

國立臺灣大學工學院化學工程研究所

碩士論文

Department of Chemical Engineering

College of Engineering

National Taiwan University

Master Thesis



不同含水量、厚度之細菌纖維素用以油水分離與其過
濾特性之研究

Oil/Water Separation by Bacterial Cellulose with
Different Water Holding Capacity and Thickness

吳東祐

Dong-You Wu

指導教授：劉懷勝 博士

Advisor: Hwai-Shen Liu, Ph.D.

中華民國 110 年 7 月

July, 2021



國立臺灣大學碩(博)士學位論文
口試委員會審定書

不同含水量、厚度之細菌纖維素用以油水分離與其過
濾特性之研究

Oil/Water Separation by Bacterial Cellulose with Different
Water Holding Capacity and Thickness

本論文係吳東祐君(學號 R08524062)在國立臺灣大學化學工程
學系、所完成之碩(博)士學位論文,於民國一百一十年七月二十日
承下列考試委員審查通過及口試及格,特此證明

口試委員:

(簽名)

(指導教授)

系主任、所長

(簽名)

(是否須簽章依各院系所規定)

致謝



首先要感謝我的指導老師-劉懷勝教授這兩年來的指導，在這兩年內我常常走錯路或是邏輯打死結，還好老師都有把我及時拉回來，才讓我可以順利的完成學業，還有老師上的單操三內容很精彩也很有趣，學到了很多東西。感謝口試委員們願意撥空指導我的碩士論文幫我找到了許多問題。

感謝我的女朋友-晏蓁，謝謝妳一直鼓勵我，雖然妳人遠在台南讀碩班，感謝妳對我的支持，幸福的日子少不了妳的陪伴，因為有妳，距離不再遙遠，未來不論快樂或悲傷，希望在以後的日子裡我們能互相扶持成長。#蓁祐誌

感謝實驗室的學姊和同學-微雅、千鈺、宗 c 跟翊淳，感謝你們讓我一直問問題，沒有你們我應該很難畢業，你們真的太厲害了!!!

感謝在台科的「北漂帥哥團」兩位成員-國樺跟育丞，如果帥的滿分是一百分，我們三個應該是一萬分，感謝你們在我做實驗不順或考試成績不好的時候，我們三位帥哥還能在台北互相取暖。感謝「雲科球隊最後希望」的各位-堂偉、阿翔、G6、蘇武、冠歷，我們都在學習，學習課業、學習人際、學習感情、學習各式各樣的事，但最終是學習走對的路。還有在台大系桌認識的子傑跟學弟們還有淡江桌球隊的人，一直以來我都覺得上了台大之後沒有什麼是容易的，除了胖，還好有你們可以陪我打桌球跟比賽，讓我在碩班的時候不會一直變胖，還可以拿一些獎盃。

感謝我的家人，提供了我衣食無缺的環境，讓我可以好好地讀完這兩年，感謝舅舅跟舅媽可以讓我在讀碩班的時候有地方住，還常常帶我去吃好吃的大餐。最後祝福我身邊的每一位人都可以平安健康，事業順利，發大財!

中文摘要



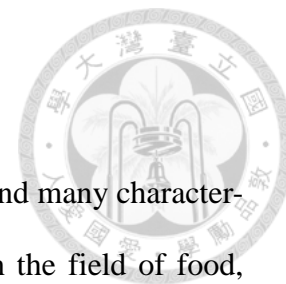
由於細菌纖維素其內部具有獨特的 3D 網狀結構和許多特色如:高親水性、可食用，因此常被應用於食品、生醫材料等應用。近年來亦有文獻指出 BC 可被作為油水過濾膜或膠囊外殼之潛力。

先前實驗室訂立了量測細菌纖維素之含水量準則(藍, 2017)，能夠精確的定量出含水量，隨後實驗室的另一研究(范, 2020)，分別以不同起始培養基 pH 值與不同的碳源培養出不同產量的細菌纖維素，並發現產量與含水量為一反向關係，可能顯示其結構緊密程度不同所致。故本研究利用不同含水量之細菌纖維素過濾油水乳液的方式來了解細菌纖維素與對油的阻抗性及結構差異並分析其過濾特性，結果發現不同含水量之細菌纖維素皆對油有良好的阻抗性，對油的排斥係數 (Rejection coefficient, R) 皆大於 99%

進一步分析顯示了薄膜之含水量(θ)、厚度(L)的改變對過濾比阻(Specific resistance, α)影響不明顯；而薄膜阻力(Resistance of membrane, R_m)對含水量呈現反向關係，但對厚度呈現正向關係，顯示了含水量越低的細菌纖維素其內部纖維結構較密，因此其薄膜阻力較高；而厚度的增加也會使得細菌纖維素對於流體的阻力增加。根據實驗結果將細菌纖維素的含水量、厚度與薄膜阻力(R_m)做連結，可整理出薄膜阻力和含水量與厚度的關係式： $R_m = 1.95 \times 10^{16} \times \theta^{-0.7} \times L$ ，往後可根據已知的細菌纖維素含水量及厚度來評估其薄膜阻力及預測不同操作條件下的過濾通量曲線。

關鍵字:細菌纖維素、含水量、油水過濾膜、軟膠囊、薄膜阻力

Abstract



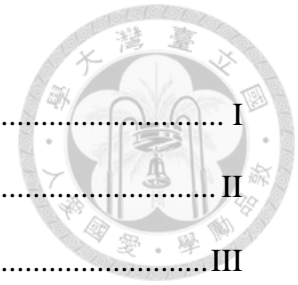
Bacterial cellulose (BC) has a unique 3D network structure and many characteristics such as high hydrophilicity and edibility. It is often used in the field of food, biomedical materials and many others. In recent years, there have been some studies pointing out that BC has the potential to be used as an oil-water filtration membrane and capsule shell.

To estimate water holding capacity (WHC) of BC accurately, a draining method previously was developed in our lab. The culture medium initial pH value is set at 4.0, 5.5, 7.0. Glucose, glycerol, ethanol, and a mixture of glucose and glycerol are added in medium as the carbon source. Further study found a reverse relation between yield and WHC of the BC by various cultivation conditions, perhaps due to structural compactness. This study aims to investigate if BC of different WHC could separate oil from water and characterize its performance. The experimental results indicated that the bacterial cellulose with different WHC could separate oil from water with >99% rejection coefficient (R).

Further analysis of experimental results showed that water holding capacity (θ) and thickness (L) of the BC did not affect the specific resistance (α). On the other hand, membrane resistance (R_m), because of the difference in internal structure, the expression of $R_m = 1.95 \times 10^{16} \times \theta^{-0.7} \times L$. Thus the membrane resistance of BC can be estimated accordingly.

Keywords: Bacterial cellulose, Water holding capacity, Oil-water filtration membrane, Capsule shell, Membrane resistance

目錄



致謝.....	I
中文摘要.....	II
Abstract.....	III
目錄.....	IV
圖目錄.....	VII
表目錄.....	XV
第一章 緒論.....	1
第二章 文獻回顧.....	2
2.1 細菌纖維素的介紹.....	2
2.1.1 細菌纖維素生產菌株.....	2
2.1.2 <i>Gluconacetobacter xylinus</i> 的特性.....	3
2.1.3 細菌纖維素的合成機制.....	5
2.2 細菌纖維素生成的因素及影響.....	8
2.2.1 培養基組成.....	8
2.2.2 培養環境.....	13
2.2.3 培養方式.....	18
2.3 細菌纖維素的特性.....	20
2.3.1 纖維結構.....	20
2.3.2 可食用性.....	21
2.3.3 高含水量及高親水性.....	22
2.3.4 高純度.....	23
2.3.5 機械性質優異.....	24
2.3.6 生物相容性.....	25



2.3.7 生物可分解性	27
2.4 細菌纖維素的應用	28
2.4.1 不同領域之應用	28
2.4.2 過濾膜	29
2.4.3 藥物傳遞	35
2.5 過濾	42
2.5.1 過濾速度方程式	42
2.5.2 不同的過濾膜	47
第三章 實驗與方法	53
3.1 實驗菌株	53
3.2 生產細菌纖維素之實驗步驟	54
3.2.1 製作固態培養基	54
3.2.2 預培養	55
3.2.3 主培養	56
3.2.4 產物處理	57
3.3 細菌纖維素含水量(Water Holding Capacity, WHC)之量測	59
3.4 定量大豆油乳液濃度	62
3.5 細菌纖維素薄膜之過濾實驗	65
3.6 實驗藥品	67
3.7 實驗儀器	68
第四章 實驗結果與討論	69
4.1 細菌纖維素培養條件及過濾條件	69
4.2 過濾壓力選擇	70
4.3 不同 WHC 的 BC 對過濾效果之影響	75

4.3.1 pH4~7+glu2 之含水量與其過濾效果.....	76
4.3.2 pH4~7+gly2 之含水量與其過濾效果.....	81
4.3.3 pH4~7+glu1+gly1 之含水量與其過濾效果.....	85
4.3.4 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之含水量與其過濾效果.....	89
4.3.5 pH4~7+eth2 之含水量與其過濾效果.....	93
4.4 不同培養條件對於細菌纖維素產量、WHC 之關係.....	97
4.5 BC 之 WHC 與 R_m 、 α 之關係.....	99
4.6 不同厚度、不同 WHC 之 BC 對於過濾效果之影響.....	101
4.6.1 pH4~7+glu2 之不同厚度其過濾效果.....	102
4.6.2 pH4~7+gly2 之不同厚度其過濾效果.....	109
4.6.3 pH4~7+glu+1+gly1 之不同厚度其過濾效果.....	115
4.6.4 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之不同厚度其過濾效果.....	122
4.6.5 pH4~7+eth2 之不同厚度其過濾效果.....	128
4.7 BC 之 WHC、厚度與 R_m 、 α 之關係.....	134
4.8 清洗細菌纖維素薄膜.....	141
4.9 不同過濾膜的比較.....	146
第五章 結論.....	151
第六章 附錄.....	153
參考文獻.....	156

圖目錄

Fig. 2.1-1 <i>Cel</i> ⁺ 和 <i>Cel</i> ⁻ 之型態上的差異。(粗箭頭： <i>Cel</i> ⁺ 、細箭頭： <i>Cel</i> ⁻) (Krystynowicz et al., 2002).....	4
Fig. 2.1-2 <i>Acetobacter xylinum</i> 於不同生長條件下之細菌纖維素產量 (Tantratian et al., 2005)	4
Fig. 2.1-3 在 <i>Acetobacter xylinum</i> 中合成纖維素的簡化途徑 (S.-P. Lin et al., 2013)	6
Fig. 2.1-4 其他碳源於 <i>Acetobacter xylinum</i> 中合成纖維素的途徑的模型(Lustri et al., 2015)	7
Fig. 2.2-1 不同培養基配方之細菌纖維素產量(Pacheco et al., 2017)	10
Fig. 2.2-2 兩者皆於 30°C 下培養七天並給予不同碳源之產量(a)靜置培養 (b)以 150rpm 搖晃培養(Singhsa et al., 2018).....	10
Fig. 2.2-3 不同濃度的廢啤酒酵母培養基生成的 BC 產量(D. Lin et al., 2014).....	11
Fig. 2.2-4 使用不同比例的 DEH 作為培養基之 BC 產量關係圖(He et al., 2020)	11
Fig. 2.2-5 不同菌株和不同碳源與 BC 乾重之關係(Tabaii et al., 2016)	12
Fig. 2.2-6 不同碳源的培養基隨培養天數之 pH 值變化(Zhong et al., 2013).....	12
Fig. 2.2-7 不同培養基之 pH 值對 BC 產量的影響 (Rangaswamy et al., 2015).....	14
Fig. 2.2-8 不同起始培養基之 pH 值，產量隨天數之變化情形	14
Fig. 2.2-9 不同溫度下之 BC 的產量(Rangaswamy et al., 2015).....	15
Fig. 2.2-10 不同培養溫度之 BC 產量(Zahan et al., 2015)	16
Fig. 2.2-11 培養容器面積與 BC 產量之關係(黃, 2010).....	16
Fig. 2.2-12 不同培養基高度經過四天培養後之乾重關係圖(詹, 2013)	17
Fig. 2.2-13 不同培養條件下所形成細菌纖維素之巨觀型態 (Singhsa et al., 2018)	18

Fig. 2.2-14 用 FE-SEM 拍攝不同培養條件下所形成之 BC (Singhsa et al., 2018)	19
Fig. 2.2-15 使用不同菌株比較靜置培養與搖晃培養之 BC 結晶度(Gao et al., 2020)	19
.....	19
Fig. 2.3-1 細菌纖維素 (BC) 的結構圖(Sulaeva et al., 2015)	20
Fig. 2.3-2 冰淇淋微觀結構示意圖	21
Fig. 2.3-3 將 BC 浸於海藻酸中並以 CaCl ₂ 交聯之實驗示意圖(Sulaeva et al., 2020)	22
.....	22
Fig. 2.3-4 抑菌圈實驗 (Sulaeva et al., 2020)	23
Fig. 2.3-5 (a)植物中的纖維素組成的尺寸大小(b)纖維素與強酸反應後形成奈米結晶纖維素之示意圖(c)細菌纖維素的內部結構示意圖(Miyashiro et al., 2020)	23
Fig. 2.3-6 不同 BC 含量的紙張之機械性質(SP=純紙漿、SP/BC5=添加 5%BC 於紙漿中、SP/BC10 添加 10%BC 於紙漿中、SP/BC15 添加 15%BC 於紙漿中)	24
Fig. 2.3-7 BC-PDAg 傷口敷料製備示意圖(Jiji et al., 2020)	25
Fig. 2.3-8 體外細胞活性實驗(Jiji et al., 2020)	26
Fig. 2.3-9 用於動物實驗上之傷口癒合圖(Jiji et al., 2020) (A)不同天數之傷口癒合程度圖 (B)傷口面積隨天數之變化曲線(C)傷口癒合程度隨天數變化圖	26
Fig. 2.3-10 利用細菌纖維素製成的生物可分解包裝袋(Niyazbekova et al., 2018)	27
Fig. 2.3-11 利用細菌纖維素製成的鞋子與衣服(Niyazbekova et al., 2018)	27
Fig. 2.4-1 BC 應用於傷口敷料示意圖(Czaja et al., 2007)	28
Fig. 2.4-2 使用不同濃度鹼液清洗之 BC 之 FE-SEM 圖 (a)原始 (b)0.75M(c)1.25M(d)2.5M(Zhuang et al., 2020)	30
Fig. 2.4-3 使用不同濃度鹼液清洗之 BC 之油水過濾通量(於過濾的第 3 小時)(Zhuang et al., 2020)	30

Fig. 2.4-4 以 2.5M 鹼洗之薄膜在不同過濾壓力下之第 3 小時油水通量及去除效果 (Zhuang et al., 2020).....	31
Fig. 2.4-5 以 0.75M 鹼洗之薄膜分離油水乳液之過濾通量圖與清洗後之通量圖 (Zhuang et al., 2020).....	31
Fig. 2.4-6 第 2 天收成之 BC 之油水過濾通量圖(Hassan et al., 2017).....	33
Fig. 2.4-7 於不同壓力下，乾燥前後的 BC 之純水通量(Lehtonen et al., 2021).....	34
Fig. 2.4-8 不同型態與顏色之軟膠囊示意圖(Damian et al., 2021).....	36
Fig. 2.4-9 (a)以 BC 為材質製成之空膠囊殼(b)填充完藥物之 BC 膠囊示意圖(Ullah et al., 2017)	38
Fig. 2.4-10 以不同製備方法之 BC 膠囊的體外藥物釋放曲線(a)不含賦形劑的膠囊殼(b)具有賦形劑的膠囊殼(Ullah et al., 2017).....	39
Fig. 2.4-11 膠囊包覆藥物進入體內之示意圖	40
Fig. 2.5-1 V 對 t/v 之關係圖	46
Fig. 2.5-2 使用光學顯微鏡觀察過濾前後溶液中的油滴(Deng et al., 2019).....	48
Fig. 2.5-3 添加了 0.2 wt.%的官能化之 GO 所改質的薄膜其過濾 BSA 之過濾通量與過濾通量恢復圖(Abdalla et al., 2020)	49
Fig. 2.5-4 PTFE 薄膜進行改質之示意圖(Xue et al., 2017)	50
Fig. 2.5-5 改質之 PTFE 薄膜隨過濾壓力增加時其截油率之變化(Xue et al., 2017)	50
Fig. 3.1-1 實驗菌株於固態培養基上之示意圖	53
Fig. 3.3-1 瀝乾法之實驗裝置圖	60
Fig. 3.3-2 鐵絲網示意圖	60
Fig. 3.3-3 細菌纖維素擺放於鐵絲網上之示意圖	60
Fig. 3.3-4 電子天平紀錄濕重之變化圖	61

Fig. 3.4-1(a)超音波震盪大豆油乳液 (b)均質完的大豆油乳液(濃度 100mg/L)	62
Fig. 3.4-2 大豆油乳液之檢量線.....	63
Fig. 3.4-3 靜置時間對於大豆油 OD 值之影響.....	64
Fig. 3.4-4 0.1g/L 大豆油乳液粒徑隨時間變化之分析圖.....	64
Fig. 3.5-1 左:實際過濾裝置圖；右:過濾裝置示意圖.....	66
Fig. 3.5-2 細菌纖維素放置於過濾支撐座上.....	66
Fig. 4.2-1 BC 在不同壓力差下，純水之過濾通量圖.....	70
Fig. 4.2-2 於不同操作壓力下，BC-g-cMWCNTs 薄膜之過濾通量圖(Zhijiang et al., 2018).....	71
Fig. 4.2-3 不同壓力差下，油水乳液之過濾通量圖.....	72
Fig. 4.2-4 流體於過濾時經過濾餅層及濾膜之示意圖.....	72
Fig. 4.2-5 不同壓力差下，過濾油水乳液之 V 與 t/V 變化圖.....	73
Fig. 4.2-6 不同壓力差下 α 值之變化圖.....	74
Fig. 4.3-1 pH4~7+glu2 之 WHC 與產量關係圖.....	76
Fig. 4.3-2 pH4~7+glu2 之純水過濾通量圖.....	77
Fig. 4.3-3 pH4~7+glu2 之油水乳液過濾通量圖.....	78
Fig. 4.3-4 pH4~7+glu2 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	78
Fig. 4.3-5 pH4~7+glu2 之 WHC 與 R_m 關係圖.....	79
Fig. 4.3-6 pH4~7+glu2 之 WHC 與 α 關係圖.....	79
Fig. 4.3-7 以 1bar 過濾以 0.75M 鹼處理之 BC 之過濾通量圖(Zhuang et al., 2020).....	80
Fig. 4.3-8 pH4~7+gly2 之 WHC 與產量關係圖.....	81
Fig. 4.3-9 pH4~7+gly2 之純水過濾通量圖.....	82
Fig. 4.3-10 pH4~7+gly2 之油水乳液過濾通量圖.....	83

Fig. 4.3-11 pH4~7+gly2 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	83
Fig. 4.3-12 pH4~7+gly2 之 WHC 與 R_m 關係圖.....	84
Fig. 4.3-13 pH4~7+gly2 之 WHC 與 α 關係圖.....	84
Fig. 4.3-14 pH4~7+glu1+gly1 之 WHC 與產量關係圖.....	85
Fig. 4.3-15 pH4~7+glu1+gly1 之純水過濾通量圖.....	86
Fig. 4.3-16 pH4~7+glu1+gly1 之油水乳液過濾通量圖.....	87
Fig. 4.3-17 pH4~7+glu1+gly1 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	87
Fig. 4.3-18 pH4~7+glu1+gly1 之 WHC 與 R_m 關係圖.....	88
Fig. 4.3-19 pH4~7+glu1+gly1 之 WHC 與 α 關係圖.....	88
Fig. 4.3-20 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之 WHC 與產量關係圖.....	89
Fig. 4.3-21 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之純水過濾通量圖.....	90
Fig. 4.3-22 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之油水乳液過濾通量圖.....	91
Fig. 4.3-23 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	91
Fig. 4.3-24 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之 WHC 與 R_m 關係圖.....	92
Fig. 4.3-25 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之 WHC 與 α 關係圖.....	92
Fig. 4.3-26 pH4~7+eth2 之 WHC 與產量關係圖.....	93
Fig. 4.3-27 pH4~7+eth2 之純水過濾通量圖.....	94
Fig. 4.3-28 pH4~7+eth2 之油水乳液過濾通量圖.....	95
Fig. 4.3-29 pH4~7+eth2 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	95
Fig. 4.3-30 pH4~7+eth2 之 WHC 與 R_m 關係圖.....	96
Fig. 4.3-31 pH4~7+eth2 之 WHC 與 α 關係圖.....	96
Fig. 4.4-1 不同培養條件下之 BC 產量與含水量之關係圖.....	98
Fig. 4.4-2 不同培養條件下 BC 產量與含水量之關係圖(范, 2020).....	98
Fig. 4.5-1 BC 之 WHC 與 R_m 關係圖.....	99

Fig. 4.5-2 BC 之 WHC 與 α 關係圖	100
Fig. 4.6-1 pH4~7+glu2(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖	102
Fig. 4.6-2 pH4~7+glu2 (a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖 ...	103
Fig. 4.6-3 pH4~7+glu2(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖	104
Fig. 4.6-4 pH4~7+glu2(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	105
Fig. 4.6-5 pH4~7+glu2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之之 WHC 與 R_m 關係圖.....	106
Fig. 4.6-6 pH4~7+glu2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖.....	107
Fig. 4.6-7 pH4~7+gly2(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖	109
Fig. 4.6-8 pH4~7+gly2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖 ...	110
Fig. 4.6-9 pH4~7+gly2(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖	111
Fig. 4.6-10 pH4~7+gly2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	112
Fig. 4.6-11 pH4~7+gly2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之之 WHC 與 R_m 關係圖.....	113
Fig. 4.6-12 pH4~7+gly2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖.....	114
Fig. 4.6-13 pH4~7+glu1+gly1(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖	116
Fig. 4.6-14 pH4~7+glu1+gly1(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖	117
Fig. 4.6-15 pH4~7+glu1+gly1(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖	118

Fig. 4.6-16 pH4~7+glu1+gly1(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖	119
Fig. 4.6-17 pH4~7+glu1+gly1(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 R _m 關係圖.....	120
Fig. 4.6-18 pH4~7+glu1+gly1 (a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖	121
Fig. 4.6-19 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖	122
Fig. 4.6-20 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖.....	123
Fig. 4.6-21 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	124
Fig. 4.6-22 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖	125
Fig. 4.6-23 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之之 WHC 與 R _m 關係圖	126
Fig. 4.6-24 pH4~7+glu0.5+gly1.5 (a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖	127
Fig. 4.6-25 pH4~7+eth2(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖.....	128
Fig. 4.6-26 pH4~7+eth2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖..	129
Fig. 4.6-27 pH4~7+eth2(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	130
Fig. 4.6-28 pH4~7+eth2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	131
Fig. 4.6-29 pH4~7+eth2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之之 WHC 與 R _m 關係圖.....	132

Fig. 4.6-30 pH4~7+eth2(a)2片(b)3片(c)1.5倍厚度(d)2倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖.....	133
Fig. 4.7-1 (a)不同片數(b)不同厚度時，WHC 與 R_m 之關係圖.....	135
Fig. 4.7-2 (a)不同片數(b)不同厚度時，WHC 與 α 之關係圖	136
Fig. 4.7-3 不同 WHC 於單層薄膜時之薄膜阻力預測圖.....	140
Fig. 4.7-4 預測 WHC=50、100、200g H ₂ O/g dry BC 之細菌纖維素的油水乳液過濾通量圖；線段為預測通量曲線，實點為實驗數據點。.....	140
Fig. 4.8-1 不同 WHC 之 BC 薄膜之油水乳液過濾通量圖與恢復通量曲線	141
Fig. 4.8-2 (a)WHC=200 (b)WHC=110 之清洗前後過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖	144
Fig. 4.8-3 (續) (c)WHC=100 (d)WHC=70 之清洗前後過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	145
Fig. 4.9-1 Nylon 薄膜與 BC 薄膜之油水乳液過濾通量圖.....	146
Fig. 4.9-2 Nylon 薄膜與 BC 薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖.....	147
Fig. 4.9-3 濕薄膜吸收油後，水滴於膜表面之聚集情形(a)Nylon 薄膜 (b)Nylon 薄膜側面圖(c)BC 薄膜俯視圖(d)BC 薄膜側面圖	149
Fig. 4.9-4 乾燥後的 BC，油滴於膜表面之情形(a)俯視圖(b)側面圖	150

表目錄



Table. 2.1-1 能合成纖維素之微生物 (Jonas et al., 1998).....	2
Table. 2.4-1 細菌纖維素之應用	28
Table. 2.4-2 不同培養天數之 BC 濕重、乾重、含水量、厚度(Hassan et al., 2017)	32
Table. 2.4-3 CNF 薄膜與不同培養天數之 BC 之純水通量(Hassan et al., 2017)	33
Table. 2.4-4 以軟明膠膠囊包裝出售的藥物(Damian et al., 2021)	36
Table. 2.4-5 不同製備方法的 BC 膠囊殼詳細資料(Ullah et al., 2017).....	38
Table. 2.5-1 不同薄膜程序之分類(Harker et al., 2013).....	47
Table. 2.5-2 不同薄膜種類之 R_m	51
Table. 3.2-1 固態培養基之成分	58
Table. 3.2-2 預培養基之成分	58
Table. 3.2-3 主培養基之成分	58
Table. 3.3-1 瀝乾法之準則	61
Table. 3.6-1 實驗藥品等級與廠牌	67
Table. 3.7-1 實驗儀器型號與廠牌	68
Table. 4.1-1 細菌纖維素培養條件及過濾條件	69
Table. 4.2-1 不同壓力差之薄膜阻力與濾餅阻力	73
Table. 4.2-2 $\log \alpha$ 與 $\log \Delta P $ 之關係.....	74
Table. 4.3-1 細菌纖維素培養條件及過濾條件	75
Table. 4.6-1 不同厚度細菌纖維素培養條件及過濾條件	101
Table. 4.6-2 不同培養天數之 BC 濕重、乾重、含水量、厚度(Hassan et al., 2017)	108

Table. 4.6-3 Crosslinked cellulose nanofibers, CNF(植物來源)與不同培養天數之 BC 之純水通量(Hassan et al., 2017).....	108
Table. 4.7-1 不同培養條件下的 BC 其 WHC 與片數和 R_m 之關係.....	137
Table. 4.7-2 不同培養條件下的 BC 其 WHC 與厚度、 R_m 之關係.....	138
Table. 4.8-1 不同 WHC 之 BC 其薄膜阻力隨清洗次數之變化.....	143
Table. 4.9-1 Nylon 薄膜與 BC 之薄膜比較.....	147

第一章 緒論



纖維素是在自然界中存在的有機物，是由幾百至幾千個葡萄糖在 β -1,4 位置連接成的多醣，而其中由微生物所合成的纖維素，被稱為細菌纖維素 (Bacterial cellulose, BC)，最早是由科學家 A.J. Brown (Brown, 1886) 發現特殊的菌株可以藉由代謝養分來獲得細菌纖維素，其中以 *Acetobacter xylinum* 最具代表性。

由於細菌纖維素具有許多特性，如親水性、生物可分解、生物相容性、可食用等，近幾年來常被應用於生醫材料如傷口敷料、人工皮或血液透析膜，工業上也有做為廢水過濾膜。作為過濾材料，則要具有良好的過濾速度、對過濾物具有選擇性、優異的機械性質甚至可以重複清洗使用，若要應用於人體的血液透析膜，更需要的是生物相容性，細菌纖維素薄膜也擁有此特性。而若是作為藥物釋放的載體，或是包覆藥物的薄膜如-膠囊外殼，這類材料則也需要具有生物相容性及可食用的特性，此外，若是膠囊需要包覆油性藥物或添加油來當作輔料，則需要具有阻隔油滲出的能力，甚至在人體中需具有不同的釋放速度。

由於先前實驗室(范, 2020)的論文，以靜置培養的方式給予菌株不同的碳源及生長環境，合成出多種產量及含水量的細菌纖維素薄膜。因此本研究沿用其合成配方，將不同的薄膜進行油水過濾，以此來證明細菌纖維素對油具有良好的阻隔效果，並求出細菌纖維素之不同含水量、不同厚度與過濾速度之關聯亦及對水之通透能力，加上細菌纖維素本身的特性，來評估細菌纖維素是否具有應用於控制藥物釋放的載體或膠囊外殼之潛力。



2.1 細菌纖維素的介紹

2.1.1 細菌纖維素生產菌株

目前已知能夠生產細菌纖維素的細菌有很多，如 Table. 2.1-1 所示，例如：*Acetobacter*, *Achromobacter*, *Aerobacter*, *Rhizobium*, *Sarcina* 等，不同的菌屬所生產出的纖維結構也不全然相同(Jonas et al., 1998)。多數是革蘭氏陰性的好氧菌而但也有的革蘭氏陽性菌如:*Sarcina* 也具有合成細菌纖維素的能力。

(Brown, 1886) 英國科學家 Brown 最先以科學分析的方式分析了 *Gluconacetobacter xylinus*，因為其生產出的纖維素產量比其他菌種優異而常被應用，後來被稱為 *Acetobacter xylinum*。此外，在 2012 年有學者(Yamada et al., 2012) 將其歸類於新的屬，因此也稱為 *Komagataeibacter xylinus*。

Table. 2.1-1 能合成纖維素之微生物 (Jonas et al., 1998)

Organisms (genus)	Cellulose structure	Biological role
<i>Acetobacter</i>	Extracellular pellicle Cellulose ribbons	Keep in the aerobic environment
<i>Achromobacter</i>	Fibrils	Keep in the aerobic environment
<i>Aerobacter</i>	Fibrils	Keep in the aerobic environment
<i>Agrobacterium</i>	Short fibrils	Attach to plant tissues
<i>Alcaligenes</i>	Fibrils	Flocculation in wastewater
<i>Pseudomonas</i>	No distinct fibrils	Flocculation in wastewater
<i>Rhizobium</i>	Short fibrils	Attach to most plants
<i>Sarcina</i>	Amorphous cellulose	Unknown
<i>Zoogloea</i>	Not well defined	Flocculation in wastewater

2.1.2 *Gluconacetobacter xylinus* 的特性

Gluconacetobacter xylinus 亦可稱為 *Acetobacter xylinum* 是一革蘭氏陰性絕對好氧菌，在生長時會於胞外產生白色的分泌物，被稱為細菌纖維素。菌的外觀為桿狀或橢圓形，長度 1.0~3.0 μm 、寬度 0.6~0.7 μm ，以單一個體、成對或鏈狀方式存在，不具鞭毛。菌落於固態培養基上呈現米白或淡黃色不透明圓形突起。(Krystynowicz et al., 2002)此菌種有兩種不同的形態，*Cel*⁺是會生產纖維素的，而自發性突變的 *Cel*⁻則不會生產纖維素，如 Fig. 2.1-1。

由於 *Acetobacter xylinum* 為一嗜酸菌因此喜歡在酸性的條件下生長，(Tantratian et al., 2005)透過以搖晃培養的方式，並調整培養基中的溶氧量與 pH 值，最後整理出適合 *Acetobacter xylinum* 的生長條件為 pH4.9、轉速 100rpm，如 Fig. 2.1-2。

雖然 *Acetobacter xylinum* 為一好氧菌，但也有研究指出 *Acetobacter xylinum* 也可於微氧的環境下合成出細菌纖維素，然而於無氧環境下則無法生長，並且指出細菌纖維素提供了微生物一保護層，實驗將有包覆細菌的細菌纖維素與未被細菌纖維素包覆的細菌，分別照射紫光光 1 小時，被保護的細菌仍有原本 22.8% 的活性，直接暴露於紫外光下的細菌活性只剩 3.15% (Williams et al., 1989)。

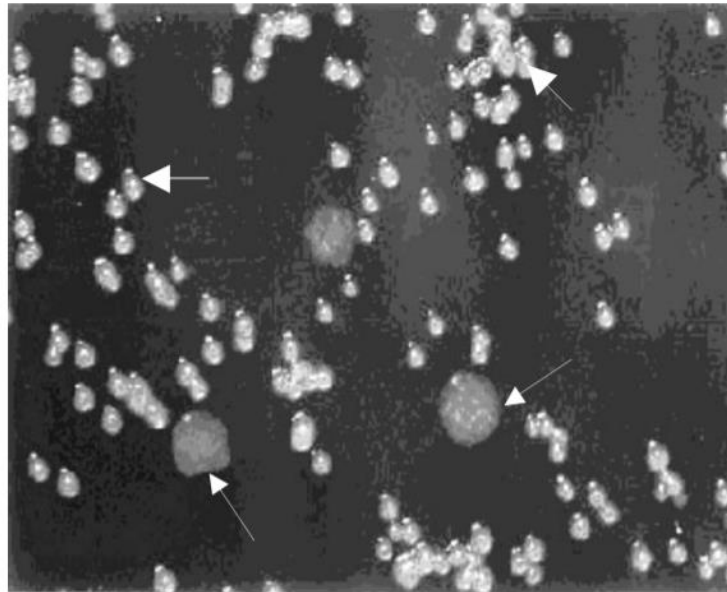


Fig. 2.1-1 Cel^+ 和 Cel^- 之型態上的差異。(粗箭頭： Cel^+ 、細箭頭： Cel^-)
(Krystynowicz et al., 2002)

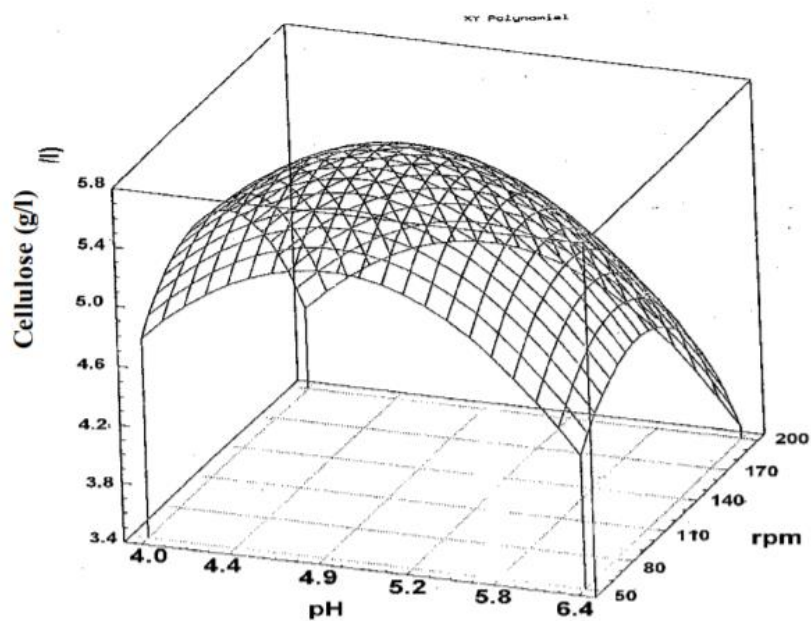


Fig. 2.1-2 *Acetobacter xylinum* 於不同生長條件下之細菌纖維素產量 (Tantratian et al., 2005)

2.1.3 細菌纖維素的合成機制

細菌纖維素的合成機制是一個非常複雜的過程，透過碳循環代謝後的產物及為細菌纖維素，分別為五碳糖循環 (Pentose cycle)、檸檬酸循環 (Krebs cycle/ TCA cycle/ Citric acid cycle)，以及糖質新生 (Gluconeogenesis)(Vandamme et al., 1998)。

(S.-P. Lin et al., 2013)整理並簡化了葡萄糖經過不同酶催化而合成出纖維素的路徑，簡化步驟如下，流程如圖 Fig. 2.1-3

- (1) 葡萄糖 (Glucose) 經由葡萄糖激酶 (Glucokinase) 作用形成葡萄糖-6-磷酸 (Glucose-6-Phosphate)。
- (2) 或由果糖 (Fructose) 經由果糖激酶 (Fructokinase) 作用形成果糖-6-磷酸 (Fructose-6-Phosphate) 再由磷酸葡萄糖異構酶 (Phosphoglucosomerase) 一樣形成葡萄糖-6-磷酸 (Glucose-6-Phosphate)。
- (3) 而葡萄糖-6-磷酸 (Glucose-6-Phosphate) 透過磷酸葡萄糖變位酶 (Phosphoglucomutase) 變為葡萄糖-1-磷酸 (Glucose-1-Phosphate)。
- (4) 葡萄糖-1-磷酸 (Glucose-1-Phosphate) 經 UDP-葡萄糖焦磷酸化酶 (UDPG-pyrophosphorylase) 轉為 UDP-葡萄糖 (UDP-glucose)。
- (5) 最後由纖維素合成酶 (Cellulose synthase) 催化形成纖維素 (Cellulose)。

(Lustri et al., 2015) 不同的碳源則需要經由不同的途徑來形成纖維素的前驅物 UDP-葡萄糖 (UDP-glucose) 並整理了 *Acetobacter xylinum* 中不同碳源的代謝途徑合成出纖維素之路徑整理成如 Fig. 2.1-4。

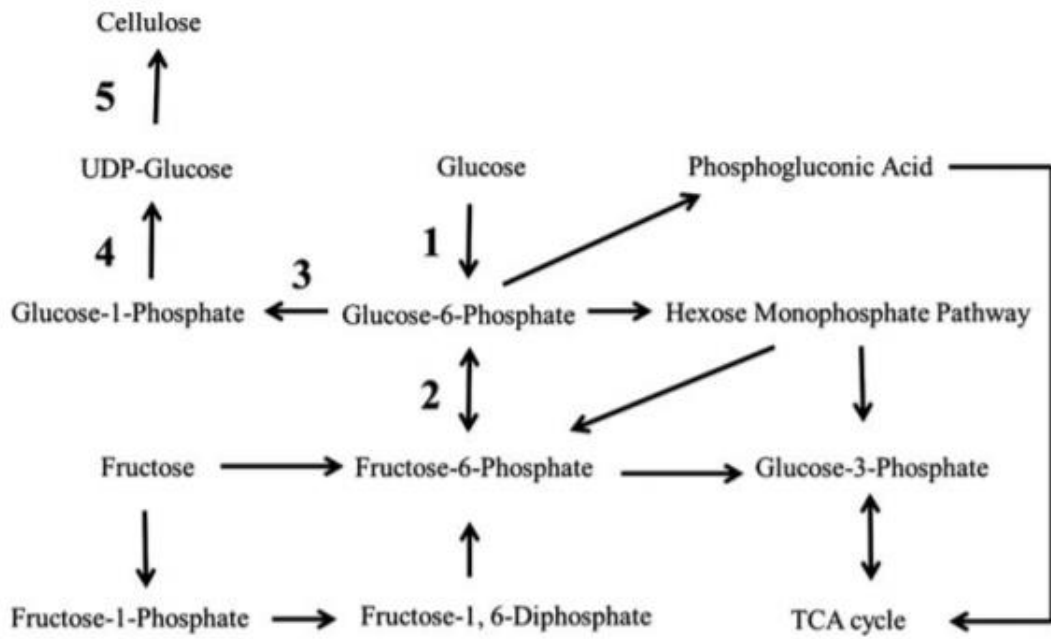


Fig. 2.1-3 在 *Acetobacter xylinum* 中合成纖維素的簡化途徑 (S.-P. Lin et al., 2013)

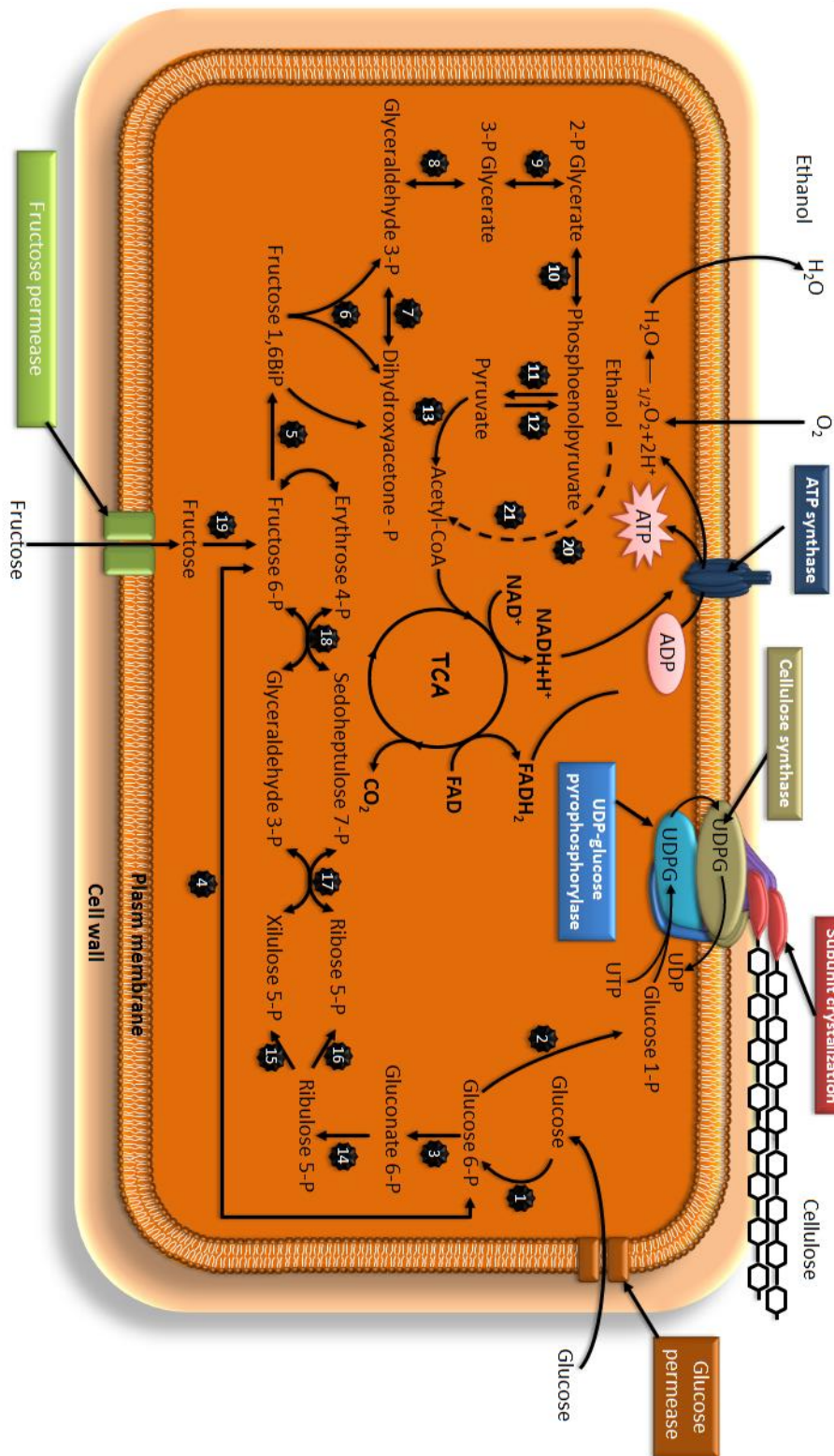


Fig. 2.1-4 其他碳源於 *Acetobacter xylinum* 中合成纖維素的途徑的模型 (Lustri et al., 2015)

2.2 細菌纖維素生成的因素及影響



由於細菌纖維素的生成因子很多，在此分三個部分介紹:培養基成分、培養環境、培養方式，並介紹這些因素帶來的影響。

2.2.1 培養基組成

培養基中的成分除了可以供給微生物生長及繁殖的養分之外，也可被微生物利用而產生新物質。培養基的成分可分為氮源、碳源、無機鹽及微量元素，利用微生物來生產細菌纖維素時，最常被使用的是 Hestrin-Schramm medium (HS 培養基) (Hestrin et al., 1954)，但是由於價格較為昂貴，因此在改良培養基的方面也是人們的研究要點，因此下面則介紹不同的培養基。

(Pacheco et al., 2017)等人將 HS 培養基中一半的葡萄糖比例改換為腰果樹的滲出液(Cashew tree xuda , CTE)或其純化後的果膠(Cashew gum, CG)，以 *Komagataeibacter rhaeticus* 靜置培養七天，最終產量如 Fig. 2.2-1，雖然產量並沒有大幅提升，但由於替代了一半的葡萄糖，使得生產成本下降了約 33%。

(Singhsa et al., 2018)利用木質醋酸菌在靜置和攪拌培養的條件下，用六種不同碳源-葡萄糖、果糖、乳糖、麥芽糖醇、三氯蔗糖和木糖醇，生產的細菌纖維素並探討最後纖維素的產量如 Fig. 2.2-2 所示，在靜置的培養條件下都是葡萄糖的產量最多，其他的碳源則無法有效地被用以替代葡萄糖。

(D. Lin et al., 2014)在 30°C 下，初始培養基 pH=5，靜置培養 14 天，如 Fig. 2.2-3 所示使用不同濃度的廢棄啤酒酵母作為菌株的生長培養基，結果最高產量為 7.02g/L，由於成本低於 HS 培養基，而且可以減少資源浪費和環境污染，因此

表明廢啤酒酵母具有很大的生產 BC 的潛力。另外也指出越高濃度的糖，會抑制纖維素的產量，說明給予的營養並不是越多越好。

(He et al., 2020)發現生產白酒的酒糟中包含一定量的未充分利用的纖維素，澱粉，蛋白質和脂肪以及發酵過程中產生的其他營養物質，因此利用將副產物-酒糟穀物水解產物(Distiller's grain enzymatic hydrolysate, DEH)用其取代或部分替代 HS 培養基作為生產 BC 的營養來源，並於 28°C 靜置培養 7 天，如 Fig. 2.2-4，當 DEH 培養基完全取代 HS 培養基時，BC 產量顯著提高至 4.84 g/L，比 HS 培養基高約 2.4 倍，推測為培養基中有較多的有機酸和其他有益營養素被用作碳源以支持細菌的生長，從而促進了更多 BC 的被合成出來。

(Tabaii et al., 2016) 研究了在 28°C 靜置培養 20 天下，將 HS 培養基中的葡萄糖替換為不同碳源，使用 *Acetobacter xylinum* 和兩個從醋中新分離的菌株(A₂ 和 S)討論其對細菌纖維素產量的影響。實驗結果如 Fig. 2.2-5，在碳源為為甘油時所有菌株生產的 BC 乾重都是最高的。(Zhong et al., 2013)指出使用葡萄糖作為碳源時，雖然很容易通過細胞膜轉運並結合到纖維素的生物合成途徑中，但是大部分葡萄糖會轉化為副產物葡萄糖酸，導致培養基的 pH 值隨培養天數增加而下降，並最終導致較低的 BC 產量，而甘油作為碳源時，由於在微生物的代謝路徑與葡萄糖不同，使得培養基的 pH 值幾乎不變，如 Fig. 2.2-6，才導致了此結果。

