

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

(11) N° de publication :
(A n'utiliser que pour les
commandes de reproduction).

2 482 129

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

(21)

N° 81 04349

(54) Appareil pour effectuer une fermentation ou une réaction en continu.

(51) Classification internationale (Int. Cl.³). C 12 M 1/08; C 12 P 7/06.

(22) Date de dépôt..... 4 mars 1981.

(33) (32) (31) Priorité revendiquée : Japon, 4 mars 1980, n° 27724/80 et 8 juillet 1980, n° 93502/80.

(41) Date de la mise à la disposition du
public de la demande B.O.P.I. — « Listes » n° 46 du 13-11-1981.

(71) Déposant : Société dite : TOKYO RIKAKIKAI CO., LTD, Société dite : KANSAI CHEMICAL
ENGINEERING CO., LTD et Société dite : TAKARA SHUZO CO., LTD, résidant au Japon.

(72) Invention de : Susumu Fukushima, Hideaki Munenobu et Kazuhiro Yamade.

(73) Titulaire : *Idem* (71)

(74) Mandataire : Cabinet Beau de Loménie,
55, rue d'Amsterdam, 75008 Paris.

La présente invention concerne un appareil pour effectuer une fermentation ou une réaction en continu. Plus particulièrement, l'invention concerne un appareil pour effectuer une fermentation ou une réaction en continu dans lequel des cellules de micro-organismes ou des particules catalytiques en suspension dans un liquide sont mises en contact avec une phase gazeuse.

L'appareil de l'invention s'applique notamment à un procédé pour la production continue ou discontinue d'éthanol par fermentation avec comme matière première un disaccharide, un mono-saccharide ou un de leurs mélanges.

Les demandes de brevets japonais n° 92774/77 déposée le 2 août 1977 par TOKYO RIKAKIKAI CO., LTD et n° 76564/79 déposée le 18 juin 1979 par TOKYO RIKAKIKAI CO., LTD décrivent un réacteur dans lequel deux cônes sont couplés par leurs bases, du même type général que l'appareil de l'invention, ce réacteur étant utile non seulement pour effectuer une immobilisation d'enzymes et une oxydation par des enzymes immobilisées, mais également pour effectuer une fermentation anaérobie.

Des recherches ultérieures portant sur la conversion continue à grande échelle du sucre en alcool qui constitue une énergie de remplacement potentielle ont amené la demanderesse à découvrir qu'un réacteur biologique multi-étage composé de réacteurs unitaires raccordés verticalement, ayant chacun deux cônes couplés par leurs bases, constitue un appareil de fermentation continue très efficace.

L'invention concerne un réacteur biologique multi-étage utile notamment pour transformer le sucre en alcool, comportant au moins deux réacteurs unitaires montés verticalement constitués chacun d'un cône supérieur ouvert raccordé à un cône inférieur ouvert par l'intermédiaire d'un cylindre court ayant un diamètre supérieur à celui du cône supérieur et du cône inférieur, d'un diffuseur de gaz et d'une canalisation d'introduction de liquide raccordés au plus bas des réacteurs unitaires et un séparateur de gaz et une canalisation d'évacuation de la masse fermentaire raccordés au plus haut des réacteurs unitaires. Si on le désire, une enveloppe de chauffage ou de refroidissement peut être disposée autour de l'empilement des

réacteurs unitaires. Le diffuseur de gaz comporte de préférence une chambre d'alimentation en gaz qui est séparée du réacteur unitaire le plus bas par un diffuseur de gaz.

On peut également selon l'invention produire de

5 l'éthanol à partir de substrats saccharidiques tels que le glucose, la mélasse noire et le sirop de sucre, dans un réacteur de fermentation constitué d'au moins deux réacteurs unitaires montés verticalement comportant chacun un cône supérieur ouvert raccordé à un cône inférieur inversé ouvert par un cylindre court ayant un diamètre 10 supérieur à celui du cône supérieur et du cône inférieur. L'introduction d'une phase gazeuse constituée de bulles de gaz inerte dans le réacteur par le diffuseur de gaz permet d'obtenir dans chaque étage un courant ascendant et un courant descendant d'une masse fermentaire constituée de substrats de liquide et de cellules de 15 levure, ce qui crée ainsi un courant de liquide continu provoquant le mélange du substrat liquide avec les cellules de levure dont le nombre diminue progressivement au fur et à mesure que la solution s'élève vers les réacteurs unitaires supérieurs. Le dioxyde de carbone et une partie de l'éthanol sont transférés de la phase 20 liquide aux bulles de gaz inerte et les bulles sont évacuées au sommet du réacteur, tandis qu'on laisse un produit non raffiné s'écouler hors du réacteur. On sépare la levure du produit non raffiné et on distille la solution séparée pour produire de l'éthanol.

