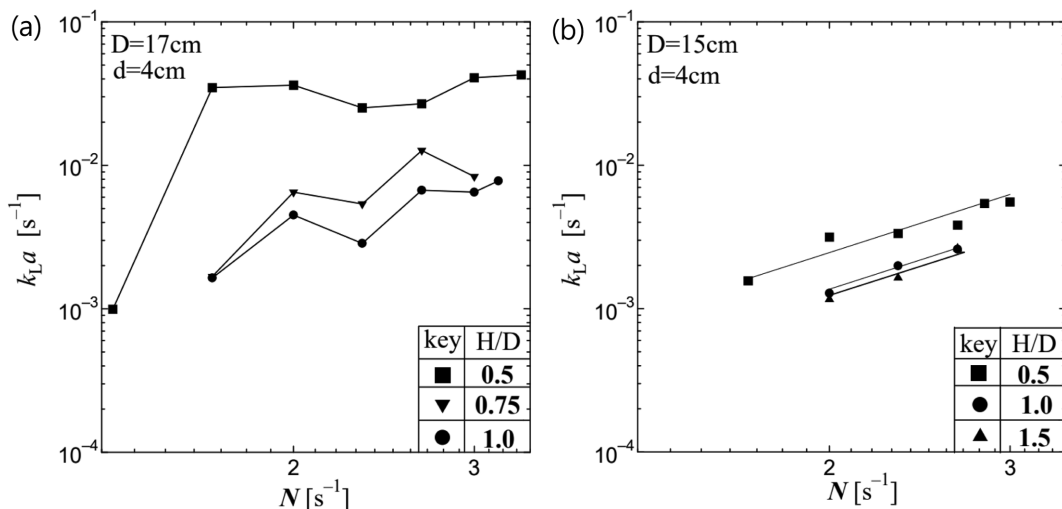


Fig. 4. The effects of frequency on mass transfer capacity coefficient. (a) Reciprocal shaking vessel, (b) Rotational shaking vessel

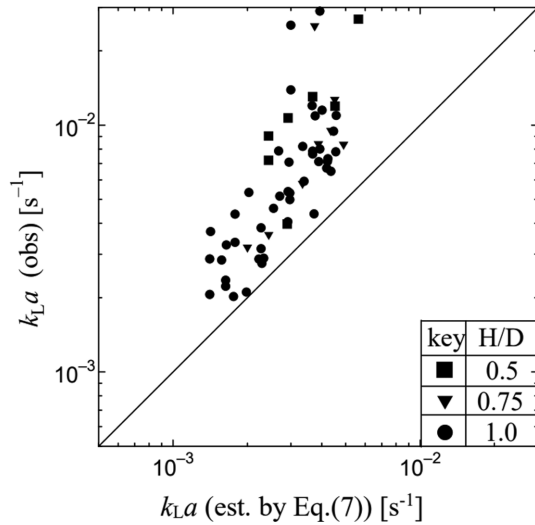


Fig. 5. Comparison of k_La between experimental value of reciprocal shaking vessel and estimated value by Eq. (7) for rotational shaking vessel.

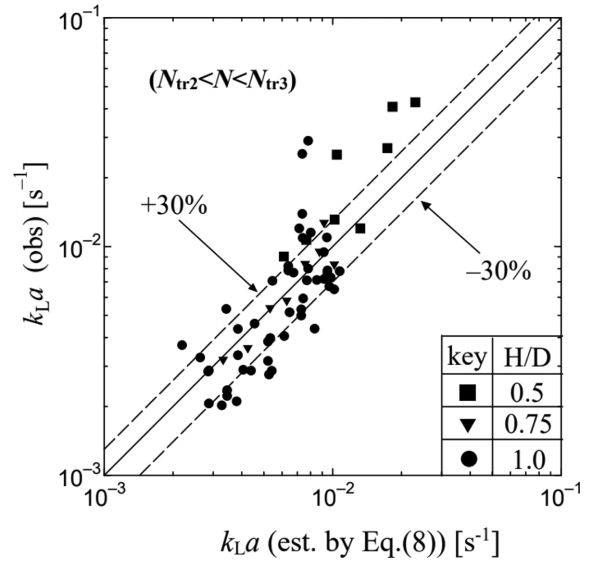


Fig. 7. Correlation of mass transfer capacity coefficient in reciprocal shaking vessel.