依照(Azuma et al., 2009)所整理的甘油代謝途徑，由於轉化成纖維素的前驅物尿苷二磷酸葡萄糖(Uridine diphosphoglucose, UDP-glucose)可以從二羥丙酮磷酸 (Dihydroxyacetone phosphate, DHAP)轉變而來，而甘油形成 DHAP 有兩種路徑，首先是透過甘油脫氫酶 (Glycerol dehydrogenase)將甘油催化形成二羥丙酮 (dihydroxyacetone, DHA)，再磷酸化為 DHAP；另一路徑是透過甘油激酶 (glycerol

kinase)將甘油磷酸化 (phosphorylation)成甘油-3-磷酸 (glycerol-3-phosphate)，再由甘油-3-磷酸脫氫酶 (glycerol-3-phosphate dehydrogenase)催化形成 DHAP。最後 DHAP 轉化為甘油醛-3-磷酸 (glyceraldehyde 3-phosphate)，進入糖解 (glycolysis) 路徑，從而獲得前驅物 UDP-glucose。

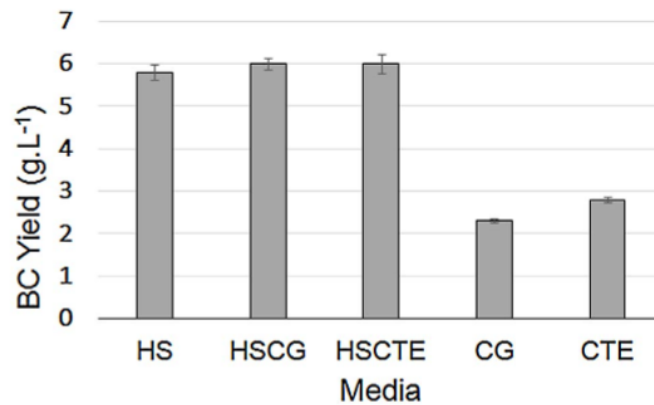


Fig. 2.2-1 不同培養基配方之細菌纖維素產量(Pacheco et al., 2017)

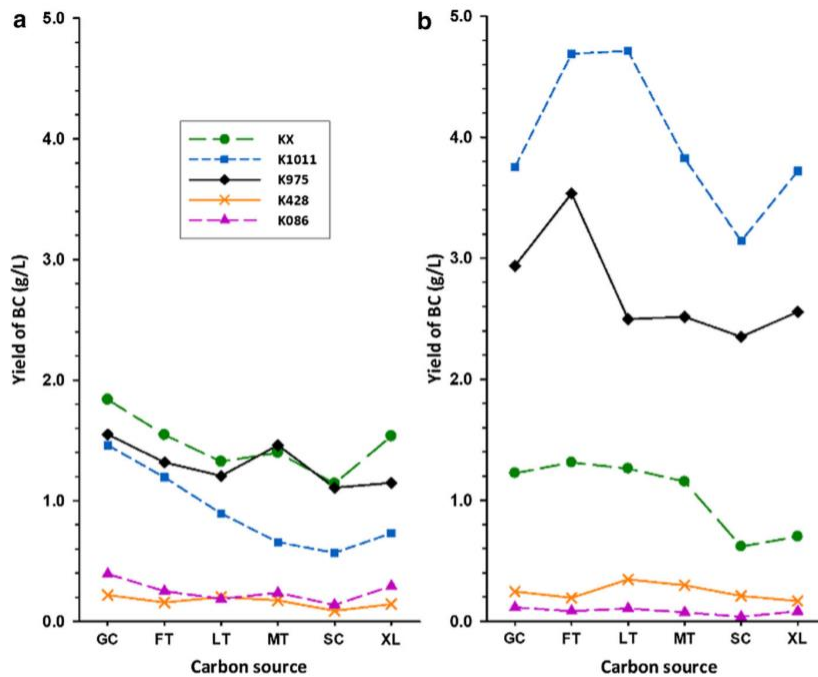


Fig. 2.2-2 兩者皆於 30°C 下培養七天並給予不同碳源之產量(a)靜置培養 (b)以 150rpm 搖晃培養(Singhsa et al., 2018)

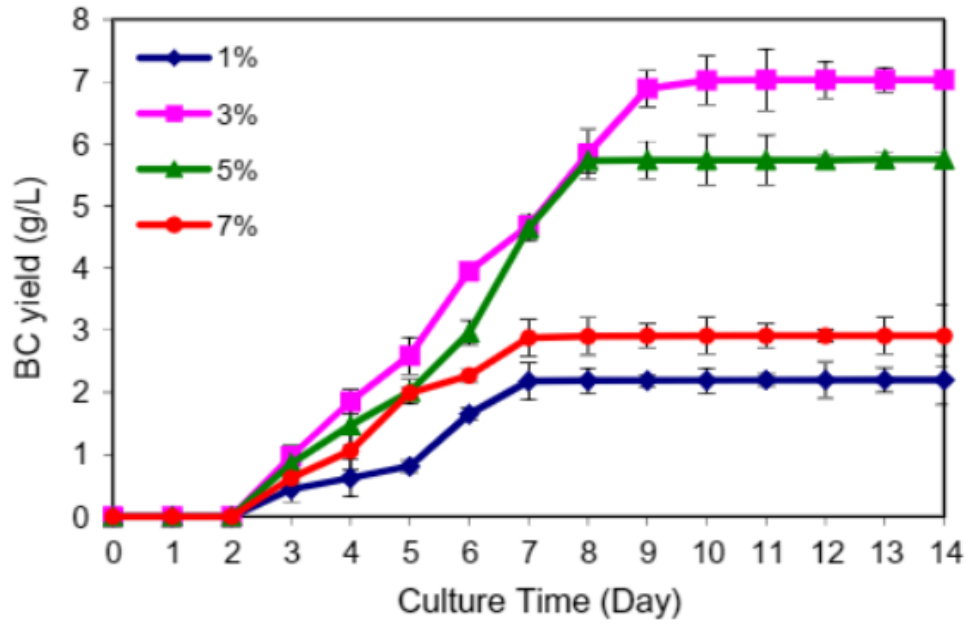


Fig. 2.2-3 不同濃度的廢啤酒酵母培養基生成的 BC 產量(D. Lin et al., 2014)

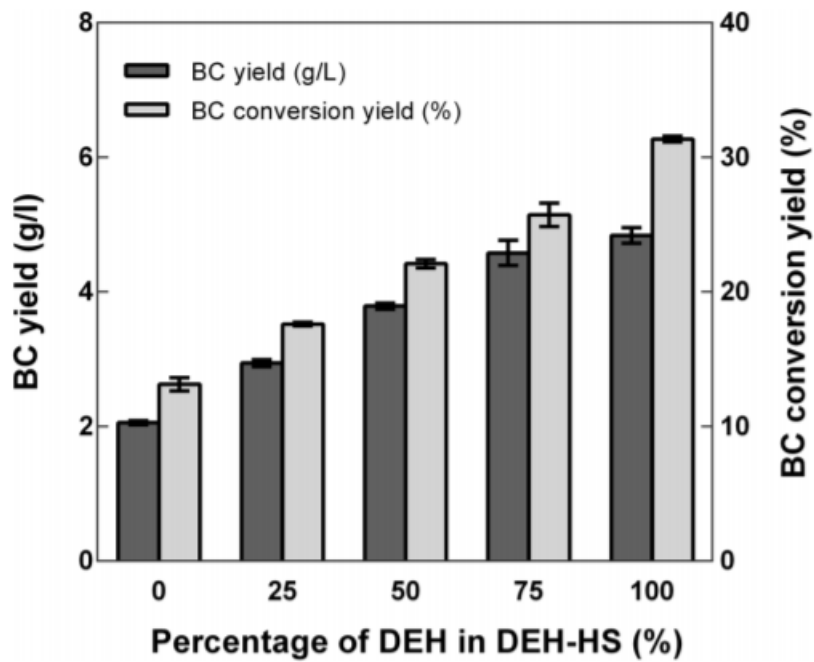


Fig. 2.2-4 使用不同比例的 DEH 作為培養基之 BC 產量關係圖(He et al., 2020)

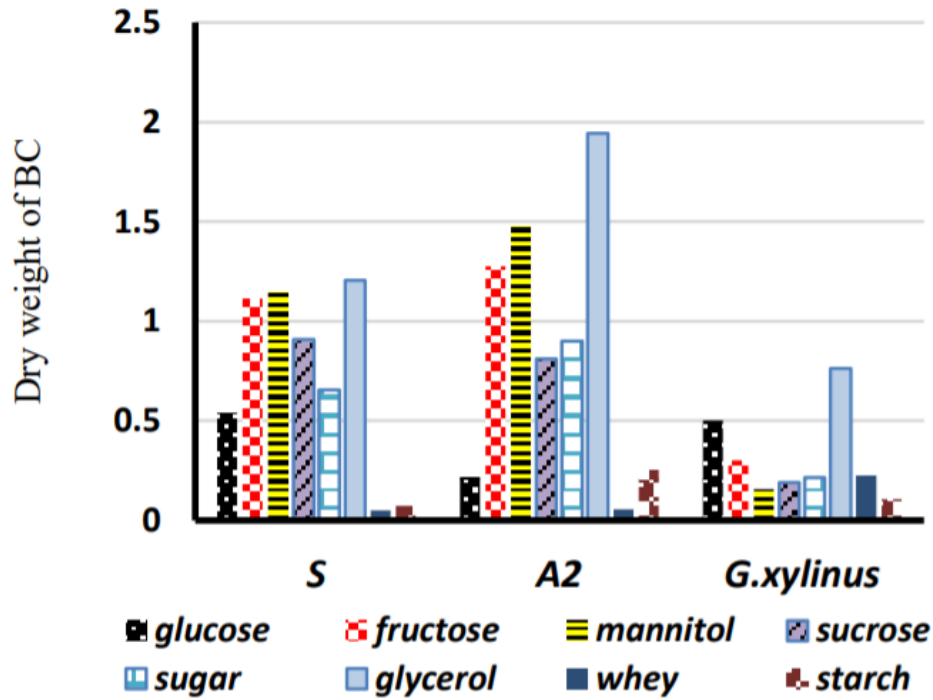


Fig. 2.2-5 不同菌株和不同碳源與 BC 乾重之關係(Tabaii et al., 2016)

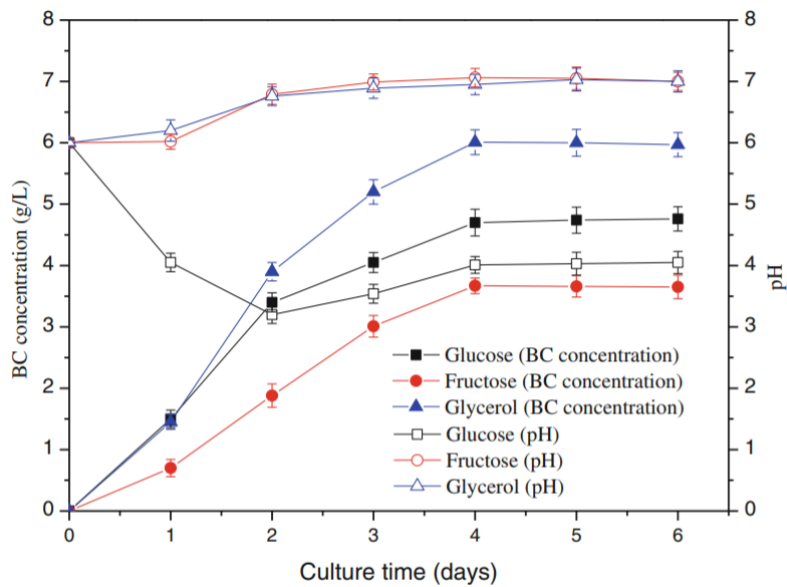


Fig. 2.2-6 不同碳源的培養基隨培養天數之 pH 值變化(Zhong et al., 2013)

2.2.2 培養環境

除了培養基的組成會影響微生物的生長與代謝行為，還有微生物所生長的環境也是影響纖維素生成的原因之一，以下分培養基之起始 pH 值、培養溫度、培養時氣液接觸之表面積與培養液體積與來討論。



1. 培養基之起始 pH 值

(Rangaswamy et al., 2015) 由腐爛的蔬果中分離出不同菌株並指出 HS 培養基的起始 pH 值會影響纖維素產量，是因為 pH 值會影響細胞生長。因此將培養基控制在 pH=2~10 之間，並發現 pH=6 時具有最大的纖維素產量，如 Fig. 2.2-7。

(謝, 2010)於 26°C 下，以 100rpm 搖晃培養並將 HS 培養基的初始 pH 值訂在 4.5~7.5 之間，觀察培養基 pH 值對最終細菌纖維素的產量，最後發現在培養了 7 天之後，初始 pH 值=7.5 時，將不會有任何纖維素產生，而當初始 pH 值=4.5~7.0 之間，會有初始 pH 值愈高纖維素的產量也愈高的趨勢，培養基的初始 pH=6.0~7.0 之間時具有最高的纖維素產量(3.5g/L)，如 Fig. 2.2-8

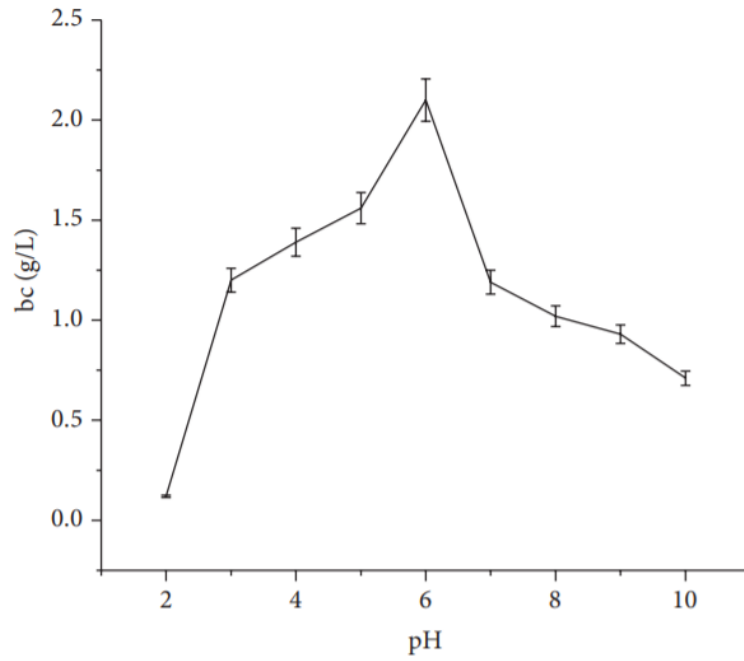


Fig. 2.2-7 不同培養基之 pH 值對 BC 產量的影響 (Rangaswamy et al., 2015)

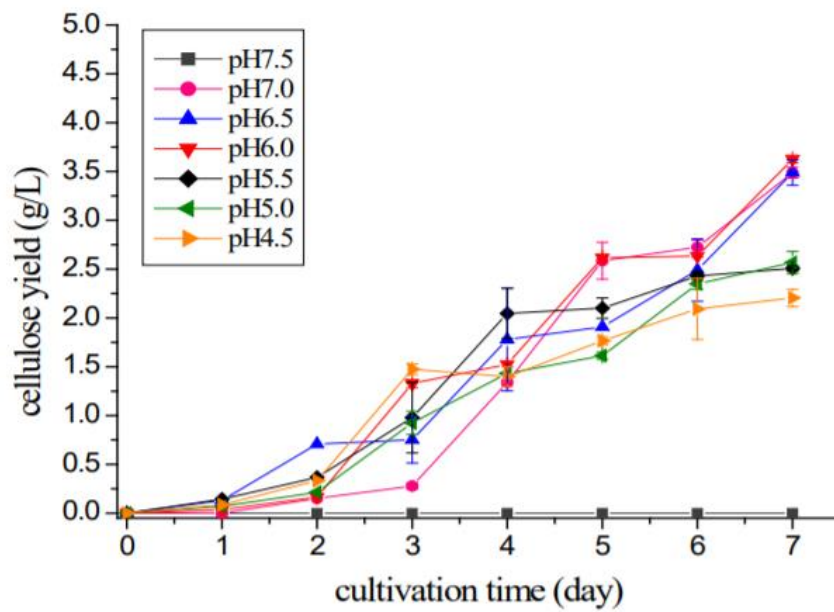


Fig. 2.2-8 不同起始培養基之 pH 值，產量隨天數之變化情形(謝, 2010)

2. 培養溫度

(Rangaswamy et al., 2015) 將培養溫度控制於 20°C~45°C 之間，並發現當溫度範圍約在 28°C~30°C 時具有最大的產量，而溫度高於 35°C 時，表示高溫的情況下，不利於細菌合成出纖維素，如 Fig. 2.2-9。

(Zahan et al., 2015) 指出在靜置培養 5 天下，使用初始葡萄糖濃度為 4.0% (w/v) 和初始 pH 值=6.4 的 HS 培養基。培養溫度訂在 5°C~40°C 以內。結果表明，28°C 是生長的最佳溫度，如 Fig. 2.2-10。

(謝, 2010) 先前實驗室以 100rpm 搖晃培養並將 HS 培養基的初始 pH 值訂在 5.5，並將溫度範圍定在 22°C、26°C、30°C、35°C，結果表示在培養溫度於 26°C 下具有最高的產量，而於 35°C 上則沒有產生纖維素。

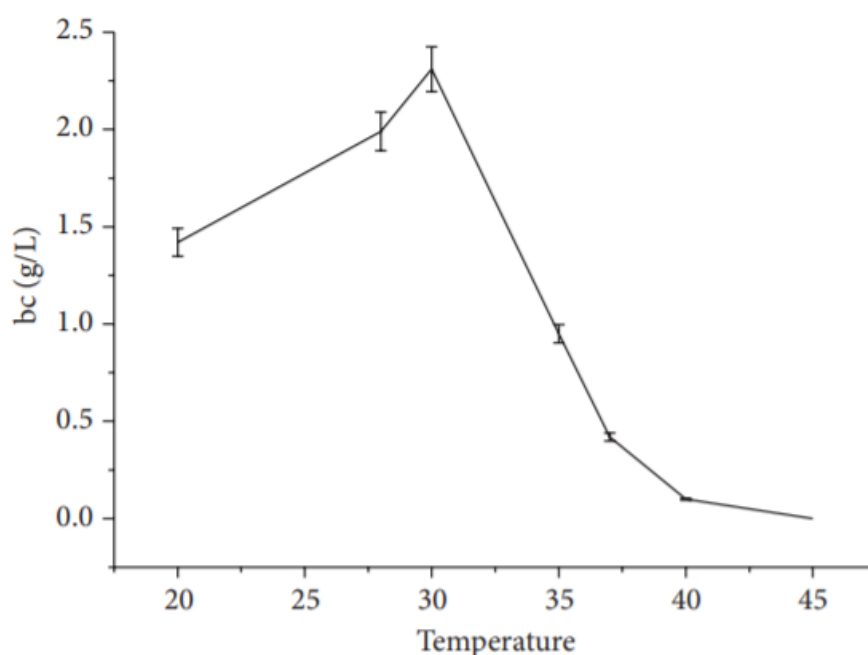


Fig. 2.2-9 不同溫度下之 BC 的產量(Rangaswamy et al., 2015)

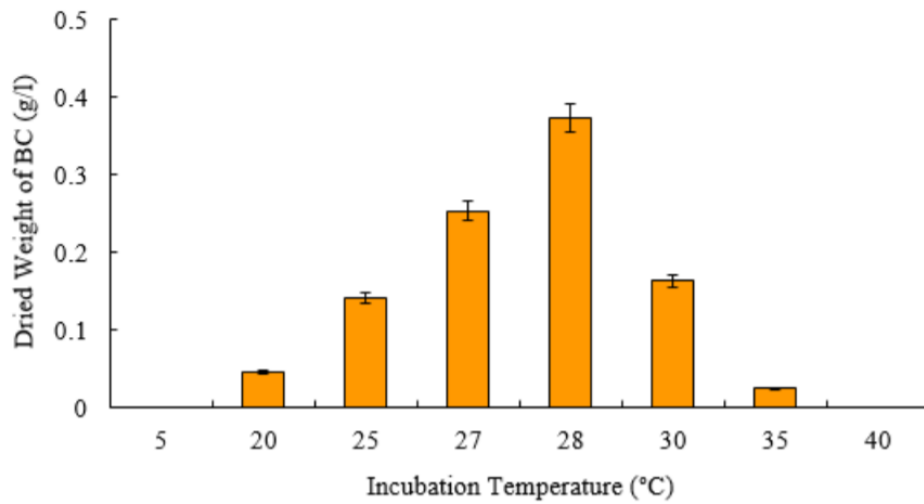


Fig. 2.2-10 不同培養溫度之 BC 產量(Zahan et al., 2015)

3. 培養時氣液接觸之表面積

(黃, 2010)在固定培養基體積為 150ml 的情況下，使用不同面積的培養容器來生產 BC，發現隨著培養基的氣液接觸面越大，產量也隨之上升。

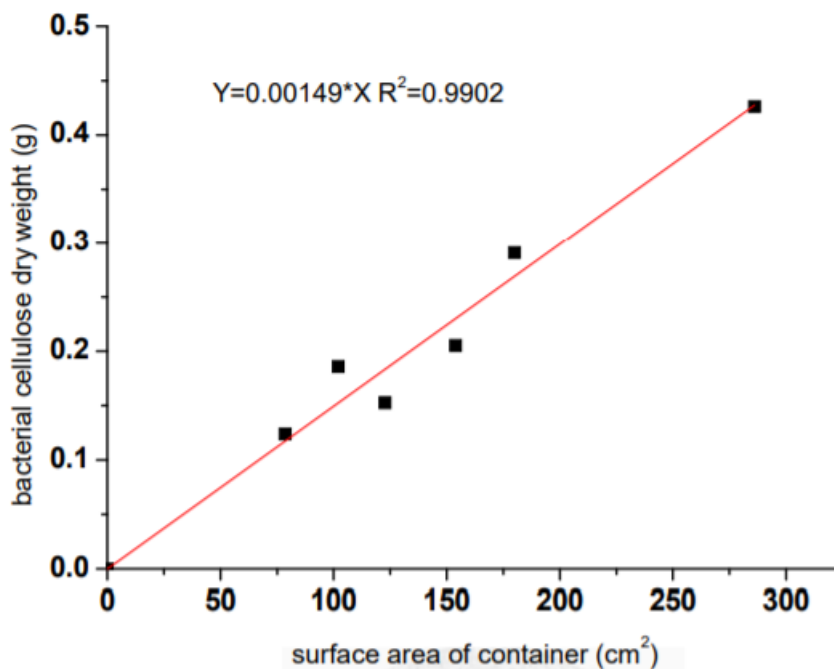


Fig. 2.2-11 培養容器面積與 BC 產量之關係(黃, 2010)

4. 培養液體積

在生產 BC 時，除了容器的面積大小之外，培養液的體積多寡，也是與生產成本息息相關。(Okiyama et al., 1992)等人發現在固定培養容器表面積時，當培養基液體高度在 1.1~4.5cm 時，產量並無明顯差異，但當高度高於 9.1cm 時產量則會下降，這是由於 *Acetobacter xylinum* 為一好氧菌，若是液高越高，則於培養時 *Acetobacter xylinum* 所釋放出的二氧化碳會累積在 BC 中，使得生長受到限制。

(詹, 2013) 先前實驗室也發現相同趨勢，使用了同一表面積的容器，去比較不同培養液體積(液體高度)的關係，實驗結果如 Fig. 2.2-12。實驗表示隨培養基液高在不超過 75mm 時，產量與液高無關，但是隨著液高越高時，產量反而下降。

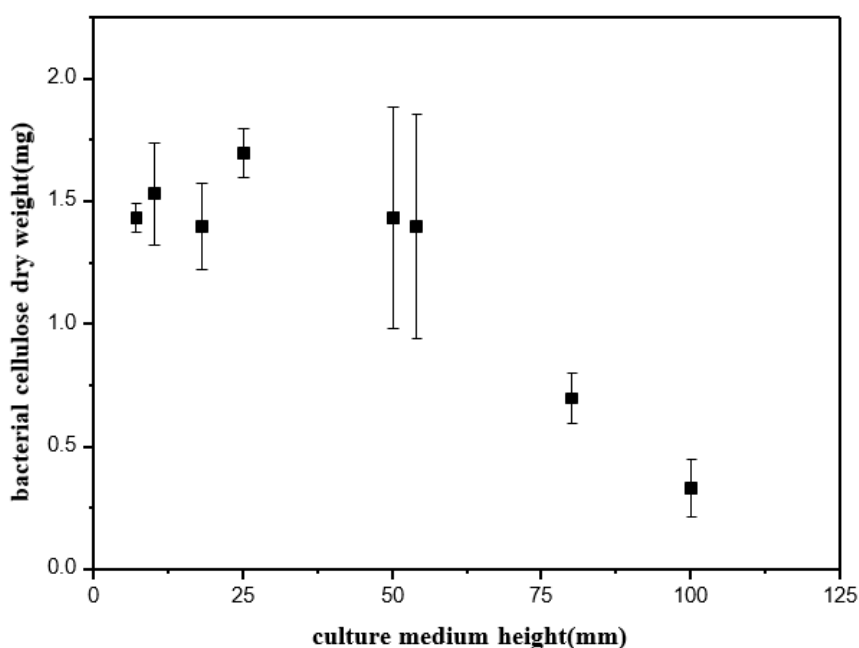


Fig. 2.2-12 不同培養基高度經過四天培養後之乾重關係圖(詹, 2013)

2.2.3 培養方式

(Singhsa et al., 2018)使用不同菌株在靜態和攪拌培養的條件下產生了不同型態的 BC，搖晃培養生產出的巨觀型態為球團或顆粒狀，而靜置培養為薄膜片狀，如 Fig. 2.2-13，而微觀的型態如 Fig. 2.2-14。

(Krystynowicz et al., 2002)指出透過搖晃培養的 BC，可能會增加氧氣傳效果，使得 BC 的產量會增加，如 Fig. 2.2-2。但是某些菌株於搖晃培養時會出現突變使得 *Cel* 具主導性，使得 BC 的產量下降，這也是為何 Fig. 2.2-2 中搖晃培養的纖維素產量並沒有全部多於靜置培養。

(Gao et al., 2020)利用 XRD 分析不同培養條件下 BC 的微觀結構變化，靜置和攪拌培養條件下的 BC，在靜態培養下，三種菌株產生的 BC 的結晶度明顯高於在攪拌培養下產生的 BC，由於攪拌培養的剪切力會影響 BC 在形成的過程，最終造成 BC 聚合度降低且結晶度下降的結果，如 Fig. 2.2-15。

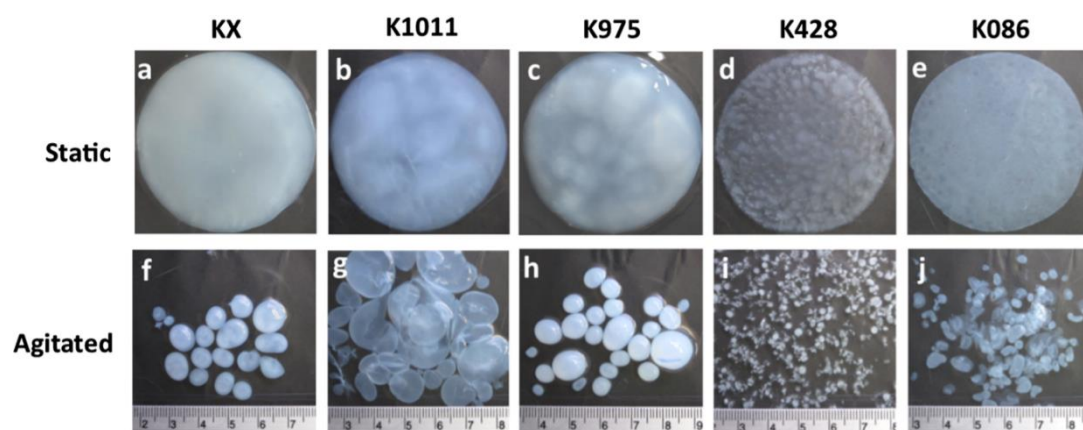


Fig. 2.2-13 不同培養條件下所形成細菌纖維素之巨觀型態 (Singhsa et al., 2018)

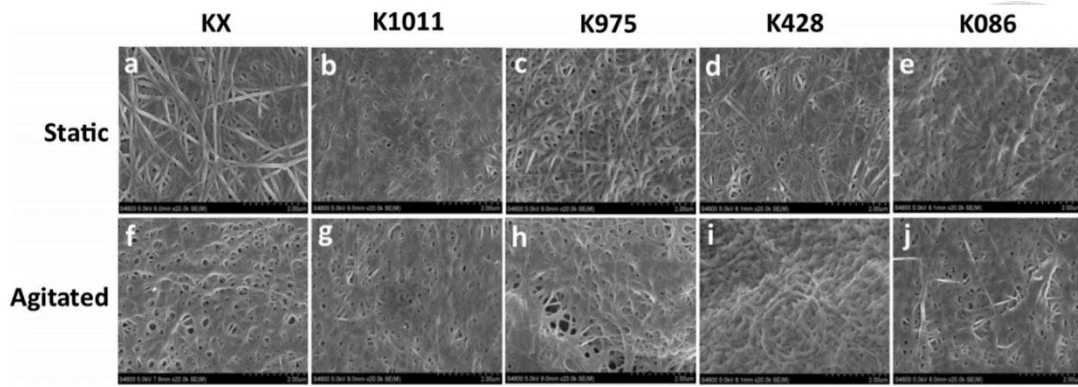


Fig. 2.2-14 用 FE-SEM 拍攝不同培養條件下所形成之 BC (Singhsa et al., 2018)

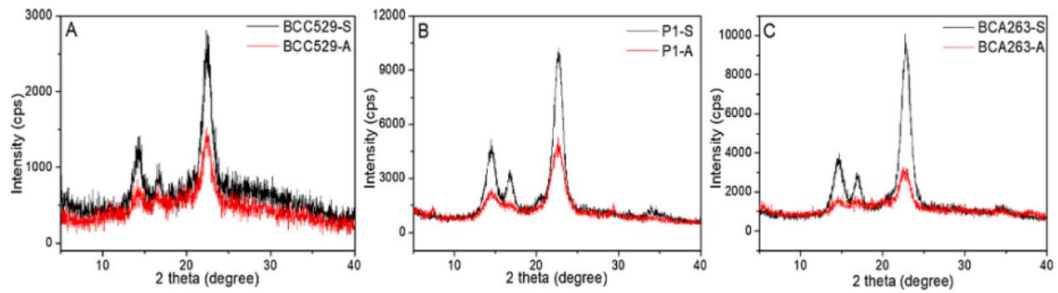


Fig. 2.2-15 使用不同菌株比較靜置培養與搖晃培養之 BC 結晶度(Gao et al., 2020)



2.3 細菌纖維素的特性

2.3.1 纖維結構

細菌纖維素其內部孔隙度高且在分子結構上具有許多氫氧基因此具有優異的親水性，是由 10~15 條葡聚糖鏈組成約 1.5nm 寬的次纖維(subfibril)，次纖維在彼此聚集成微纖維(microfibril)，最後微纖維再聚集成 50~80 nm 的纖維束(cellulose bundle)，如 Fig. 2.3-1 所示(Sulaeva et al., 2015)，在此章節整理了部分細菌纖維素所具有的特性。

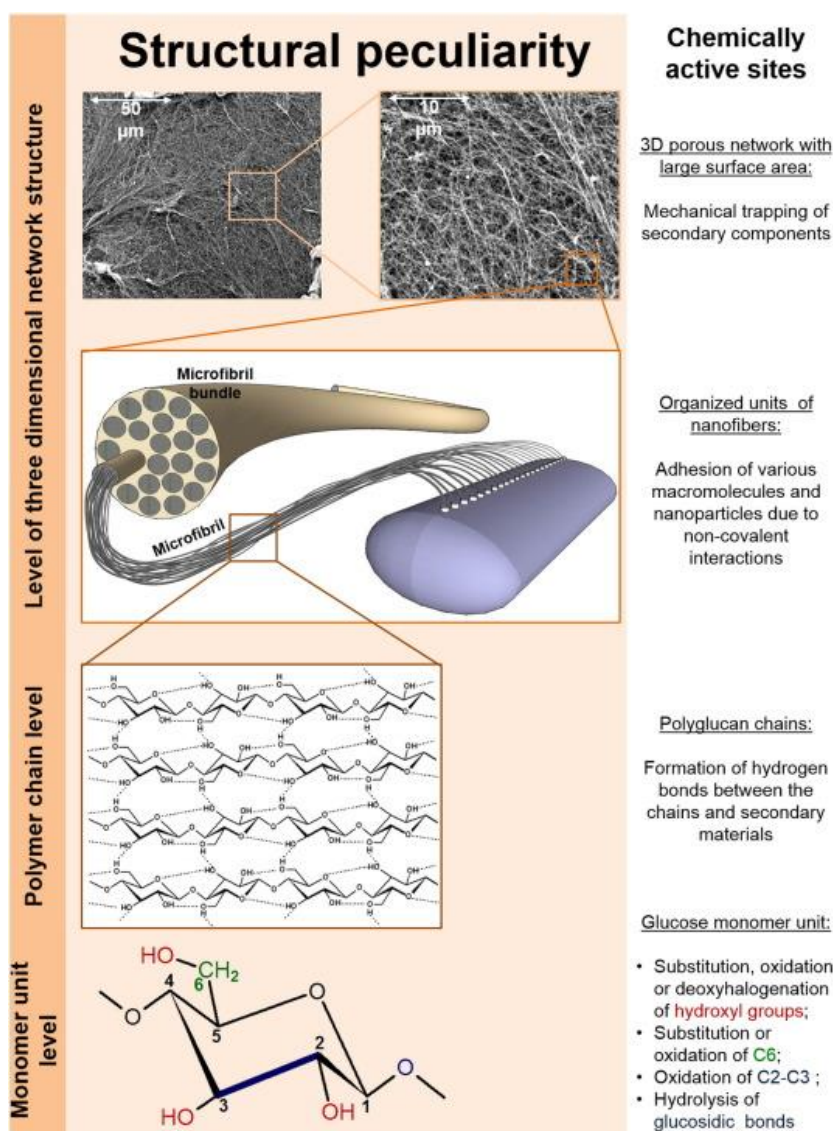


Fig. 2.3-1 細菌纖維素 (BC) 的結構圖(Sulaeva et al., 2015)

2.3.2 可食用性

(Ullah et al., 2016)BC 在食品工業中的應用範圍非常廣泛，從傳統的甜點、低膽固醇飲食、素食肉或作為食品添加劑應用，BC 的最初用途之一是被用來做為一種菲律賓傳統甜點，稱為「Nata de coco」，是用椰子水培養出的 BC，然後將 BC 切成小塊並泡在糖漿中，以供食用。

(Azeredo et al., 2019)說明了亦可添加入冰淇淋中做為質地改良劑，如 Fig. 2.3-2 所示，添加了 BC 於冰淇淋中，由於改變了物理結構，於溫度改變時能有助於保持冰淇淋形狀及延長融化時間。

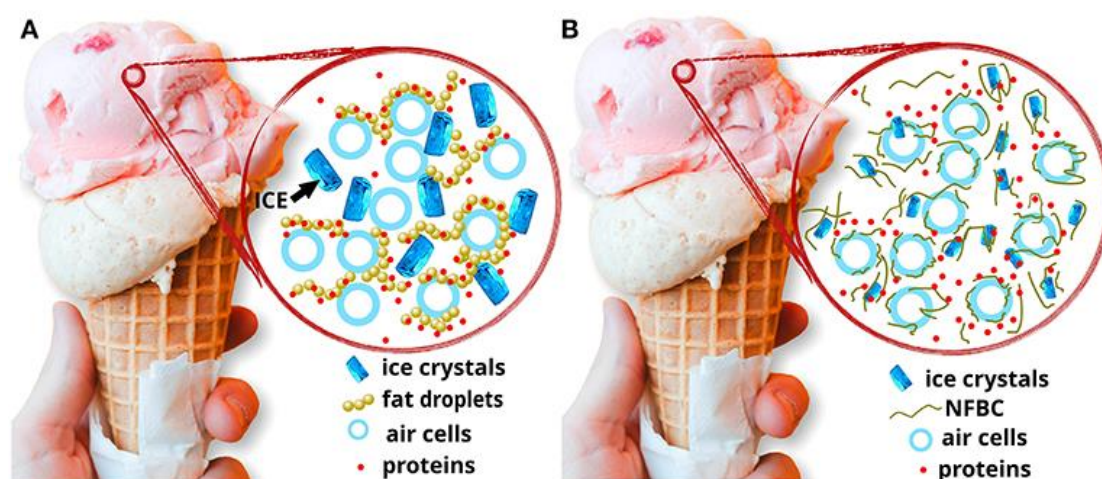


Fig. 2.3-2 冰淇淋微觀結構示意圖

(a)無添加 BC (b)添加 BC 做為質地改良劑(Azeredo et al., 2019)

2.3.3 高含水量及高親水性

(Jiji et al., 2020)指出理想的敷料應保持濕潤的環境、允許氣體通透、能夠有效吸收滲出物、在傷口部位形成隔離層並防止微生物感染。此類材料需具有無毒、不導致過敏、不容易沾黏及易於移除卻不會造成創傷的特性。與傳統紗布敷料相比,BC 還具有濕潤性和高親水性,這為傷口沾黏所帶來的疼痛帶來了改善效果。

(Sulaeva et al., 2020) 細菌纖維素是已經用於治療複雜傷口的最有效材料之一,因為 BC 敷料所提供的潮濕環境是確保傷口有效恢復的關鍵特徵。而改善敷料的保濕性能有助於其應用,因為可以延長使用的時間,因此為了減少水分流失作者將 BC 敷料浸於次要親水性成分:海藻酸(Alginate)中,如 Fig. 2.3-3,此外,為了滿足在治療傷口時對抗菌性能的需求,作者更進一步將 BC 與抗菌劑:聚己亞甲基鹽酸(Polyhexamethylene biguanide hydrochloride, PHMB)結合,希望延長使用時間並具有抗菌效果之傷口敷料。實驗結果表明浸於藻酸鹽後的 BC,在 36°C 下乾燥所需的時間,提高了約三倍,此外透過了抑菌圈實驗證明了與 PHMB 結合後具有抑制金黃色葡萄球菌(*S. aureus*)、大腸桿菌(*E. coli*)和白色念珠菌(*C. albicans*)的效果,如 Fig. 2.3-4。

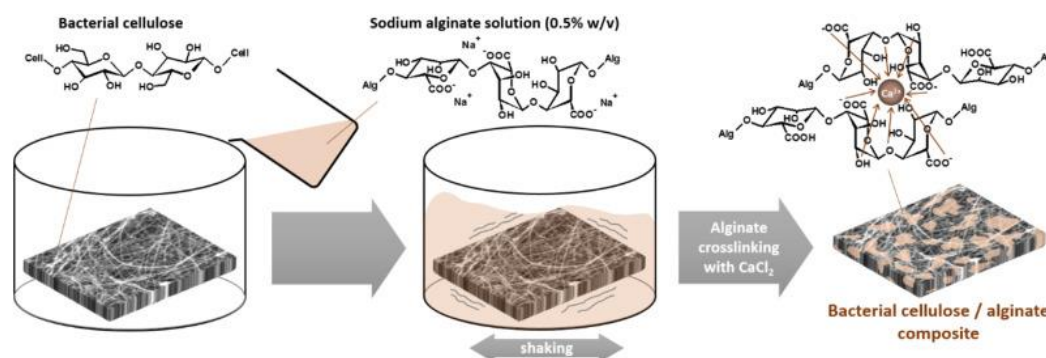


Fig. 2.3-3 將 BC 浸於海藻酸中並以 CaCl_2 交聯之實驗示意圖(Sulaeva et al., 2020)

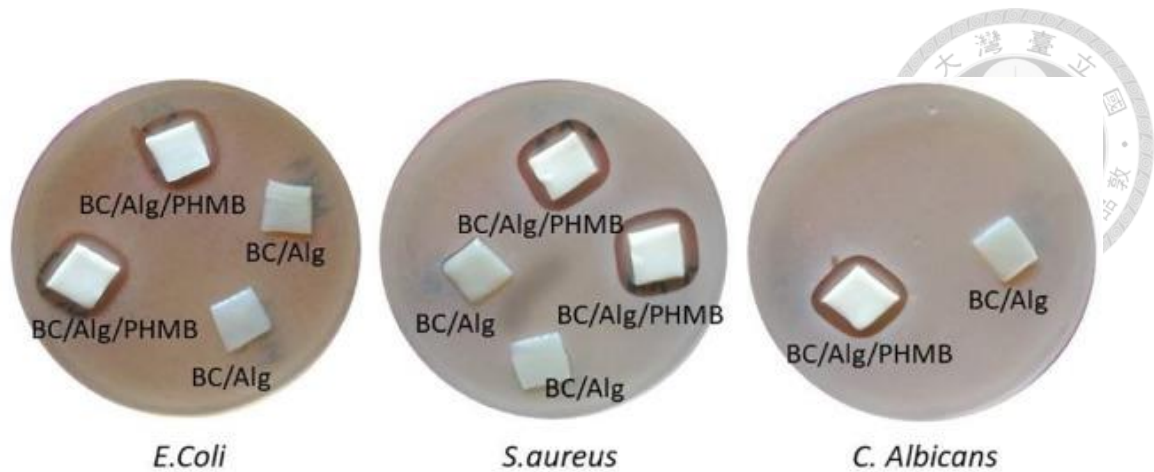


Fig. 2.3-4 抑菌圈實驗 (Sulaeva et al., 2020)

(BC/Alg=BC/海藻酸、BC/Alg/PHMB=BC/海藻酸/PHMB 抗菌劑)

2.3.4 高純度

(Tabarsa et al., 2017)指出細菌纖維素與植物纖維素的分子形式雖然相同但是細菌纖維素的純度較高，由於植物纖維素中還含有半纖維素(hemicellulose)，木質素(lignin)，因此較難獲得純度高的纖維素。

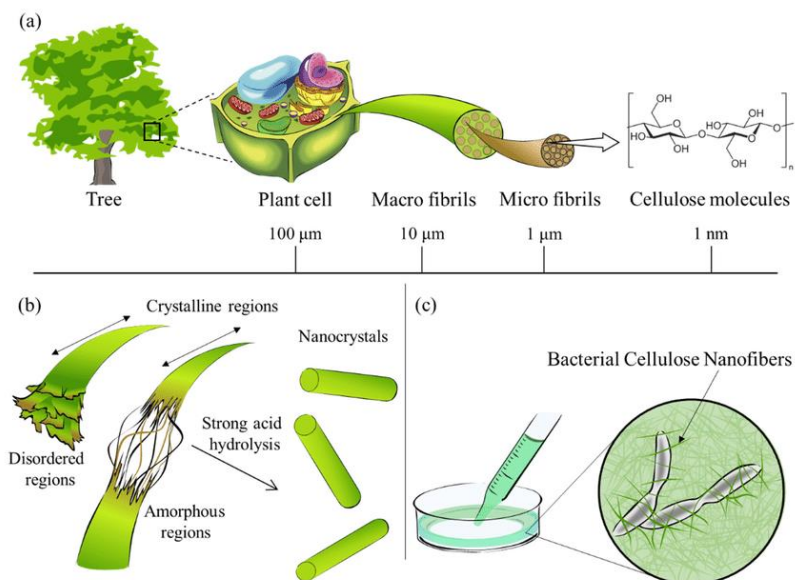


Fig. 2.3-5 (a)植物中的纖維素組成的尺寸大小(b)纖維素與強酸反應後形成奈米結晶纖維素之示意圖(c)細菌纖維素的內部結構示意圖(Miyashiro et al., 2020)

2.3.5 機械性質優異



(Tabarsa et al., 2017) 指出 BC 的機械性質優異，具有高結晶度，高拉伸強度等優點，因此常被廣泛用於複合材料的增強劑，因此作者嘗試將 BC 添加至針葉木紙漿中目的是找出 BC 做為紙張增強材料的可行性，並將增強後的樣品根據其機械性能進行實驗分析，實驗結果發現添加了 15% 的 BC 於紙漿中，與由 100% 的紙漿生產的紙張相比，機械性能有顯著提高，如 Fig. 2.3-6。

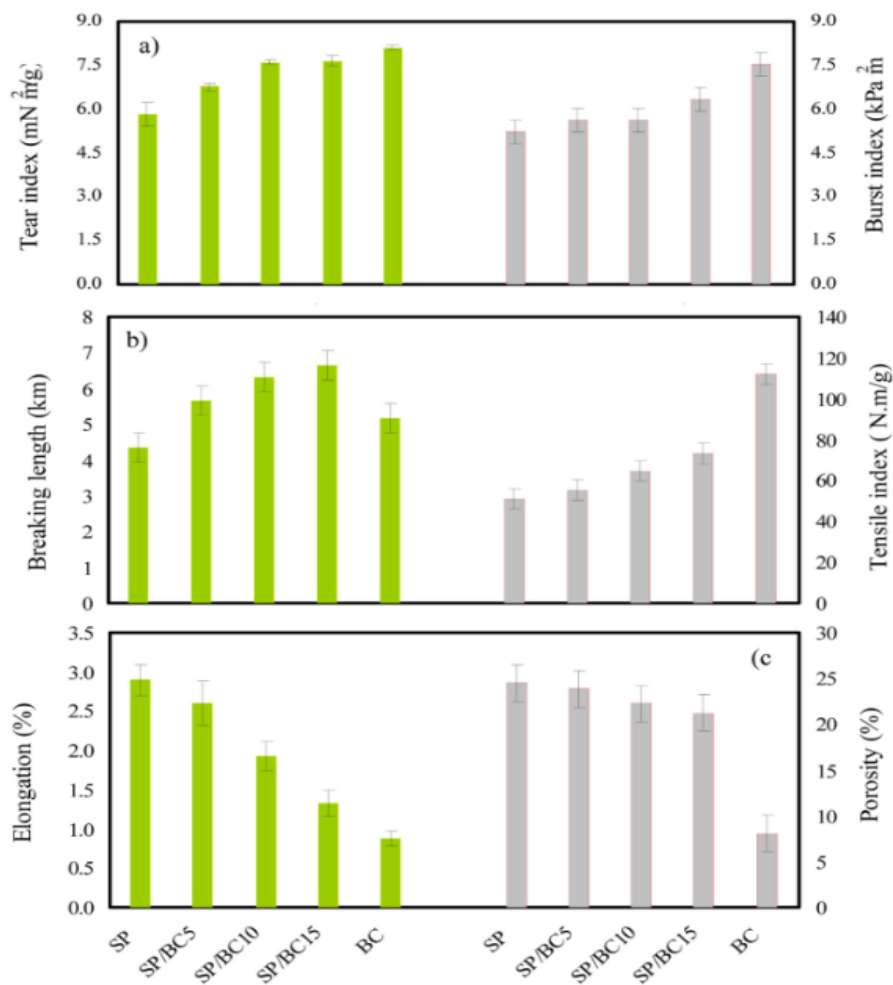


Fig. 2.3-6 不同 BC 含量的紙張之機械性質(SP=純紙漿、SP/BC5=添加 5%BC 於紙漿中、SP/BC10 添加 10%BC 於紙漿中、SP/BC15 添加 15%BC 於紙漿中)(Tabarsa et al., 2017)