Les modes de réalisation préférés de l'invention vont 25 maintenant être décrits en regard des figures annexées dans les quelles :

- la figure 1 est une coupe longitudinale d'un fermenteur continu construit selon l'invention;
- la figure 2 est un diagramme explicatif illustrant 30 le comportement du mélange de gaz et de liquide dans le fermenteur;
- la figure 3 est une coupe transversale d'un réacteur unitaire utilisé dans le fermenteur de l'invention;
- la figure 4 illustre un autre mode de réalisation du fermenteur de l'invention constitué de plusieurs réacteurs unitaires sphériques;

- la figure 5 est une coupe transversale d'un réacteur biologique pour produire de l'éthanol selon l'invention;

- la figure 6 est une coupe transversale d'un réacteur continu latéral; et

5 - la figure 7 est une coupe transversale de réacteurs verticaux et latéraux.

Comme le montre la figure 1, chaque réacteur unitaire comporte un cône supérieur 2 qui est raccordé à un cône inférieur inversé 3 par un cylindre court 1 placé légèrement au-dessus de la 10 portion moyenne de l'unité et qui a un diamètre supérieur à celui des deux cônes. La partie inférieure de l'unité la plus basse est raccordée à un diffuseur de gaz 4 fait d'une plaque frittée ou poreuse. Le diffuseur est raccordé à une chambre d'alimentation en gaz 7 munie d'une canalisation d'alimentation en gaz 5 et d'une 15 canalisation de vidange 6. Une ou plusieurs canalisations d'alimentation en liquide 8 sont raccordées tangentielle à une partie du cône inversé 3 du réacteur unitaire le plus bas au voisinage de sa partie inférieure. La partie supérieure du fermenteur 15 est raccordée à une sortie de gaz 9 et à une canalisation 10 d'évacuation 20 de la masse fermentaire liquide. Chaque réacteur unitaire comporte une enveloppe 11 de refroidissement ou de chauffage.

Un substrat liquide introduit tangentielle à la paroi de l'unité la plus basse par la canalisation 8 forme un vortex qui s'élève dans la colonne de l'unité selon la direction indiquée 25 par la flèche A de la figure 2. Lorsque le substrat s'élève, le diamètre du vortex s'accroît et le débit du liquide diminue. La diminution du débit est maintenue à un minimum par des bulles d'un gaz apporté par la canalisation 5 et qui traverse le diffuseur 4 pour s'élèver dans le ventre 12 du réacteur.

30 Une partie des cellules des micro-organismes et du liquide ainsi que les petites bulles de gaz descendant le long des parois intérieures du cône supérieur 2. Lorsqu'elle atteint le cône inférieur, la masse descendante change de direction et s'élève dans le réacteur par suite de l'effet d'éjecteur, c'est-à-dire du fait 35 que le courant ascendant de bulles de gaz a une pression supérieure à celle du courant descendant. La partie restante du liquide et des

cellules des micro-organismes ainsi que les bulles de gaz traversent le col 13 du réacteur unitaire 14 adjacent à l'unité la plus basse. Dans ce réacteur, le comportement est le même que dans l'unité la plus basse. Tandis qu'elle s'élève à la partie supérieure 5 du fermenteur, dans une série de réacteurs unitaires, comme précédemment décrit, la masse fermentaire est séparée des bulles de gaz et introduite dans un séparateur solide-liquide par la canalisation 10. La masse fermentaire à chaque étage du fermenteur est fluidisée de façon efficace par un gaz d'agitation. Pour que le 10 processus de fermentation demeure régulier, la chaleur libérée par la fermentation est transférée à travers l'enveloppe de refroidissement 11. Le gaz d'agitation peut être un des composants du substrat ou être un gaz inerte.