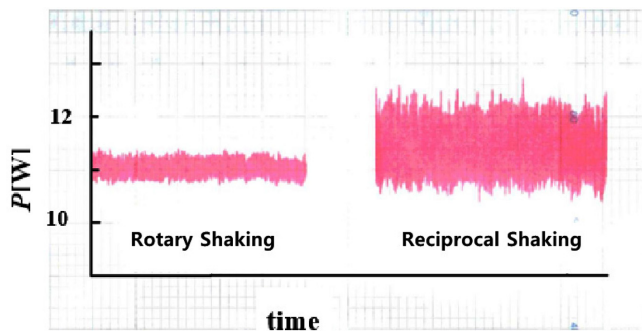


Fig. 6. Comparison of mixing power consumption deviations between reciprocal shaking vessel and rotational shaking vessel. ($D=17$ cm, $d=4$ cm, $N=2.67$ s⁻¹, $H/D=1$)

5에서 보이는 바와 같이 왕복요동 교반의 k_La 이 선회요동 교반의 k_La 보다 컸으며, k_La 값이 커질수록 그 차이도 급격히 커졌다. 선회요동 교반과 왕복요동 교반에서의 교반 소요 동력의 출력 결과의 한 예를 Fig. 6에 나타내었는데, 왕복요동 교반의 P_V 편차가 선회요동 교반의 P_V 편차보다도 상당히 큰 것을 알 수 있다. 편차 차이의 가장 큰 원인은 교반조 내의 액흐름이 선회류인지 좌우 흔들림의 물결류인지의 차이로, 선회요동인 경우는 교반조에서 발생하는 액흐름은 선회류가 되어, N 의 상승에 따라 규칙적으로 빨라지진다. 왕복요동인 경우는 어떤 조건에서는 선회류가 될 때도 있지만[11], 보통은 선회류가 아닌 좌우 흔들림의 물결류로, 액면이 크게 움직이며 변동하였다. 액면이 크게 움직이며 변동했다는 것은 액체에 전달된 동력도 크게 변동했다는 것을 의미한다.

또한 이와 같은 이유로 왕복요동 교반조에서의 액 자유 표면 상태(예를 들어 물결의 높이나 물결의 선회 방향)는 선회요동 교반 때와는 크게 달라서 정상적이지 않았으며 변화도 심했다. 이러한 이유로 산소 흡수에 있어 기능하는 액의 자유 표면적은 왕복요동 교반 쪽이 선회요동 교반 쪽보다 클 것으로 판단된다.

결과적으로 왕복요동 교반의 물질이동 용량계수 k_La 는 진동수 N_{tr2} 와 N_{tr3} 사이의 범위에서 다음 식으로 상관할 수 있다.

$$k_La = 1.43 \times 10^{-4} P_V^{0.54} D^{0.97} H^{1.3} \quad (8)$$

여기서 P_V 는 추산이 어려워 실험치를 사용하였다. Fig. 7은 Eq. (8)로 계산한 추산치와 실험치를 비교한 것이다. 왕복요동 교반에서의 Eq. (8)의 오차는 30%로 선회요동 교반에서의 Eq. (7)의 오차 20% (Kato 등 [6])보다 컸다. 이 결과로 왕복요동 교반의 최적 조작 조건의 결정은 선회요동 교반보다 복잡하였다.

4. 결 론

선회류가 지배하는 선회요동 교반조에서는 소요 동력은 진동 주파수에 비례하지만, 좌우 물결류가 지배하는 왕복요동 교반조에서는 어떤 진동수 이하에서는 액이 좌우 흔들림의 진동수를 따라가지 못하여 큰 물결이 발생하지 않고 작은 물결이 되어버려 소요 동력이 커졌지만, 그 이상에서는 갑자기 액면이 크게 흔들리는 등 교반 소요 동력은 진동수와 매우 복잡한 관계에 있으며, 선회류가 발생하는 영역에 대해서는 선회요동 교반조의 교반 소요 동력의 상관식을 무리 없이 사용할 수 있었다.