2.3.6 生物相容性

(Jiji et al., 2020)指出 BC 本身不具有抗菌效果，因此作者透過聚多巴胺(Polydopamine)希望不透過其他溶劑將硝酸銀還原成銀奈米顆粒(AgNps)並與 BC 結合，稱為 BC-PDAg 用來做為傷口敷料，如 Fig. 2.3-7。實驗透過體外細胞及動物實驗來證明其具有生物相容性並且適合應用於傷口敷料，評估體外生物相容性的結果如 Fig. 2.3-8，可以判斷 BC-PDAg 複合材料是具有生物相容性的。動物實驗的部分是將 BC-PDAg 敷於大鼠三度燒傷的傷口上，每五天更換傷口敷料並記錄傷口復原情況，最終發現了此材料具有幫助傷口癒合之功效，如 Fig. 2.3-9。

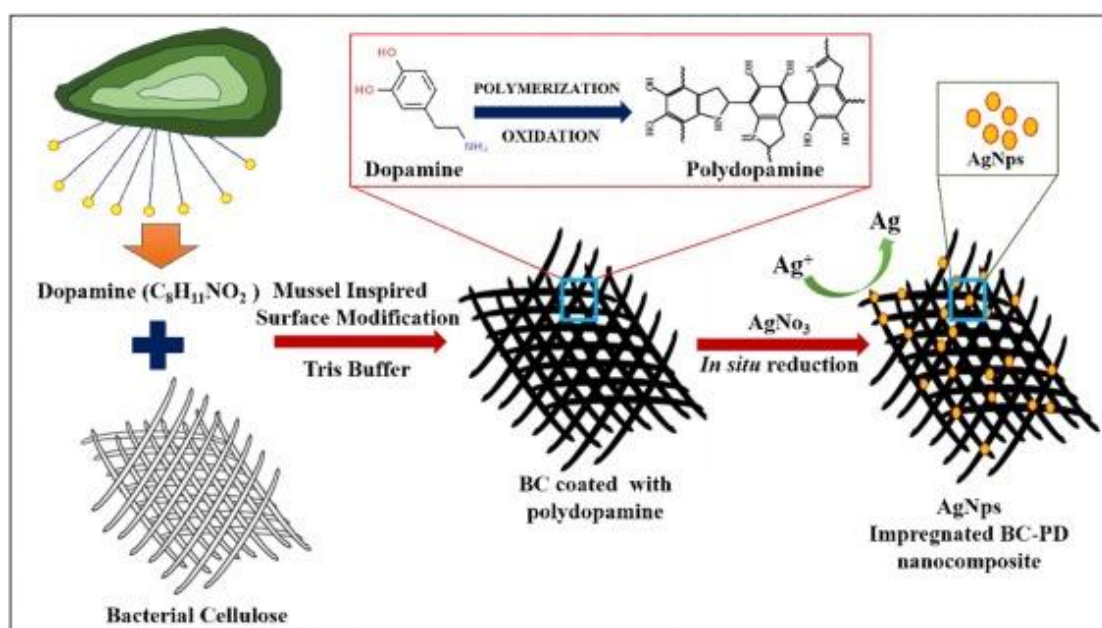


Fig. 2.3-7 BC-PDAg 傷口敷料製備示意圖(Jiji et al., 2020)

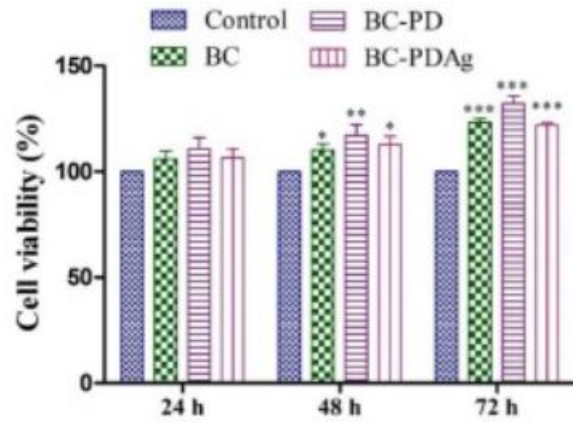


Fig. 2.3-8 體外細胞活性實驗(Jiji et al., 2020)

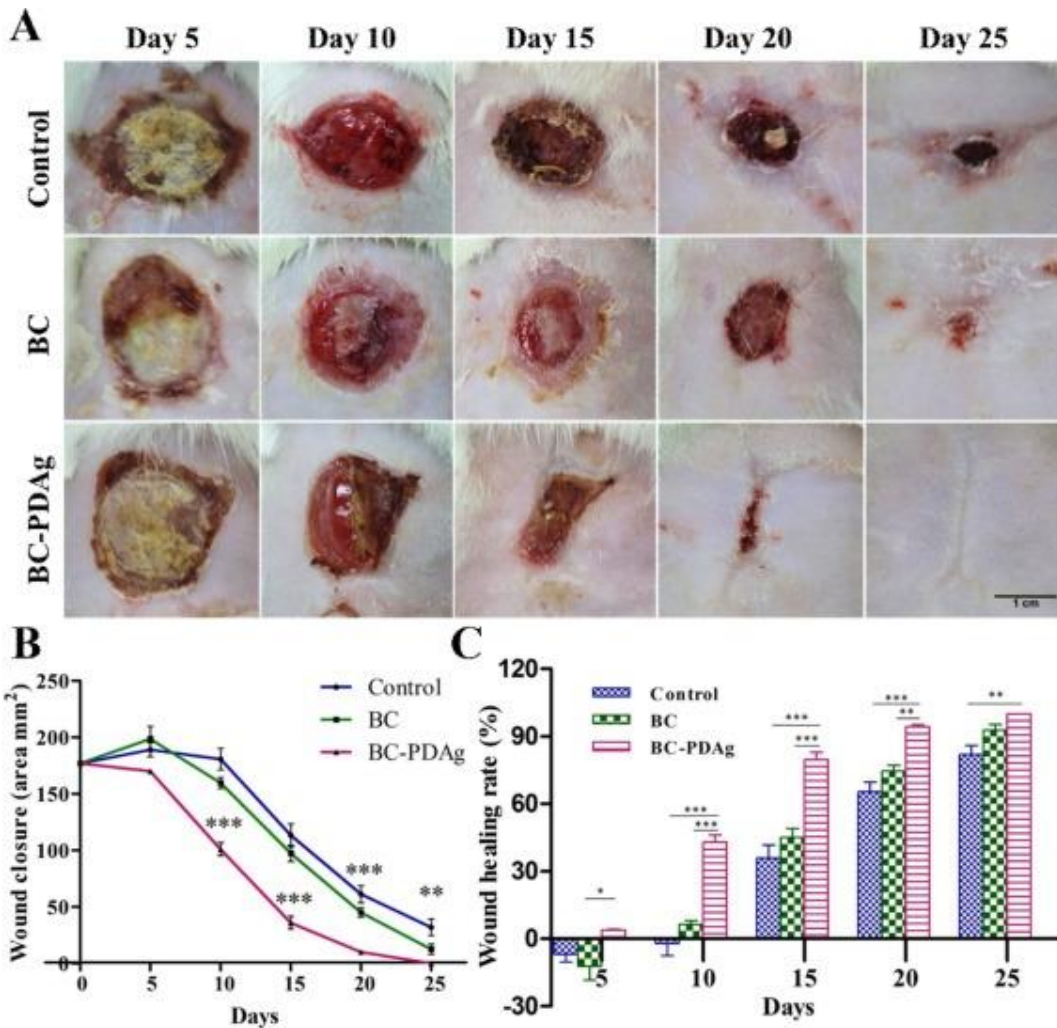


Fig. 2.3-9 用於動物實驗上之傷口癒合圖(Jiji et al., 2020) (A)不同天數之傷口癒合程度圖 (B)傷口面積隨天數之變化曲線(C)傷口癒合程度隨天數變化圖

2.3.7 生物可分解性

(Niyazbekova et al., 2018)細菌纖維素由於其獨特的性能而成為用於食品、紡織品、醫療用品等有價值的產品。作者指出在全世界常見的塑膠袋-聚乙烯塑膠袋，據統計此聚乙烯塑膠袋平均使用時間不超過 20 分鐘，但分解時間卻超過 100 年，代表著生物不可分解，造成了許多環境汙染。因此也有人利用細菌纖維素做為生物可分解的袋子及衣物，如 Fig. 2.3-10、Fig. 2.3-11。



Fig. 2.3-10 利用細菌纖維素製成的生物可分解包裝袋(Niyazbekova et al., 2018)



Fig. 2.3-11 利用細菌纖維素製成的鞋子與衣服(Niyazbekova et al., 2018)



2.4 細菌纖維素的應用

2.4.1 不同領域之應用

由於細菌纖維素薄膜具有許多特性，目前常用應用的領域如 Table. 2.4-1 所示(Azeredo et al., 2019; Gadim et al., 2017; Gorgieva et al., 2019; Picheth et al., 2017; Tabarsa et al., 2017)，而本研究主要是將探討不同產量、含水量之 BC 與油水過濾速度之關聯，因此著重介紹應用於過濾膜與藥物傳遞。

Table. 2.4-1 細菌纖維素之應用

領域	應用實例
食品工業	飲料中的椰果、冰淇淋、食品包裝膜
造紙工業	增強紙張強度
電子材料	燃料電池質子交換膜
工業材料	廢水過濾膜
生醫材料	人工皮、傷口敷料、人造血管 面膜、軟骨組織、藥物傳遞載體



Fig. 2.4-1 BC 應用於傷口敷料示意圖(Czaja et al., 2007)

2.4.2 過濾膜



由於工業的快速發展，廢棄的油造成了嚴重的工業水污染，導致了緊急的環境危機，這將會影響農作物的生產，人類健康和水資源。(Lee et al., 2011)指出膜分離技術（例如微濾、超濾、逆滲透）用於水的淨化和處理的需求不斷增加，以提供乾淨的水，大多數可商購的膜是由石油下游產物所合成而製成的，這些膜的生產通常需要大量的溶劑和化學藥品，因此生產是來自天然聚合物的薄膜，尤其是奈米尺寸的薄膜，例如植物奈米纖維素和細菌纖維素，越來越引起人們的興趣。

而許多研究(Arslan et al., 2016; Hong et al., 2018)透過將植物來源的纖維素以亞硫酸鹽或鹼液去除木質素，從而提高植物纖維素的純度，並利用靜電紡絲製成(Cellulose nanofiber, CNF)薄膜，並用來做為油水分離的過濾膜。但由於製備過程中需要透過許多化學改良步驟，因此使得成本亦大幅上升。

(Zhuang et al., 2020)因此使用了使用了不同濃度的 NaOH 溶液處理過的生物 CNF 膜即細菌纖維素，和植物性的纖維素比較，因為其可再生性高，高持水能力，因此推測其可有效分離乳化含油廢水。作者使用了 *Gluconacetobacter xylinus* (BCRC14148)以多醣和茶提取物為碳源，靜置培養 7 天後收膜，將 BC 在 0.75、1.25、1.75 或 2.5 M NaOH 水溶液中以 100°C 煮沸 1 小時，然後用蒸餾水洗滌幾次，直到洗至中性，目的為去除殘留的細菌細胞和培養基，再將其以 Dead-end 的方式用來過濾 1g/1L(正己烷/去離子水)和界面活性劑。實驗結果發現越高濃度的鹼處理會使得薄膜的孔徑大小縮小，導致了通量較低的情況，如 Fig. 2.4-2、Fig. 2.4-3，此外，實驗亦發現較高的壓力可能會對於薄膜的過濾會產生不利影響，這導致以下結果如 Fig. 2.4-4，可能原因為膜緻密化(Ng et al., 2019)，這是一種不可

逆的現象而導致過濾通量降低，因此提高過濾膜的機械強度也是需要注意的重點。油水分離的實驗結果如 Fig. 2.4-5，不過在此的過濾純水通量曲線較為令人費解的地方是為何過濾純水通量曲線會呈現持續下降的情形關於此部分作者並沒有詳細說明。最終作者表明細菌纖維素具有優異的疏油性可以被作為油水分離薄膜，且可以重複清洗使用。

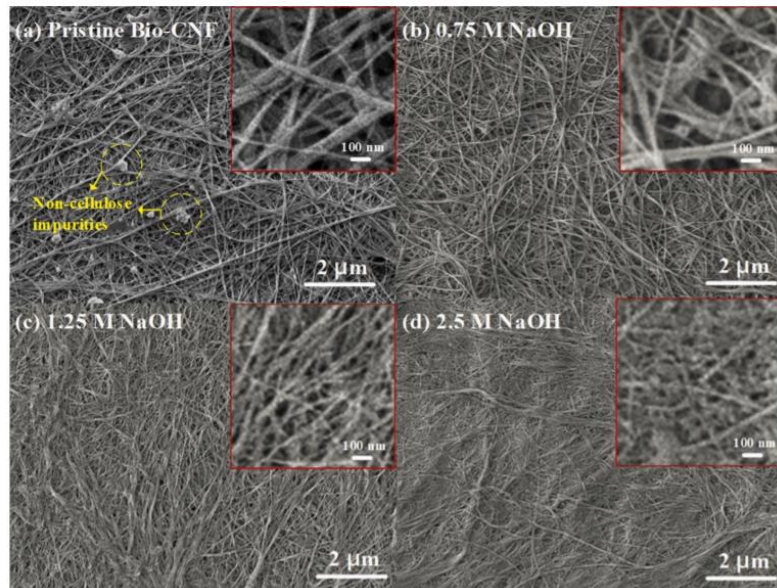


Fig. 2.4-2 使用不同濃度鹼液清洗之 BC 之 FE-SEM 圖 (a) 原始 (b)0.75M(c)1.25M(d)2.5M(Zhuang et al., 2020)

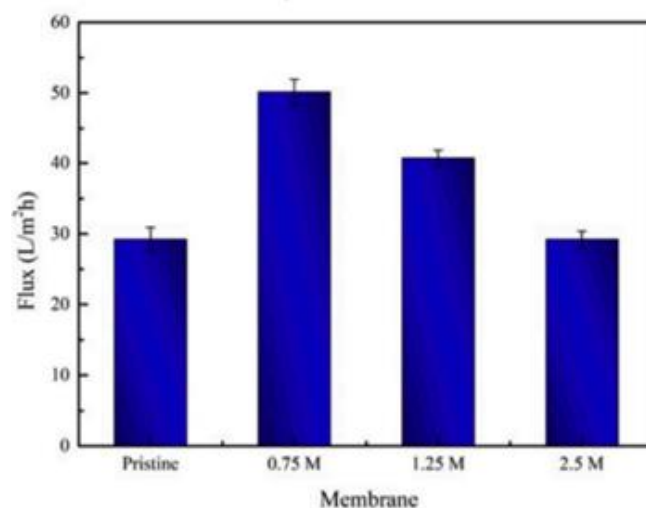


Fig. 2.4-3 使用不同濃度鹼液清洗之 BC 之油水過濾通量(於過濾的第 3 小時)(Zhuang et al., 2020)

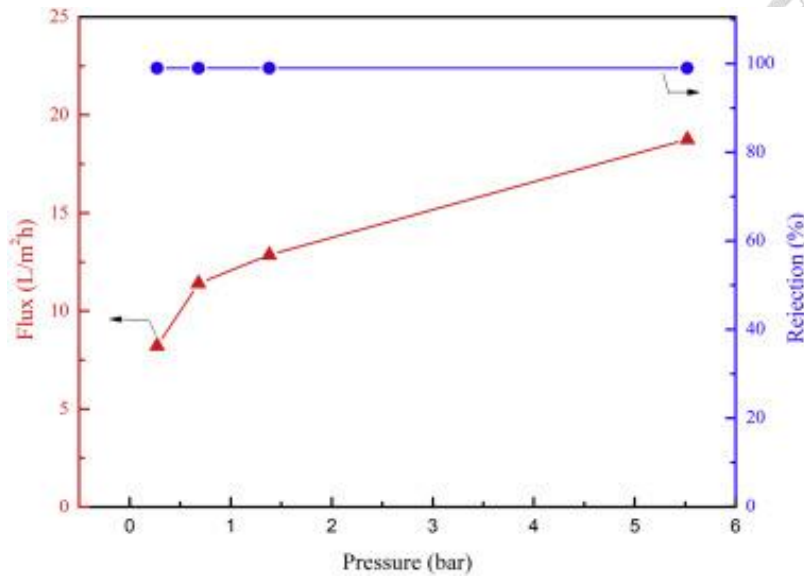


Fig. 2.4-4 以 2.5M 鹼洗之薄膜在不同過濾壓力下之第 3 小時油水通量及去除效果 (Zhuang et al., 2020)

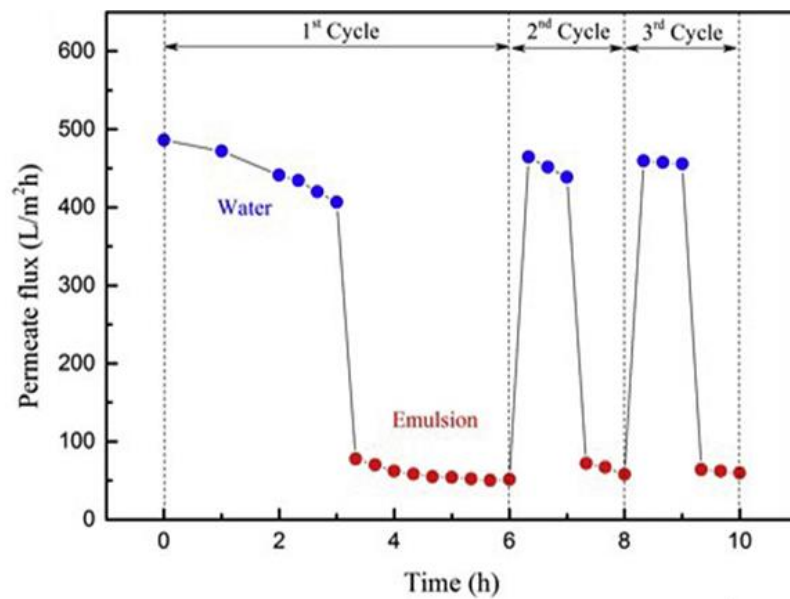


Fig. 2.4-5 以 0.75M 鹼洗之薄膜分離油水乳液之過濾通量圖與清洗後之通量圖 (Zhuang et al., 2020)

(Hassan et al., 2017)等人以起始 pH=6 之 HS 培養基，碳源為葡萄糖 20g/L，在 28°C 靜置培養的情況下，在第 2、4、6、10 天收成 BC，並記錄其乾重、厚度變化，再將其作為油水分離之薄膜，使用蓖麻油作為過濾物，並額外添加 15% 油重之界面活性劑，用 dead-end 方式過濾，過濾面積 14.6cm²，壓力為 1.0MPa，並與植物纖維素製成的薄膜(CNF)比較過濾效果。培養不同天數的所收成的 BC 之物性如 Table. 2.4-2，可以發現隨著天數的增加，BC 之濕重、乾重、厚度也跟著增加，而 Water content 都維持於約 99%，並記錄其未乾燥時與乾燥的 CNF 薄膜純水通量，如 Table. 2.4-3，由於第 2 天收成的 BC 具有最小的乾重與厚度，因此純水通量是當中最快的，但是第 10 天收成的 BC 的純水通量並沒有跟著下降，作者指出可能原因是 BC 膜的奈米纖維的直徑，表面的孔尺寸和孔隙率彼此非常接近所導致，而乾燥的 CNF 薄膜通量則更低，是因為未乾燥的 BC 薄膜之內部結構具有較多空隙能使水更易通過。而 Fig. 2.4-6 使用油濃度為 100 mg / L 未添加界面活性劑之乳液與額外添加界面活性劑之乳液來實驗，通量值會隨時間的下降，尤其是在純淨水通量的開始時，是由於施加壓力的作用使膜緻密，從而降低了膜的孔隙率，在過濾油水的情況下，通量隨時間的進一步減少是由於油滴堵塞了膜的孔，對油的排斥係數為 98%~99%。

Table. 2.4-2 不同培養天數之 BC 濕重、乾重、含水量、厚度(Hassan et al., 2017)

Incubation Period (Days)	Wet Weight (g)	Dry Weight (g)	Water Content (%)	Wet Thickness (mm)	Dry Thickness (mm)
2	1.40	0.017	98.8	0.40	0.02
4	10.66	0.13	98.7	3.85	0.04
6	21.43	0.17	99.2	5.23	0.08
10	51.58	0.44	99.1	11.60	0.1

Table. 2.4-3 CNF 薄膜與不同培養天數之 BC 之純水通量(Hassan et al., 2017)

Sample	2-Day BC	4-Day BC	6-Day BC	10-Day BC	CNF
Water flux (L/h/m ²)	845 ± 70	448 ± 45	441 ± 67	498 ± 52	192 ± 29

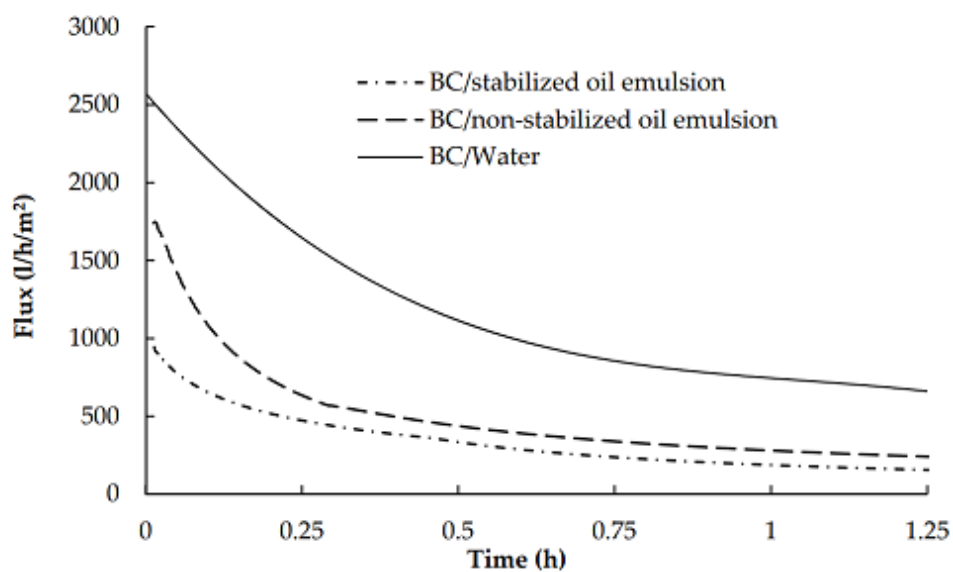


Fig. 2.4-6 第 2 天收成之 BC 之油水過濾通量圖(Hassan et al., 2017)

(Lehtonen et al., 2021)使用了不同培養時間收成的 BC 並同時比較了 BC 乾燥前後之過濾通量差異。實驗結果發現隨著靜置培養天數的增加，薄膜的純水過濾通量也隨之降低，於 0.25 至 2.5 bar 的壓力範圍內，未乾燥的 BC (never-dried BC, NDBC) 的純水通量比乾燥後的 BC (dried BC, DBC) 的純水通量高，如 Fig. 2.4-7。

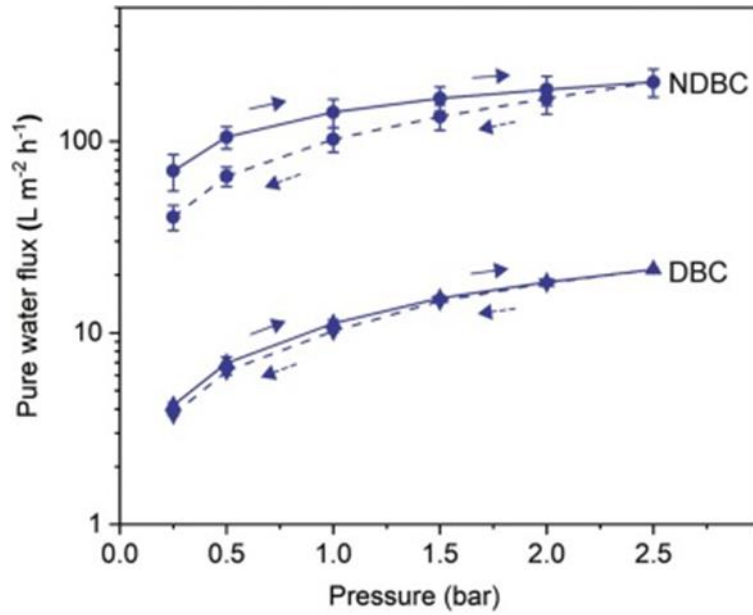


Fig. 2.4-7 於不同壓力下，乾燥前後的 BC 之純水通量(Lehtonen et al., 2021)

2.4.3 藥物傳遞

膠囊通常是透過口服來作為被人體吸收的藥物傳遞途徑之一，以口服的方式吸收藥物主要的優點為給藥方便、沒有注射帶來的不適感、遮掩藥物所帶來的苦味，但缺點則可能有與其他藥物交互作用、於體內吸收不完全造成藥效無法達到治療效果，而在軟膠囊中往往會添加賦形劑、稀釋劑等等，常見的稀釋劑為大豆油或亞麻仁油。

(Nikzad et al., 2017)在製藥工業中，常見的膠囊外殼可分為硬膠囊與軟膠囊，軟膠囊主要填充液體，而硬膠囊則填充粉末，膠囊殼主要成分為明膠，來源可以是牛或是豬皮膚，骨骼和結締組織中提取的膠原蛋白部分變性而產生的，大多數是來自豬，因為成本較低。

(Dennis et al., 1990)說明當藥物載體需要快速釋放藥物時，需要有良好的通透性；當需要延長藥物釋放時，則需要改變載體的通透性。(Amemiya et al., 1998; Hamoudi et al., 2012; Strickley, 2004)指出越來越多的口服新藥的性質是難溶於水的，雖然可預先將製劑溶於賦形劑中以增加溶解度，而賦形劑可以是油脂，例如：橄欖油、大豆油、芝麻油等等.....，若是需要經過口服還需要考量到掩飾藥物味道因此需要能夠包覆藥物的材料而且需具有阻抗油滲出的功能。

(Damian et al., 2021)指出近年來水溶性差的口服藥物越來越多，因此要找出適當的包覆材料或藥物傳遞系統具有相當大的挑戰性，提出的解決該問題的技術之一是使用基於脂質的藥物遞送系統來配製藥物，將藥物保持在溶解形式，直到被吸收為止。

軟明膠膠囊如 Fig. 2.4-8 所示，由於可以充填油液體，因此是輸送油溶性藥物的理想工具，克服了水難溶性藥物帶來的挑戰，整理了目前市面上以軟明膠膠囊包裝的藥物如 Table. 2.4-4 所示。



Fig. 2.4-8 不同型態與顏色之軟膠囊示意圖(Damian et al., 2021)

Table. 2.4-4 以軟明膠膠囊包裝出售的藥物(Damian et al., 2021)

藥品名稱	品牌與公司	用途
Cyclosporine	Neoral®, Novartis Pharm. Corp	預防器官和骨髓移植排斥反應
Dutasteride	Avodart®, GSK Canada	緩解前列腺肥大的前列腺增生症狀
Calcitriol	Rocaltrol®, Roche Canada	低血鈣症和次發性副甲狀腺機能亢進的治療
Isotretinoin	Clarus®, Cipher Pharmaceuticals Inc.	治療嚴重痤瘡
Progesterone	Prometrium®, Merck	激素替代療法
Valproic acid	Depakene®, Abbott Laboratories	抗癲癇藥
Testosterone	Andriol®, Merck Canada	睪丸激素替代療法
Ritonavir	Norvir®, Abbott Laboratories	HIV 治療
Amprenavir	Agenerase®, GlaxoSmithKline	HIV 治療
Loratadine	Claritin® liquid Gels, Schering-Plough Canada Inc	治療過敏

(Djekic et al., 2017)提到了自微乳化藥物遞送系統(Self- Microemulsifying Drug Delivery System, SMEDDS)，此技術是由油相、界面活性劑和助界面活性劑組成的固體或液體製劑，可於胃腸道內或接近 37°C 時，在輕度攪拌的條件下會自發性乳化，因此利用此一原理可將油溶性藥物溶解於油相之液態基劑中，再充填入軟膠囊內製成口服製劑，口服後胃腸液進入膠囊內部後與其接觸，可自行乳化為微粒乳劑而促進藥物的分散、溶離、安定性及吸收，是作為解決親脂性藥物口服吸收的重要技術。

(Ullah et al., 2017)近來有許多文獻指出目前市面上常用的明膠膠囊具有的缺點，例如對某些患者的宗教信仰或飲食限制，尤其是豬製品，素食者和宗教群體具有有限的接受度，且無法具有控制藥物持續釋放的能力。作者將 BC 以不同乾燥方式製成膠囊，並探討乾燥方法、厚度及不同賦形劑(澱粉、HPMC-羥丙基甲基纖維素、CMC-羧甲基纖維素)對藥物釋放的影響，如 Table. 2.4-5、Fig. 2.4-9、Fig. 2.4-10，結果雖然指出不同乾燥方法與不同厚度對於控制藥物長期釋放並無顯著效果，但可以透過添加不同賦形劑來延遲藥物的釋放，因為 HPMC 和 CMC 會於膠囊內部形成凝膠，進而為藥物釋放提供了屏障。

Table. 2.4-5 不同製備方法的 BC 膠囊殼詳細資料(Ullah et al., 2017)

Code	SS (mg)	Starch (mg)	HPMC (mg)	CMC (mg)	Thickness of capsule wall (mm)	Drying method
C1 ^a	48	-	-	-	-	-
C2	48	-	-	-	1.42	Freeze-dried
C3	48	-	-	-	1.42	Oven-dried
C4	48	-	-	-	0.54	Oven-dried
C5	48	-	-	-	2.50	Oven-dried
C6	144	-	-	-	1.42	Oven-dried
C7	48	52	-	-	1.42	Oven-dried
C8	48	-	52	-	1.42	Oven-dried
C9	48	-	-	52	1.42	Oven-dried

^a Gelatin capsule shells filled with SS for comparison

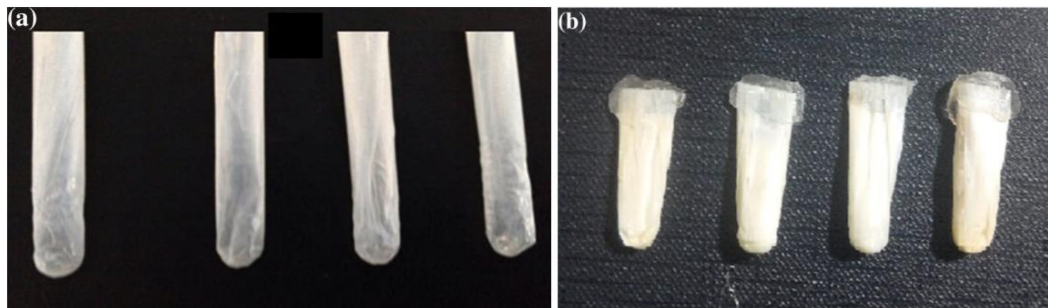


Fig. 2.4-9 (a)以 BC 為材質製成之空膠囊殼(b)填充完藥物之 BC 膠囊示意圖(Ullah et al., 2017)

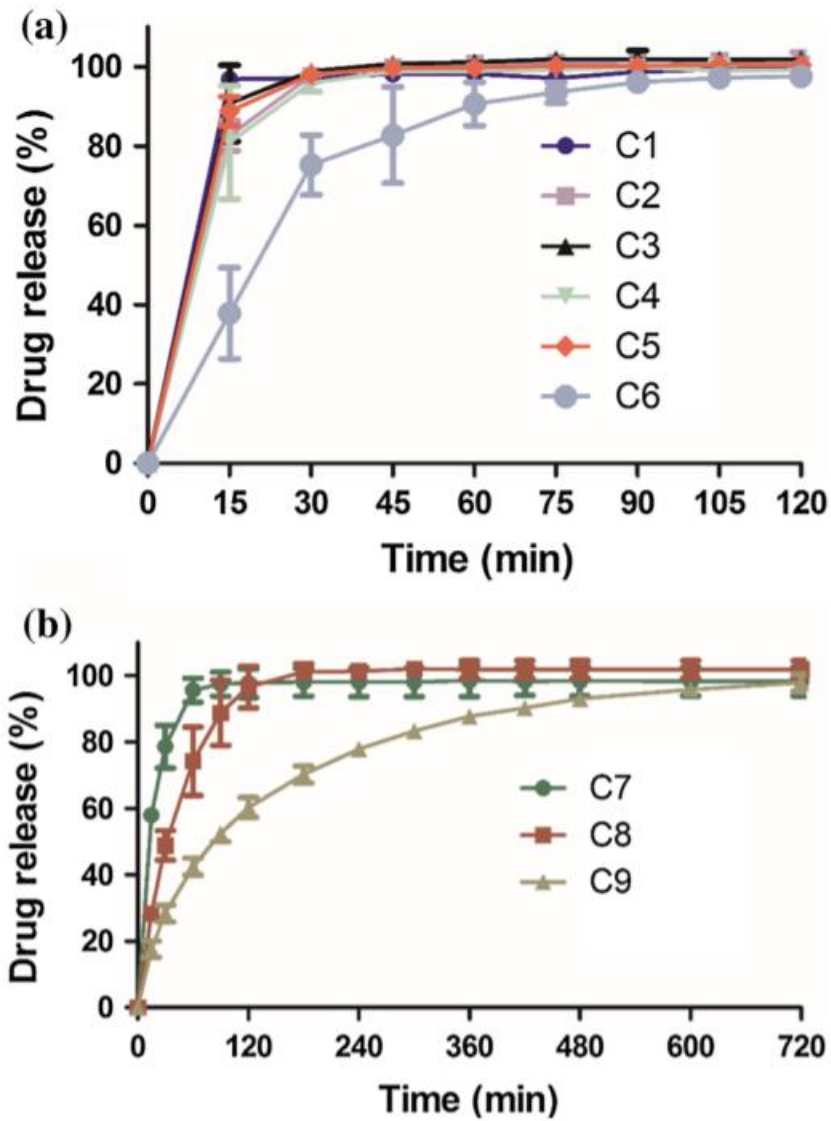
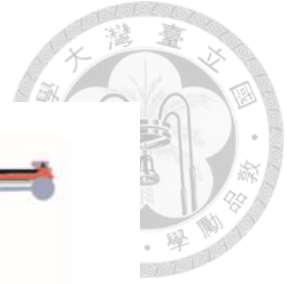


Fig. 2.4-10 以不同製備方法之 BC 膠囊的體外藥物釋放曲線(a)不含賦形劑的膠囊殼(b)具有賦形劑的膠囊殼(Ullah et al., 2017)

以下整理出作為膠囊並應用於口服藥物傳遞時，且能補上明膠膠囊之缺點的
所需材料特性：



1. 能夠減少服藥數量並具有控制藥物釋放速度的功能

若是患者所需攝取藥物中具有油溶與水溶的性質，由於硬膠囊不能包覆油液，因此需要吞服兩種膠囊，因此若是能將藥物同時包覆於一個載體中，可以減少吞服數量，此外，膠囊若是可以控制藥物釋放速度，可使得藥物在體內的濃度可以長時間的維持在有效濃度或是分為兩階段釋放(在膠囊破掉之前水溶藥物會擴散至膠囊外，破掉之後換油溶藥物被釋放)。相反的，若是要應用到自微乳化藥物遞送系統(SMEDDS)來傳遞藥物，當中亦需要控制胃腸液穿透進入膠囊內部的時間，使其形成乳劑給人體吸收，如 Fig. 2.4-11。

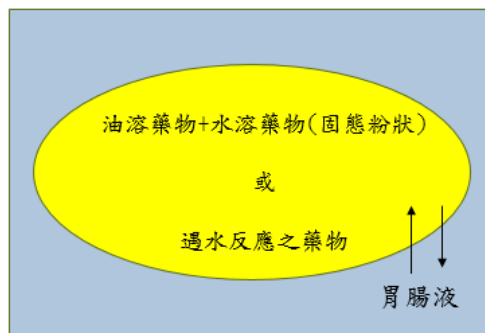


Fig. 2.4-11 膠囊包覆藥物進入體內之示意圖

2. 軟、硬膠囊殼有的成分是明膠組成的，素食者與部分宗教群體無法食用

而 BC 成分中不含豬製品，符合素食者與具宗教信仰之患者所需。

3. 遇熱水不會立刻溶解

部分患者會想於吃藥時搭配熱水服用，但是明膠膠囊遇到熱水後融解速度增加，可能會提早於食道中溶解，造成藥物沾黏於食道，出現藥物灼傷食道的問題。

綜合本節之文獻(Zhuang et al., 2020)並沒有提出 BC 濕重的測量方法而且 BC 做為一個可食用之天然材料，若是用來當作過濾廢棄工業用油(正己烷)，雖有良好的排油效率，但似乎是一個較為可惜的用途。而大豆油常常應用於食品與醫藥領域，例如軟膠囊內的填充輔料，這也是本實驗選用大豆油做為過濾油品之原因，以證明 BC 是否具有阻止油滲透之功能。

(藍, 2017)說明了測量濕重的方法不同，往往會造成實驗結果不符合實際情形，而且各論文計算含水量的方法也不同，常見的方法如 Eq. 2.4-1、Eq. 2.4-2，當使用 Eq. 2.4-1 來計算含水量時，不能反應出水量的多或少，例如:當測量物品乾重為 1g 時，吸水重量分別為 10g 和 100g，計算出來的含水量為 90.9%和 99%，兩者差 0.1 倍；而 Eq. 2.4-2 所計算出來為 10(g H₂O/g dry BC)和 100(g H₂O/g dry BC)，兩者差了 10 倍，因此本實驗採用 Eq. 2.4-2 來計算含水量。

$$\text{Moisture content} = [(\text{濕重}-\text{乾重})/\text{濕重}] \times 100\% \quad \text{Eq. 2.4-1}$$

$$\text{Water holding capacity (WHC)} = (\text{濕重}-\text{乾重})/\text{乾重} \quad \text{Eq. 2.4-2}$$

(Hassan et al., 2017)對於 BC 薄膜來說，厚度的增加會導致純水通透性的下降，但是(藍, 2017)指出 BC 之 WHC 多寡也與其內部結構、通透性相關，亦及 WHC 較高的 BC 其內部纖維的結構是較鬆散的，而內部結構較為緊密的 WHC 會較低。由此可知，若量測濕重的方法或是所採用的公式不能準確的測量出含水量及濕重，就不能描述 WHC 與水通透速度之關聯。此外，BC 本身具可食用、素食、高親水性的特色，因此若是能夠培養出具有不同 WHC 之 BC，即代表具有不同的水通透速度，將會是一種具有潛力應用於控制藥物釋放之材料，因此本實驗將使用先前實驗室訂立的瀝乾準則，能夠客觀的描述實際濕重情形，找出 BC 之 WHC，並利用過濾方程式(於 2.5 節中說明)來計算 BC 之 WHC、厚度與水通透速度之關聯。



2.5 過濾

2.5.1 過濾速度方程式

過濾是分離程序中的一種單元操作，是採用一多孔材料作為介質，藉由重力或壓力等作用，使流體經過介質後產生分散相和連續相分離的行為。這是因為流體經過介質時，分散相會因粒徑大小、親疏水性、正負電荷性等關係，被過濾介質所攔截，並在介質上形成濾餅(Cake)，而達成與連續相分開的效果。常見的有氣-固、液-固、液-液分離等.....。

一般而言過濾方式可以分以下為三種，而本實驗採用的是第一種。

- (1) 恆壓過濾:在過濾操作過程中壓力維持不變，過濾速度隨時間下降，是三種操作中最簡單的。
- (2) 恆速過濾:在過濾操作過程中使壓力逐漸升高，以保持過濾速度為一定值。
- (3) 先恆壓再恆速過濾:過濾前期先以恆壓過濾，當過濾速度下降時，再增加壓力。

在流體在分離過程中會受到的總阻力(R_t)可表示為以下公式:

$$R_t = R_C + R_m \quad \text{Eq. 2.5-1}$$

R_C =濾餅給予流體之阻力，在此稱為濾餅阻力(Resistance of cake, R_C)。

R_m =介質給予流體之阻力，在此稱為薄膜阻力(Resistance of membrane, R_m)，與過濾介質材料之物性、孔洞大小有關。

而要計算過濾速度，需要用到的過濾方程式是由 Darcy's law 所發展出來的，水流經過不同厚度的沙層時，水流速度會與沙層厚度成反比和壓力成正比，並可以寫成 Eq. 2.5-2，其中 k 值與流體性質(黏度)與介質物性有關，因此又可改寫為 Eq. 2.5-3，其中 B 值只與介質物性有關。

$$u_c = k \frac{|\Delta P|}{L} \quad \text{Eq. 2.5-2}$$

$$u_c = B \frac{|\Delta P|}{\mu \times L} \quad \text{Eq. 2.5-3}$$

$$u_c = \frac{1}{A} \frac{dV}{dt}$$

u_c = 流體的平均流速 (m/sec)

A = 流體通過的介質之面積 (m^2)

V = 在 t 時間，流體通過介質之體積 (m^3)

k = 為一常數，與過濾介質物性和流體性質相關 (m^3s/kg)

B = Permeability coefficient, 只與過濾介質物性相關之係數 (m^2)

$|\Delta P|$ = 壓力差 (N/m^2)

μ = 流體黏度 ($kg/m\text{-sec}$)

L = 過濾介質之厚度 (m)

(Carman, 1937; Kozeny, 1927)等人結合了 Hagen-Poiseuille's equation 如 Eq. 2.5-4，並提出了 Kozeny-Carman equation 如 Eq. 2.5-5，可以用來描述水流經過填充床時之速度關係式，而在過濾過程中，除了最初一段時間，濾液會以層流 (Laminar Flow) 方式流動，水流速度因此會遵守 Eq. 2.5-5。

$$Q = \frac{\pi R^4 |\Delta P|}{8\mu l_t} \quad \text{or} \quad u = \frac{d_t^2 |\Delta P|}{32\mu l_t} \quad \text{Eq. 2.5-4}$$

$$u_c = \left[\frac{1}{k'' S_B^2} \right] \frac{|\Delta P|}{\mu L} \quad \text{Eq. 2.5-5}$$

Q = 體積流率 (m^3/sec)

R = 管半徑 (m)

$|\Delta P|$ = 壓力差 (N/m^2)

μ = 流體黏度 ($\text{kg}/\text{m}\cdot\text{sec}$)

l_t = 管長度 (m)

d_t = 管直徑 (m)

u = Intrinsic velocity (m/s)

u_c = Superficial velocity (m/s)

k'' = Kozeny's constant

S_B = 單位體積填充床之比表面積 (m^2/m^3)

ε = 填充床之孔隙度

L = 填充床床高 (m)

因為本實驗過濾介質選用薄膜，因此本實驗由 Kozeny-Carman equation 發展出來的 Ruth equation 如 Eq. 2.5-8(Mahwachi et al., 2020; Ruth, 1946; Udegbumam et al., 2018)過濾時利用 t/V 與 V 作圖，如 Fig. 2.5-1，可得一直線，由斜率可求得 α ，由截距可求得 R_m ，以此計算公式作為基準，找出 BC 之 R_m 和 WHC、厚度之關係式，以估計不同 WHC、厚度之 BC 對於水通透速度。

$$u_c = \frac{1}{A} \frac{dV}{dt} = \frac{|\Delta P| \times g_c}{\mu(R_m + R_c)} = \frac{|\Delta P| \times g_c}{\mu(R_m + \frac{\alpha CV}{A})} \quad \text{Eq. 2.5-6}$$

整理上式可得

$$\frac{dt}{dV} = \frac{\alpha \mu C}{A^2 |\Delta P| g_c} V + \frac{\mu}{A |\Delta P| g_c} R_m \quad \text{Eq. 2.5-7}$$

將上式積分可得

$$\frac{t}{V} = \frac{\alpha \mu C}{2A^2 |\Delta P| g_c} V + \frac{\mu}{A |\Delta P| g_c} R_m \quad \text{Eq. 2.5-8}$$

t = 過濾時間(sec)

α = 過濾比阻(m/kg)

μ = 過濾液體黏度 (kg/m-sec)

C = 過濾液濃度 (kg/m³)

A = 過濾面積(m²)

$|\Delta P|$ = 壓力差 (kg/m²)

$g_c = 9.8(\text{m/s}^2)$

V = 過濾體積(m³)

R_m = 薄膜阻力(m⁻¹)

R_c = 濾餅阻力(m⁻¹)

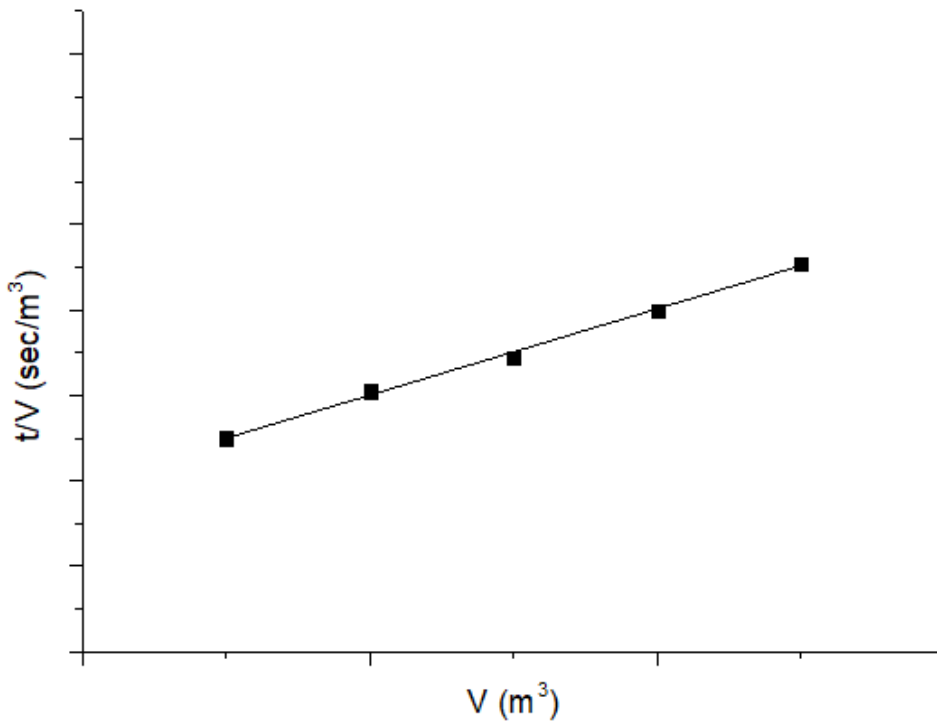


Fig. 2.5-1 V 對 t/v 之關係圖

若是於不同的壓力差下進行恆壓過濾，有可能會獲得不同的 α 值，若 α 不隨著 $|\Delta P|$ 增加而改變，則為濾餅為不可壓縮；若 α 隨著 $|\Delta P|$ 增加而增加，則為可壓縮，而 α 與 $|\Delta P|$ 之關係式如 Eq. 2.5-9。

$$\alpha = \alpha_0 \times |\Delta P|^n \quad \text{Eq. 2.5-9}$$

將上式取對數可得

$$\log \alpha = n \times \log |\Delta P| + \log \alpha_0 \quad \text{Eq. 2.5-10}$$