Un des avantages de l'invention est qu'aucun des cols 15 13 ne peut être rempli de bulles de gaz, ce qui pourrait entraîner une séparation entre le fluide s'écoulant dans un étage et le fluide s'écoulant dans un autre. Au contraire, le fluide qui s'écoule à travers les étages consécutifs forme un courant continu qui entraîne les particules solides en suspension vers le sommet du fermenteur. 20 La continuité de l'écoulement des fluides à travers les étages adjacents facilite le fonctionnement régulier du fermenteur et est également utile pour effectuer des opérations qu'il est impossible d'effectuer sans la présence d'un liquide sur et dans les particules solides en suspension.

Le fermenteur continu à trois phases illustré par la 25 figure 1 est composé de plusieurs réacteurs unitaires comme illustré par la figure 3 montés les uns au-dessus des autres ou formant un ensemble unique. Chaque unité peut être sphérique comme illustré par la figure 4 au lieu de consister en une combinaison de deux 30 cônes unis par leurs bases. Les unités adjacentes doivent être raccordées par un col court car, si elles sont raccordées par un tube long, les bulles de gaz combinées remplissent le tube et empêchent la formation d'un courant continu. Bien entendu, il n'est pas nécessaire que le substrat liquide soit introduit dans le réacteur 35 unitaire le plus bas.

La description précédente concerne l'application de l'appareil de l'invention à la fermentation mais, bien entendu, cet appareil peut également être utilisé pour effectuer d'autres réactions. Une application de l'invention à un procédé de production 5 d'éthanol va maintenant être décrite.

De façon générale, les levures fraîches produisent de l'éthanol avec une vitesse de fermentation plus élevée et ont une densité supérieure à celle des levures moins fraîches qui produisent de l'éthanol avec une vitesse de fermentation nettement moindre et 10 ont une densité plus faible.

La figure 5 illustre un réacteur biologique fluidisé à trois phases multi-étage qui provoque un très bon mélange de la solution substrat liquide dans chaque étage et où, du fait que la solution de chaque étage s'écoule en continu, la quantité de levure 15 diminue lorsque la solution s'élève d'un étage à l'étage qui lui est juste supérieur. Simultanément, les vieilles cellules de levure sont séparées du gaz avec la solution et évacuées à l'extrémité supérieure du réacteur. Comme il ne se produit pas de blocage ou de colmatage du réacteur par les cellules de levure dans les cônes du 20 réacteur, l'élimination de la chaleur de fermentation est facile à réaliser, si bien que le processus de fermentation s'effectue de façon presque stationnaire.

Le fermenteur continu A illustré par la figure 5 comporte, comme dans le mode de réalisation précédemment décrit, 25 des unités ou cônes raccordés verticalement et composés chacun d'un cylindre rectiligne court 1, d'un cône supérieur 2 et d'un cône inférieur 3. Une canalisation d'alimentation en gaz 5 introduit de l'air ou de l'azote dans le fermenteur par un diffuseur de gaz 4 qui est raccordé à la chambre 7 d'alimentation en gaz et une solution substrat est introduite par la canalisation inférieure d'alimentation en liquide 8. Le gaz et la solution sont mélangés énergiquement dans chaque unité et, au niveau des cols 13, la dispersion 30 est accélérée par un effet d'éjecteur.

Le gaz et la masse fermentaire s'élèvent, tandis que 35 le processus de fermentation s'effectue, et pénètrent dans le séparateur gaz-liquide 15 placé au sommet du fermenteur. On condense

dans le condenseur 16 l'éthanol évaporé et la vapeur d'eau accompagnés d'azote et de dioxyde de carbone, d'air et de dioxyde de carbone ou de dioxyde de carbone et on introduit la solution aqueuse d'éthanol condensée dans le réservoir 18 par la canalisation 17, puis
 5 une pompe 26 la conduit dans une tour de distillation 27. Le gaz séparé de la solution aqueuse d'éthanol est recyclé par un système de transport sous pression, comportant le réservoir tampon 19, la pompe à air 20, le réservoir tampon 21, la pompe à gaz 22, la vanne 23 et le réservoir sous pression 24, raccordé à la chambre d'alimentation en gaz 7 du fermenteur A.

La solution de fermentation transportée par la canalisation d'évacuation 10 est séparée en une solution d'éthanol contenant les levures et en un résidu solide de fermentation par le séparateur solide-liquide 25, puis la solution est transportée par une pompe 26 dans une tour de distillation 27 comportant un condenseur 28 et un rebouilleur 29 où elle est concentrée.