$$Np = 934 Fr^{3/2} Re^{-1/4} (d/D)^{3/2} (N_{tr2} < N < N_{tr3})$$

액 자유 표면에서의 물질이동 용량계수 k_La 와 주파수의 관계에도 같은 영향을 미치게 하여 진동수의 증가와 함께 k_La 가 단순 증가하는 선회요동과는 달리 왕복요동 교반에서는 복잡한 증가를 보여, 소요 동력과 주파수와와의 복잡한 관계의 영향인 것을 알 수 있었으며, k_La 의 단위 체적당 소요 동력 P_V 는 다음 식으로 상관할 수 있다.

$$k_La = 1.43 \times 10^{-4} P_V^{0.54} D^{0.97} H^{1.3} (N_{tr2} < N < N_{tr3})$$

이 식을 사용한 추산치와 실험치와의 오차는 30%로 선회요동 교반의 20%에 비해 컸는데, 이 또한 주파수와 P_V 의 복잡한 관계의 영향이었다. k_La 에 대한 a 의 P_V 에 대한 의존성은 왕복요동 교반 쪽이 선회요동 교반 쪽보다 컸는데, 이는 액의 자유 표면적이 왕복요동 교반 쪽이 크기 때문이다.

Nomenclature

C_0	: initial concentration [mol/m ³]
C_b	: bulk concentration [mol/m ³]
C_s	: saturated bulk concentration [mol/m ³]
D	: vessel diameter [m]
d	: amplitude [m]
Fr	: Froude number ($=N^2D/g$) [-]
H	: liquid height [m]
k_{La}	: mass transfer capacity coefficient between vapor & liquid [s ⁻¹]
N	: frequency [s ⁻¹]
Np	: power number ($=P/\rho N^3 D^5$) [-]
N_{tr2}	: frequency generating stabilized rotational flow [s ⁻¹]
N_{tr3}	: frequency disappearing stabilized rotational flow [s ⁻¹]
P	: required mixing power [W]
P_V	: required mixing power per unit volume [W/m ³]
Re	: Reynolds number ($=Nd^2/\nu$) [-]
t	: time [s]
ν	: liquid kinematic viscosity [m ² /s]
ρ	: liquid density [kg/m ³]
ε_1	: natural frequency of vessel [s ⁻¹]

References

1. Anderlei, T. and J. Büchs, "Device for Sterile Online Measurement of the Oxygen Transfer Rate in Shaking Flasks," *Biochem. Eng. J.*, **7**, 157-162(2001).
2. Büchs, J., Lotter, S. and Milbradt, C., "Out-of-phase Operating Conditions, a Hitherto Unknown Phenomenon in Shaking Bioreactors," *Biochem. Eng. J.*, **7**, 135-141(2001).
3. Liu, C. M. and Hong, L. N., "Development of a Shaking Bioreactor System for Animal Cell Cultures," *Biochem. Eng. J.*, **7**, 121-125(2001).
4. Mroczek, C., Anderlei, T., Henzler, H. J. and Büchs, J., "Mass Transfer Resistance of Sterile Plugs in Shaking Bioreactors," *Biochem. Eng. J.*, **7**, 107-112(2001).
5. Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y., Hirose, K. and Büchs, J., "Mixing Time of Shaking Vessel with Reciprocal motion at Low Viscosity," *J. Chem. Eng. Japan*, **36**, 663-667(2003).
6. Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y., Sato, K. and Ohishi, T., "Measurement of Mass Transfer Rate from Free Surface in Shaking Vessel Type Bioreactor," *J. Chem. Eng. Japan*, **30**, 362-365(1997).
7. Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y. and Nomura, T., "Solid-Liquid Mass Transfer in a Shaking Vessel for a Bioreactor with "Current Pole," *Can. J. Chem. Eng.*, **76**, 441-445(1998).
8. Calderbank, P. H. and Moo-Young, M. B., "The Continuous Phase Heat and Mass Transfer Properties of Dispersions," *Chem. Eng. Sci.*, **16**, 39-54(1961).
9. Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y., Koh, S. T. and Lee, Y. S., "Mixing Time and Power Consumption for a Liquid in a Vertical Cylindrical Vessel, Shaken in a Horizontal Circle," *Trans. IChemE.*, **74**, 451-455(1996).
10. Sogabe, K., Shigeta, T. and Shibata, H., "On the Aseismic Design of Liquid Storages," *Journal J.S.M.E.*, **79**, 305-315(1976).
11. Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y., Hirose, K. and Büchs, J., "Mixing Performance of a Reciprocally Shaking Vessel," *J. Chem. Eng. of Japan*, **36**(6), 663-667(2003).