以 $\log |\Delta P|$ 對 $\log \alpha$ 作圖，由斜率可求得 n 值，截距求得 α_0 ， n 為壓縮係數(Compressibility index)，對於不可壓縮濾餅 $n=0$ ，而可壓縮性濾餅 $n= 0.2 \sim 0.8$ 。

2.5.2 不同的過濾膜

(Harker et al., 2013)工業上的薄膜分離程序可以依照分離的尺寸大小及驅動力不同來做分別，大致可分為: Microfiltration (MF)、Ultrafiltration (UF)、Nanofiltration (NF) and Reverse osmosis (RO)，如 Table. 2.5-1 所示。最初使用的薄膜材料大部分為天然的纖維素，但隨著工業上的發展逐漸被人工合成材料所取代，如: 聚醯胺、聚砜、聚碳酸酯等。(Teow et al., 2020)膜分離技術一直以來是化學工程的重點研究項目之一，常應用於廢水處理，比起其他分離技術，膜分離的優點如: 可於室溫下操作，然而大部分的市售過濾膜皆因為其成本低，雖然更利於實施工業上的應用，但是在生產過程中往往會造成環境上的破壞，如: 聚偏二氟乙烯 (PVDF)，或其餘石油來源製成的薄膜，因此近年來人們反而對於由天然聚合物所形成的薄膜有更多的討論。

Table. 2.5-1 不同薄膜程序之分類(Harker et al., 2013)

Name of process	Driving force	Separation size range	Examples of materials separated
Microfiltration	Pressure gradient	10-0.1 μ m	Small particles, large colloids, microbial cells
Ultrafiltration	Pressure gradient	<0.1 μ m – 5nm	Emulsions, colloids, macromolecules, proteins
Nanofiltration	Pressure gradient	~1 nm	Dissolved salts, organics
Reverse osmosis	Pressure gradient	<1 nm	Dissolved salts, small organics
Electrodialysis	Electric field gradient	<5 nm	Dissolved salts
Dialysis	Concentration gradient	<5 nm	Treatment of renal failure

(Feng et al., 2020)將商用尼龍薄膜利用了 reduced graphene oxide (RGO)/poly-dopamine (PDA)/titanium carbide (MXene) 進行改質以增強薄膜的親水性，希望能去除廢水中的油，並以 0.1 MPa 的恆壓下進行過濾實驗，結果表示經複合薄膜過濾後，濾液中無明顯油滴，說明乳液中油分離成功，雖有良好的排斥油的特性，但是文中並未提及長時間操作時，對膜通量下降的影響程度。

(Deng et al., 2019)常用的膜材料，如聚偏二氟乙烯 (PVDF)、聚四氟乙烯 (PTFE)、聚砜 (PSF) 和聚丙烯 (PP) 是疏水性的，但這些膜在分離過程中容易被油污染，進而限制了它們的使用性。因此作者將疏水性的 PVDF 薄膜以 poly(methyl methacrylate-co-glycidyl methacrylate) (P(MMA-co-GMA)) 和 polyethyleneimine (PEI) 作為改質劑以增加其親水性，過濾後的水無油滴的存在，如 Fig. 2.5-2，其對油的排斥係數高於 98%。

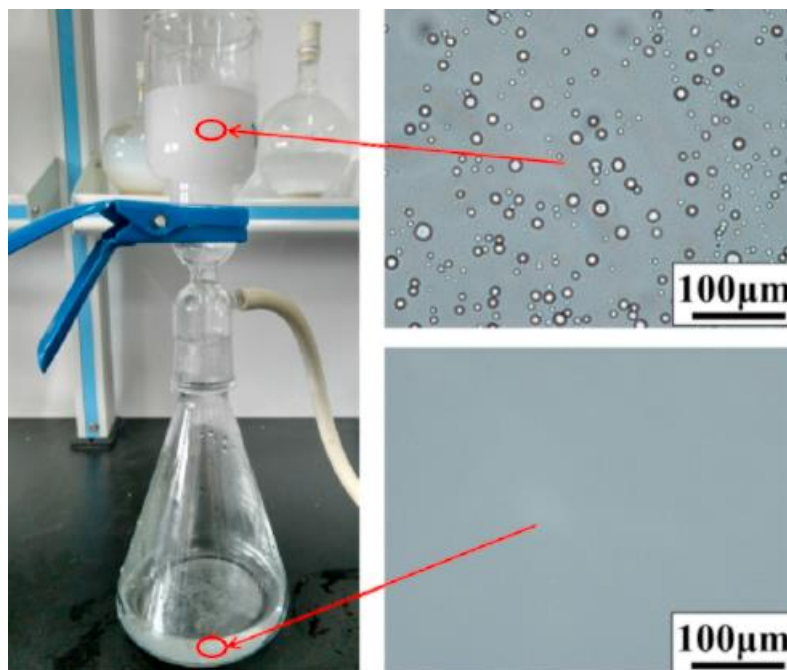


Fig. 2.5-2 使用光學顯微鏡觀察過濾前後溶液中的油滴(Deng et al., 2019)

(Abdalla et al., 2020)由於 Polysulfone (PS)膜優異的機械性能以及溫度和化學穩定性而被廣泛使用在廢水處理過濾膜。然而最大的挑戰是提高 PS 膜的性能和抗污染性，因為 PS 膜的疏水性導致它們容易結垢，因此作者將 graphene oxide (GO)以 aspartic acid(AA)進行改質並與 PS 混和形成複合膜，希望能引入親水性的官能基進而增加其親水性，實驗結果表明其對油的排斥係數可大於 95%，此外，亦透過過濾 Bovine Serum Albumin (BSA)來證明其具有優異的防汙染特性並具有 90%的通量恢復率，如 Fig. 2.5-3。

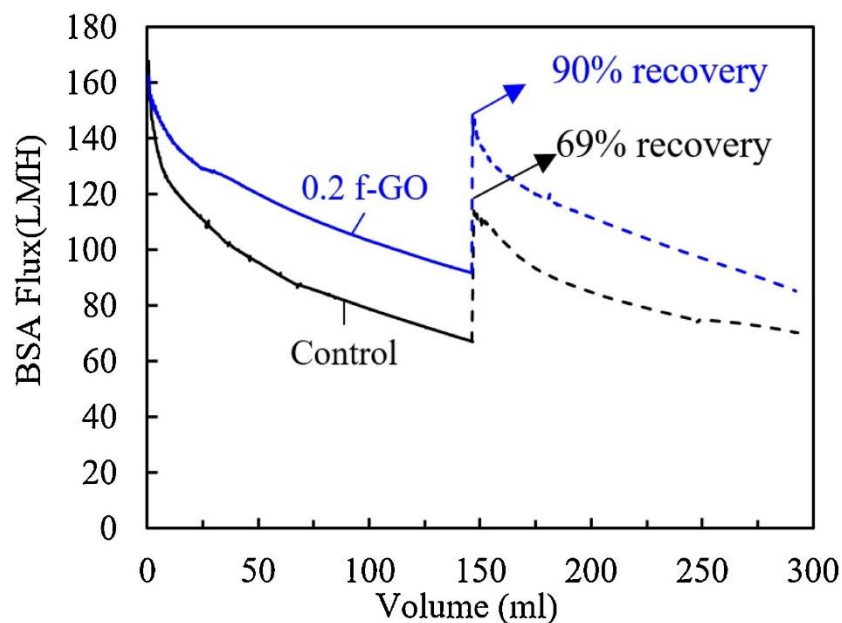


Fig. 2.5-3 添加了 0.2 wt.%的官能化之 GO 所改質的薄膜其過濾 BSA 之過濾通量與過濾通量恢復圖(Abdalla et al., 2020)

(Xue et al., 2017)指出許多文獻採用了一系列方法來賦予膜親水性、高水通量和長期運行的特性，常常利用的方法是在膜表面塗層或表面改質，因此作者將 PTFE 薄膜以 catechol (CA) and polyethyleneimine (PEI) 在浸於 γ -(2,3-epoxypropoxy) propyltrimethoxysilane (KH560)進行改質，研究了改質條件對改性膜親水性和過濾油水性能之影響，最終實驗結果當操作壓力小於 0.1 MPa 時，其截油率接近 99% ，但隨著壓力提升對油阻擋的效果則明顯下降。此外，表面塗層會在強鹼環境下(pH=14)會溶解。

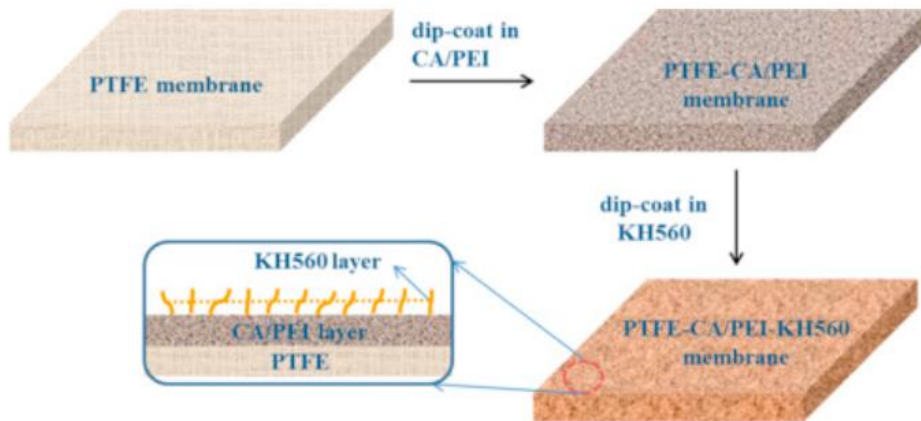


Fig. 2.5-4 PTFE 薄膜進行改質之示意圖(Xue et al., 2017)

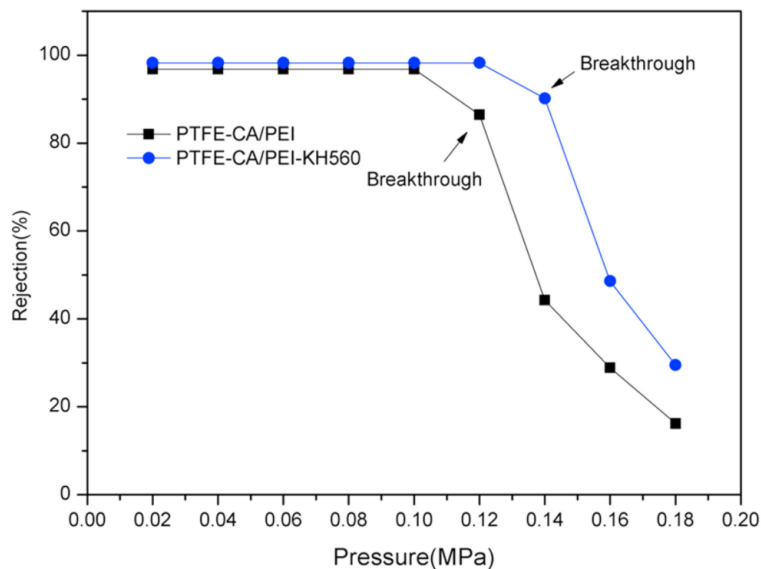


Fig. 2.5-5 改質之 PTFE 薄膜隨過濾壓力增加時其截油率之變化(Xue et al., 2017)

許多參考文獻中並沒有求出薄膜阻力，而是只有求出 flux(L/m²-hr)，由於 flux 值會受到 μ 、 $|\Delta P|$ 等影響，且若有過濾物質則 flux 亦會隨時間下降而非定值，因此為了方便比較過濾速度快慢，採用 R_m 來判斷各個薄膜之過濾速度，是一個更加快速的方法，由於部分文獻僅提供 flux 的資訊，在此利用其提供之資訊幫其計算出大約的 R_m 或直接整理於 Table. 2.5-2，以供比較。

Table. 2.5-2 不同薄膜種類之 R_m

薄膜	R_m (m ⁻¹)	Reference
細菌纖維素	1.01×10^{12}	(Zhuang et al., 2020)
細菌纖維素-2 天收成	4.75×10^{12}	(Hassan et al., 2017)
細菌纖維素-10 天收成	8.00×10^{12}	
未乾燥 BC-5 天收成	4.95×10^{12}	(Lehtonen et al., 2021)
乾燥 BC-5 天收成	4.81×10^{13}	
BC(粉末) +cMWCNTs+Chitosan	1.46×10^{13}	(Zhijiang et al., 2018)
Chitosan membrane	3.51×10^{13}	
NF270	2.46×10^{13}	(Listiarini et al., 2009)
Polyamide PA-20	4.70×10^{12}	(Persson et al., 1995)
Polysulfone PS-100	1.30×10^{12}	
Cellulose acetate CA-100	2.20×10^{12}	
PSf/NMP/PVP	1.90×10^{12}	(Chakrabarty et al., 2008)
PSf/DMAc/PVP	9.12×10^{12}	
PSf/NMP/PEG	2.60×10^{11}	
PSf/DMAc/PEG	1.35×10^{12}	
Cellulose acetate/ bam- boo-based lignocellulose nanofibrils	3.27×10^{12}	(Yang et al., 2020)
Nylon membrane filter (Pore Sizes = 0.22 μ m)	7.07×10^{10}	市售

Table. 2.5-2 總結了一些來自天然可再生或是人工合成的薄膜其薄膜阻力，其中市售的 Nylon 薄膜具有最低的薄膜阻力，因此便可直觀的得知其過濾速度最快。而當中薄膜阻力最高是(Lehtonen et al., 2021)經乾燥處理的 BC，文中作者將未乾燥與乾燥過後的 BC 量測其純水通量，但文中作者並未計算出薄膜阻力，經計算過後可以發現兩者薄膜阻力差了將近 1 個級數，然而若是只單看 flux 的數值，若是沒有標明操作時的 μ 、 $|\Delta P|$ ，則可能會造成誤會或是不直觀的比較，因此若是計算出 R_m 數值後，便可預測於不同壓力差下、不同流體黏度下時所需要的過濾時間。

在討論過濾薄膜的選擇時，不能單純只討論薄膜阻力的大小，還需要考量到薄膜機械性質、對於過濾物質的選擇性、可重複使用次數、能夠維持一定時間高通量而不快速衰退的表現等等.....。常見的應用於油水過濾薄膜之材質，如 PVDF、PS、PP、PTFE、Nylon 等薄膜，憑藉優秀的化學穩定性並具有合適的孔隙度被廣泛的應用於油水過濾膜之材質，但其缺點為本身來自不可再生資源且需要經過改質以增強親水性，才具有優秀的油水分離效果，但在改質的過程中，往往會使用有毒的有機溶劑來製備，反而對環境造成了更多的破壞。

(Yang et al., 2020)等文獻使用了來自於天然植物的纖維素作為薄膜的原料，雖然具有良好的生物可分解性但為了提高分離效能又需添加其他物質來增進效能。(Hassan et al., 2017; Lehtonen et al., 2021; Zhuang et al., 2020)皆直接使用細菌纖維素作為過濾薄膜，BC 本身為天然可再生資源，亦具有優異的機械性質，不需經過改質便具有高度親水性，但對於細菌纖維素之含水量、厚度是如何影響細菌纖維素之薄膜阻力則並尚未有明確的文獻說明，因此本研究將會著重討論細菌纖維素之含水量、厚度對於過濾之影響。

第三章 實驗與方法



3.1 實驗菌株

本研究是使用 *Gluconacetobacter xylinus*，菌株編號為 BCRC12334，是從食品工業發展研究所生物資源保存及研究中心購入冷凍乾燥管，其經菌瓶開封及活化之後，再塗於固態培養基上保存，並存放於 4°C 冰箱中，作為預培養及主培養的菌落來源，每一個月會將其移至全新的固態培養基保存，以維持細菌的活性，其於固態培養基的型態如 Fig. 3.1-1。

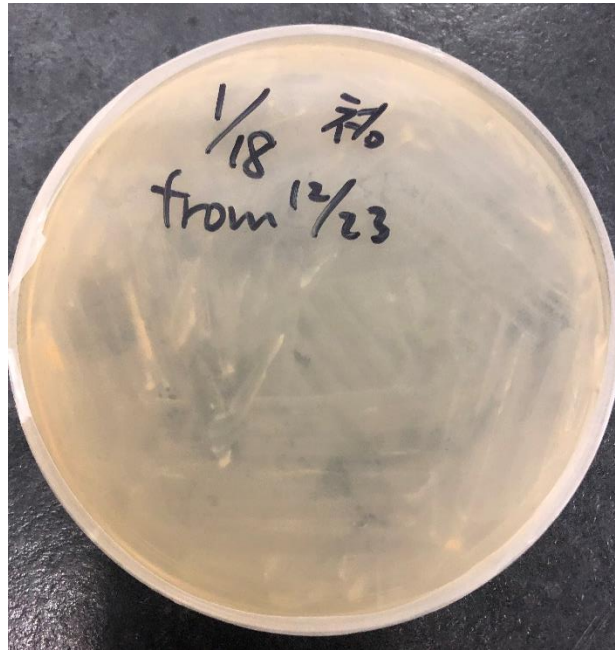


Fig. 3.1-1 實驗菌株於固態培養基上之示意圖

3.2 生產細菌纖維素之實驗步驟

3.2.1 製作固態培養基



固態培養基是於菌株保存時所使用，其組成如 Table. 3.2-1 所示，其製作步驟如下：

- (1) 先依照 Table. 3.2-1 配好實驗所需藥品之重量，並用 DI water 將其混和均勻倒入血清瓶中，瓶蓋需稍稍鬆開，避免因壓力差而爆瓶，與其他器材放入滅菌釜中以高溫高壓滅菌，注意配置的容量不可超過血清瓶總容量的 80%，否則在滅菌過程中會因液體沸騰流出而損耗培養基。
- (2) 等待藥品滅菌時，將滅菌過的塑膠培養皿外表噴灑 75% 酒精，再放入無菌操作台中照射 30 分鐘的紫外光。
- (3) 固態培養基液體滅菌完成後，待其稍微冷卻便於拿取，將其移至無菌操作台中照射紫外光 30 分鐘，注意不可冷卻至 40°C 以下
- (4) 將培養基倒入培養皿中，約培養皿一半之容量，等其完全冷卻至固態，再蓋上蓋子，並用 Parafilm M® 纏繞蓋口處使之完全密封。
- (5) 將固態培養基移至恆溫 26°C 之培養箱中並倒放，並觀察 2 天，看是否有雜菌汙染，若無則可以等待使用。

3.2.2 預培養

預培養是於主培養前所需的步驟，目的是要活化菌株，其組成如 Table. 3.2-2 所示，其實驗步驟如下：



- (1) 依照 Table. 3.2-2 配好實驗所需藥品之重量，並用 DI water 將其混和均勻倒入血清瓶中，瓶蓋需稍微鬆開，與其他器材一起放入滅菌釜中以高溫高壓滅菌，注意配置的容量不可超過血清瓶總容量的 80%，否則在滅菌過程中會因液體沸騰流出而損耗培養基。
- (2) 滅菌完成後將各容器外表噴灑 75% 酒精並移至無菌操作台中，以紫外光照射 30 分鐘，並等其降至室溫以便於操作。
- (3) 在 250 ml 的玻璃錐形瓶中，倒入 50 ml 的預培養基，從 4°C 的冰箱中取出具有菌株的固態培養基，並以白金接種環適量的刮取菌株接種至錐形瓶中。
- (4) 將錐形瓶蓋上透氣活塞，並放入 26°C 的恆溫培養箱，以 100 rpm 的轉速，迴旋培養一天。

3.2.3 主培養

主培養之目的為讓醋酸菌生長並合成出細菌纖維素，而本實驗用的培養基為 Hestrin-Schramm medium (Hestrin et al., 1954)，其組成如 Table. 3.2-3 所示，其實驗步驟如下：


- (1) 依照 Table. 3.2-3 配好實驗所需藥品之重量和額外的碳源，並用 DI water 將其混和均勻再以氫氧化鈉溶液或鹽酸溶液調整其 pH 值，倒入血清瓶中，瓶蓋需稍微鬆開，與其他器材一起放入滅菌釜中以高溫高壓滅菌，注意配置的容量不可超過血清瓶總容量的 80%，否則在滅菌過程中會因液體沸騰流出而損耗培養基。此外，若是在培養基中有加入葡萄糖作為額外的碳源，則需要將葡萄糖溶液與其他培養基分開滅菌，因為葡萄糖在高溫下容易與胺基酸或其他含氮物質產生類黑精 (melanoidin)，此物質可能會使細菌生長異常。
- (2) 滅菌完成後將各容器外表噴灑 75% 酒精並移至無菌操作台中，以紫外光照射 30 分鐘，並等其降至室溫以便於操作。
- (3) 在 250 ml 的玻璃錐形瓶中，倒入 50 ml 的主培養液，並從預培養基的錐形瓶中吸取主培養液體積的 10% 之預培養澄清液，注意不要吸到預培養生成的細菌纖維素。
- (4) 將其稍微搖勻後，錐形瓶蓋上透氣活塞，並放入 26°C 的恆溫培養箱，靜置培養。

3.2.4 產物處理

- (1) 將生長好之細菌纖維素薄膜，從錐形瓶中取出並泡入清水中，將多餘的培養基從表面洗掉，再泡入 0.5M 之氫氧化鈉溶液 25 分鐘，以脫去內部雜質。
- (2) 將鹼處理過後的細菌纖維素，泡在 80°C 的熱水中，重複清洗細菌纖維素至外觀呈白色或半透明。
- (3) 利用鹽酸將其 pH 值調整至中性，將其泡在 DI water 中，放入 4°C 冰箱中保存以便後續實驗。



Table. 3.2-1 固態培養基之成分



固態培養基成分 (g/L)	
Yeast extract	5.0
Peptone	3.0
D-Mannitol	25.0
Agar	15.0

Table. 3.2-2 預培養基之成分

預培養基之成分 (g/L)	
Yeast extract	5.0 g
Peptone	3.0 g
D-Mannitol	25.0 g

Table. 3.2-3 主培養基之成分

主培養基之成分 (g/L)	
Yeast extract	5.0 g
Peptone	5.0 g
Na ₂ HPO ₄ · 12H ₂ O	2.7g
Citric acid	1.15g

3.3 細菌纖維素含水量(Water Holding Capacity, WHC)之量測



本實驗採用的含水量量測方法，是沿用先前本實驗室訂的瀝乾法(藍, 2017)。其量測裝置如 Fig. 3.3-1，是在一個密閉的空間中，量測重量的電子天平外接電腦，以量測重量隨時間的變化，其步驟如下：

- (1) 將處理好之細菌纖維素以剪刀裁剪為 4 cm × 4 cm 之大小再泡入去離子水中等待實驗。
- (2) 將量測裝置放在天平上，把電子天平歸零，再將密閉空間內的內壁噴水，並關上門，待箱內溼度達 97% 以上。
- (3) 將細菌纖維素擺放於鐵絲網上，擺放方法為主培養時接觸培養液的那面與鐵絲接觸，鐵絲網及擺放示意圖如 Fig. 3.3-2、Fig. 3.3-3，並利用 RsWeight 軟體紀錄重量變化如 Fig. 3.3-4。
- (4) 根據(藍, 2017)的所建立的瀝乾準則，如 Table. 3.3-1 瀝乾法之準則， ΔT (min) 代表水滴落下的時間間隔，當持續 ΔT (min) 沒有水滴從纖維素上落下，代表瀝乾實驗完成，將最後一滴水落下時的重量扣除鐵絲網重，即可求得細菌纖維素之濕重(W_{wet})。
- (5) 將細菌纖維素放入烘箱利用熱風乾燥 24 小時，至乾重不再變化，即為細菌纖維素之乾重(W_{dry})，再利用 Eq. 2.4-2，即可求得 WHC。



Fig. 3.3-1 瀝乾法之實驗裝置圖

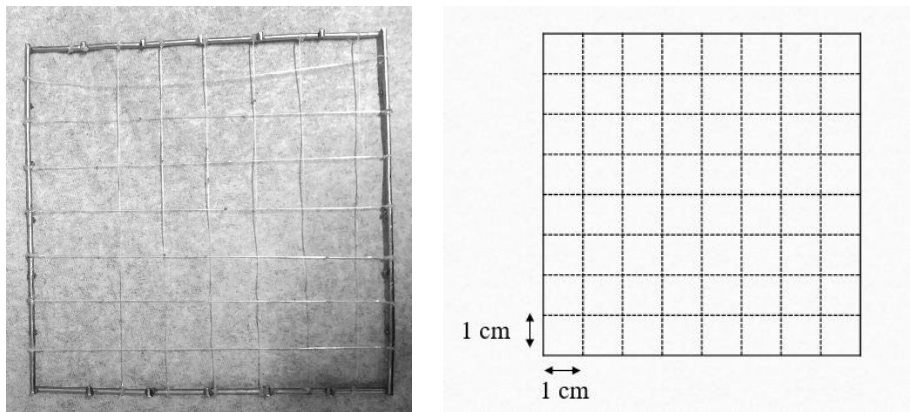


Fig. 3.3-2 鐵絲網示意圖

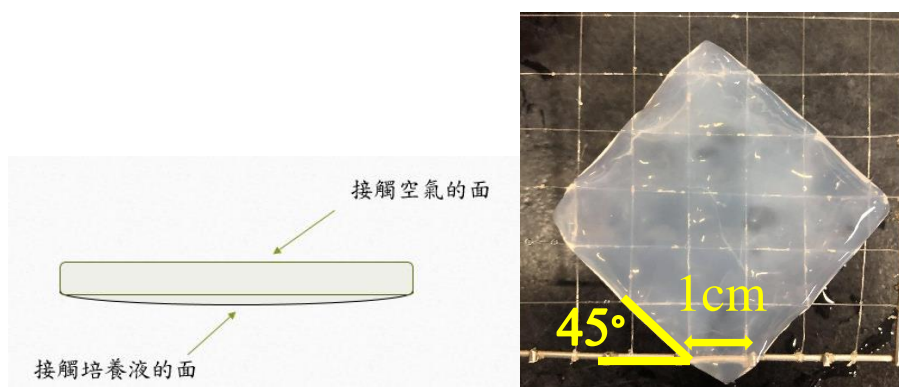


Fig. 3.3-3 細菌纖維素擺放於鐵絲網上之示意圖

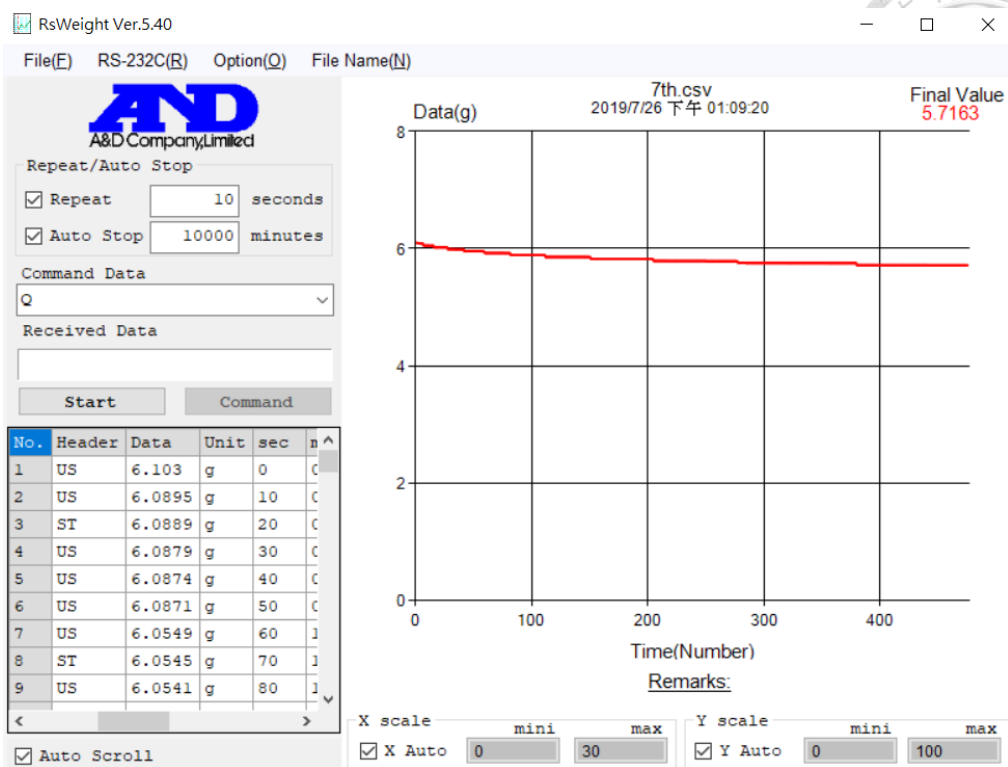


Fig. 3.3-4 電子天平紀錄濕重之變化圖

Table. 3.3-1 瀝乾法之準則

ΔT	6 分鐘
面積	4cm × 4cm
擺放方式	靠培養液面朝鐵絲網，並與鐵絲網邊界成 45° 突出的的三角形最長邊為 1 cm

3.4 定量大豆油乳液濃度

本實驗採用大豆油作為過濾物質，將其配置成不同濃度之水溶液，並利用 UV-Vis 量測其濃度與 OD 值之關係作為定量之檢量線，實驗步驟如下：

- (1) 秤取不同重量(20mg、40mg、80mg、100mg)之大豆油，再加入 1L 的去離子水(pH=7)，在室溫下利用超音波均質機如 Fig. 3.4-1 (a)，將其震盪均勻，最終乳液會呈現混濁狀如 Fig. 3.4-1(b)。

(a)



(b)

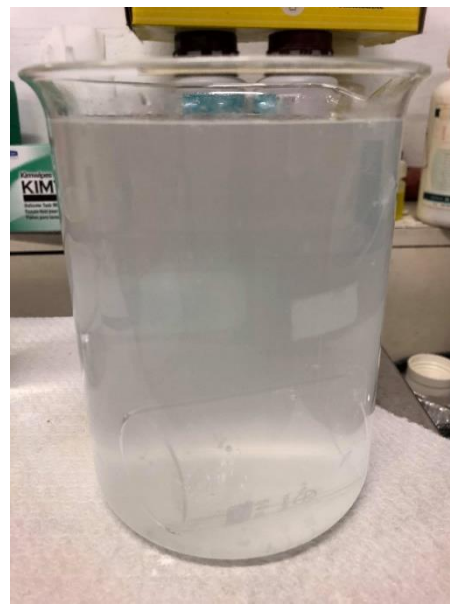


Fig. 3.4-1(a)超音波震盪大豆油乳液 (b)均質完的大豆油乳液(濃度 100mg/L)

(2) 在波長 600nm 下量測不同濃度溶液之 OD 值，將濃度與 OD 值作圖，便可由斜率求得大豆油濃度與 OD 值之關係，而大豆油乳液之濃度檢量線如 Fig. 3.4-2 所示。靜置時間對於均質後大豆油乳液 OD 值之影響如 Fig. 3.4-3，可以看到其 OD 值在兩小時內並無明顯的下降，表示均質後的乳液可以維持至少兩小時的乳液狀而不會產生明顯的兩相油水分離。油滴粒徑大小隨時間變化如 Fig. 3.4-4。

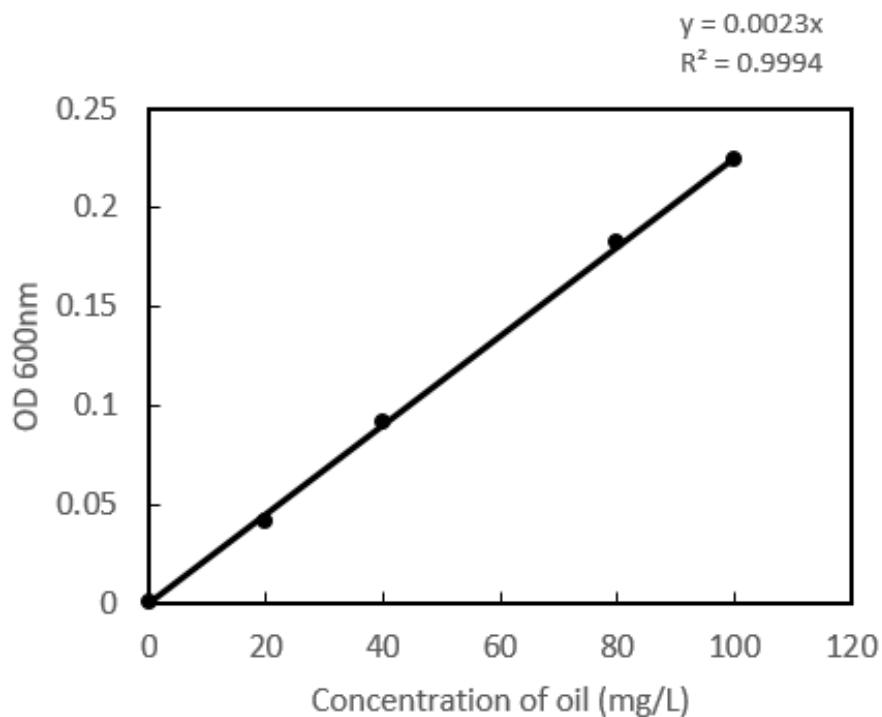


Fig. 3.4-2 大豆油乳液之檢量線

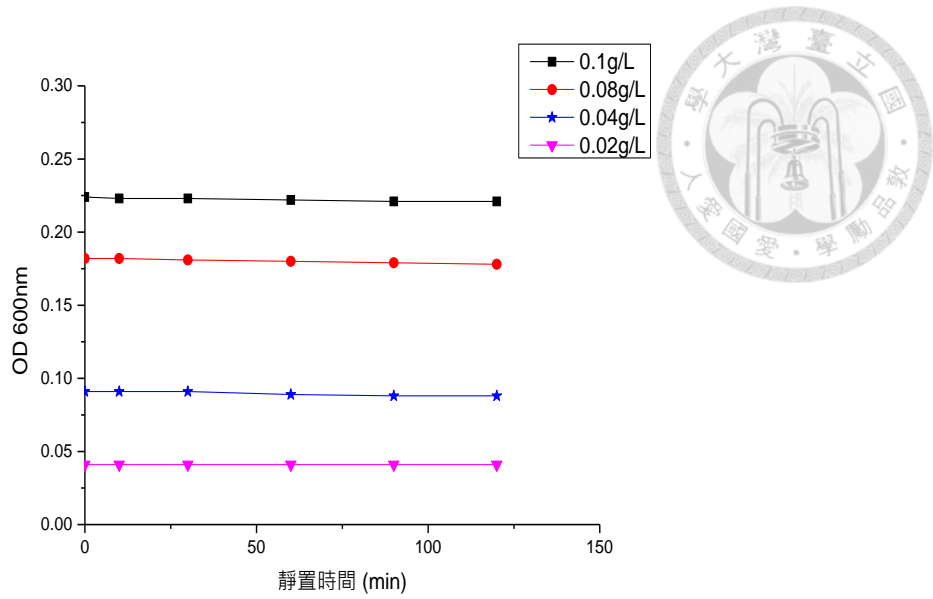


Fig. 3.4-3 靜置時間對於大豆油 OD 值之影響

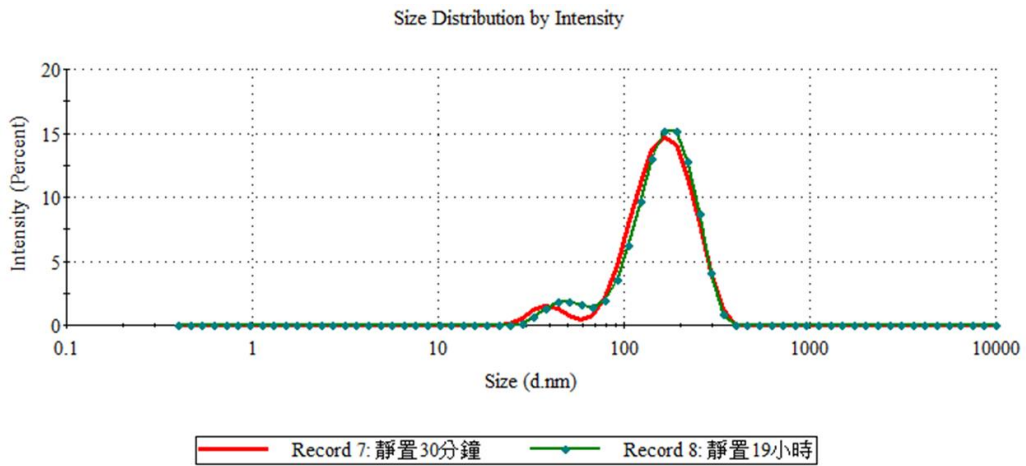


Fig. 3.4-4 0.1g/L 大豆油乳液粒徑隨時間變化之分析圖

3.5 細菌纖維素薄膜之過濾實驗

本實驗採用 dead-end 恆壓過濾，過濾裝置如 Fig. 3.5-1 所示，壓力來源為真空幫浦，並透過壓力調節閥來控制實驗所需之壓力；過濾支撐座為燒結玻璃，過濾面積為 9.62 cm²，以每 50ml 為單位來紀錄溶液隨時間的變化量，每次實驗各組至少重複三次，其實驗步驟如下：

- (1) 預先均質好 0.1g/L 之大豆油乳液，再將處理好之細菌纖維素薄膜裁剪置約大於 9.62 cm² 之大小，放到燒結玻璃支撐座上如 Fig. 3.5-2 並夾好，在本篇論文中由於過濾液濃度相當稀薄，因此均假設黏度與水 26°C 時 $\mu = 0.89 \times 10^{-3}$ (kg/m-sec) 相同來做計算。
- (2) 在過濾裝置上方倒入去離子水，並打開抽氣幫浦，調整實驗所需壓力，並記錄下過濾純水的體積與時間之關係。
- (3) 將過濾裝置上方倒入配置好之乳液，並紀錄下過濾乳液的體積與時間之關係，帶入公式，即可求得過濾比阻(α)與薄膜阻力(R_m)。
- (4) 過濾至一定的時間後，取底部的過濾液，量測其吸光度，並計算出濃度後以 Eq. 3.5-1 求出對油的排斥係數，之後將裝置上的薄膜拿下來並反向過濾純水 50ml，即反沖洗，將清洗完的薄膜，轉回正面，並重複步驟(3)、步驟(4)五次或至薄膜破損，即實驗結束。

$$R(\%) = \left(1 - \frac{C_P}{C_F}\right) \times 100\%$$



R = rejection coefficient (%)

C_P = the concentration of oil in the permeate (g/L)

C_F = the concentration of oil in the feed stream (g/L)

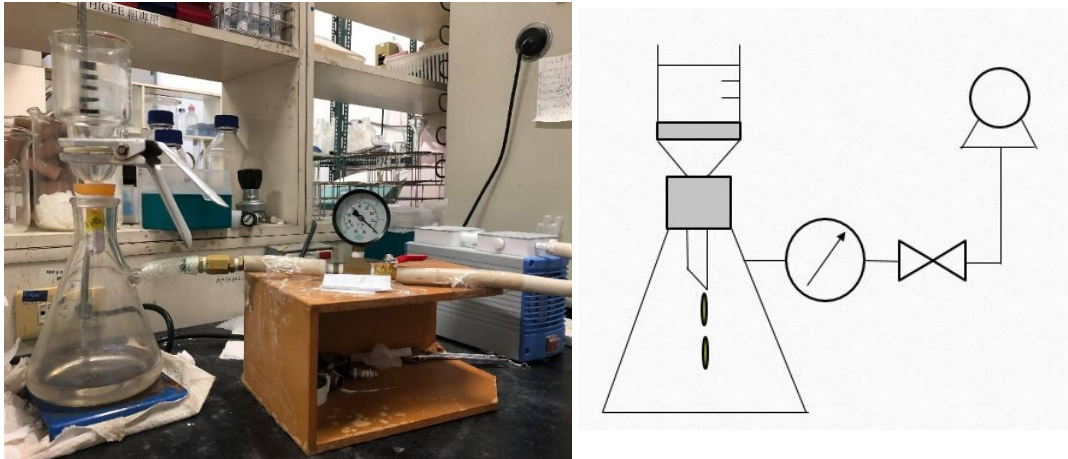


Fig. 3.5-1 左:實際過濾裝置圖；右:過濾裝置示意圖



Fig. 3.5-2 細菌纖維素放置於過濾支撐座上

3.6 實驗藥品



Table. 3.6-1 實驗藥品等級與廠牌

名稱	等級	廠牌
Yeast extract	分析級	Conda, Spain
Peptone enzymatic digest from soybean	試藥級	Fluka, Germany
D-Mannitol	試藥級	Alfa Aesar, USA
Agar, granulated	-	BD, France
Na ₂ HPO ₄ · 12H ₂ O	試藥級	NACALAI Tesque, Japan
Citric acid	試藥級	Nihon Shiyaku Reagent, Japan
D-(+)-Glucose	試藥級	Sigma-Aldrich, USA
氫氧化鈉	試藥級	帝一化工
Glycerol	試藥級	林純藥, Japan
Ethanol	工業級	景明化工
Hydrochloric acid	試藥級	Sigma-Aldrich, USA
福壽沙拉大豆油	食用級	福壽實業股份有限公司

3.7 實驗儀器



Table. 3.7-1 實驗儀器型號與廠牌

名稱	型號	廠牌
滅菌釜	YAC-302	EVERNEW
恆溫震盪培養箱	LM-590	YIH DER
烘箱	-	YIH DER
塑膠培養皿	-	Uniregion Biotech
加熱磁石攪拌器	-	CORNING
無菌操作台	-	海天
含水量測定裝置	-	先前實驗室製作
pH 計	PL-700PV	RBS
電子天平	HR-250AZ	AND
4 °C 冰箱	GR-282MVF	GoldStar
電子濕度計	DTM-323	TECPEL
均質機	XL-2020	SONICATOR
真空幫浦	CHEMKER400	ROCKER
真空壓力計	60mm 1/4"	IK

第四章 實驗結果與討論



4.1 細菌纖維素培養條件及過濾條件

傳統的 Hestrin-Schramm medium (HS medium) 起始 pH 值設定為 6.0 (Hestrin et al., 1954)，而在微生物代謝過程中會產生葡萄糖酸使得培養基的 pH 值下降，而 pH 值低於 3.5 以下會使纖維素的產量降低或是無法合成出纖維素(謝, 2010)。而在本實驗先將起始 pH 值固定在 5.5，額外碳源採用純葡萄糖，濃度為 20 g/L，亦即 2.0 (w/v)%，經七天靜置培養後所收成的薄膜厚度約為 2 mm，以此來測試出過濾的操作條件。其代號如：pH5.5+glu2，即為起始 pH 值為 5.5，碳源為葡萄糖，碳源總濃度為 2.0 (w/v)%。

Table. 4.1-1 細菌纖維素培養條件及過濾條件

培養基組成	HS medium
培養容器	250 ml 錐形瓶
初始培養基體積	50 ml
初始培養基 pH 值	5.5
植菌來源	預培養菌液
植菌濃度	10 (v/v) %
培養碳源	葡萄糖
培養時間	7 天
碳源總濃度	2.0 (w/v)% (20 g/L)
培養溫度	26 °C
培養方式	靜置培養
過濾面積(A)	$9.62 \times 10^{-4} \text{ m}^2$
過濾前一片薄膜厚度(L)	2 mm
$ \Delta P $	40~70 cmHg
過濾液濃度	0.1g 大豆油+ 1.0L 去離子水
過濾液黏度	$0.89 \times 10^{-3}(\text{kg/m-sec})$

4.2 過濾壓力選擇

(Ng et al., 2019)說明了過高的過濾壓力下可能會導致膜緻密的現象，因此本實驗先以 pH5.5+glu2 為作為過濾膜，以選擇適當的過濾壓力，並討論濾餅是否會被壓縮。實驗透過控制閥的開度來調整抽氣幫浦的抽氣量多寡並將壓力差控制在 40 cmHg、50 cmHg、60 cmHg、70 cmHg。實驗結果如 Fig. 4.2-1，可以發現隨著過濾的壓力增加，BC 的純水過濾通量(Pure water flux, PWF)也隨之增加，由 313 L/m²-hr 增加至約 550 L/m²-hr，由此可知在壓力在 70 cmHg 時具有最快的過濾時間，亦沒有發生壓力越高，通量反而下降或未明顯提升的情形，因此往後的實驗皆固定 70 cmHg 做為過濾壓力，由於是過濾純水的原因，並不會有濾餅的阻力(R_C)出現，因此過濾通量為一水平線，不會隨著時間而下降。

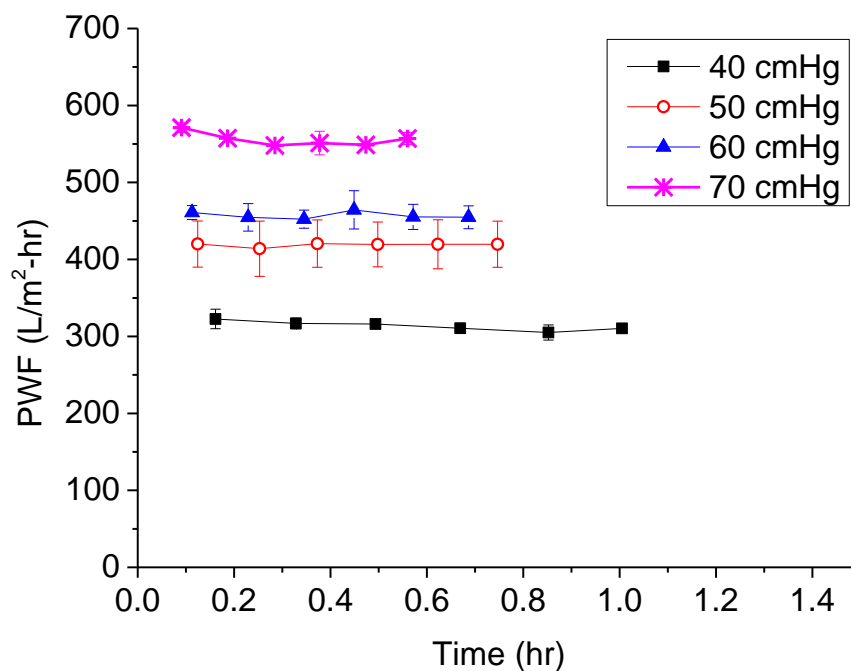


Fig. 4.2-1 BC 在不同壓力差下，純水之過濾通量圖

與(Zhijiang et al., 2018)相比，該篇作者將殼聚糖包覆了以羧基多壁碳奈米碳管接枝的 BC 薄膜(Carboxyl multi-walled carbon nanotubes grafted BC, BC-g-cMWCNTs)用以過濾，其中純水過濾通量對於壓力的變化如 Fig. 4.2-2，可以觀察到與我們相同的趨勢。文獻中在 0.1 至 0.6 MPa 的操作壓力下其純水通量皆保持一水平線，且在 0.1 至 0.5 MPa 的壓力範圍下是隨壓力上升而上升，由 52 L/m²-hr 增加至 140 L/m²-hr，但是當壓力提升至 0.6 MPa 時，過濾通量並未明顯提升，可能原因當操作壓力於 0.5 MPa 以下時薄膜內部的孔洞仍被適當的保持，而當提升至 0.6 MPa 時，由於壓力的作用可能會導致了內部孔洞減少。