Dans le mode de réalisation illustré par la figure 6, trois réacteurs unitaires sont raccordés latéralement en série. Chaque unité comporte une sortie 9 à la partie supérieure et une 20 chambre d'alimentation en gaz 7 à la partie inférieure. La solution d'alimentation est introduite par la partie inférieure de la première unité G et la solution de produit est évacuée par la sortie 10 située à la partie supérieure de l'unité finale I. La solution ou masse fermentaire est transportée à travers les unités G et H à l'unité I tout en étant mélangée. Si on utilise des particules catalytiques solides ou des particules de biocatalyseurs, on peut obtenir une répartition uniforme des particules dans chaque unité au niveau des raccordements 30 entre les unités, tandis que la solution passe de l'unité J à l'unité H, puis à l'unité I. Chaque unité est alimentée 25 en gaz. Donc, la chute de pression est faible par rapport au réacteur biologique multi-étage vertical illustré par les figures 1 et 5.

La figure 7 illustre des réacteurs biologiques unitaires à double cône disposés verticalement et latéralement. Les particules de biocatalyseurs sont introduites par l'entrée 32 située dans la 30 partie supérieure de la première colonne et la solution de produit est évacuée par la sortie 10 située au sommet de chaque colonne.

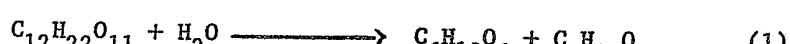
On règle la température de réaction dans chaque réacteur biologique unitaire au moyen de l'enveloppe 31.

L'invention est illustrée par les exemples non limitatifs suivants

5

EXEMPLE 1

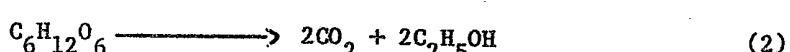
On utilise de la mélasse noire comme matière première et on effectue la réaction illustrée ci-dessous au moyen de l'acide.



asachse

glucose fructose

10



Dans un réacteur biologique à trois étages comportant

des cônes dirigés vers le haut et vers le bas, construit comme précédemment décrit et ayant un volume équivalent de 700 ml par étage, on introduit du dioxyde de carbone comme gaz inerté par

15 l'extrémité inférieure à travers un diffuseur à un débit de
 $400 \text{ cm}^3 \text{ N/min}$. On introduit ensuite par l'extrémité inférieure à
 un débit de $2,5 \text{ cm}^3/\text{min}$ de la mélasse stérilisée contenant $0,24 \text{ mol/l}$
 de saccharose, $0,33 \text{ mol/l}$ de glucose et $0,32 \text{ mol/l}$ de fructose
 ayant un pH de $4,5$ à 30°C . Lorsque la solution et le gaz ont rempli
 20 le second étage du réacteur biologique, on introduit en une seule
 fois, par une entrée, 100 g (poids sec : 33 g) de cellules vivantes
 de *Saccharomyces cerevisiae*.

Après environ 40 h, la concentration en alcool atteint un régime pseudo-stationnaire. Les concentrations des cellules dans les différents étages du réacteur sont les suivantes.

TABLE II

	<u>Etage</u>	<u>Jours écoulés</u>	
		<u>7 jours</u>	<u>12 jours</u>
	Etage supérieur	$4,0 \times 10^7$ cellules/ml	$6,4 \times 10^7$ cellules/ml
30	Etage intermédiaire	$9,9 \times 10^7$ cellules/ml	$7,7 \times 10^7$ cellules/ml
	Etage inférieur	$1,1 \times 10^8$ cellules/ml	$8,6 \times 10^7$ cellules/ml

Comme on le voit, la concentration en cellules de levure est plus faible dans l'étage supérieur que dans l'étage inférieur. Bien que la concentration des cellules de levure diminue après 11 jours par rapport à la valeur observée après 7 jours, la 5 concentration en éthanol de la solution est de 55 g/l et le gaz contient 6 à 7 g/l d'éthanol, ces deux concentrations étant presque constantes. Ce fait montre que l'activité de production d'éthanol des nouvelles cellules s'accroît lorsqu'on évacue les vieilles cellules. Un essai continu sur 25 jours montre un fonctionnement 10 régulier sans difficultés opératoires.