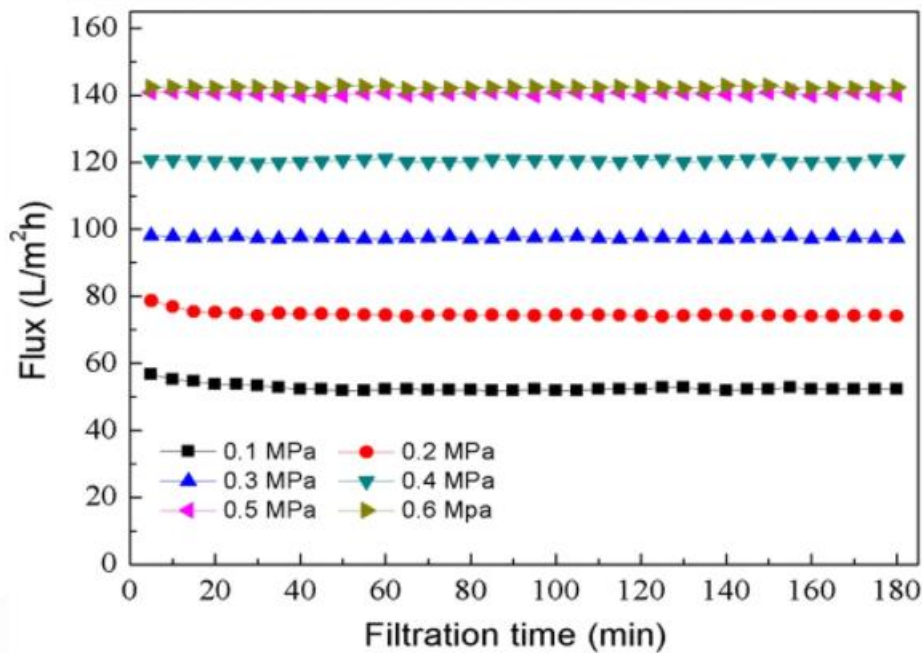


Fig. 4.2-2 於不同操作壓力下，BC-g-cMWCNTs 薄膜之過濾通量圖(Zhijiang et al., 2018)

油水之滲液通量(Permeate flux, PF)在不同 ΔP 下，實驗結果如 Fig. 4.2-3，因為 BC 本身是高度親水性的，因此油滴會被纖維阻擋下來，留在薄膜表面，水則會繼續通過，而達到油水分離的效果，而通量隨著過濾時間增加而下降，這是因為被阻擋在薄膜表面的油滴越來越多，因此當水要繼續向下流動時，要先經過油滴形成的滲餅層(R_C)而產生的阻力，如 Fig. 4.2-4，導致通量隨過濾時間增加而下降，且滲餅層會隨著時間增加而增加，所以通量才會持續下降。

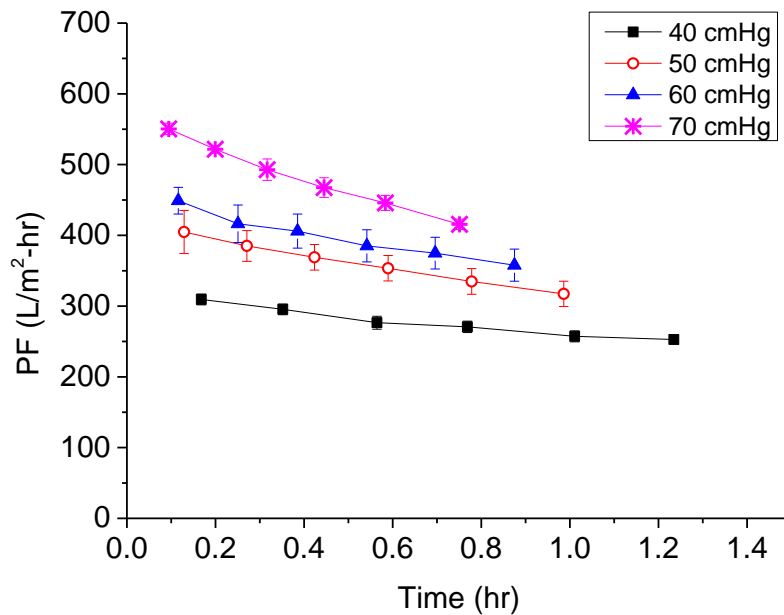


Fig. 4.2-3 不同壓力差下，油水乳液之過濾通量圖

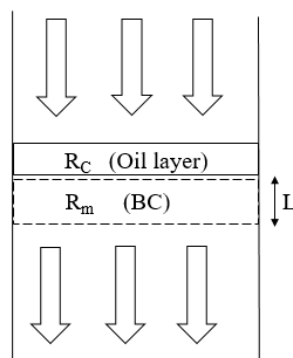


Fig. 4.2-4 流體於過濾時經過滲餅層及滲膜之示意圖

將實驗所紀錄的濾液體積(V)對過濾時間與濾液體積之比值(t/V)作圖，可以得到 Fig. 4.2-5，可以看到隨著 V 增加時 t/V 也增加，將其線性回歸後，經由 Eq. 2.5-8 來計算可求得 R_m 、 α 值，如 Table. 4.2-1 所示。可以得知 R_m 並沒有隨著過濾壓力增加而改變，約為 $6.5 \times 10^{11} \text{m}^{-1}$ ，因為在此實驗是選用同一 WHC 範圍之 BC，所以薄膜本身物性類似。而 α 代表單位質量之過濾液停留在膜面上的過濾物質給予流體之阻力值，因此隨著過濾量的增加，過濾物質在膜表面累積的越多，所給予的阻力也越大，造成通量也跟著下降。

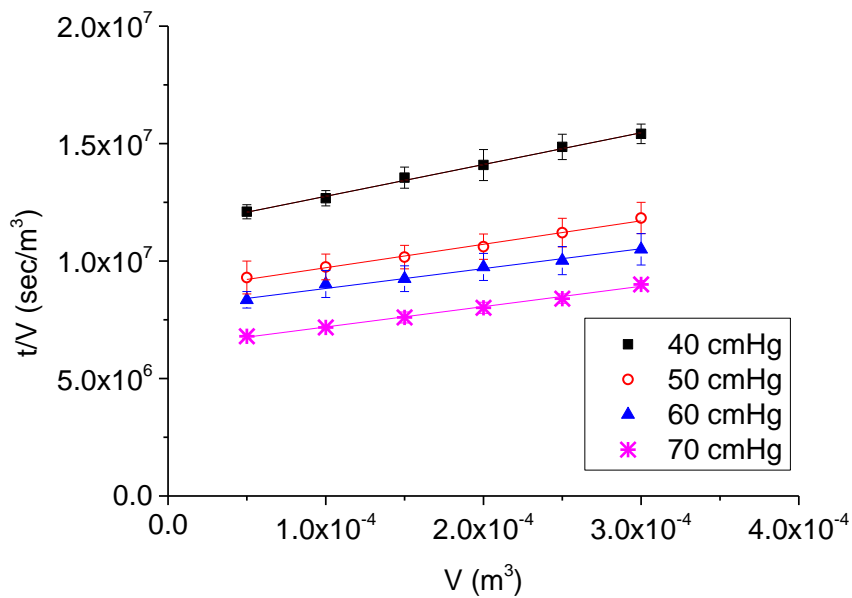


Fig. 4.2-5 不同壓力差下，過濾油水乳液之 V 與 t/V 變化圖

Table. 4.2-1 不同壓力差之薄膜阻力與濾餅阻力

$ \Delta P $ (cmHg)	R_m (m^{-1})	α (m/kg)
40	6.57×10^{11}	1.50×10^{13}
50	6.29×10^{11}	1.39×10^{13}
60	6.96×10^{11}	1.35×10^{13}
70	6.37×10^{11}	1.68×10^{13}

將 $|\Delta P|$ 、 α 取對數作圖可以得到 Fig. 4.2-6，並利用 Eq. 2.5-10 計算可知其斜率為 0.138，其數值不大，因此在此壓差範圍可忽略其壓縮性，代表 α 不會隨著壓力增加而變化，詳細數值如 Table. 4.2-2；實驗結束後取過濾底部之澄清液去量測 OD 值，經由 Eq. 3.5-1 計算出對油的排斥係數(R)為 99%。

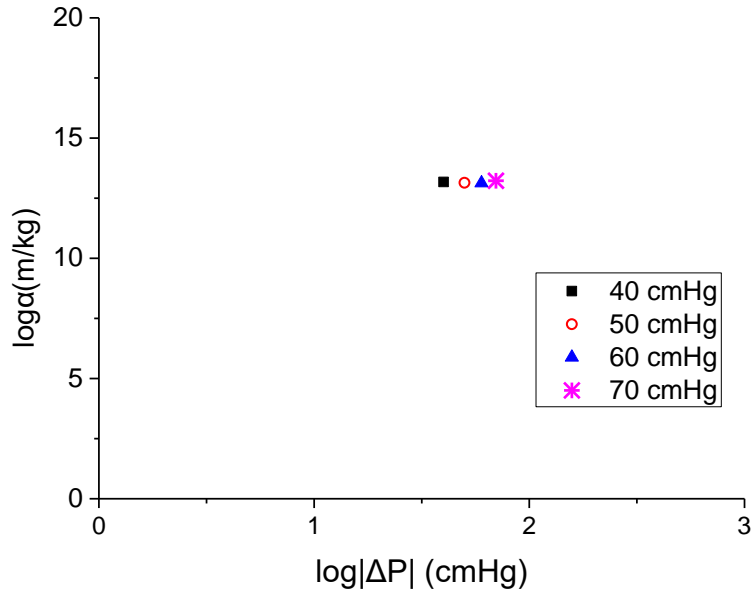


Fig. 4.2-6 不同壓力差下 α 值之變化圖

線性回歸方程式: $\log\alpha = 0.138 \log|\Delta P| + 12.93$

Table. 4.2-2 $\log \alpha$ 與 $\log |\Delta P|$ 之關係

$\log \Delta P $ (cmHg)	1.60	1.7	1.77	1.84
$\log \alpha$ (m/kg)	13.18	13.14	13.13	13.22

相對於 Fig. 4.2-1、Fig. 4.2-3，計算出 R_m 、 α 的好處是因為通量的值會受到壓力差、流體黏度影響，若是在不同的操作情況下比較，就沒辦法快速直觀的比較薄膜本身的過濾速度快慢，若是計算出 R_m 、 α ，便可以去除掉不同操作情況所帶來的影響，能夠直觀的比出過濾物質與過濾薄膜本身帶給流體的阻力之外，還可以利用小規模的實驗，來計算出大規模或長時間的過濾速度。

4.3 不同 WHC 的 BC 對過濾效果之影響

由於 4.2 章節使用了起始培養基 pH=5.5 加上純葡萄糖作為碳源的 BC (pH5.5+glu2) 作為過濾膜，而在此將討論不同起始培養基 pH 值、不同碳源或混和碳源所培養出來的 BC 對於過濾效果之影響，如 Table. 4.3-1。本實驗是利用未乾燥之 BC 來過濾大豆油乳液，然而在計算含水量(Water holding capacity, WHC) 時需要量測 BC 之純乾重，但是過濾後的 BC 內部會殘留著大豆油，造成無法量測用來過濾的該片 BC 之純乾重，因此本實驗使用的 WHC 值是一個平均值，是在同一培養條件下未經油過濾之 BC 所測量出來的平均值，而各培養條件所生成的 BC 厚度皆為 2 mm。

Table. 4.3-1 細菌纖維素培養條件及過濾條件

培養基組成	HS medium
培養容器	250 ml 錐形瓶
初始培養基體積	50 ml
初始培養基 pH 值	4.0、5.5、7.0
植菌來源	預培養菌液
植菌濃度	10 (v/v) %
培養時間	葡萄糖為碳源：7 天 甘油為碳源：10 天 乙醇為碳源：14 天 葡萄糖與甘油為碳源：10 天
碳源總濃度	2.0 (w/v)% (20 g/L)
培養溫度	26 °C
培養方式	靜置培養
過濾面積(A)	$9.62 \times 10^{-4} \text{ m}^2$
1 片薄膜厚度(L)-過濾前	2 mm
$ \Delta P $	70 cmHg
溶液濃度	0.1g 大豆油+ 1.0L 去離子水
溶液黏度	$0.89 \times 10^{-3} \text{ (kg/m-sec)}$

4.3.1 pH4~7+glu2 之含水量與其過濾效果

在此以純葡萄糖作為碳源並使用不同起始培養基 pH 值，其組別代號說明如：
pH4+glu2 即為起始 pH 值為 4，碳源為葡萄糖，碳源總濃度為 2.0 (w/v)%。

當以純葡萄糖作為額外碳源時，WHC 受到起始培養基 pH 值的影響如 Fig. 4.3-1，可以看出在起始培養基 pH=7 時，具有最高的產量(1.5g/L)及最低的含水量(105 g H₂O/g dry BC)，其次是 pH=5，而 pH=4 具有最低的產量(1.1g/L)及最高的含水量(153 g H₂O/g dry BC)，由於微生物代謝葡萄糖時會產生葡萄糖酸，會降低培養基酸鹼值，使得環境不適合(pH<3.5)微生物合成出纖維素，因此起始培養基 pH 值越低的組別，越快達到 pH<3.5，因此所生產出的 BC 之產量最低、WHC 最高。

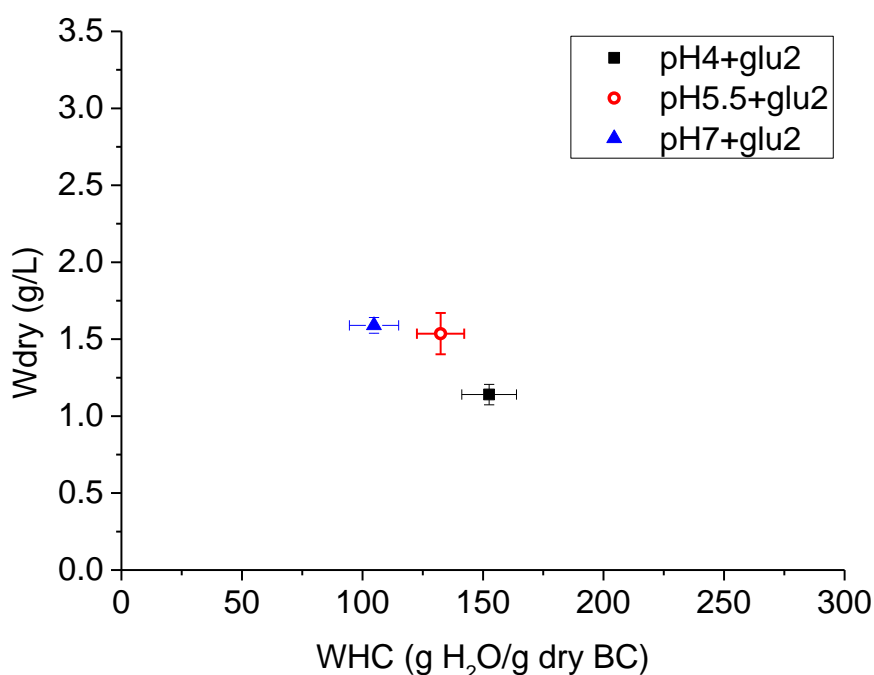


Fig. 4.3-1 pH4~7+glu2 之 WHC 與產量關係圖

純水過濾通量、油水濾液通量、V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.3-2、Fig. 4.3-3、Fig. 4.3-4，與 4.2 章節之實驗結果相同，過濾純水時不會有濾餅層出現因此純水通量不會隨著時間改變，而且可以了解 pH4+glu2 此組別具有最高的含水量且具有最高的純水通量(539 L/m²-hr)，pH7+glu2 此組別具有最低的含水量(105 g H₂O/g dry BC)及最低的純水通量(362 L/m²-hr)；而油水濾液通量的部分也是隨著過濾時間的增加而降低。對油的排斥係數(R)三個組別皆>99%，並沒有因為纖維變少、WHC 增加，而導致 R 下降。

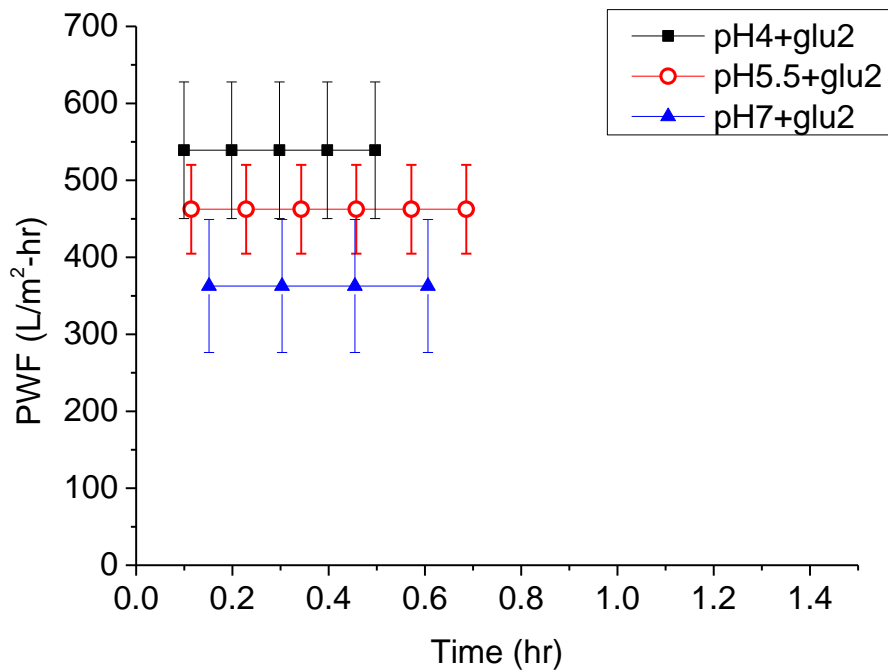


Fig. 4.3-2 pH4~7+glu2 之純水過濾通量圖

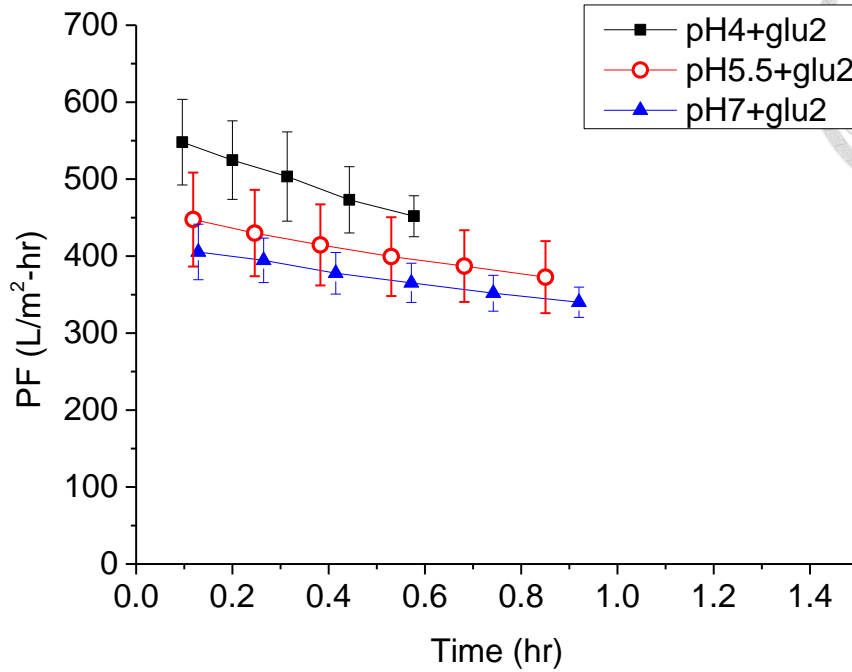


Fig. 4.3-3 pH4~7+glu2 之油水乳液過濾通量圖

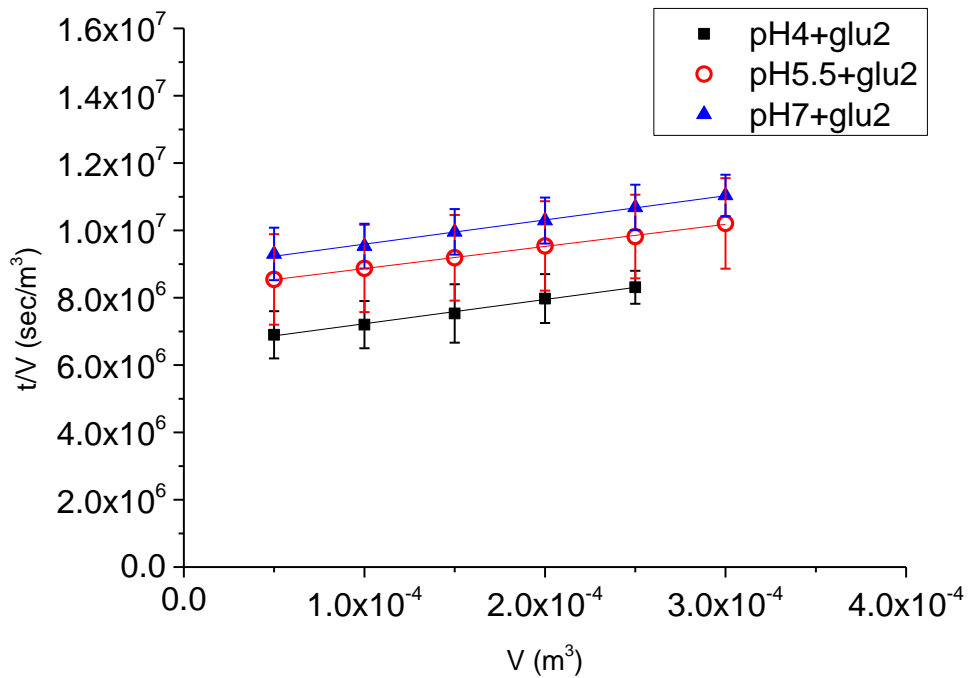


Fig. 4.3-4 pH4~7+glu2 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

R_m 、 α 與 WHC 之關係如 Fig. 4.3-5、Fig. 4.3-6，可以看到隨著 WHC 的增加， R_m 呈現下降的趨勢，這是因為同體積的 BC 具有越高的 WHC，意味著內部纖維較少，內部空隙變多，因此過濾的流體所受到的阻力變小，因此 R_m 的值隨著 WHC 增加而下降。由於過濾物質並未改變，因此 α 沒有隨 WHC 改變而改變。

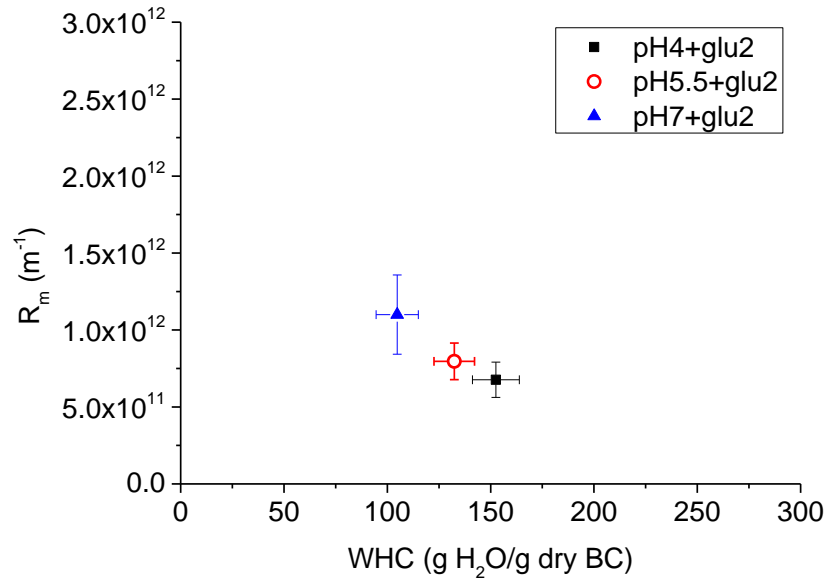


Fig. 4.3-5 pH4~7+glu2 之 WHC 與 R_m 關係圖

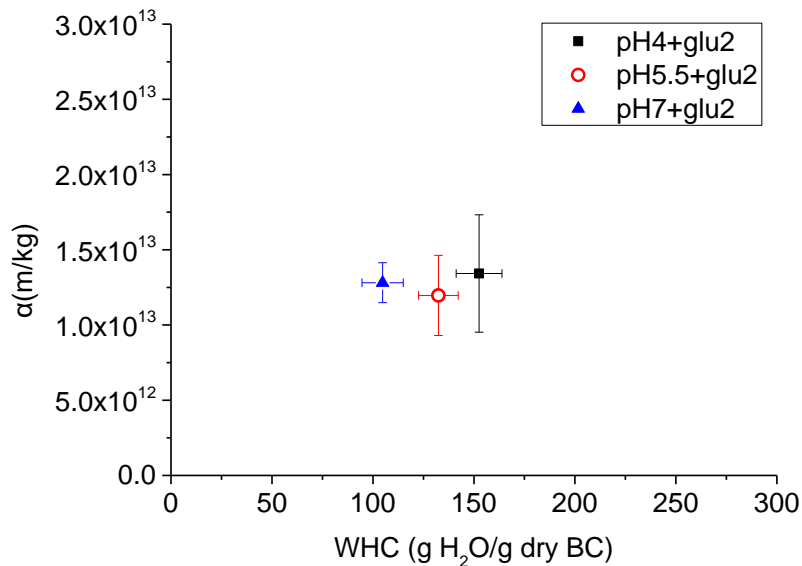


Fig. 4.3-6 pH4~7+glu2 之 WHC 與 α 關係圖

與(Zhuang et al., 2020)相比，該篇作者利用 *Gluconacetobacter xylinus* (BCRC14148) 並以多醣和茶萃取物作為培養基，再使用 0.75M 鹼液處理過後的 BC 作為過濾膜，文中作者以 1.0 bar (約 76 cmHg)的壓力差過濾純水的通量圖如 Fig. 4.3-7 中的 Water 部分，但並未寫明液體黏度，雖然其使用的壓力差與本文相當接近(本文為 70 cmHg)但若是液體黏度不同時，只比較 flux 的數值將會難以比較哪一種薄膜的過濾速度較快，因此在此假設其過濾時的黏度與本文相同($\mu = 0.89 \times 10^{-3} \text{kg/m-sec}$)，取其過濾水通量曲線中最後一點所估計出來之 R_m 約為 $1.01 \times 10^{12} (\text{m}^{-1})$ ，由此便可知道其可能與 pH7+glu2 此組別的 R_m 約 $1.10 \times 10^{12} (\text{m}^{-1})$ 較為接近。而文中使用的過濾物質為正己烷，因此其油過濾通量曲線如 Fig. 4.3-7 中 Emulsion 的部分與本文不同。此外，在此篇文獻中並未提及使用的 BC 薄膜產量、含水量、厚度等資訊，而本文將於 4.5、4.7 章節做進一步的整理與討論。

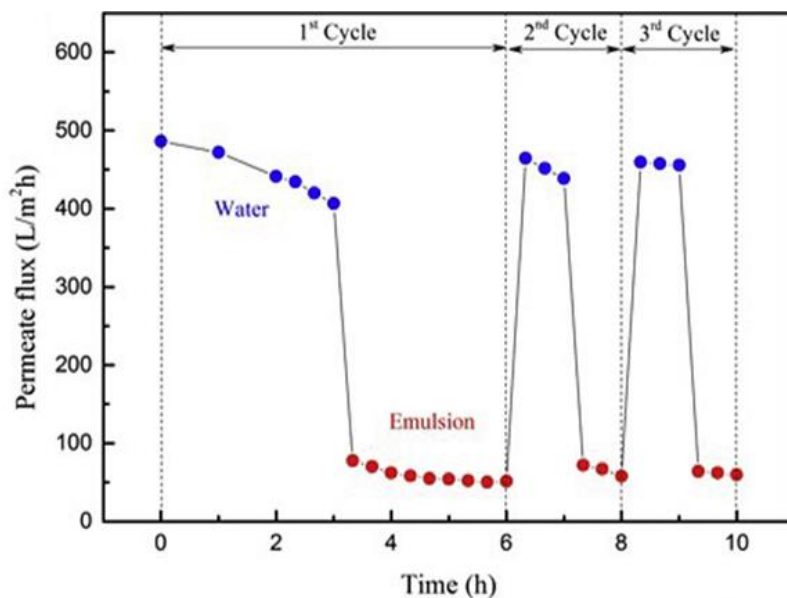


Fig. 4.3-7 以 1bar 過濾以 0.75M 鹼處理之 BC 之過濾通量圖(Zhuang et al., 2020)

4.3.2 pH4~7+gly2 之含水量與其過濾效果

在此以純甘油作為碳源並使用不同起始培養基 pH 值，其組別代號說明如：pH4+gly2 即為起始 pH 值為 4，碳源為甘油，碳源總濃度為 2.0 (w/v)%。產量與含水量之關係如 Fig. 4.3-8，再以純甘油的培養時，由於醋酸菌對於甘油代謝方式不同，代謝時並不會產生葡萄糖酸，因此對於培養基的酸鹼值改變不大，能夠讓醋酸菌在適合的環境下(pH=4~6 之間)合成出纖維素，因此與 pH4~7+glu2 的組別相反，當以純甘油作為額外碳源時，可以看出在起始培養基 pH=4 時，具有最高的產量及最低的含水量，其次是 pH=5.5，而 pH=7 具有最低的產量及最高的含水量，由於醋酸菌於 pH=4~6 之間具有較高的能力合成出纖維素，長期維持在 pH=7 的環境並不利於醋酸菌合成纖維素，因此以純甘油作為額外碳源時，起始培養基 pH 值越高的組別，所生產出的 BC 之產量最低、WHC 最高。

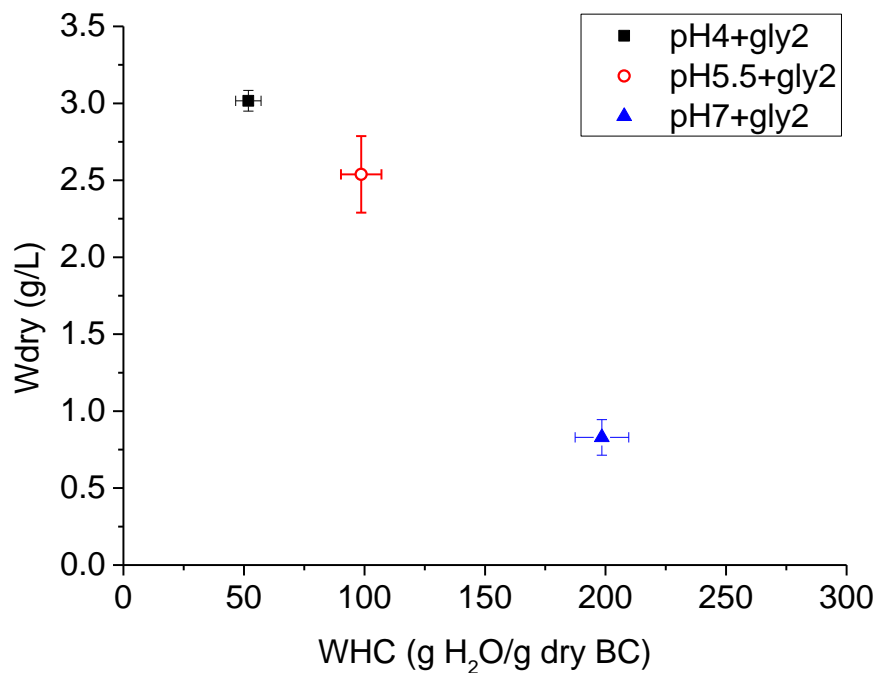


Fig. 4.3-8 pH4~7+gly2 之 WHC 與產量關係圖

純水過濾通量、油水濾液通量、V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.3-9、Fig. 4.3-10、Fig. 4.3-11。過濾純水時，純水通量不會隨著時間改變，趨勢與 WHC 和產量的趨勢相反，而 pH7+gly2 此組別具有最高的含水量(198 g H₂O/g dry BC)且有最高的純水通量(475 L/m²-hr)；而 pH4+gly2 有最低的含水量(52 g H₂O/g dry BC)，因此在此組別中其純水通量最低(172 L/m²-hr)。於(范, 2020)的實驗中可得知在 pH7+gly2 此培養條件下所培養出來的 BC 其機械性質較低，而(Ng et al., 2019)指出機械性質較低的薄膜會出現膜緻密的現象，而本實驗所採用的培養方式為批次培養，因此其過濾通量的標準差較大，但仍可以觀察到含水量越低，其純水通量較低的趨勢，且對油的排斥係數(R)在這三個組別皆> 99%。

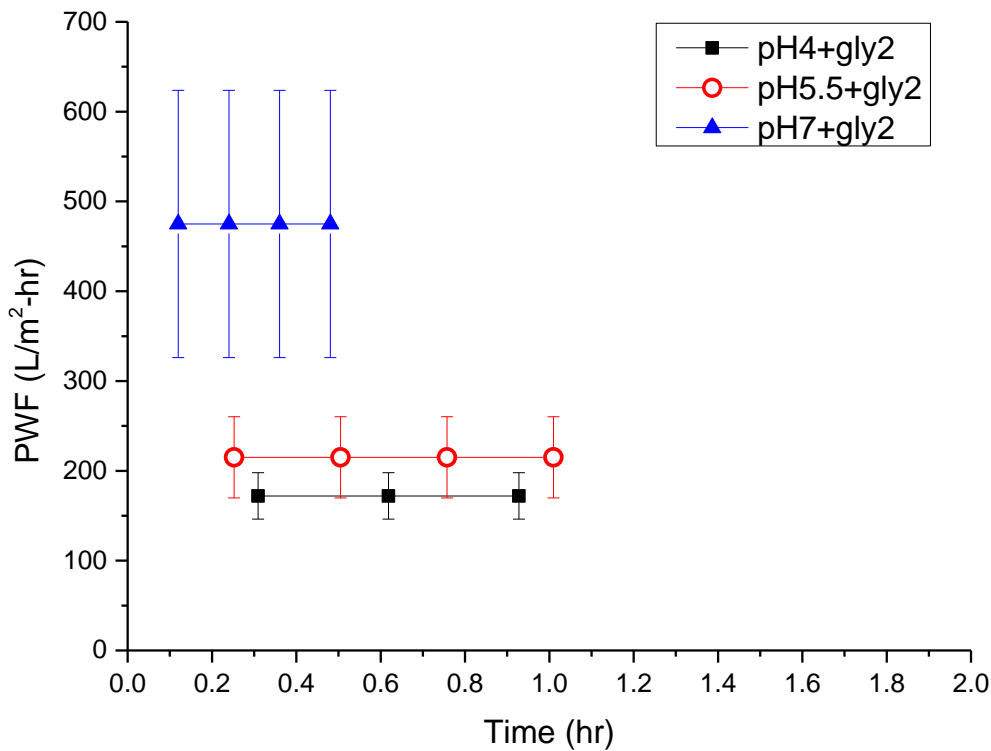


Fig. 4.3-9 pH4~7+gly2 之純水過濾通量圖

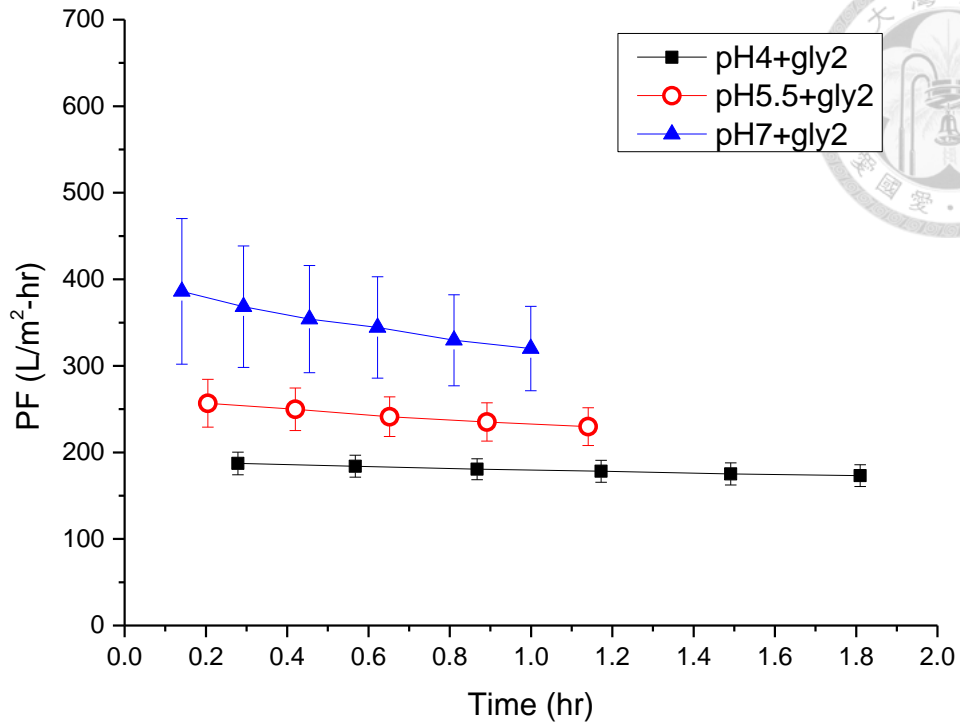
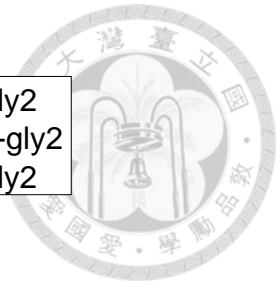


Fig. 4.3-10 pH4~7+gly2 之油水乳液過濾通量圖

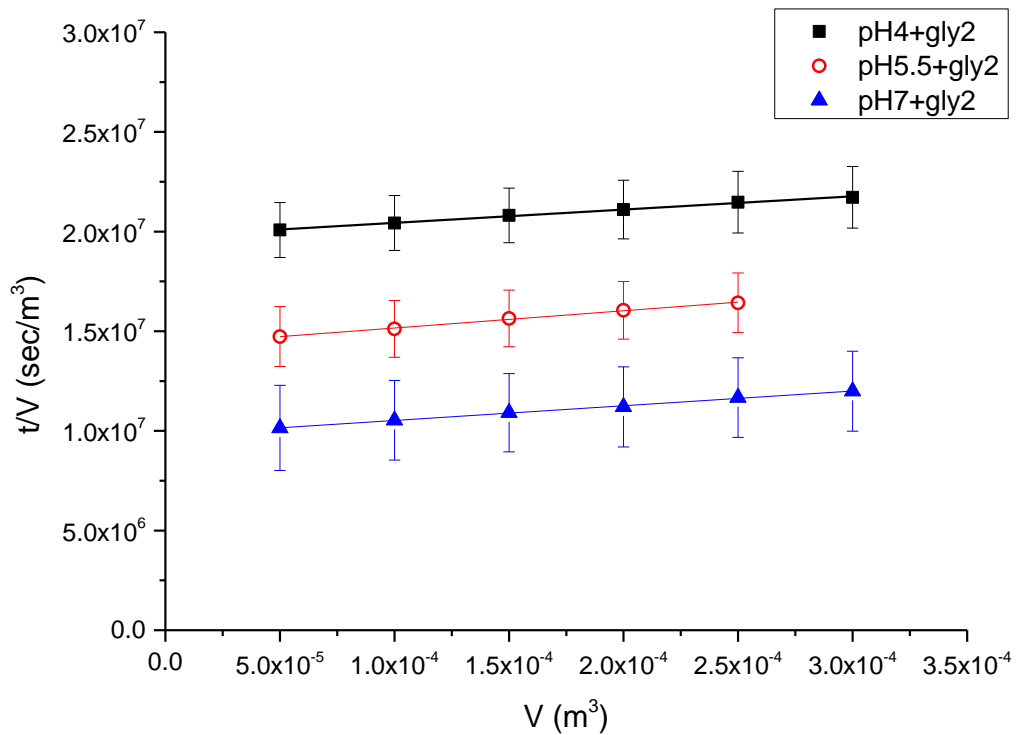


Fig. 4.3-11 pH4~7+gly2 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

R_m 、 α 與 WHC 之關係如 Fig. 4.3-12、Fig. 4.3-13，pH7+gly2 其他兩組相比 R_m 明顯較低，而隨著 WHC 的增加， R_m 呈現清楚下降的趨勢，當中 pH4+gly2 有最低的 WHC 因此具有最高的薄膜阻力，pH7+gly2 的 WHC 約是 pH4+gly2 的 4 倍， R_m 是其 0.39 倍。而 α 並未隨薄膜阻力改變而變化。

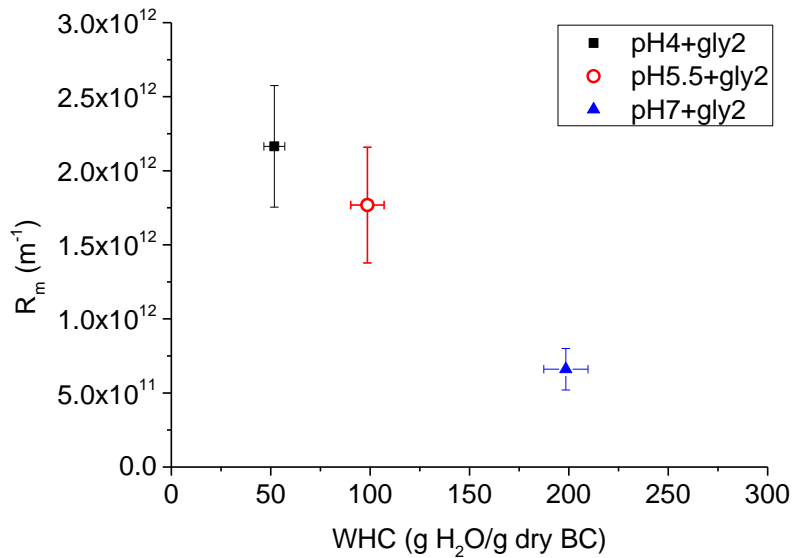


Fig. 4.3-12 pH4~7+gly2 之 WHC 與 R_m 關係圖

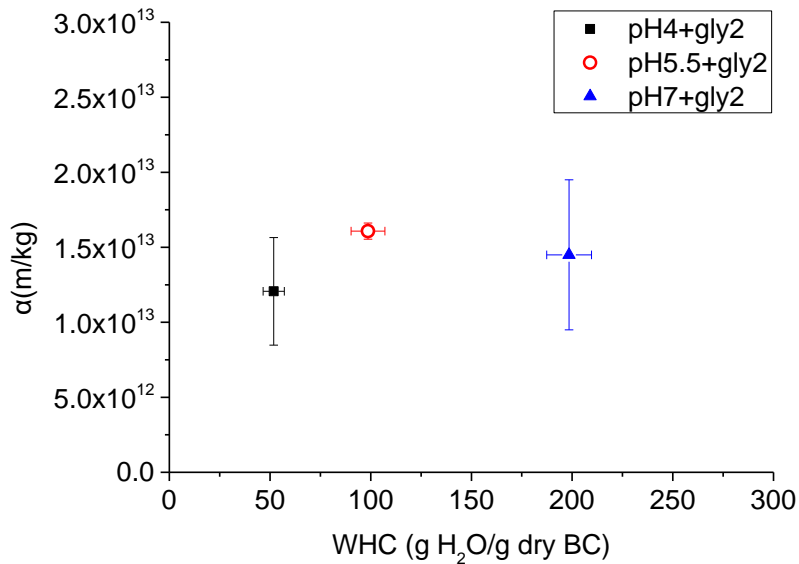


Fig. 4.3-13 pH4~7+gly2 之 WHC 與 α 關係圖

4.3.3 pH4~7+glu1+gly1 之含水量與其過濾效果

在此以混合葡萄糖 1.0(w/v)%和甘油 1.0(w/v)%作為碳源結合不同起始培養基 pH 值，其組別代號說明為:pH4+glu1+gly1 即為起始 pH 值為 4，碳源為葡萄糖 1.0(w/v)%加甘油 1.0(w/v)%。產量與含水量關係如 Fig. 4.3-14，趨勢和 pH4~7+glu2 的結果類似，皆為初始培養基 pH 值越高，產量越高。相較於純葡萄糖為碳源時，在此培養條件下，產量最小(1.76g/L)的 pH4+glu1+gly1 比純葡萄糖 2.0(w/v)%組別中的產量最大(1.59g/L)的 pH7+glu2 還多，由於甘油的存在會使得培養基的酸鹼值下降程度較慢，因此在含有甘油 1.0(w/v)%的培養基，且起始培養基 pH 值越高的組別，具有最高的產量(3.19g/L)，且 WHC 與產量呈反向關係。

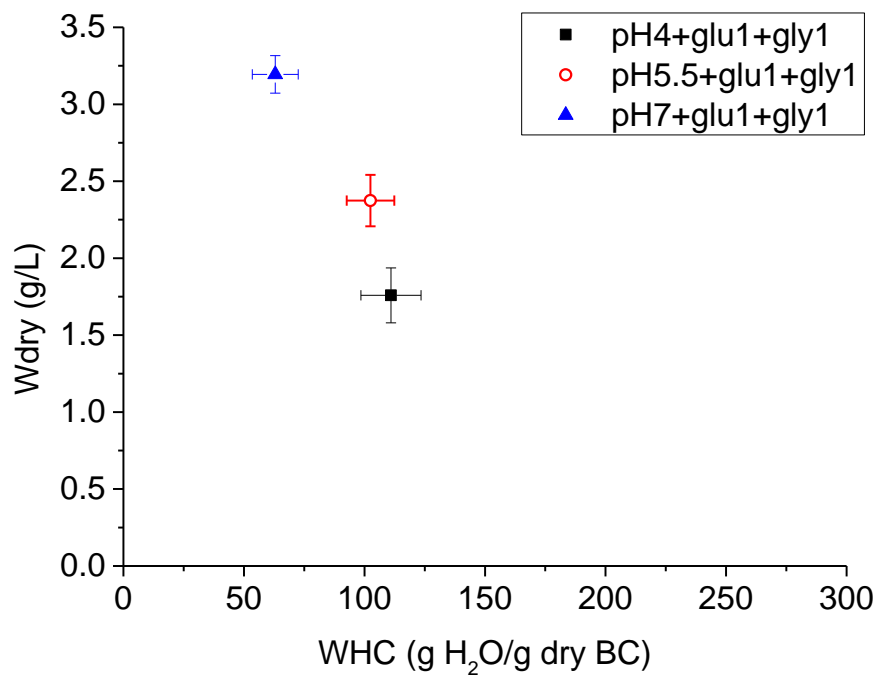


Fig. 4.3-14 pH4~7+glu1+gly1 之 WHC 與產量關係圖

純水過濾通量、油水濾液通量、V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.3-15、Fig. 4.3-16、Fig. 4.3-17。而純水通量的趨勢與 WHC 和產量的趨勢相反，pH7+glu1+gly1 有最低的含水量(63 g H₂O/g dry BC)，且具有最低的純水通量(187 L/m²-hr)，pH4+glu1+gly1 有最高的含水量(111 g H₂O/g dry BC)，且具有最低的純水通量(385 L/m²-hr)，過濾油水的通量亦是呈現 WHC 越低，通量越低的趨勢。排斥係數三個組別皆> 99%。

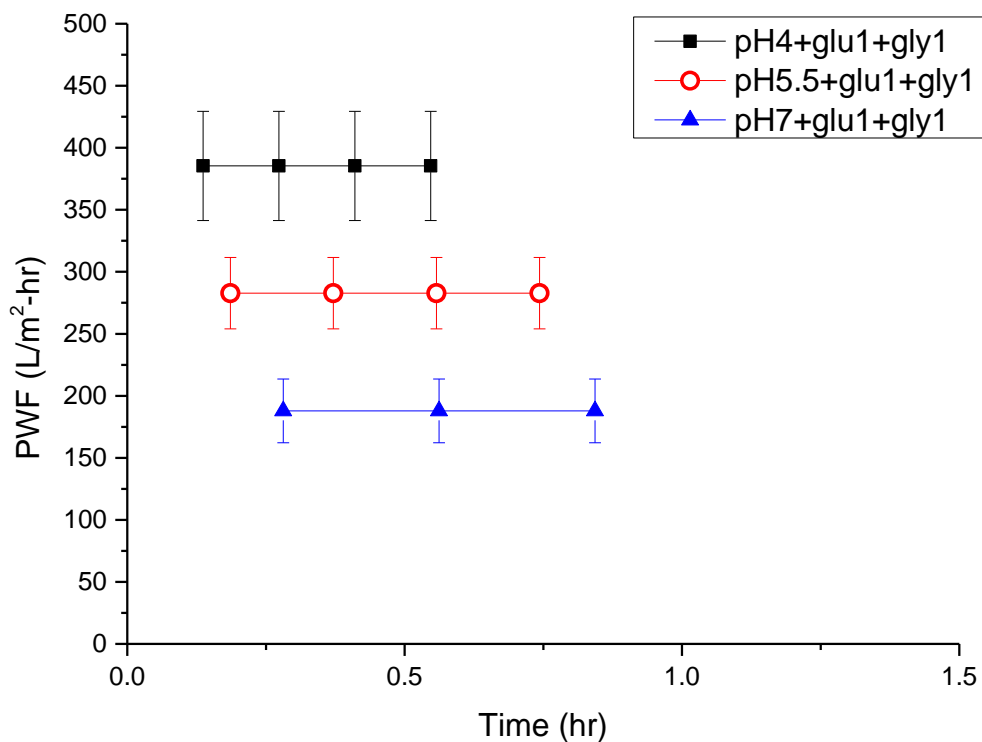


Fig. 4.3-15 pH4~7+glu1+gly1 之純水過濾通量圖

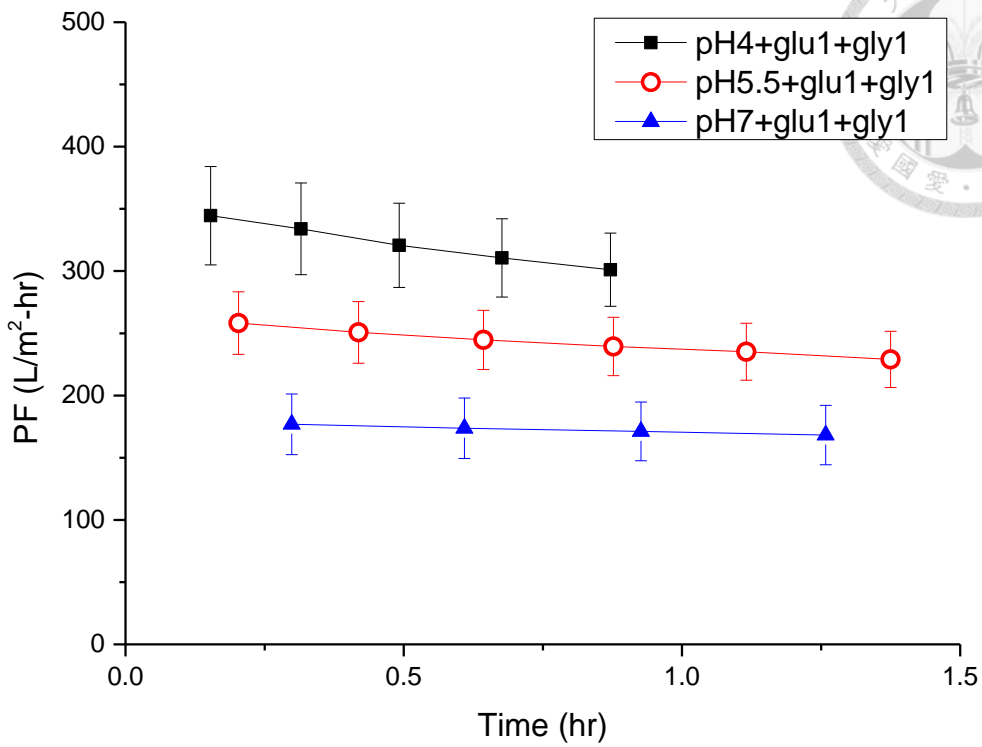
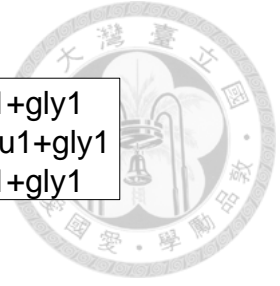


Fig. 4.3-16 pH4~7+glu1+gly1 之油水乳液過濾通量圖

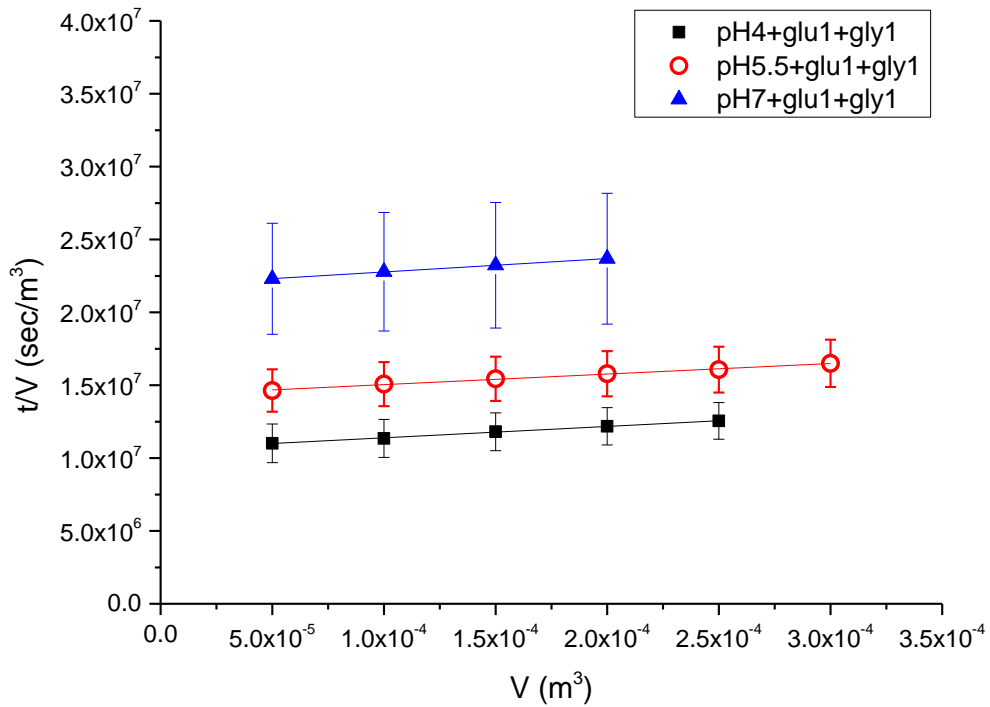


Fig. 4.3-17 pH4~7+glu1+gly1 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

R_m 、 α 與 WHC 之關係如 Fig. 4.3-18、Fig. 4.3-19，薄膜阻力與 WHC 之關係呈現反向關係，如同 4.3.1 章節所解釋，同體積之纖維素，若是含水量下降時，內部空隙將會減少，薄膜對流體的阻力也會跟著上升，在此也同樣觀察到相同趨勢，隨著起始 pH 值增加，BC 之薄膜阻力也跟著增加，大小依序為： $pH7+glu1+gly1 > pH5.5+glu1+gly1 > pH4+glu1+gly1$ ，當中 $pH7+glu1+gly1$ 有最小的 WHC 因此具有最高的薄膜阻力為 $2.04 \times 10^{12} (m^{-1})$ 。而 α 則不隨薄膜阻力改變而變化。

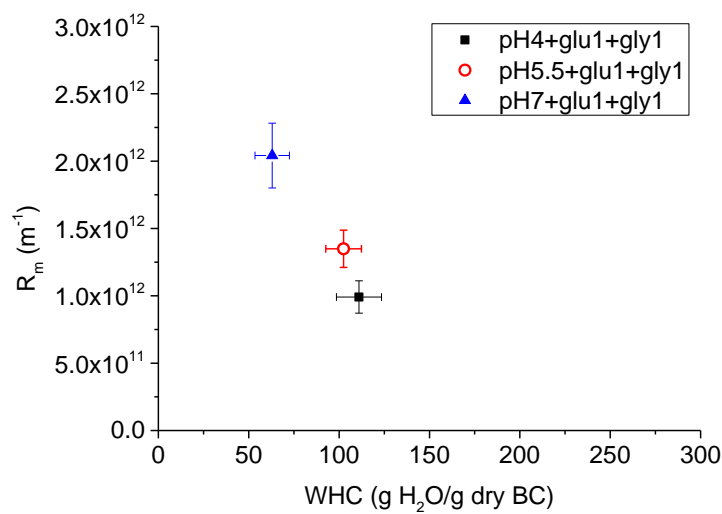


Fig. 4.3-18 pH4~7+glu1+gly1 之 WHC 與 R_m 關係圖

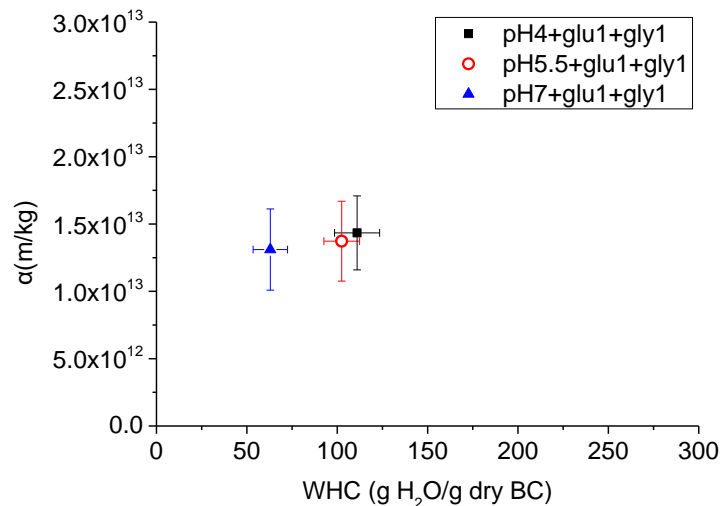


Fig. 4.3-19 pH4~7+glu1+gly1 之 WHC 與 α 關係圖

4.3.4 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之含水量與其過濾效果



在此以混合葡萄糖 0.5(w/v)%和甘油 1.5(w/v)%作為碳源結合不同起始培養基 pH 值，其組別代號說明為: pH4+glu0.5+gly1.5 即為起始 pH 值為 4，碳源為葡萄糖 0.5(w/v)% 加甘油 1.5(w/v)%。由於 4.3.3 小節發現了當碳源同時含有甘油 1.0(w/v)%和葡萄糖 1.0(w/v)%時，由於培養基的酸鹼值下降程度會小於純葡萄糖 2.0(w/v)%，因此更改濃度比例為葡萄糖 0.5(w/v)%+甘油 1.5(w/v)%時，產量與含水量之關係如 Fig. 4.3-20，在此培養情況下，因為甘油濃度越多、葡萄糖濃度越少時，醋酸菌因代謝葡萄糖所產生的葡萄糖酸會比較少，且甘油跟葡萄糖皆會被微生物代謝並生成纖維素，因此 pH4~7+glu0.5+gly1.5 的產量皆大於 pH4~7+glu0.5+gly1.5；而在此可以發現 pH4+glu0.5+gly1.5 此組別的 WHC 最大，依序是 pH5.5+glu0.5+gly1.5、pH7+glu0.5+gly1.5 此三個培養條件下之產量，皆大於 2.5(g/L)。

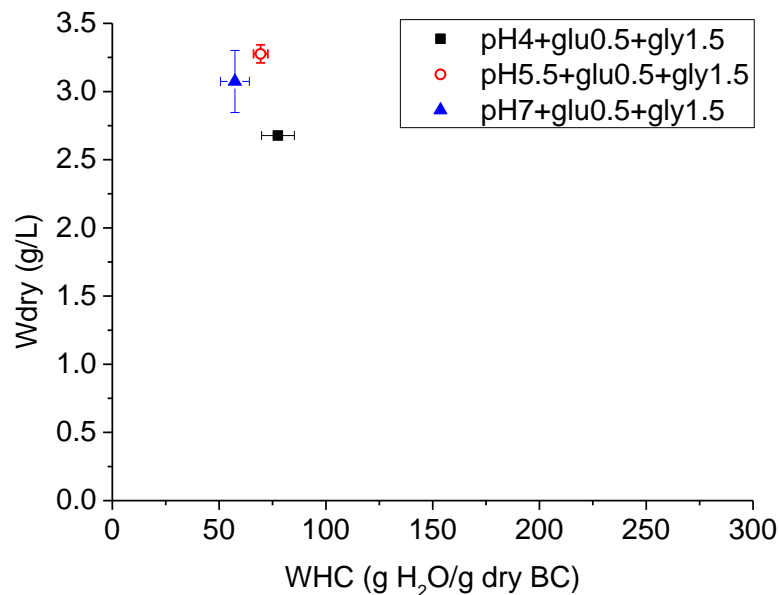


Fig. 4.3-20 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之 WHC 與產量關係圖

純水過濾通量、油水濾液通量、V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.3-21、Fig. 4.3-22、Fig. 4.3-23，pH4+glu0.5+gly1.5 此組別的 WHC 最大(78 g H₂O/g dry BC)，因此具有最高的純水過濾通量(260 L/m²-hr)，pH7+glu0.5+gly1.5 有最低的含水量(57 g H₂O/g dry BC)，且具有最低的純水純水通量(101 L/m²-hr)；油水濾液通量亦是呈現與純水通量相同的趨勢。對油的排斥係數(R)皆>99%。

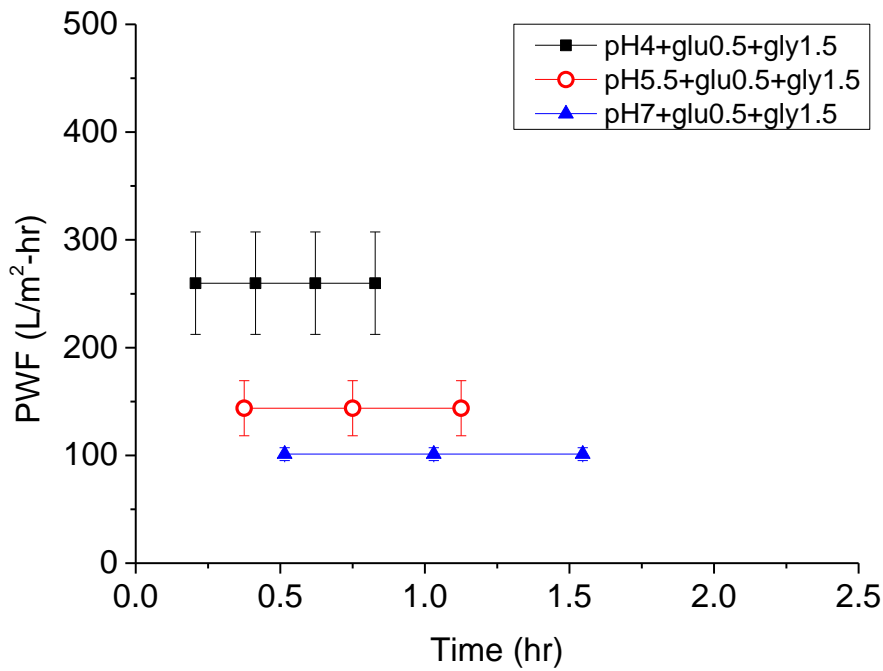


Fig. 4.3-21 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之純水過濾通量圖

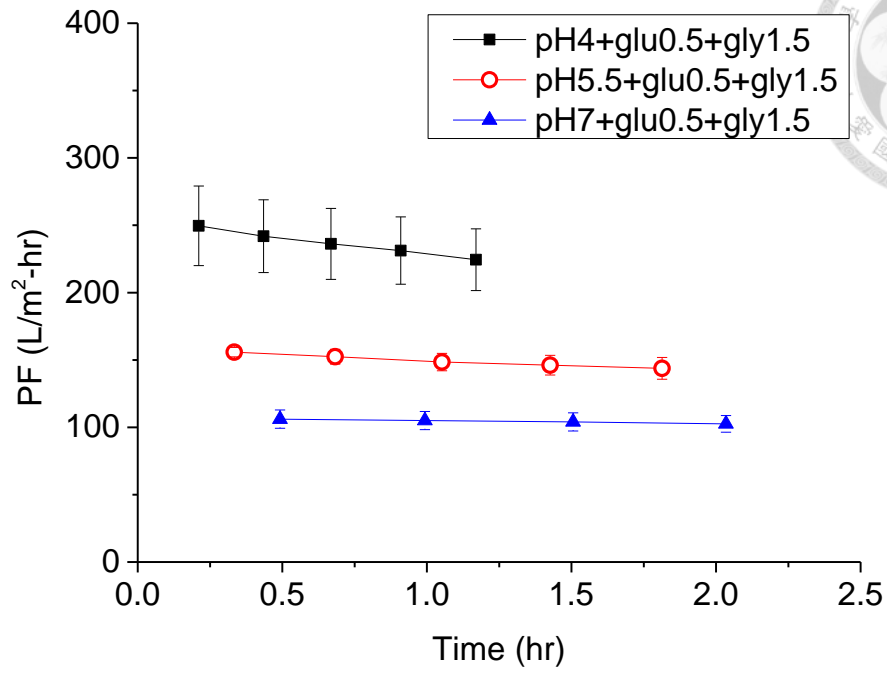
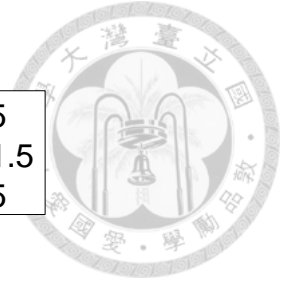


Fig. 4.3-22 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之油水乳液過濾通量圖

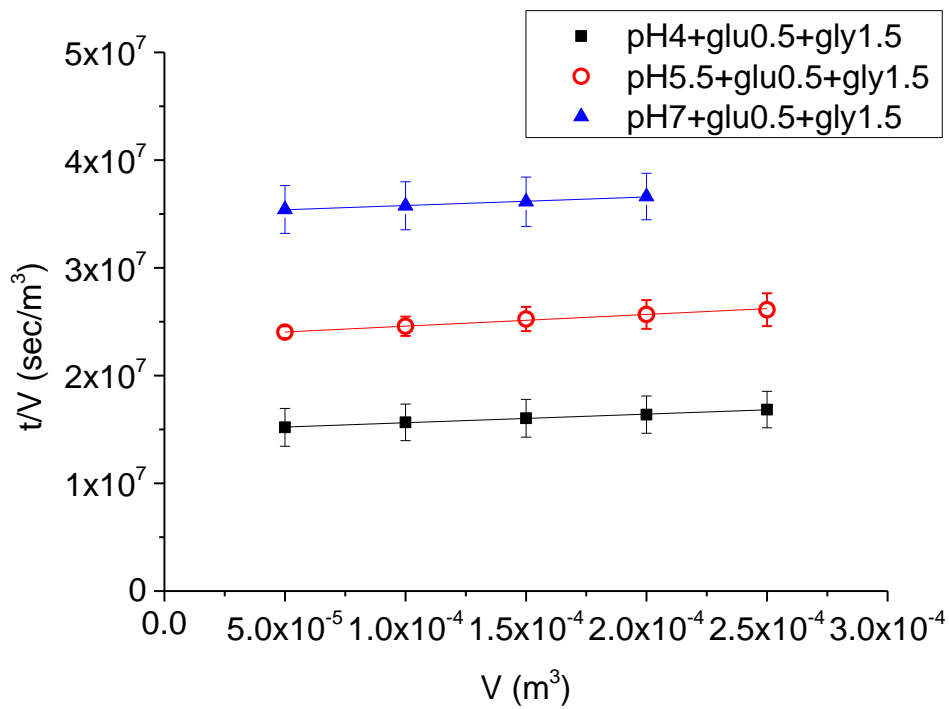


Fig. 4.3-23 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

R_m 、 α 與 WHC 之關係如 Fig. 4.3-24、Fig. 4.3-25，與 4.3.1 章節比較，pH4~7+glu0.5+gly1.5 三個培養條件之 BC 的 WHC 皆小於 pH4~7+glu2，因此其薄膜阻力皆大於 pH4~7+glu2，而 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之薄膜阻力大小依序為：pH7+glu0.5+gly1.5 > pH5.5+glu0.5+gly1.5 > pH4+glu0.5+gly1.5，由於 pH7+glu0.5+gly1.5 有最小的 WHC 因此具有最高的薄膜阻力。而 α 並未隨 WHC 變化而改變。

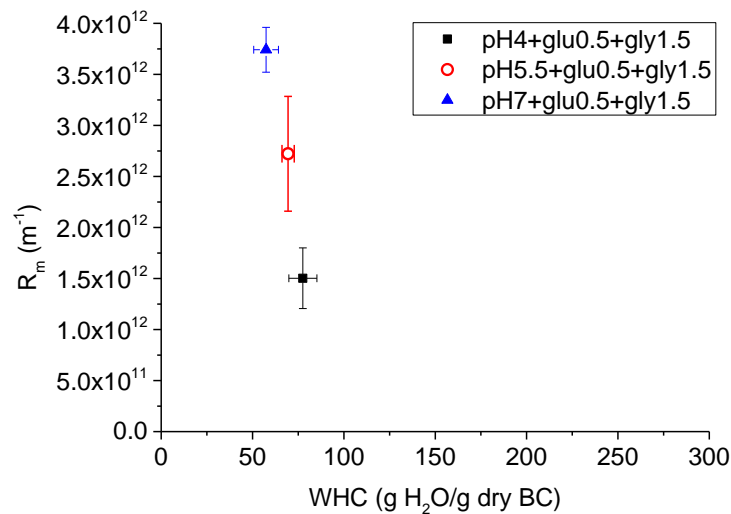


Fig. 4.3-24 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之 WHC 與 R_m 關係圖

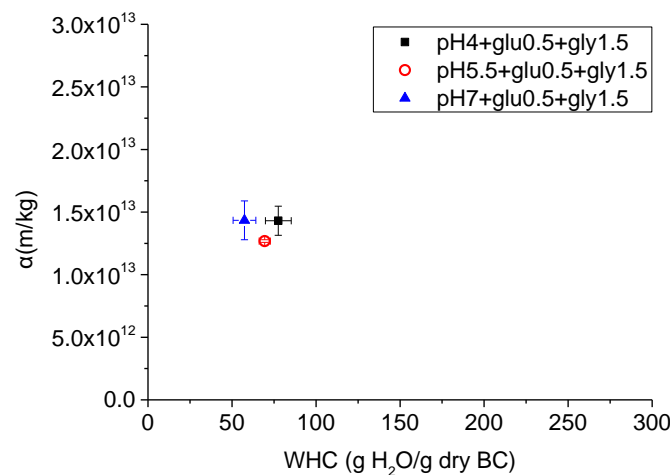


Fig. 4.3-25 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之 WHC 與 α 關係圖

4.3.5 pH4~7+eth2 之含水量與其過濾效果

此以純乙醇作為碳源並使用不同起始培養基 pH 值，其組別代號說明如：pH4+eth2 即為起始 pH 值為 4，碳源為乙醇，碳源總濃度為 2.0 (w/v)%。將培養基的起始 pH 值控制在 4、5.5、7 並以乙醇 2.0(w/v)% 做為額外碳源，由於(Lustri et al., 2015; Ross et al., 1991)說明了醋酸菌代謝乙醇合成纖維素的途徑比和代謝葡萄糖的途徑較長，因此需要更長的時間(14 天)才能夠形成完整膜狀，才可利用(藍, 2017)所開發的瀝乾法去量測含水量，因此待其生長至可以量測含水量時(14 天)其產量為接近的值(1.0g/L)，其產量與含水量關係如 Fig. 4.3-26，而三個培養條件下所量測出來之平均含水量也非常接近，皆是>200~250(g H₂O/g dry BC)，量測出來之 WHC 跳動範圍較大，是因為當 BC 所含的水量越多時，本實驗所使用的瀝乾法要需要更長的時間(約 3 小時)才能夠求出濕重，因此實驗過程中水分蒸發的損失較多，所以標準差會較大。

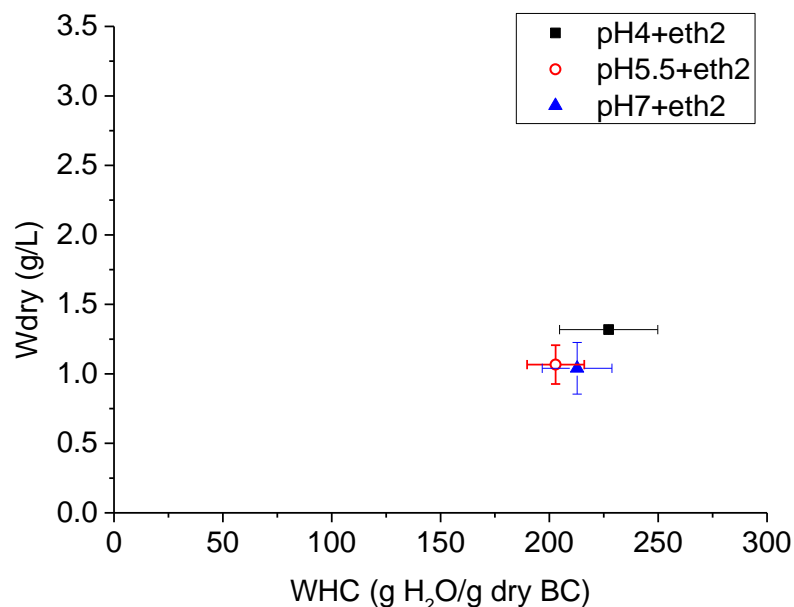


Fig. 4.3-26 pH4~7+eth2 之 WHC 與產量關係圖

純水過濾通量、油水濾液通量、V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.3-27、Fig. 4.3-28、Fig. 4.3-29，以乙醇 2.0(w/v)% 做為額外碳源的情況下，不管是在哪一個 pH 條件下所培養之 BC，產量、WHC 都非常接近，因此具有接近的過濾通量約 400 L/m²-hr，於 4.3.4 章中 pH4~5.5+glu0.5+gly1.5 這兩組的有類似的情況，當 WHC 非常接近時，會有相似的過濾通量，但由於 pH4~7+eth2 之 WHC 較高，因此過濾通量會比 pH4~5.5+glu0.5+gly1.5 來的高。此三組對油的排斥係數(R)皆>99%。

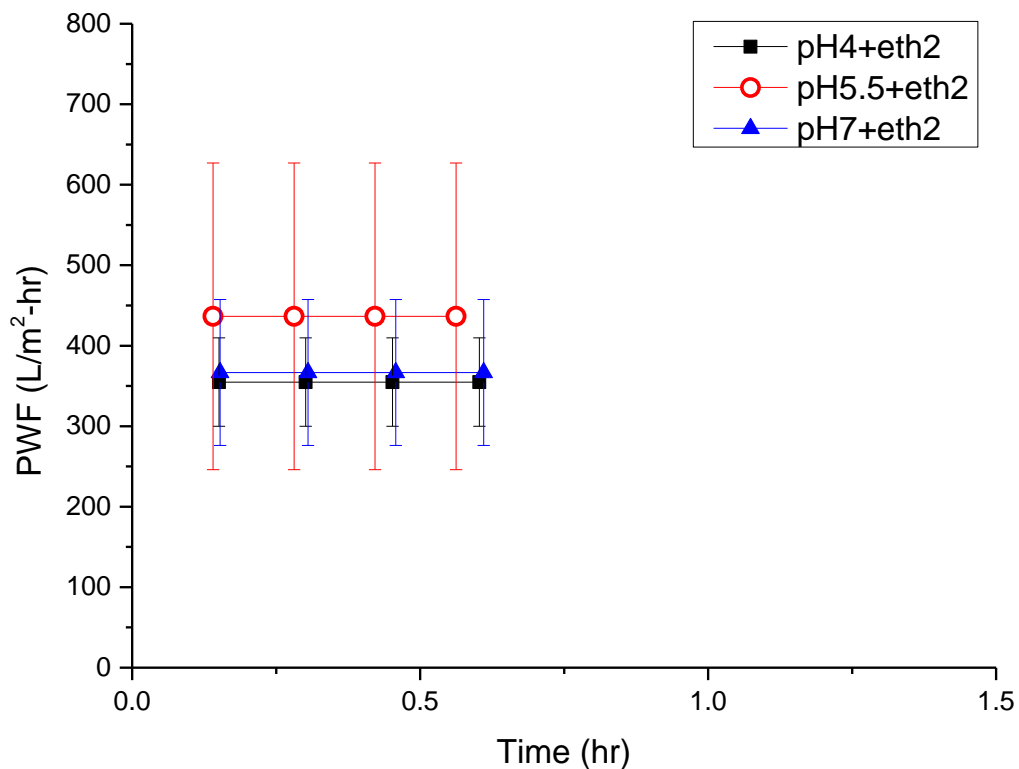


Fig. 4.3-27 pH4~7+eth2 之純水過濾通量圖

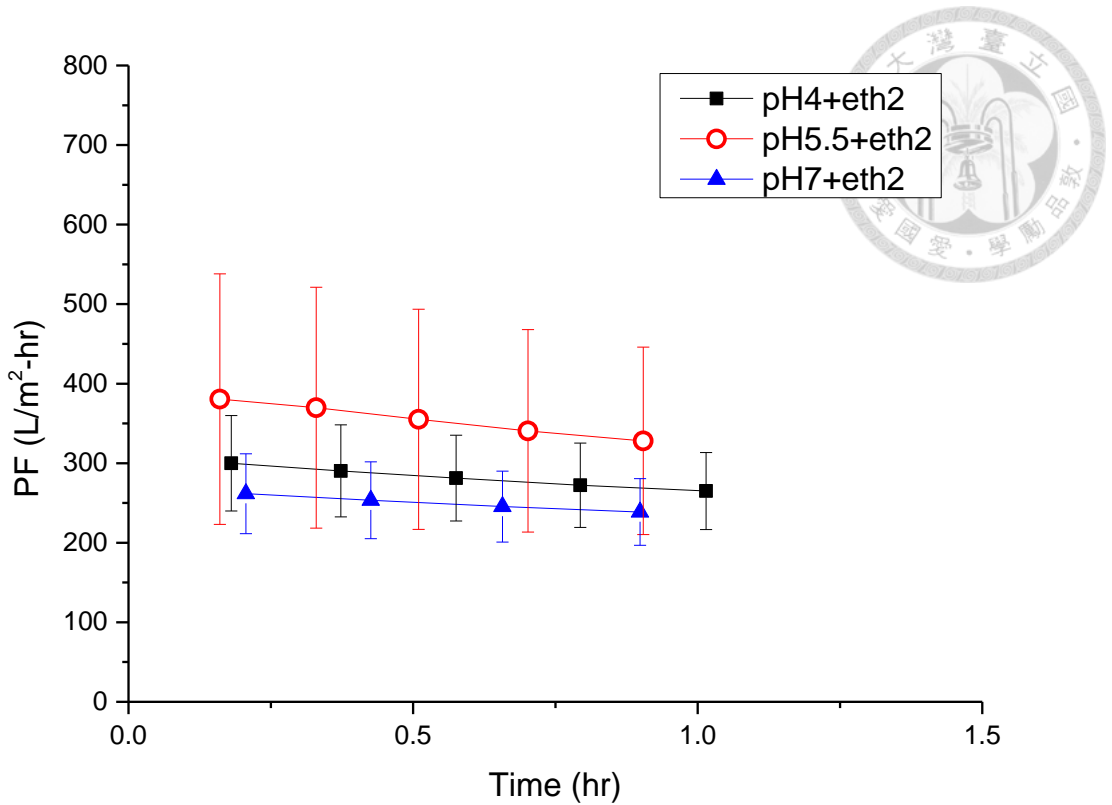


Fig. 4.3-28 pH4~7+eth2 之油水乳液過濾通量圖

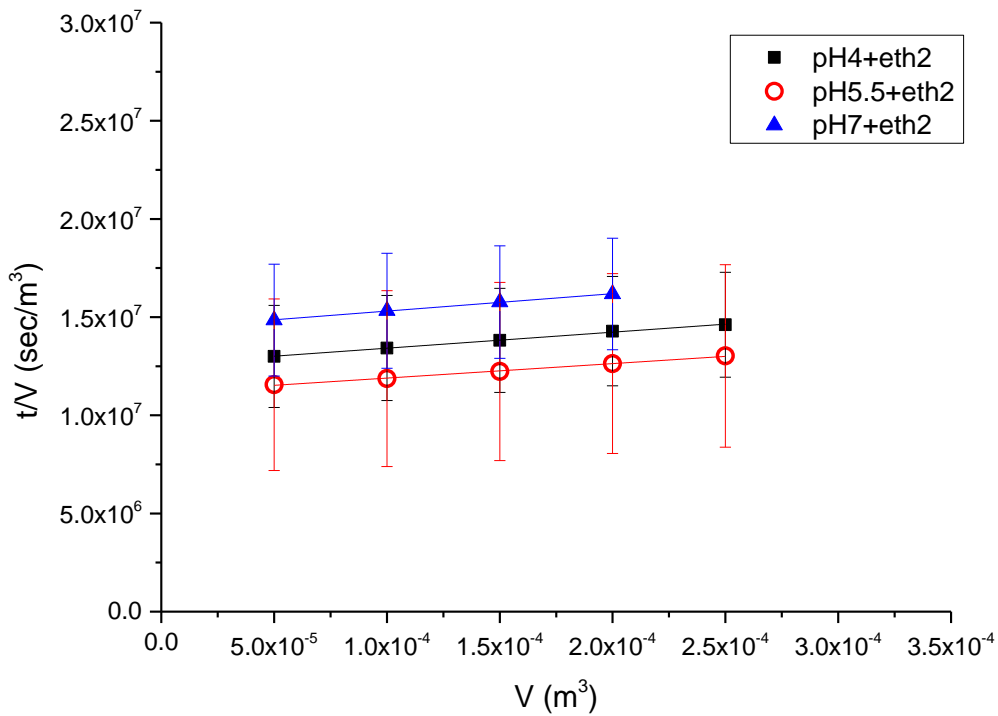


Fig. 4.3-29 pH4~7+eth2 之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

R_m 、 α 與 WHC 之關係如 Fig. 4.3-30、Fig. 4.3-31，在此培養條件下，由於此三組之 WHC 非常接近，其薄膜阻力也是一個相近的值，而與 pH4~7+glu0.5+gly1.5 相比，亦可發現隨著 WHC 的提升，薄膜阻力呈下降的趨勢。pH4~7+eth2 之薄膜阻力依序為 $1.09 \times 10^{12}(\text{m}^{-1})$ 、 $9.31 \times 10^{11}(\text{m}^{-1})$ 、 $1.11 \times 10^{12}(\text{m}^{-1})$ 。且 α 亦不隨 WHC 而改變。

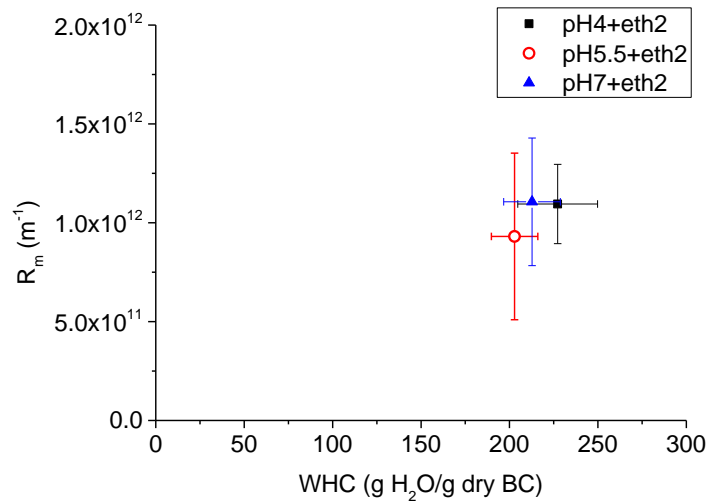


Fig. 4.3-30 pH4~7+eth2 之 WHC 與 R_m 關係圖

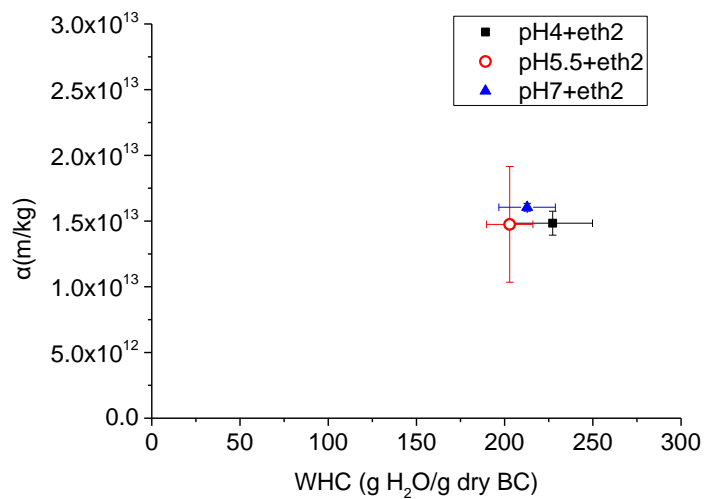


Fig. 4.3-31 pH4~7+eth2 之 WHC 與 α 關係圖

4.4 不同培養條件對於細菌纖維素產量、WHC 之關係

由 4.3 各小節整理的實驗結果如 Fig. 4.4-1，可以發現纖維素的產量與含水量是一反向關係。含水量越高的纖維素產量越低；含水量越低的纖維素產量越高。由於是批次培養及生物的合成物質，因此具有些微差異性。與(范, 2020)的實驗結果如 Fig. 4.4-2 相比，可以發現實驗結果趨勢相同，皆可以發現產量與含水量呈反向關係。

產量越低的纖維素代表著整體纖維量較少，而本實驗發現不同培養條件所合成出的纖維素具有相同的體積，因此可知產量低的纖維素具有更多的空間可以容納水，這就是纖維素產量和含水量呈反向關係的原因。

然而纖維素產量和其含水量關係並非完全呈反向關係，在產量低於 1.0g/L 時，WHC 有一量測極限值(約 225 g H₂O/g dry BC)，例如:pH4~pH7+eth2、pH7+gly2 等組別，這是因為本實驗所使用的瀝乾法(藍, 2017)，若是纖維素的產量更低的話，無法形成膜狀就無法放在鐵絲網上進行實驗。而在產量於 3.0g/L 後，WHC 並沒有持續的下降，而是維持約 50 g H₂O/g dry BC，例如:pH4+gly2、pH7+glu1+gly1、pH5.5~pH7+glu0.5+gly1.5，這是因為細菌纖維素的內部纖維就像打結的線團一樣，是不規則的糾纏在一起，代表細菌纖維素內部空間會具有一個最低孔隙度，導致其含水量不會再往下降低。

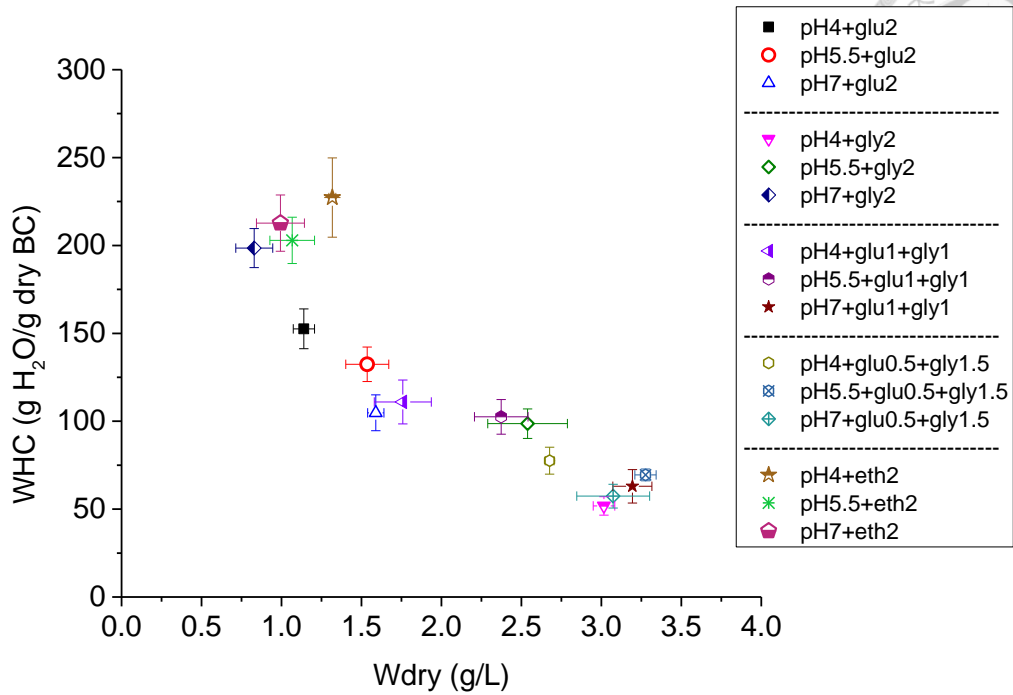


Fig. 4.4-1 不同培養條件下之 BC 產量與含水量之關係圖

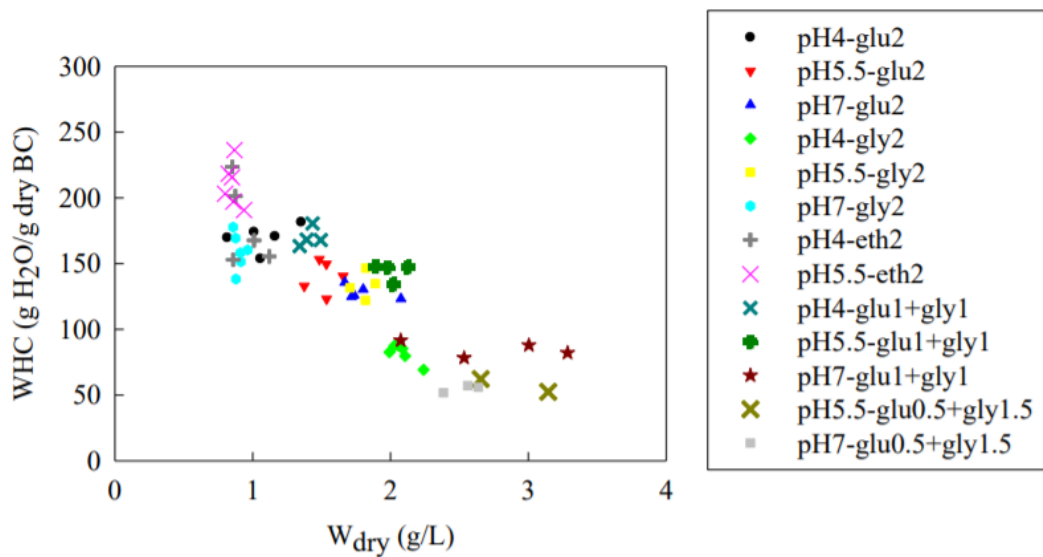


Fig. 4.4-2 不同培養條件下 BC 產量與含水量之關係圖(范, 2020)

4.5 BC 之 WHC 與 R_m · α 之關係

從 4.3 節中亦可以發現 BC 之 R_m 似乎與 WHC 呈現反向關係，在此整理了所有培養條件之 BC 的 R_m 與 WHC 之關係。如 Fig. 4.5-1， R_m 確實和 WHC 呈現反向關係，但在 WHC > 200g H₂O/g dry BC 時， R_m 會有微微上升的趨勢，這是因為在 WHC 越高時，由於纖維的數量較少，導致了 BC 本身的機械性質下降，因此在過濾時薄膜被壓得更緊密，出現了膜緻密的現象，這會使得薄膜的阻力值上升，比起 WHC 約為 150g H₂O/g dry BC 的 BC 之 R_m 上升 1.4 倍或 2.4 倍，不過整體來看仍是符合反向關係，可知 WHC 下降所帶給 R_m 的影響還是比較明顯的。