EXEMPLE 2

On découpe des pommes de terre en tranches et on liquéfie avec comme enzyme de l' α -amylase et de la glucoamylase pour saccharifier la masse fermentaire. On soumet aux mêmes opérations 15 avec la même levure que ci-dessus une solution sucrée contenant le glucose dérivant des pommes de terre à la concentration de 1,2 mol/l avec de petites quantités de sulfate d'ammonium, de phosphate, de sulfate de magnésium et de vitamine. On obtient une solution contenant 51 g/l d'éthanol.

20 Le réacteur continu à trois phases illustré par la figure 6 comporte plusieurs réacteurs unitaires disposés latéralement. Une partie ouverte d'un cylindre court 1 ayant un diamètre supérieur à celui du cône supérieur et du cône inférieur du premier réacteur unitaire est raccordée au cylindre court du second réacteur unitaire 25 adjacent. Donc, le produit liquide ou en suspension passe du premier réacteur unitaire au second. La chute de pression dans cette disposition latérale est faible par rapport à celle observée dans une disposition verticale.

Le réacteur continu à trois phases de la figure 7 est 30 constitué d'un montage vertical et latéral de plusieurs réacteurs unitaires.

EXEMPLE 3

Au lieu de cellules intactes, on utilise des cellules immobilisées de *Saccharomyces cerevisiae* emprisonnées dans des parti-

cules de gel de polyacrylamide. On introduit de l'azote comme gaz inert dans un réacteur biologique à trois unités semblable à celui utilisé dans l'exemple 1, à travers le diffuseur de gaz à un débit de 800 cm³ N/min. On introduit à un débit de 0,74 cm³/min de la mélasse 5 stérilisée contenant 0,45 mol/l de saccharose, 0,33 mol/l de glucose et 0,32 mol/l de fructose. On effectue la réaction à la température de 30°C et à un pH de 4,88.

Dans le réacteur biologique, le nombre total de cellules immobilisées de *Saccharomyces cerevisiae* est de $2,57 \times 10^5$ et le 10 volume du gel est de 225 cm³. Les cellules immobilisées sont maintenues dans le réacteur biologique par un grillage situé à la sortie du liquide du réacteur. Après 25 jours, la solution effluente du réacteur biologique contient 60 g/l d'éthanol et 0,32 mol/l de monosaccharide. La production d'éthanol dans le gaz évacué du réacteur biologique 15 est de 14 g/j.

EXEMPLE 4

Dans un réacteur continu du type illustré par la figure 5, on introduit des cellules immobilisées de *Saccharomyces carlsbergensis* emprisonnées dans un gel de polyacrylamide. Dans 20 chaque réacteur unitaire, on introduit par le diffuseur de gaz de l'azote à un débit de 100 cm³ N/min. La solution d'alimentation contient 0,65 mol/l de glucose et 10^{-3} mol/l de sulfate de magnésium avec un tampon phosphate à pH 4,5. On introduit cette solution dans le premier réacteur unitaire à un débit de 0,1 cm³/min. Le volume 25 total de la solution est de 243 cm³ et le volume total des particules de cellules immobilisées est de 24 cm³. On effectue la réaction à 30°C. La solution effluente du réacteur unitaire final contient 60 g/l d'éthanol.

Lorsque la solution d'alimentation a une teneur élevée 30 en glucose, la majeure partie de l'éthanol est transférée de la solution à la phase gazeuse. On introduit la solution contenant 1,2 mol/l de glucose à un débit de 0,1 cm³/min. La production totale d'éthanol est de 15 g/j. On obtient la moitié de cette production dans la solution effluente du réacteur unitaire final.

Bien entendu, diverses modifications peuvent être apportées par l'homme de l'art aux dispositifs ou procédés qui viennent d'être décrits uniquement à titre d'exemples non limitatifs sans sortir du cadre de l'invention.