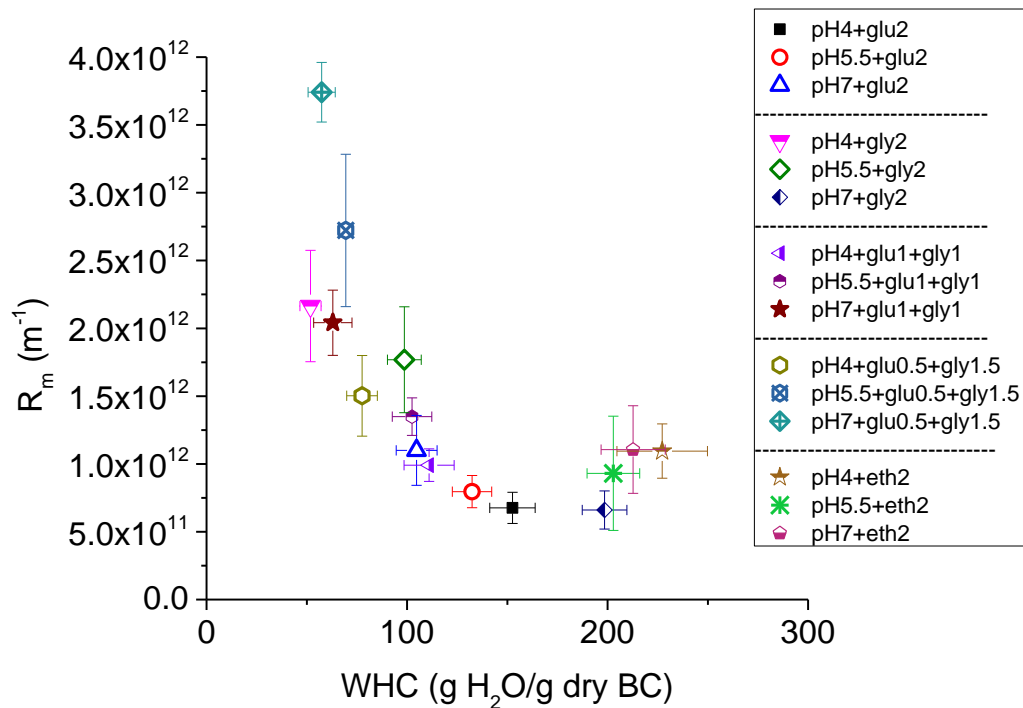


Fig. 4.5-1 BC 之 WHC 與 R_m 關係圖

而平均過濾比阻(α)並不會隨 BC 之含水量變化而改變，大約為 $(1.5 \pm 0.17) \times 10^{13}$ (m/kg)。，如 Fig. 4.5-2，代表著大豆油乳液對於 BC 薄膜在過濾時所增加的平均阻力。

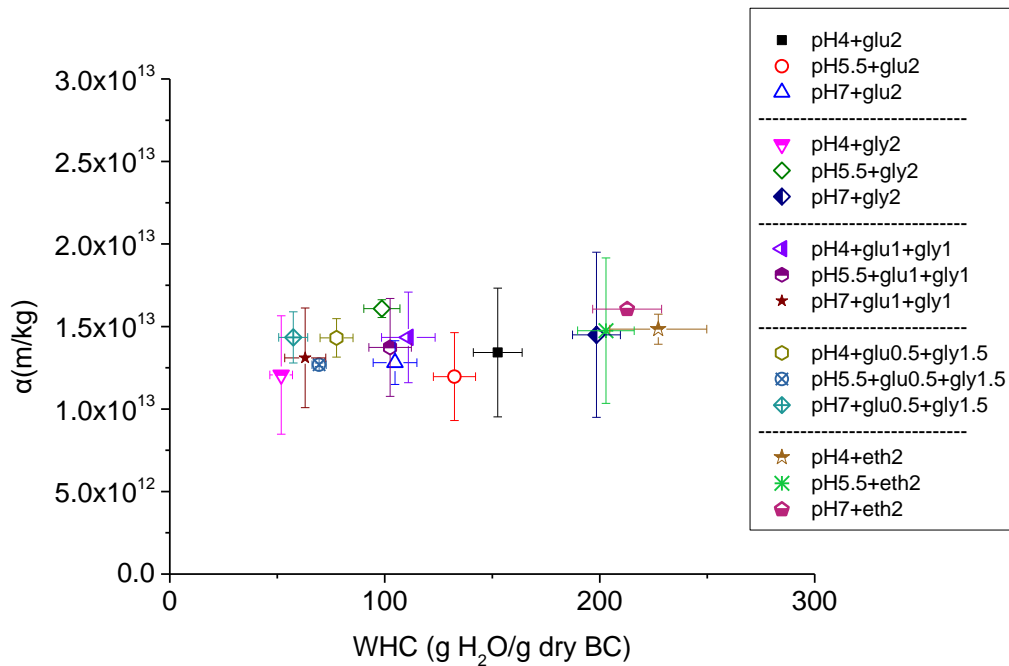


Fig. 4.5-2 BC 之 WHC 與 α 關係圖

而在本研究中可知，不論是含水量高或低的 BC 皆具有阻抗油滲出的功能，此外，可知高含水量之 BC 對於水具有較低的阻力，因此需要快速釋放水溶性藥物時，便可以使用高含水量之 BC；而需要延長水溶性藥物釋放時間時，則可選擇低含水量之 BC。

4.6 不同厚度、不同 WHC 之 BC 對於過濾效果之影響

於先前實驗室的研究中(詹, 2013)以饋料批次(Fed-batch)靜置培養可生產出不同厚度之 BC, 並以擴散實驗來計算其通透性, 結果顯示 BC 在相同含水量下, 厚度增加時, 葡萄糖分子需要擴散至另一槽的距離也較長, 因此兩槽達濃度平衡的時間也較慢。在此與 4.3 章節相同, 並利用不同培養基組成所靜置培養出來的 BC 以 2 片或 3 片交疊與饋料批次靜置培養增厚的 BC 進行過濾實驗, 計算出不同厚度、不同 WHC 之 BC 薄膜阻力, 實驗條件如下:

Table. 4.6-1 不同厚度細菌纖維素培養條件及過濾條件

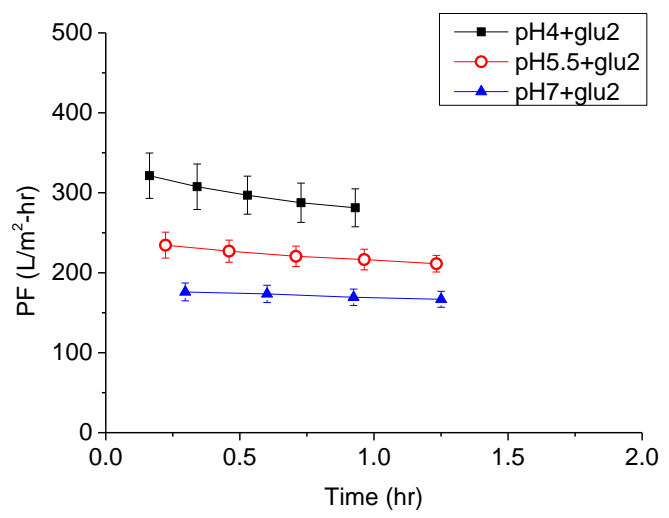
培養基組成	HS medium
培養容器	250 ml 錐形瓶
初始培養基體積	50 ml
植菌來源	預培養菌液
植菌濃度	10 (v/v) %
培養時間	葡萄糖為碳源：7 天 甘油為碳源：10 天 乙醇為碳源：14 天 葡萄糖與甘油為碳源：10 天
碳源總濃度	2.0 (w/v)% (20 g/L)
培養溫度	26 °C
培養方式	靜置培養
過濾面積(A)	$9.62 \times 10^{-4} \text{ m}^2$
1 片薄膜厚度(L)-過濾前	2 mm
1.5 倍薄膜厚度(L)-過濾前	3 mm
2 片薄膜厚度(L)-過濾前	4 mm
3 片薄膜厚度(L)-過濾前	6 mm
$ \Delta P $	70 cmHg
過濾液濃度	0.1g 大豆油+ 1.0L 去離子水
過濾液黏度	$0.89 \times 10^{-3}(\text{kg/m-sec})$



4.6.1 pH4~7+glu2 之不同厚度其過濾效果

2 片薄膜、3 片薄膜之油水濾液通量如 Fig. 4.6-1，在同一 pH 值的培養條件下，3 片薄膜之通量皆比 2 片薄膜低，這是因為隨著片數的增加使得有更多的纖維阻擋流體，流體經過薄膜的時間會變長，因此造成了通量變低之現象。

(a)



(b)

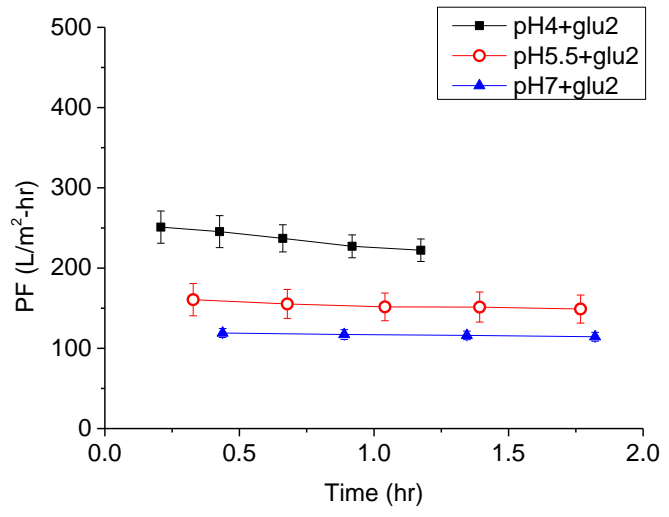
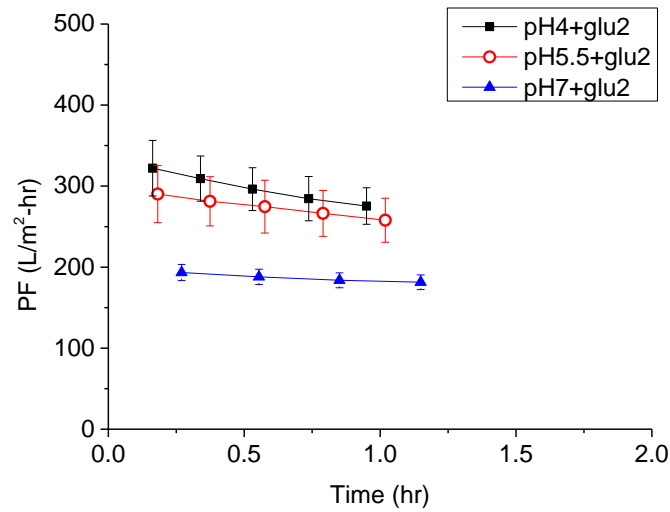


Fig. 4.6-1 pH4~7+glu2(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖

此外，利用(詹, 2013)饋料批次靜置生產出不同厚度之 BC 亦呈現厚度增加其通量降低的現象，1.5 倍厚度、2 倍厚度之油水濾液通量如 Fig. 4.6-2。以純葡萄糖為碳源時，不論是片數或厚度增加時，於起始培養基 pH=7 時，皆具有最低的起始油水濾液通量，接著是 pH=5.5、pH=4。



(a)



(b)

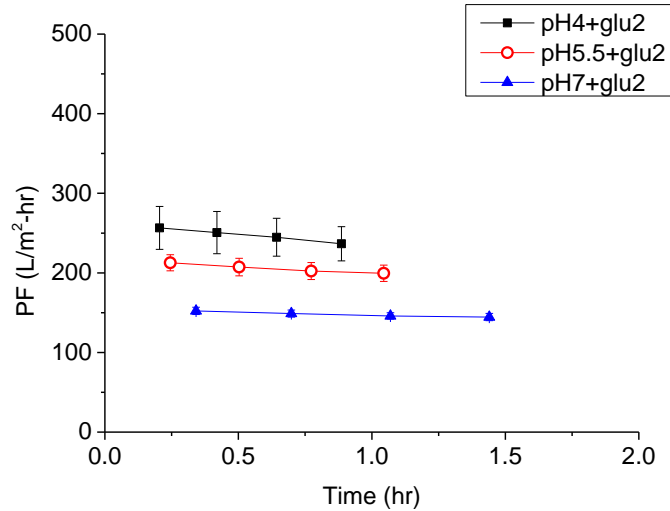
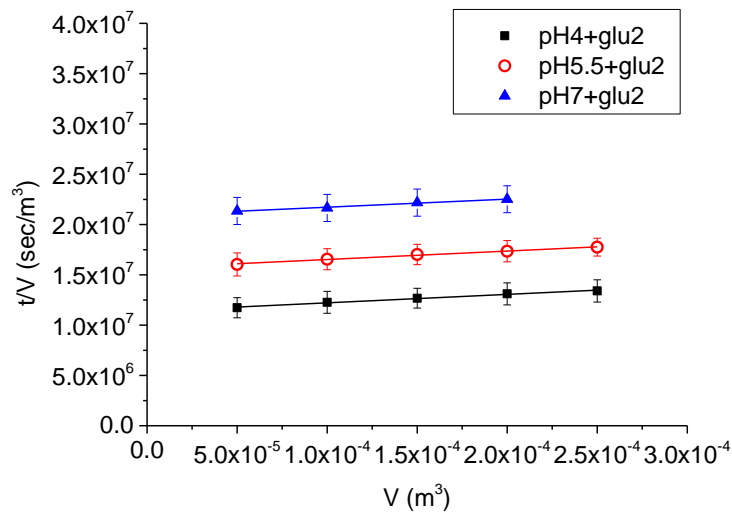


Fig. 4.6-2 pH4~7+glu2 (a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖

2 片薄膜、3 片薄膜之 V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.6-3，如上一段所述，在不同厚度之薄膜過濾實驗中，由於薄膜厚度改變使得水需要流經的時間要更久，因此增加過濾時間，亦反映到截距的大小。直線的截距越大，代表著薄膜具有越高的薄膜阻力，而在同一 pH 值的培養條件下，三片薄膜所對應到的截距大小皆比兩片薄膜大。

(a)



(b)

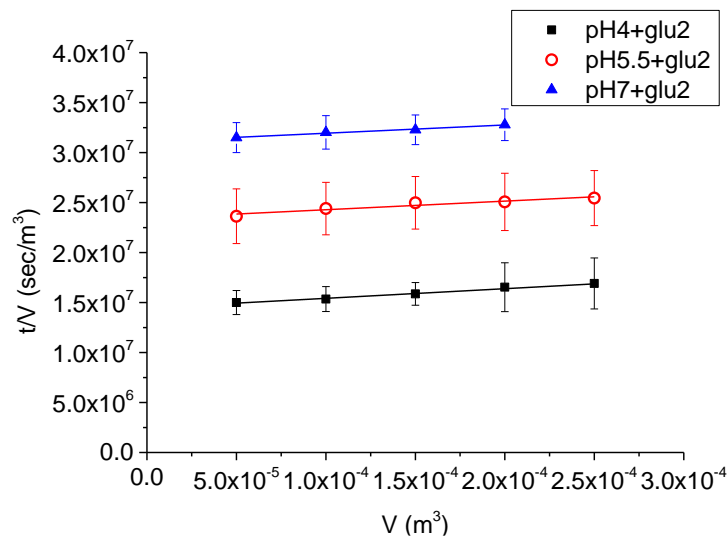
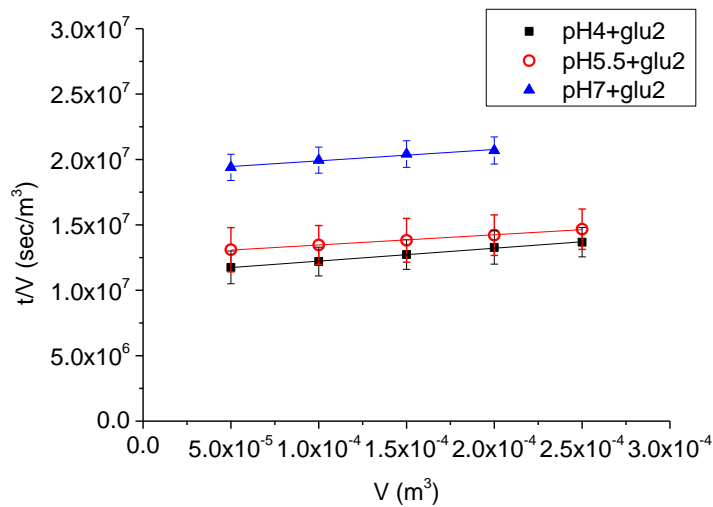


Fig. 4.6-3 pH4~7+glu2(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.6-4，饋料批次靜置增厚之 BC 其所對應到的截距大小亦呈現厚度增加時截距數值越大。以純葡萄糖為碳源時，於不同片數或厚度時，起始培養基 pH=7 時具有最大的截距數值，其次是 pH=5.5、pH=4。

(a)



(b)

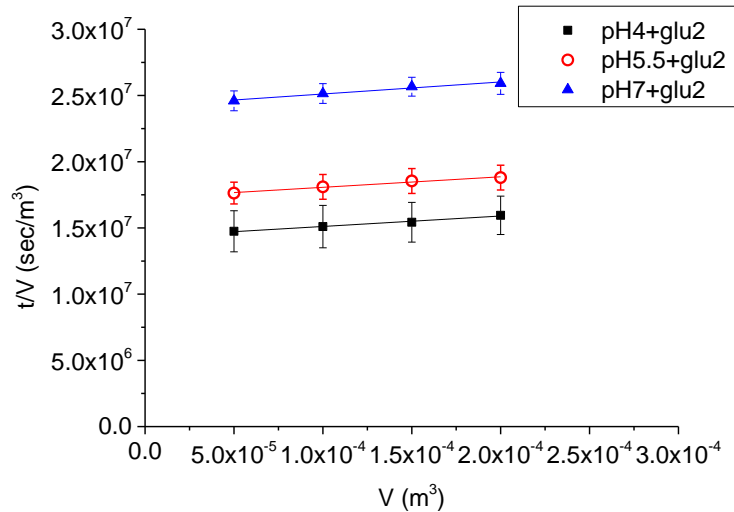


Fig. 4.6-4 pH4~7+glu2(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

2 片薄膜、3 片薄膜、1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 WHC 與 R_m 、 α 之關係如 Fig. 4.6-5、Fig. 4.6-6，與 4.3.1 節具有相同趨勢，阻力由大到小依舊是 pH7+glu2>pH5.5+glu2>pH4+glu2。此外，由於過濾物質之組成並沒有改變，僅改變了薄膜厚度只會增加了薄膜對於流體的阻力，所以在此 α 沒有隨著 WHC 改變且亦沒有隨著薄膜厚度的增加而改變。

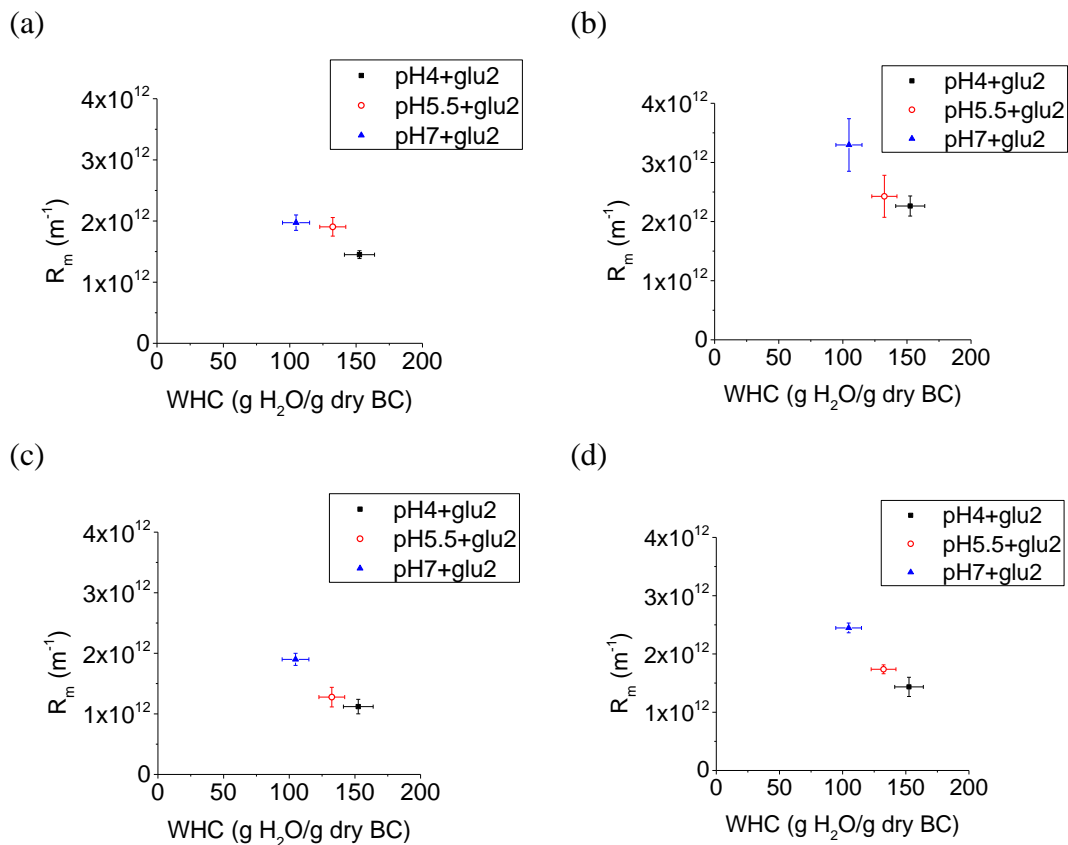


Fig. 4.6-5 pH4~7+glu2(a)2片(b)3片(c)1.5倍厚度(d)2倍厚度薄膜之之 WHC 與 R_m 關係圖

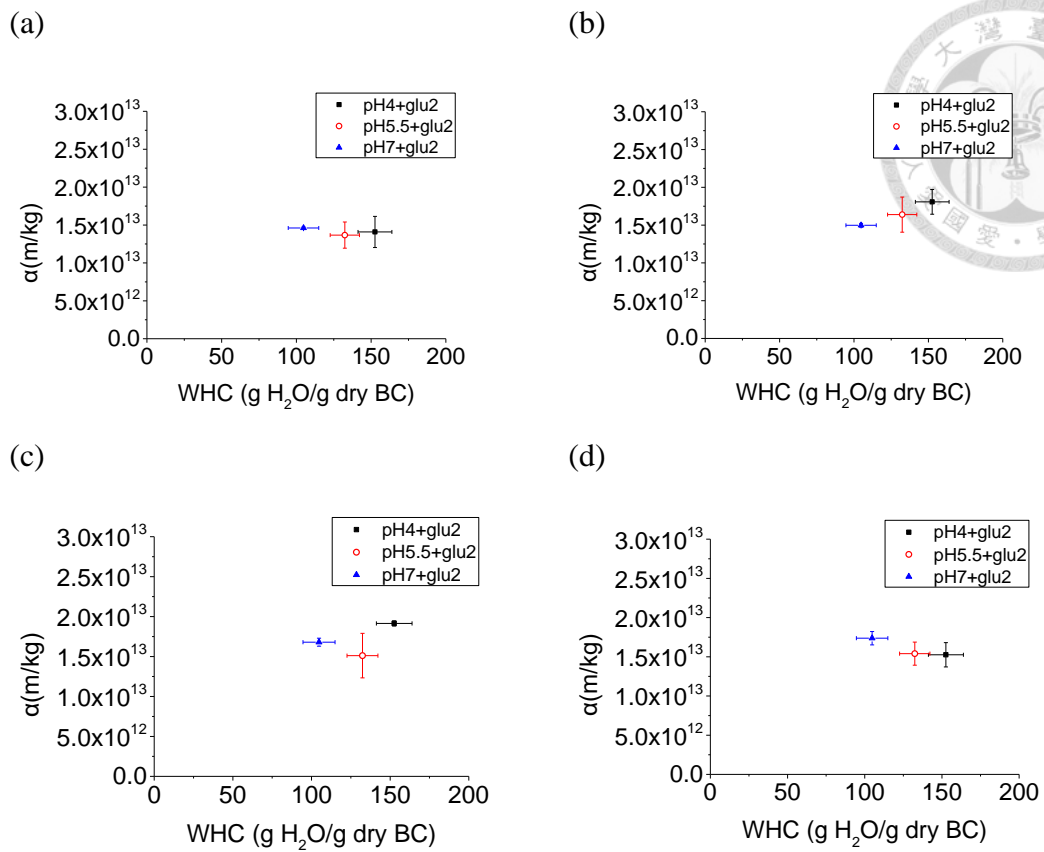


Fig. 4.6-6 pH4~7+glu2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖

相較於(Hassan et al., 2017)，該篇作者使用了不同培養天數之 BC 薄膜作為挑選過濾膜的標準，該篇文中指出 BC 的厚度和產量會對過濾速度有顯著的影響，但隨著厚度的增加時其過濾通量並沒有隨之下降如 Table. 4.6-2、Table. 4.6-3。文中作者推測可能原因為培育四天以後的 BC 其孔隙度與孔徑較為接近，因此具有接近的過濾通量。但相較於本文，該文獻中使用的含水量表示方法如 Eq. 2.4-1，且沒有提出量測濕重的準則，而含水量是與內部結構相關的一個重要物性，因此就無法看出不同培養天數時其內部結構之變化對於過濾速度的影響。

Table. 4.6-2 不同培養天數之 BC 濕重、乾重、含水量、厚度(Hassan et al., 2017)

Incubation Period (Days)	Wet Weight (g)	Dry Weight (g)	Water Content (%)	Wet Thickness (mm)	Dry Thickness (mm)
2	1.40	0.017	98.8	0.40	0.02
4	10.66	0.13	98.7	3.85	0.04
6	21.43	0.17	99.2	5.23	0.08
10	51.58	0.44	99.1	11.60	0.1

Table. 4.6-3 Crosslinked cellulose nanofibers, CNF(植物來源)與不同培養天數之 BC 之純水通量(Hassan et al., 2017)

Sample	2-Day BC	4-Day BC	6-Day BC	10-Day BC	CNF
Water flux (L/h/m ²)	845 ± 70	448 ± 45	441 ± 67	498 ± 52	192 ± 29

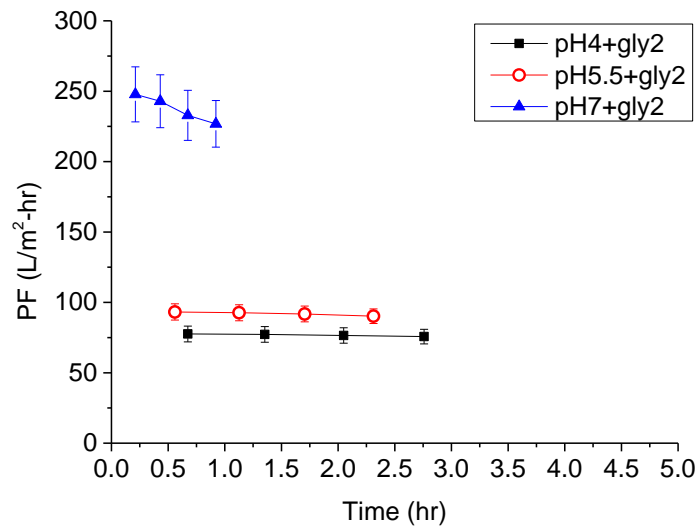
而(詹, 2013)指出不同厚度的 BC 可能會因培養方式或是菌株代謝能力不同而產生不同結構的 BC，若是要生產出厚度較高但結構較為鬆散的 BC，可以利用減少饋料的次數並增加每次饋料的添加量；若是要生產出厚度較高但結構較為緊密，結構接近於多片交疊的 BC 時，可以增加饋料的次數並減少每次饋料的添加量，而本文依照第二項方法所增厚出來的 BC 與多片交疊而成的 BC 具有相近的薄膜阻力，因此可以得知其內部結構較為接近，除了厚度以外亦可發現含水量對於薄膜阻力的影響。

4.6.2 pH4~7+gly2 之不同厚度其過濾效果



2 片薄膜、3 片薄膜之油水濾液通量如 Fig.4.6-7，與 4.6.1 章節相比，在同一 pH 值的培養條件下，隨著片數的增加，2 片薄膜其過濾通量且皆比 1 片薄膜低，而 3 片薄膜之通量比 2 片薄膜低。

(a)



(b)

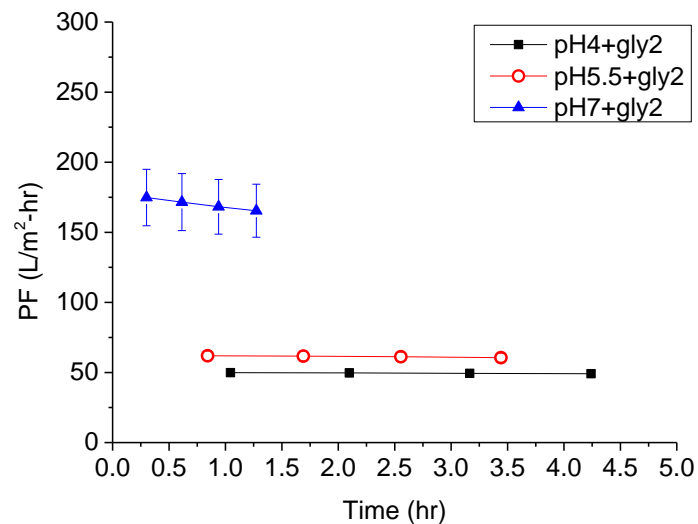
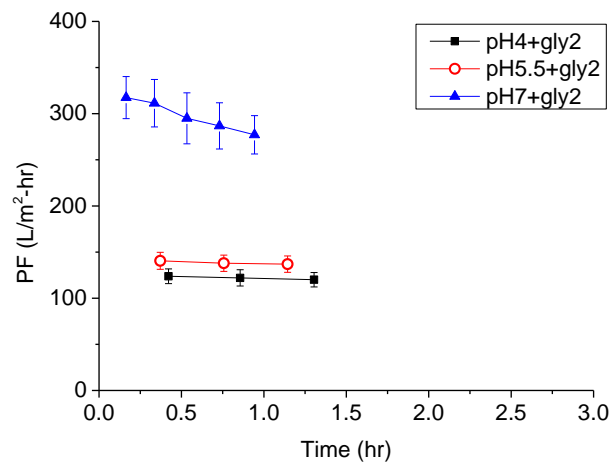


Fig. 4.6-7 pH4~7+gly2(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖

此外，利用饋料批次靜置培養增厚時，亦是呈現厚度增加通量下降的趨勢，1.5 倍厚度、2 倍厚度之油水濾液通量如 Fig. 4.6-8。以純甘油培養且起始培養基 pH=4 時，因為具有最低的含水量(約 52 g H₂O/g dry BC)所以其起始過濾通量是這三組培養條件中最低的，而 pH=7 時，因為含水量高(約 198 g H₂O/g dry BC)，因此起始過濾通量是最高的。

(a)



(b)

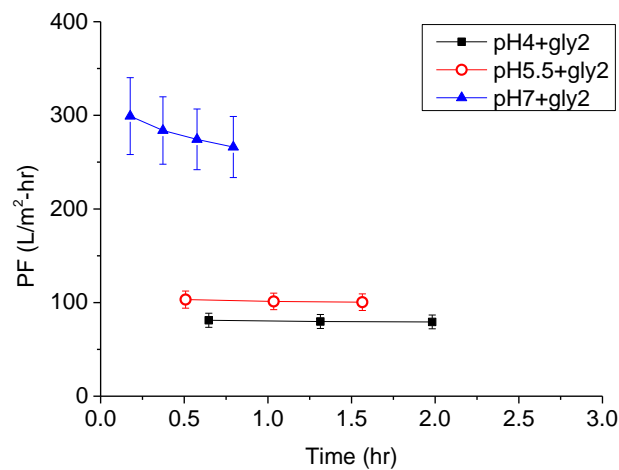
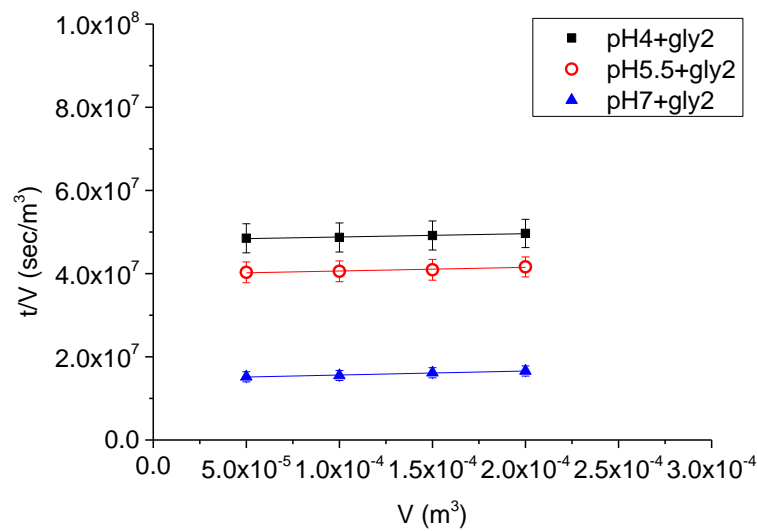


Fig. 4.6-8 pH4~7+gly2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖

2 片薄膜、3 片薄膜之 V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.6-9，在不同厚度之薄膜過濾實驗中，由於厚度的增加會使得流體透過時間變長，而 pH7+gly2 此組別因為含水量較高的原因，對於流體的阻力比起其他兩組小很多，因此在相同厚度時，截距所對應到的數值大小順序是 $\text{pH4+gly2} > \text{pH5.5+gly2} > \text{pH7+gly2}$ ，代表著 pH7+gly2 具有較低的薄膜阻力。

(a)



(b)

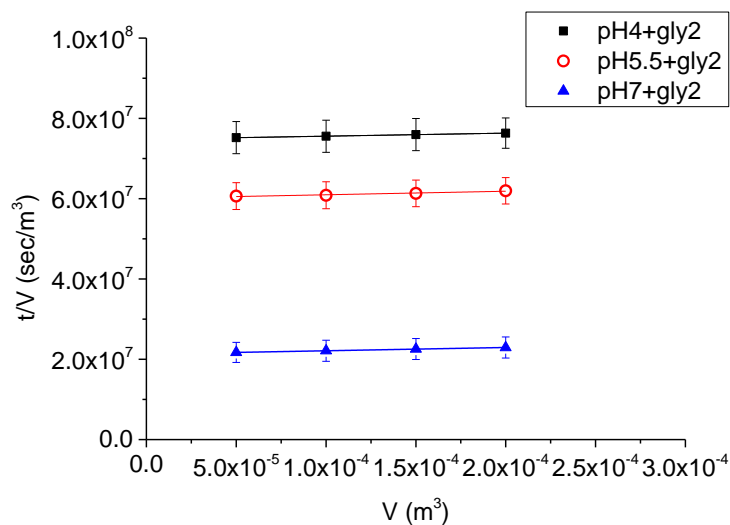
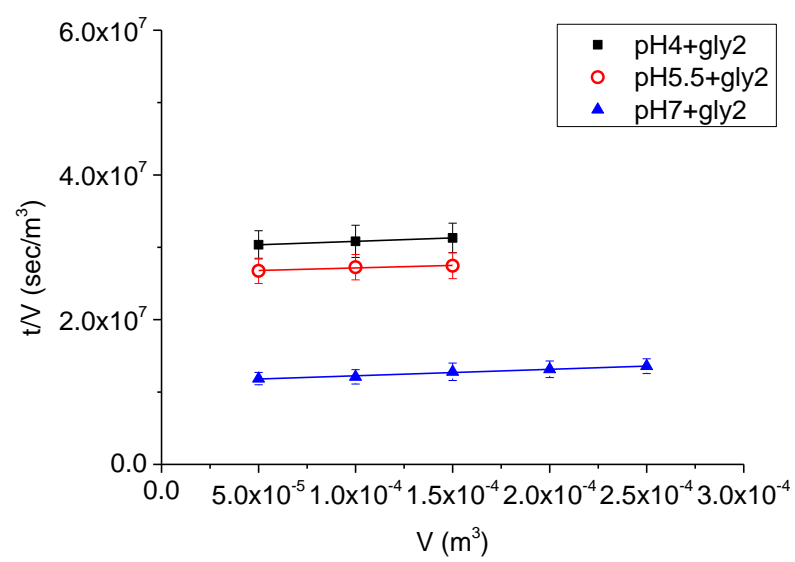


Fig. 4.6-9 pH4~7+gly2(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖



此外，實驗亦發現在同一 pH 值的培養條件下，以饋料批次靜置培養出來的 1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 V 與 t/V 之實驗結果如 Fig. 4.6-10，其中 2 倍厚度薄膜與 2 片薄膜之截距大小數值非常接近。

(a)



(b)

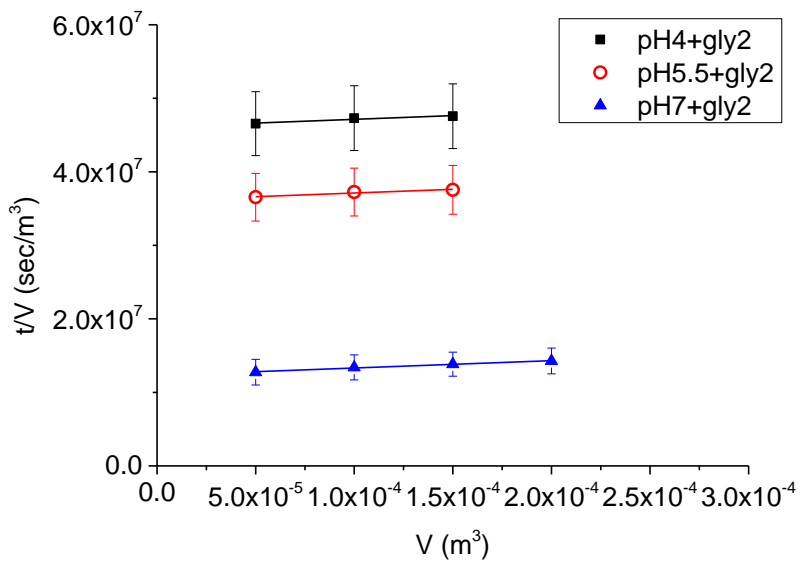


Fig. 4.6-10 pH4~7+gly2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

經過計算後，2 片薄膜、3 片薄膜、1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 WHC 與 R_m 之關係如 Fig. 4.6-11，與 4.3.2 節具有相同趨勢，不論厚度增加多少，pH4~7+gly2 其阻力由大到小的趨勢仍是 pH4+gly2>pH5.5+gly2>pH7+gly2。此外，可以看到 2 片薄膜與 2 倍厚度之薄膜阻力非常接近，代表著以饋料批次靜置生產 2 倍厚度之 BC 具有和 2 片薄膜相近的結構，因此於厚度皆為 4mm 時具有相同的薄膜阻力，且在此計算出來之 α 亦沒有隨著薄膜厚度的增加而改變，如 Fig. 4.6-12。

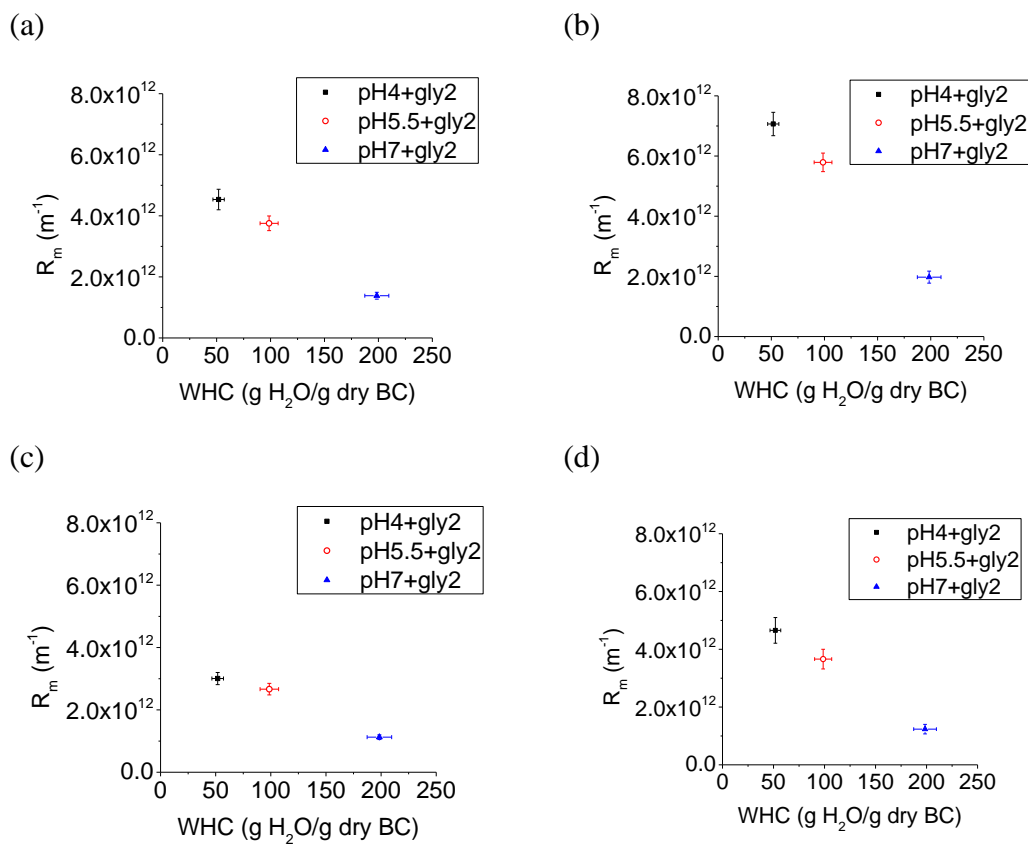


Fig. 4.6-11 pH4~7+gly2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之之 WHC 與 R_m 關係圖

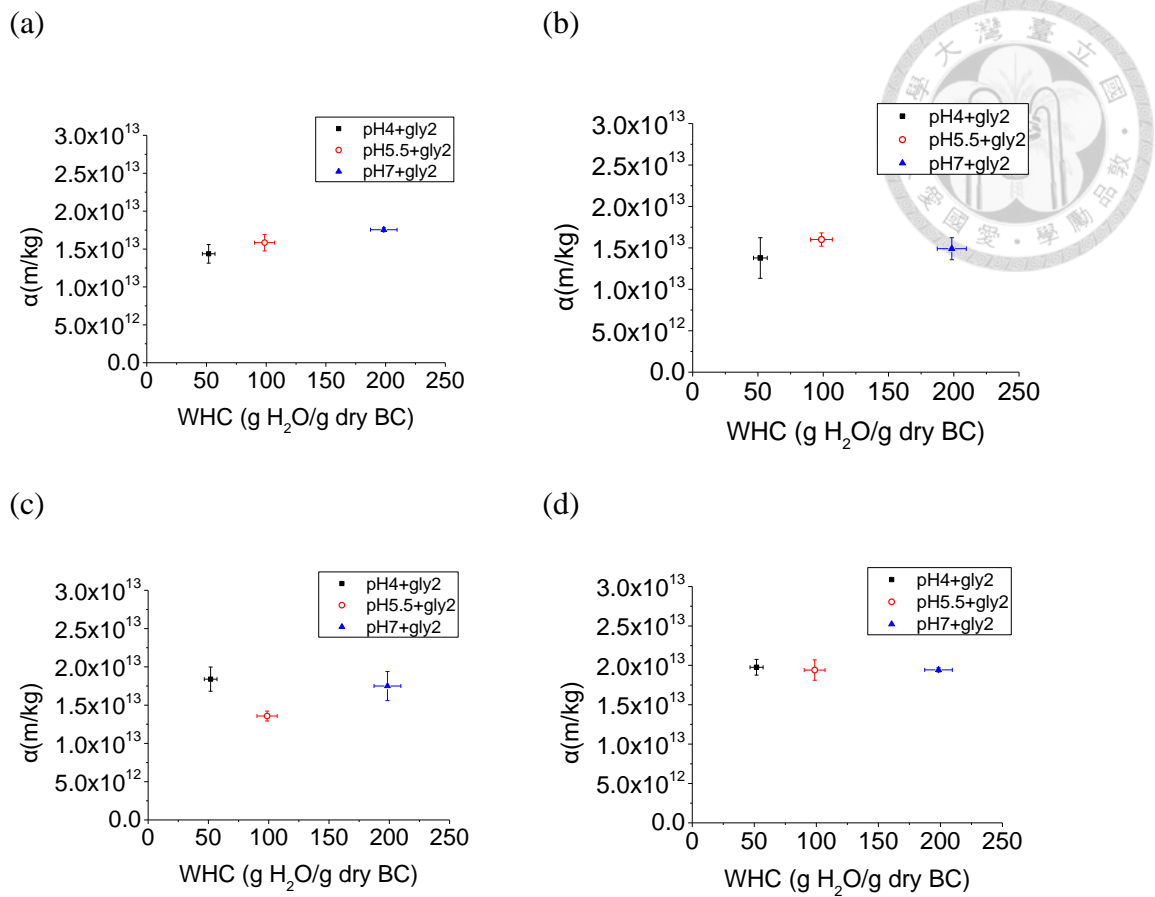



Fig. 4.6-12 pH4~7+gly2(a)2片(b)3片(c)1.5倍厚度(d)2倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖

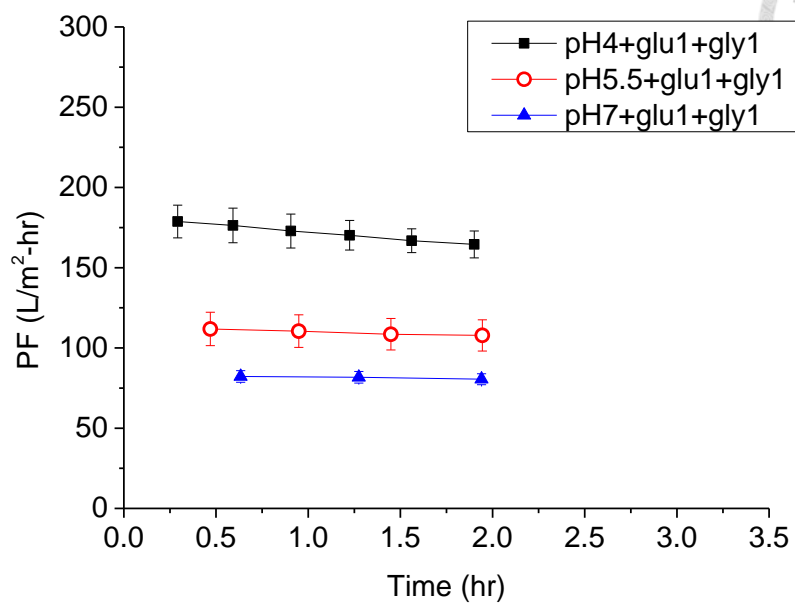
4.6.3 pH4~7+glu+1+gly1 之不同厚度其過濾效果



2 片薄膜、3 片薄膜之油水濾液通量如 Fig. 4.6-13，1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之油水濾液通量如 Fig. 4.6-14，隨著厚度或是片數的增加，通量也隨之下降，其通量趨勢與 4.3.3 節相同，在相同體積之下，1 片薄膜的 pH7+glu1+gly1 因為纖維較多、水可經過的空隙少，因此要過濾相同體積的水需要花最多的時間，而當厚度增加時 pH7+glu1+gly1 仍具有最低的起始過濾通量。此外，可以發現 pH7+glu1+gly1 之過濾油水通量曲線較接近一條水平線，似乎沒有下降的非常明顯，這是因為由於選定薄膜後，薄膜阻力將不再改變，隨著過濾時間增加，才會出現濾餅層給予的阻力，而薄膜阻力高的薄膜，在同樣的時間下，能夠通過的過濾液體積較少，相比於 pH4+glu1+gly1 的薄膜上累積濾餅層就會較少，使得 pH7+glu1+gly1 薄膜通量下降的幅度不明顯。



(a)



(b)