R E V E N D I C A T I O N S

1. Réacteur continu, caractérisé en ce qu'il est constitué d'au moins deux réacteurs unitaires composés d'un cône supérieur ouvert (2) raccordé à un cône inférieur ouvert inversé (3) par un cylindre court (1) ayant un diamètre supérieur à celui du cône supérieur et du cône inférieur, d'un élément d'alimentation en gaz (4, 7) et d'une tubulure d'introduction de liquide (8) raccordés au réacteur unitaire le plus bas et d'un séparateur de gaz (9) et d'une canalisation (10) d'évacuation de produit liquide ou de produit en suspension raccordés au réacteur le plus haut.
- 5 2. Réacteur continu selon la revendication 1, caractérisé en ce que les réacteurs unitaires sont montés verticalement.
3. Réacteur continu selon la revendication 1, caractérisé en ce que les réacteurs unitaires sont montés latéralement.
- 10 15 4. Réacteur continu selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il comporte au moins quatre desdits réacteurs unitaires et en ce que ces réacteurs unitaires sont montés verticalement et latéralement.
- 15 20 5. Réacteur continu selon l'une des revendications 3 ou 4, caractérisé en ce qu'une partie ouverte d'un cylindre court est raccordée à un cylindre court adjacent disposé latéralement pour l'évacuation d'un produit liquide ou en suspension d'un réacteur unitaire à un réacteur unitaire latéral.
- 25 6. Réacteur continu selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il comporte de plus une enveloppe (11) disposée autour des réacteurs unitaires pour transporter un fluide modifiant la température.
- 25 30 7. Réacteur continu selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'élément d'alimentation en gaz est constitué d'une chambre (7) d'alimentation en gaz et d'un diffuseur de gaz (4) disposé entre la chambre d'alimentation en gaz et le réacteur unitaire le plus bas.

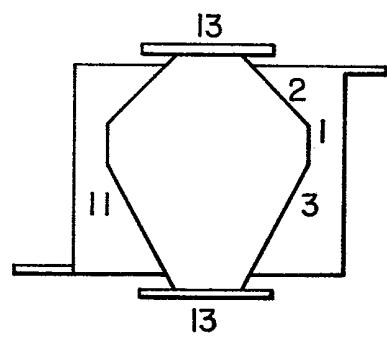
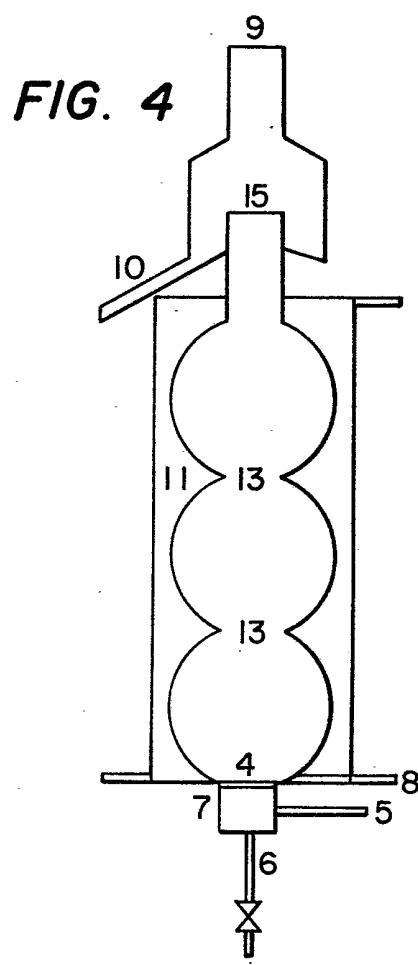
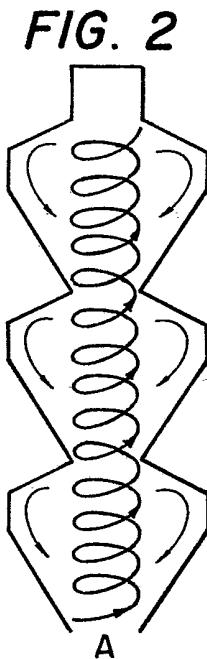
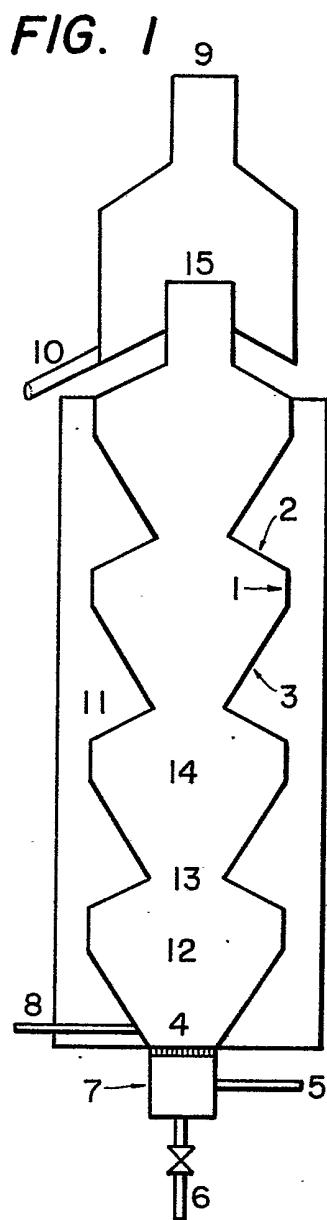


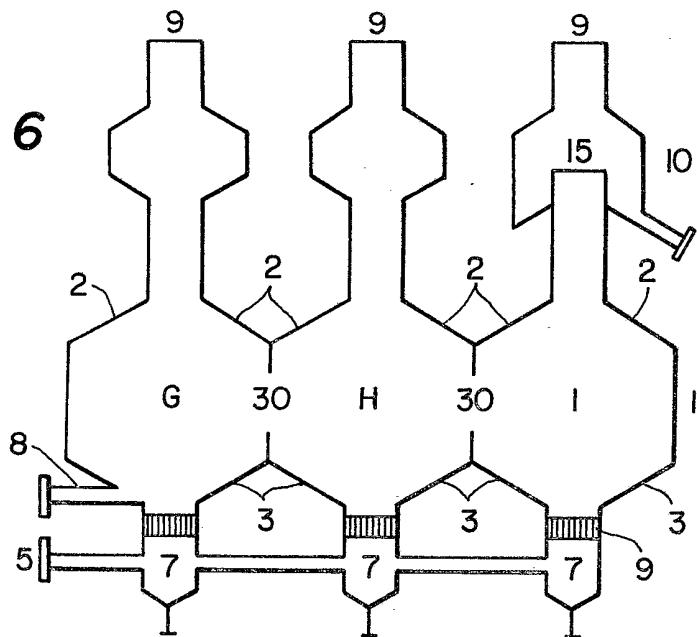
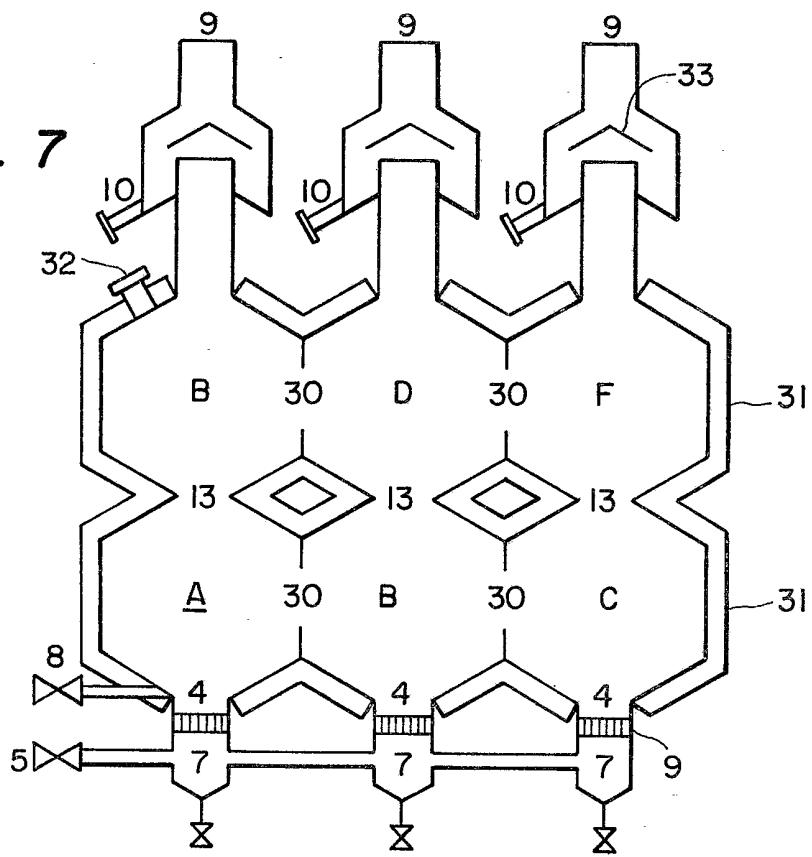
FIG. 6**FIG. 7**

FIG. 5