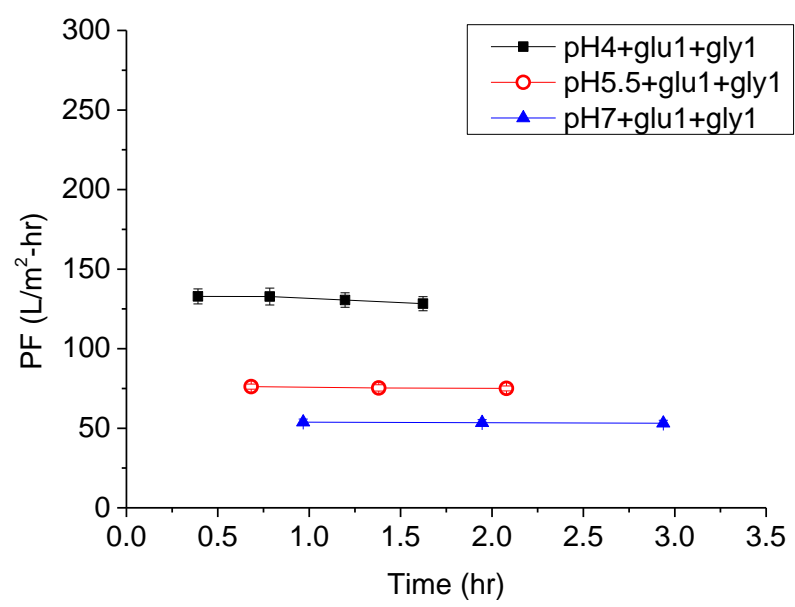
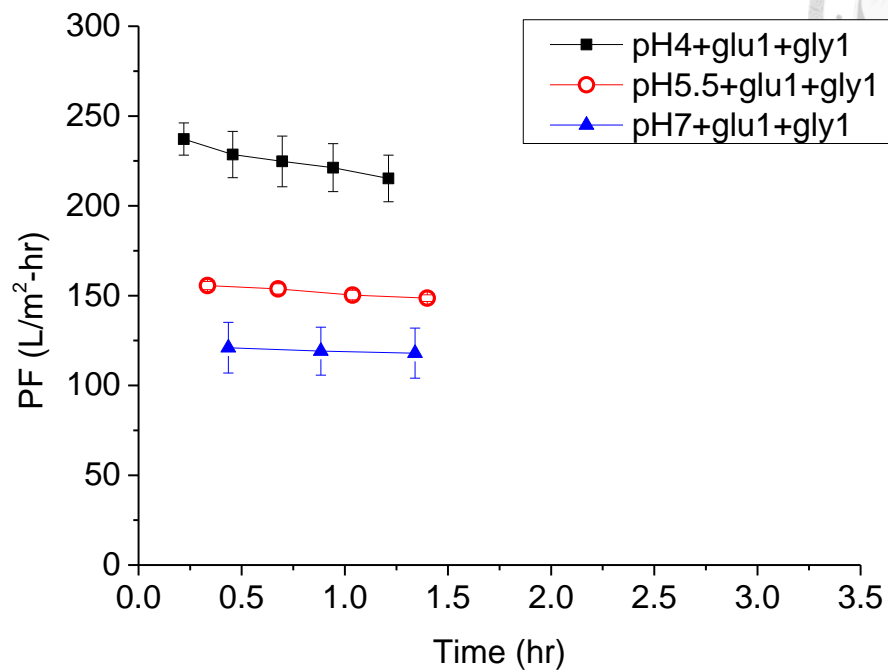


Fig. 4.6-13 pH4~7+glu1+gly1(a)2片(b)3片薄膜之油水乳液過濾通量圖

(a)



(b)

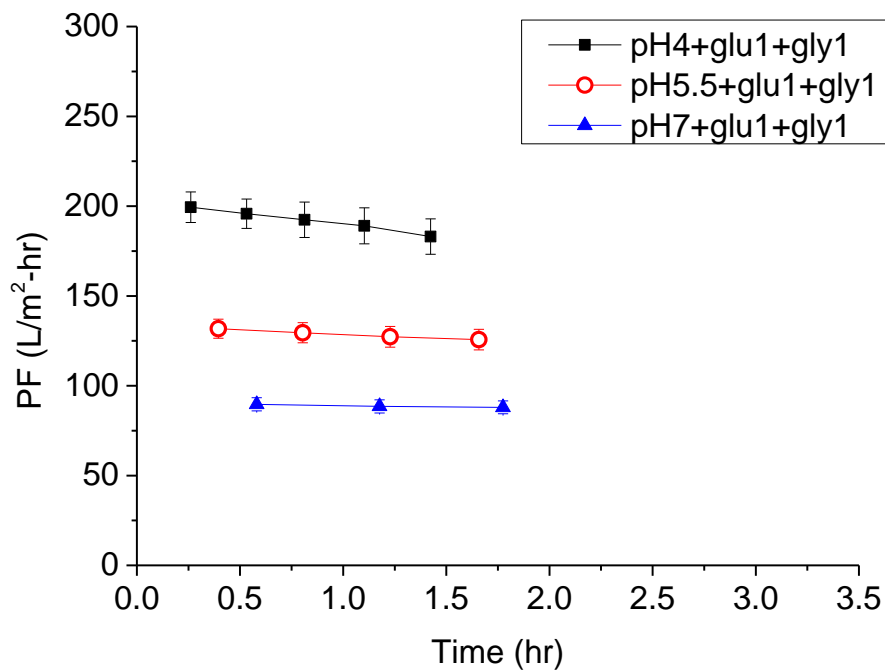
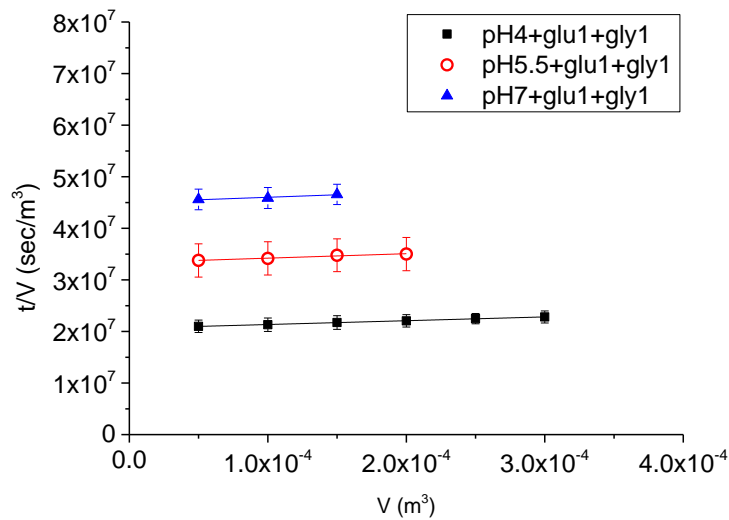


Fig. 4.6-14 pH4~7+glu1+gly1(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖

2 片薄膜、3 片薄膜之 V 與 t/V 其實驗結果如 Fig. 4.6-15，1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 V 與 t/V 其實驗結果如 Fig. 4.6-16，在不同厚度之薄膜實驗過濾中，當厚度越高或是片數越多時可以觀察到圖中的截距越高，因此可以預期其具有越高的薄膜阻力，而不論厚度如何改變，pH7+glu1+gly1 具有最高的截距，pH4+glu1+gly1 則具有最低的截距。

(a)



(b)

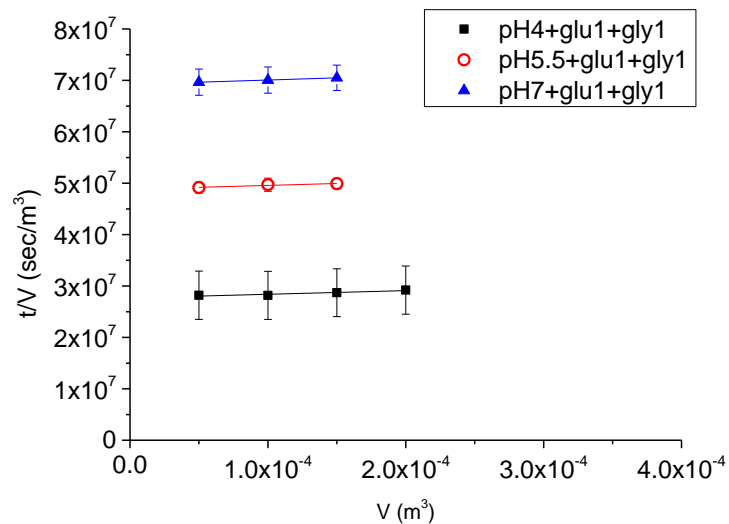
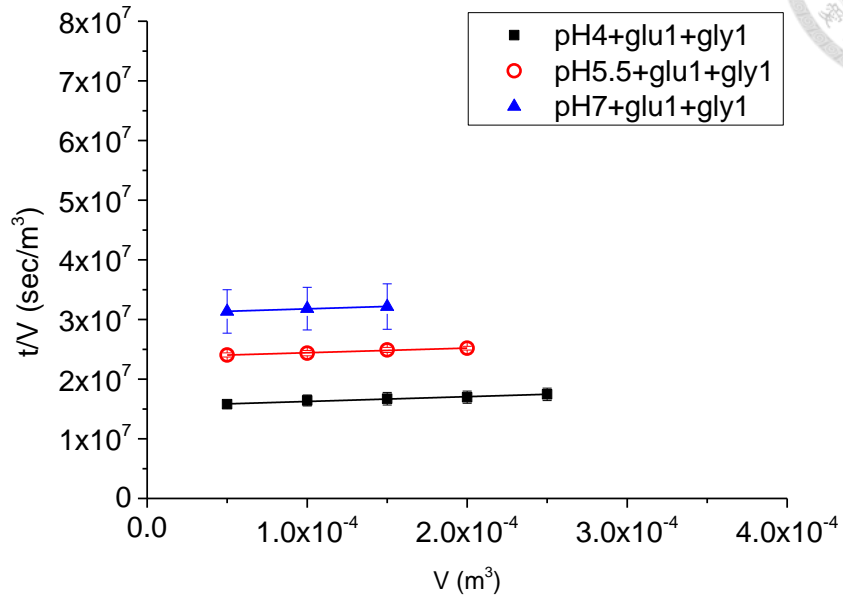


Fig. 4.6-15 pH4~7+glu1+gly1(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖



(a)



(b)

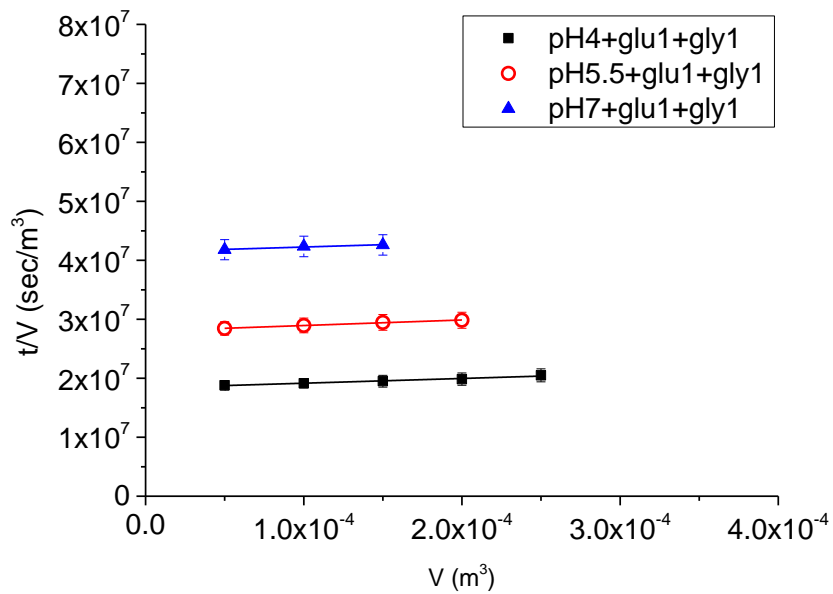


Fig. 4.6-16 pH4~7+glu1+gly1(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

經過計算後，2 片薄膜、3 片薄膜、1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 WHC 與 R_m 、 α 之關係如 Fig. 4.6-17、Fig. 4.6-18，與 4.3.3 節具有相同趨勢，不論厚度的改變 pH4~7+glu1+gly1 之阻力由小到大是 pH4+glu1+gly1 < pH5.5+glu1+gly1 < pH7+glu1+gly1。此外，不論培養條件如何改變，在厚度皆為 4 mm 之下，2 片薄膜與經饋料批次靜置培養的 2 倍厚度薄膜具有相同的薄膜阻力代表著其具有相同的內部結構。在此所計算出來的 α 亦沒有隨薄膜改變而改變。

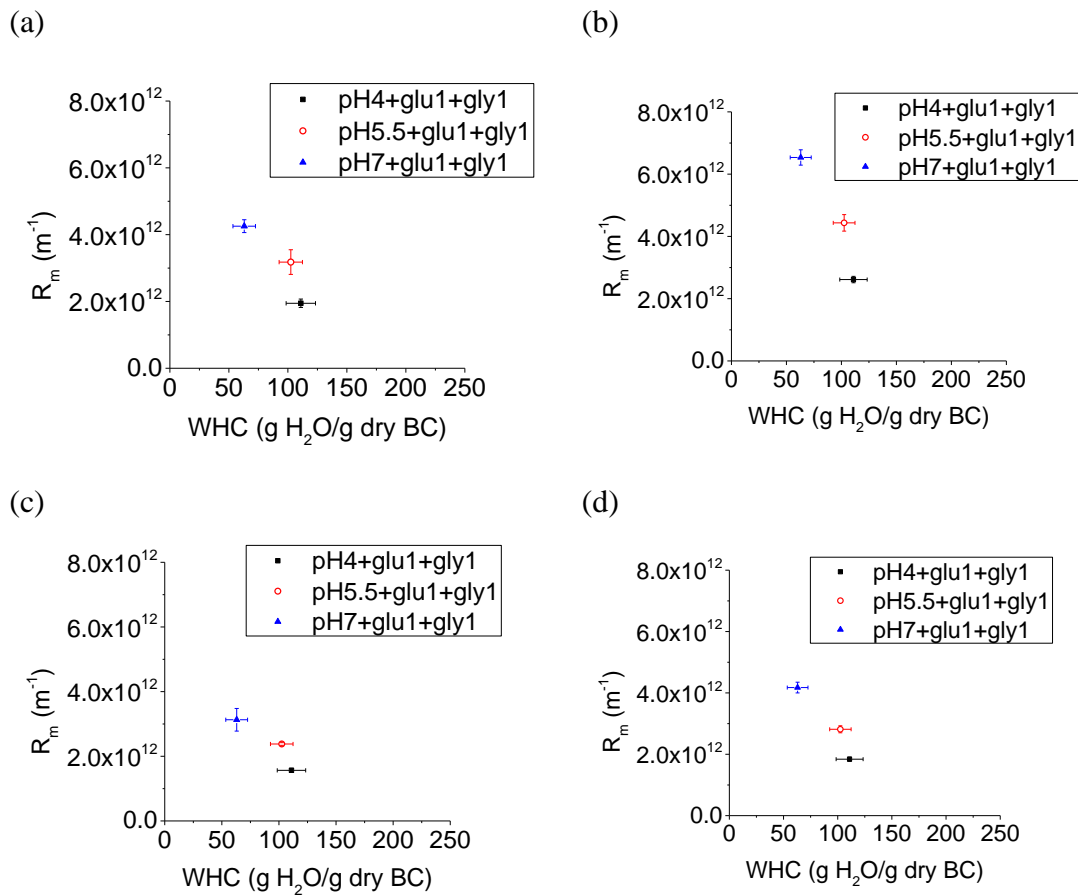


Fig. 4.6-17 pH4~7+glu1+gly1(a)2片(b)3片(c)1.5倍厚度(d)2倍厚度薄膜之 WHC 與 R_m 關係圖

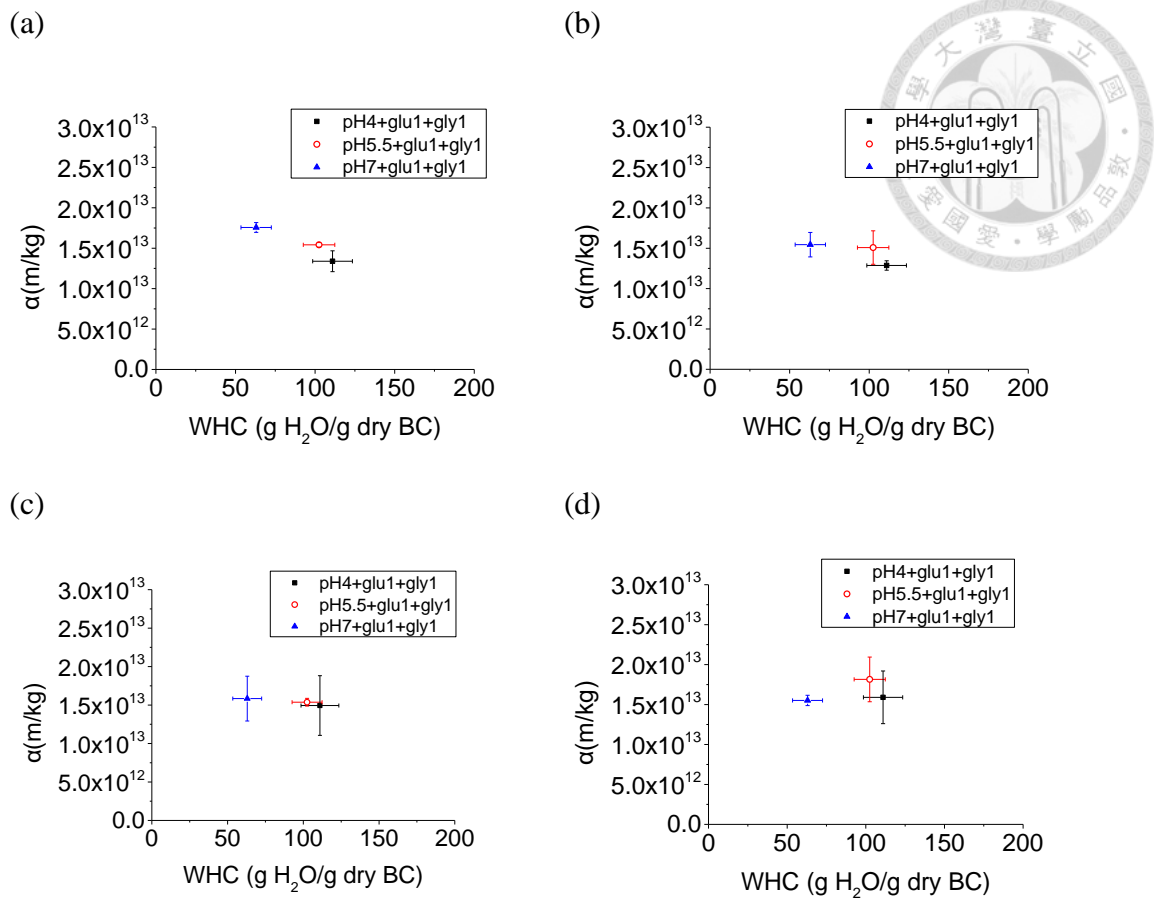


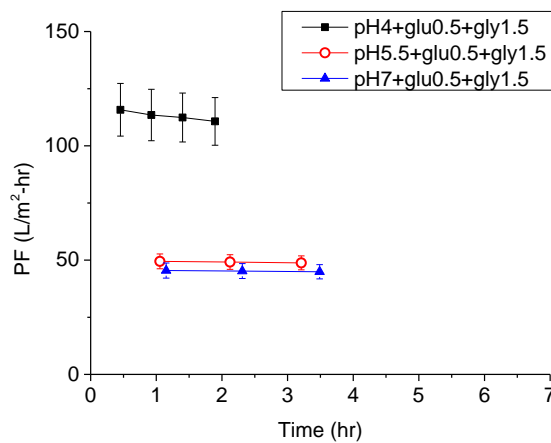
Fig. 4.6-18 pH4~7+glu1+gly1 (a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖

4.6.4 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之不同厚度其過濾效果



2 片薄膜、3 片薄膜之油水濾液通量如 Fig. 4.6-19，1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之油水濾液通量如 Fig. 4.6-20，通量趨勢與 4.3.4 章節相同，在此節中，不論厚度的改變，pH7+glu0.5+gly1.5 具有最低的過濾通量，而越高含水量之薄膜 pH4+glu0.5+gly1.5 則具有最高的過濾通量。在此部份可以發現同樣在厚度改變時，pH5.5+glu0.5+gly1.5 之起始過濾通量和 pH7+glu0.5+gly1.5 之起始過濾通量一樣非常接近，且兩者過濾通量曲線也是接近為一條水平線，代表其內部結構與不同片數交疊而成的薄膜接近。

(a)



(b)

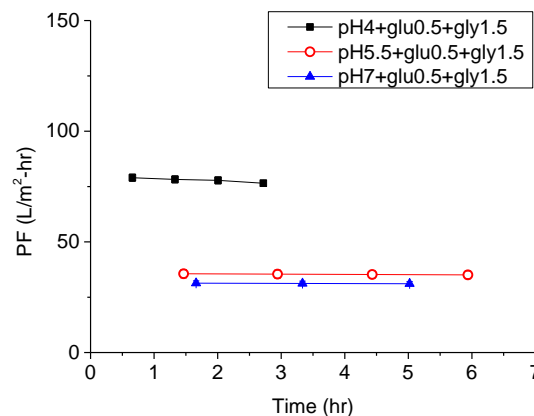
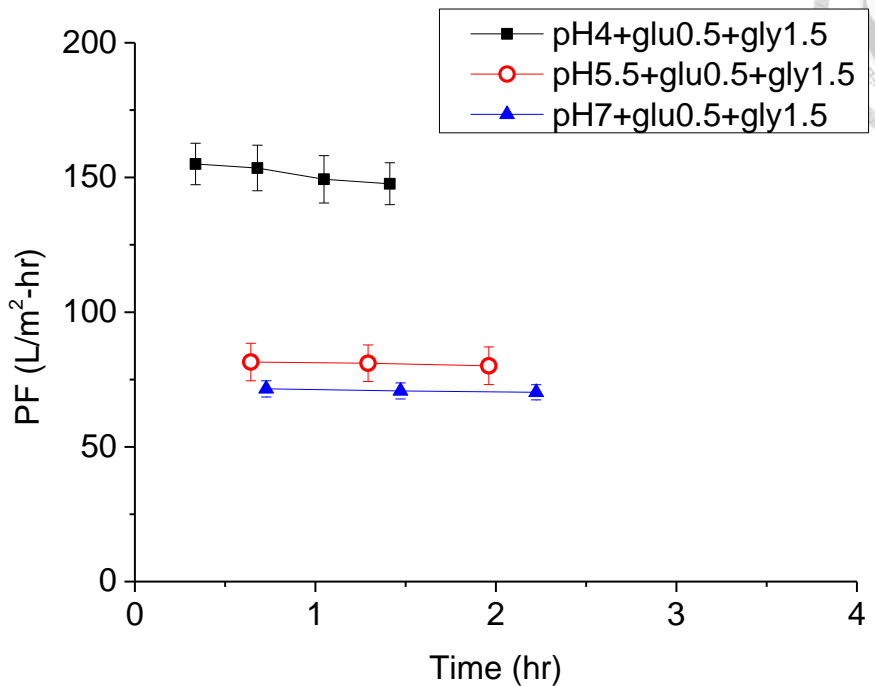


Fig. 4.6-19 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖



(a)



(b)

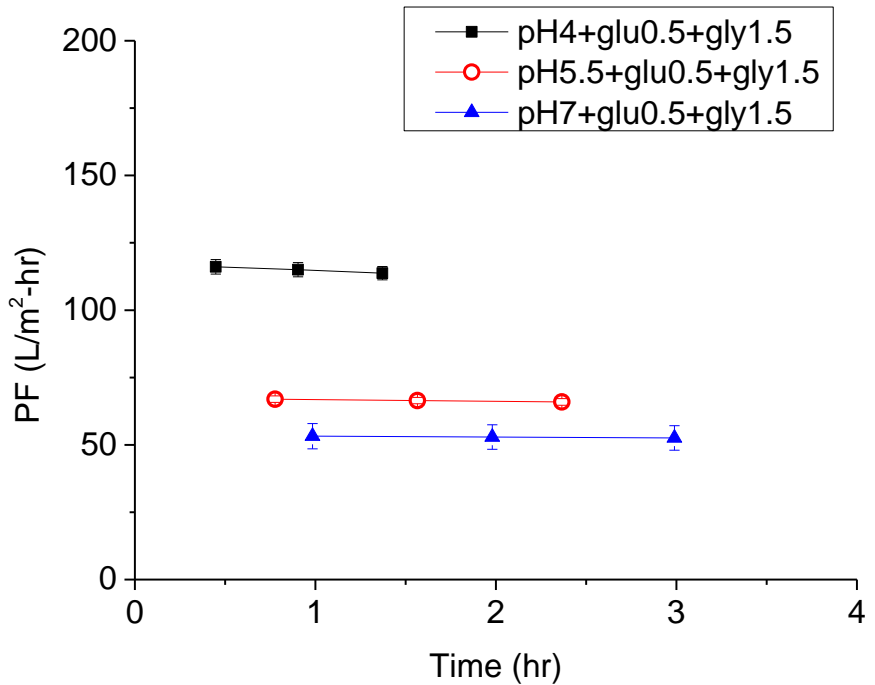
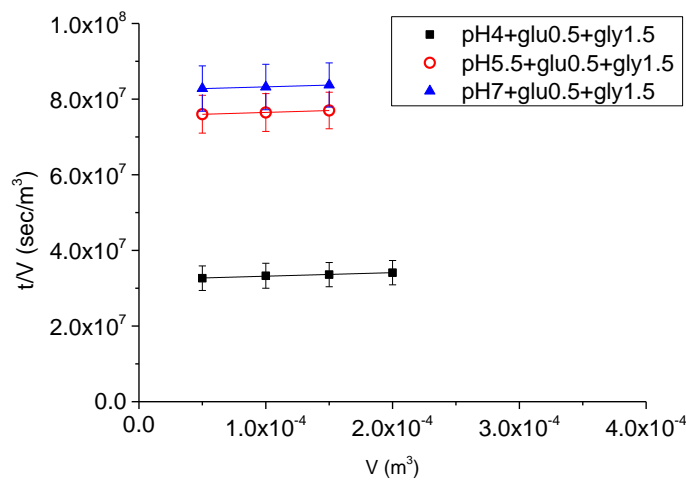


Fig. 4.6-20 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖

2 片薄膜、3 片薄膜之 V 與 t/V 其實驗結果如 Fig. 4.6-21，1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 V 與 t/V 其實驗結果如 Fig. 4.6-22，由於此圖是比較每過濾單位體積之過濾液所需的時間，可以發現 WHC 越小、薄膜越厚的薄膜具有最高的截距數值，如 pH7+glu0.5+gly1.5；而每過濾單位體積的濾液，濾餅所給予阻力造成流體流動的時間延長，會反映在下一個時間點，因此可經由斜率來求得過濾比阻 (α)，在此部分也沒有隨著薄膜厚度的增加而改變，與 4.6.3 章節相同。

(a)



(b)

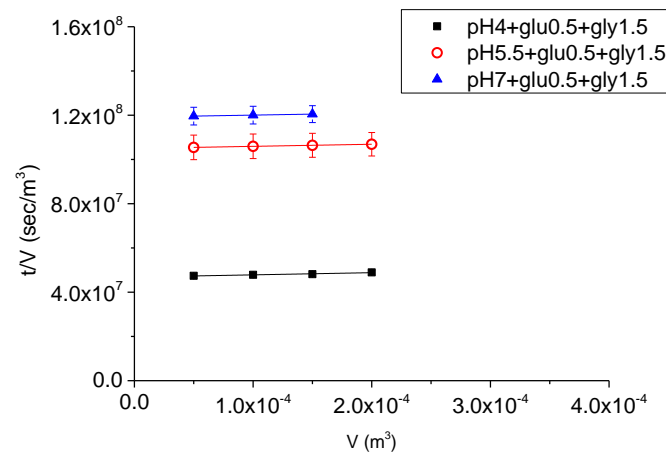
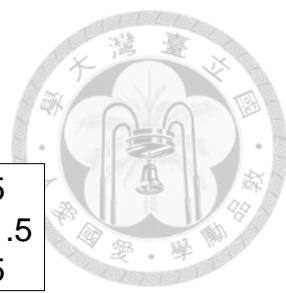
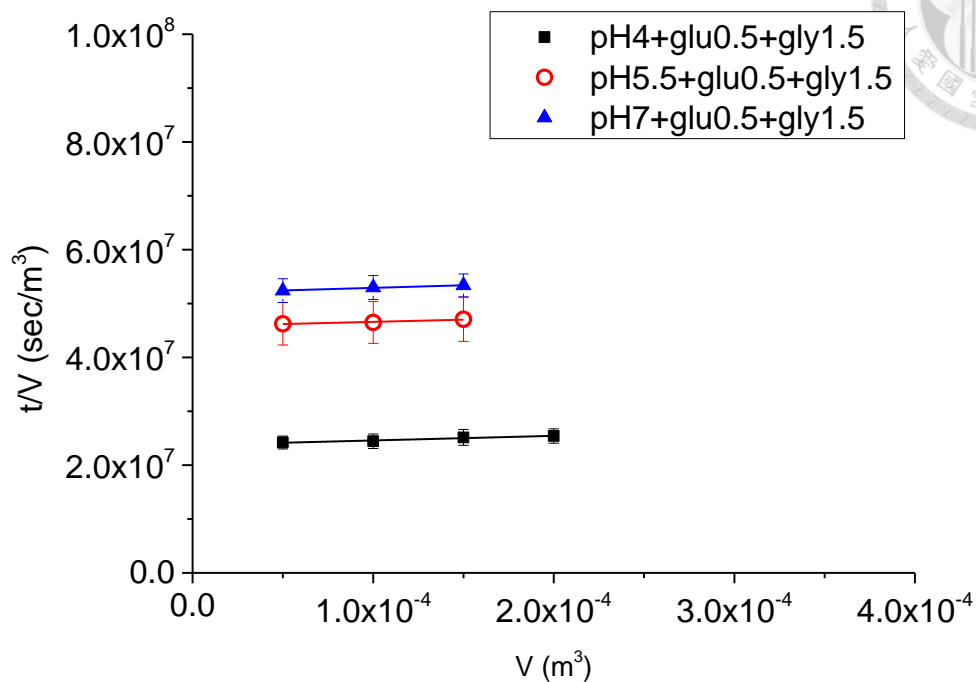


Fig. 4.6-21 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖



(a)



(b)

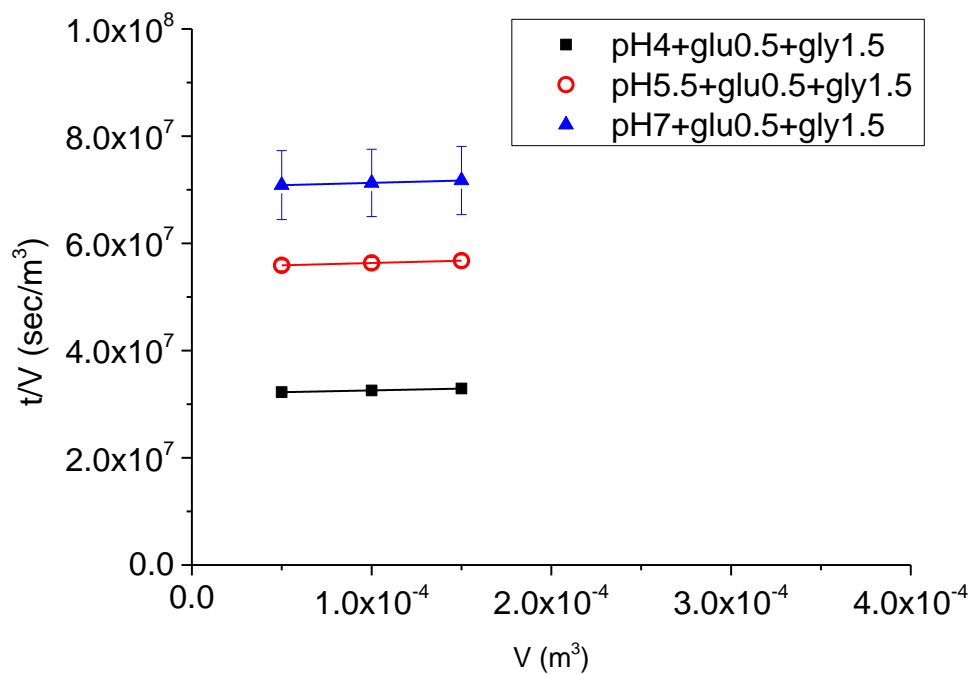


Fig. 4.6-22 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

經過計算後，2 片薄膜、3 片薄膜、1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 WHC 與 R_m 之關係如 Fig. 4.6-23，與 4.3.4 章節具有相同的趨勢，且隨著厚度的增加 pH4~7+glu0.5+gly1.5 之薄膜阻力由小到大仍然是 pH4+glu0.5+gly1.5 < pH5.5+glu0.5+gly1.5 < pH7+glu0.5+gly1.5，其中透過饋料批次靜置增厚至 4 mm 的 BC 或是由 2 片交疊而成的薄膜具有相同的薄膜阻力，可以得知饋料批次靜置增厚的 BC 應與多片交疊而成的 BC 具有相同的內部結構。如 Fig. 4.6-24， α 不論是在何種厚度、WHC 下皆不會有改變。

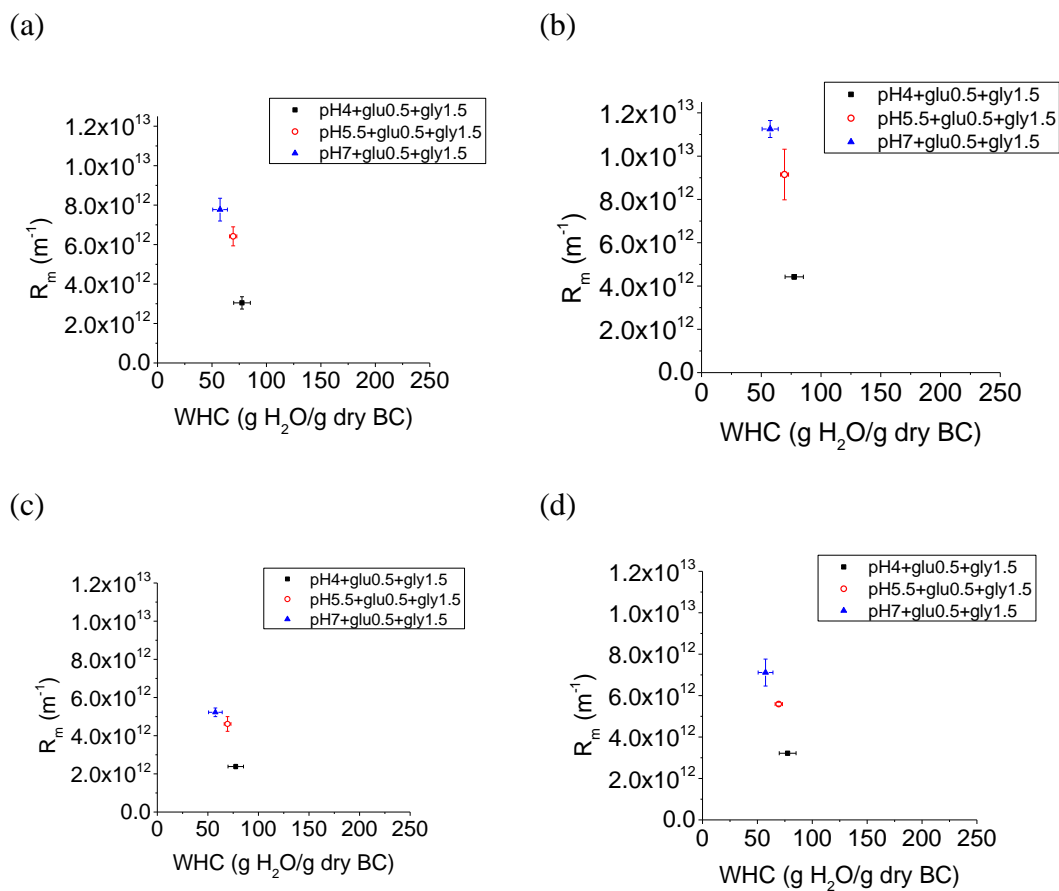


Fig. 4.6-23 pH4~7+glu0.5+gly1.5(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之之 WHC 與 R_m 關係圖

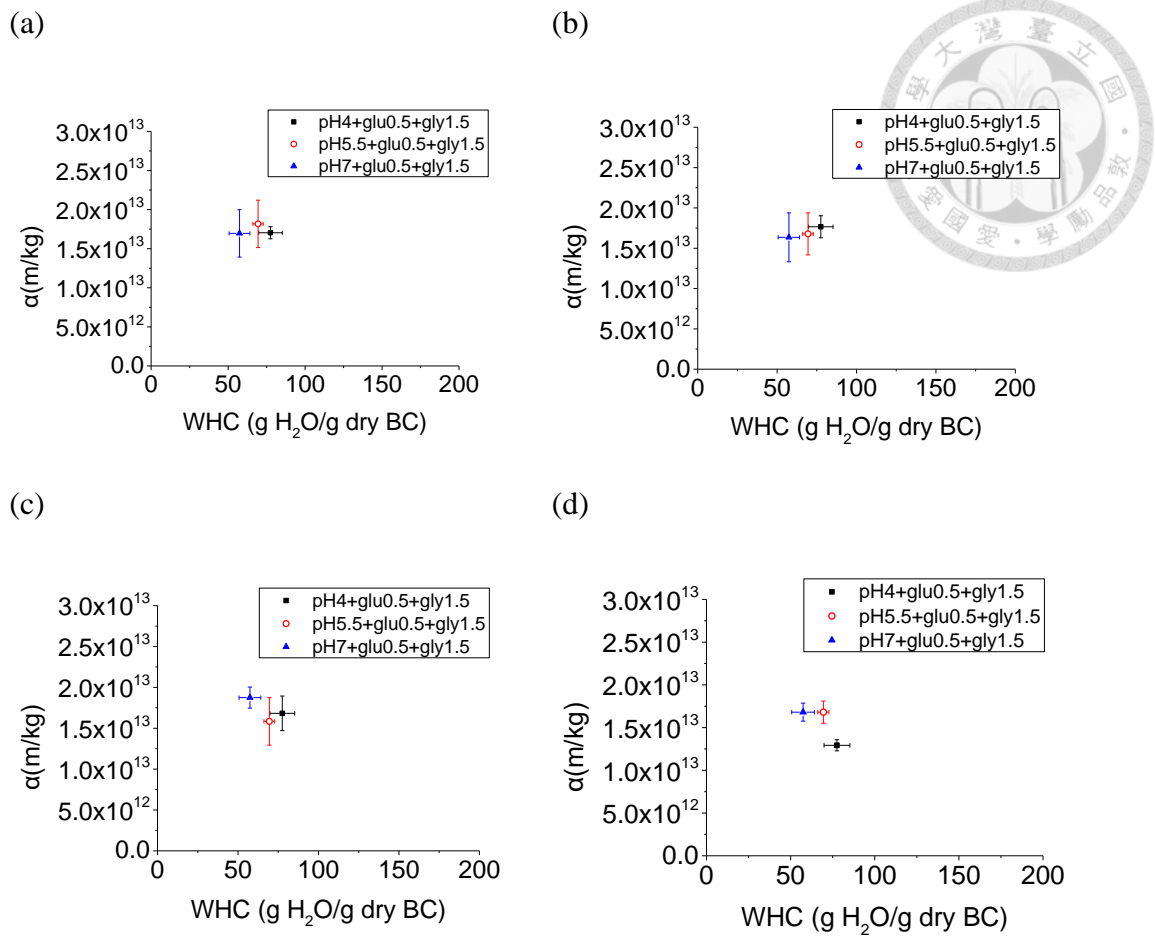


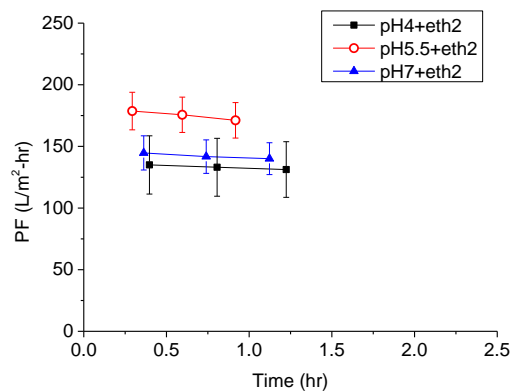
Fig. 4.6-24 pH4~7+glu0.5+gly1.5 (a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖

4.6.5 pH4~7+eth2 之不同厚度其過濾效果



2 片薄膜、3 片薄膜之油水濾液通量如 Fig. 4.6-25，和 4.3.5 章節相比，可以發現在此三種培養條件下，應該會具有相近的含水量薄膜且有接近的過濾通量，但不同片交疊而成之過濾通量圖中 pH5.5+eth2 此組別之起始通量比其他兩組來得略高，這由於本實驗是以多片薄膜來做為厚度的改變，但因為每一片皆為獨立的批次培養，特別是利用乙醇作為碳源時，醋酸菌較不容易代謝，因為產量較不穩定，可能是 pH5.5+eth2 此組別所使用到的薄膜因為產量偏低，使得 pH5.5+eth2 此組別的過濾通量較其他兩組略高。

(a)



(b)

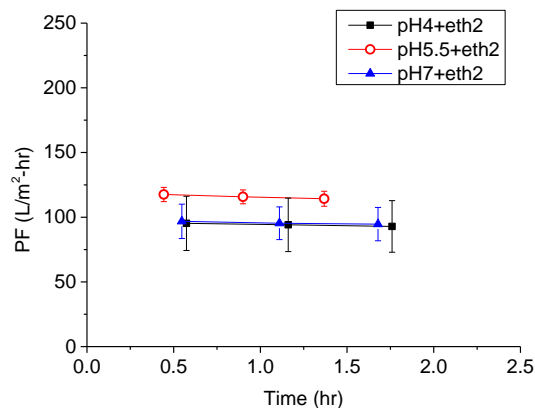
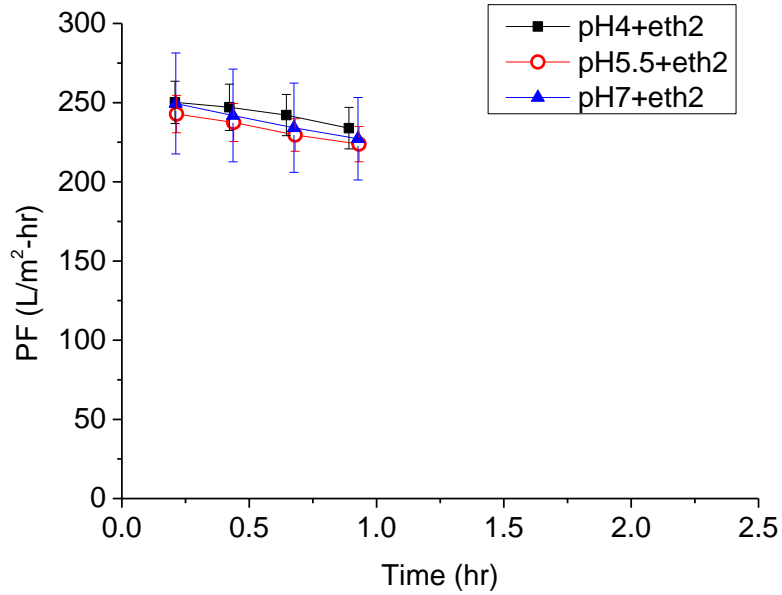


Fig. 4.6-25 pH4~7+eth2(a)2 片(b)3 片薄膜之油水乳液過濾通量圖

1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之油水濾液通量如 Fig. 4.6-26，可以發現饋料批次靜置培養增厚的 BC 就可以觀察這三種培養條件其通量相當接近。



(a)



(b)

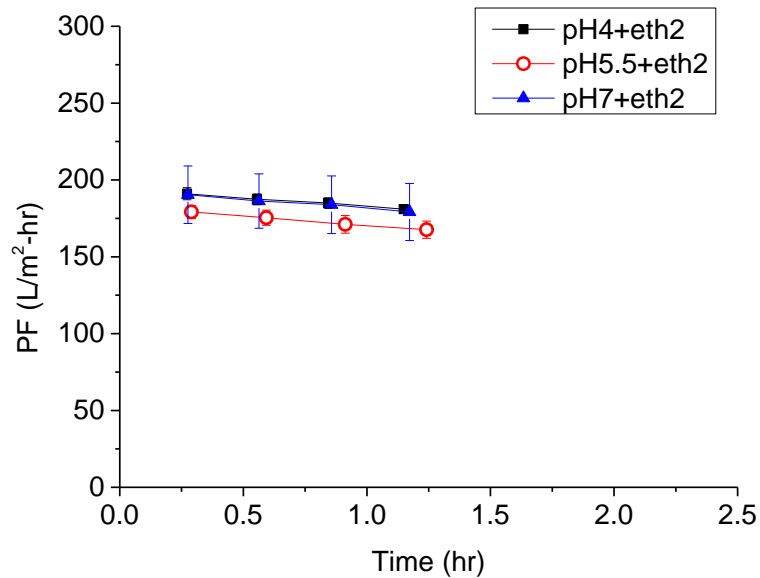
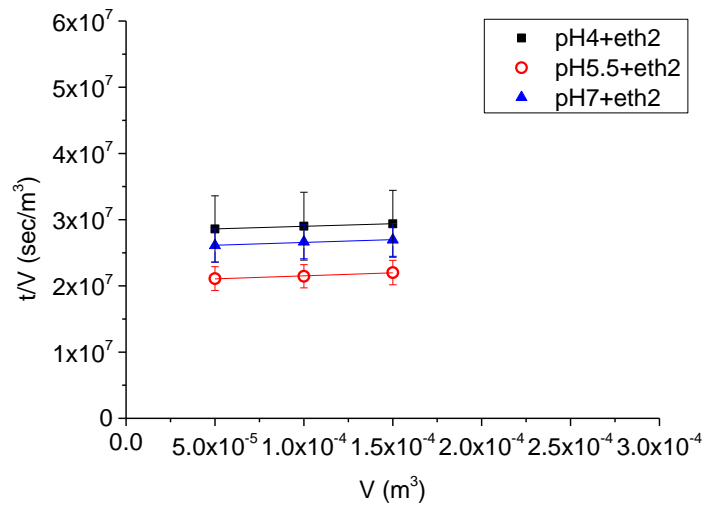


Fig. 4.6-26 pH4~7+eth2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之油水乳液過濾通量圖

2 片薄膜、3 片薄膜之 V 與 t/V 其實驗結果如 Fig. 4.6-27，在此三種培養條件下，由於具有相近的含水量，因此可以預期具有接近的截距數值，但因為 pH5.5+eth2 此組別可能因為 BC 之產量偏低，因此呈現出較高的過濾通量，反應在此則會得到較低的截距。

(a)



(b)

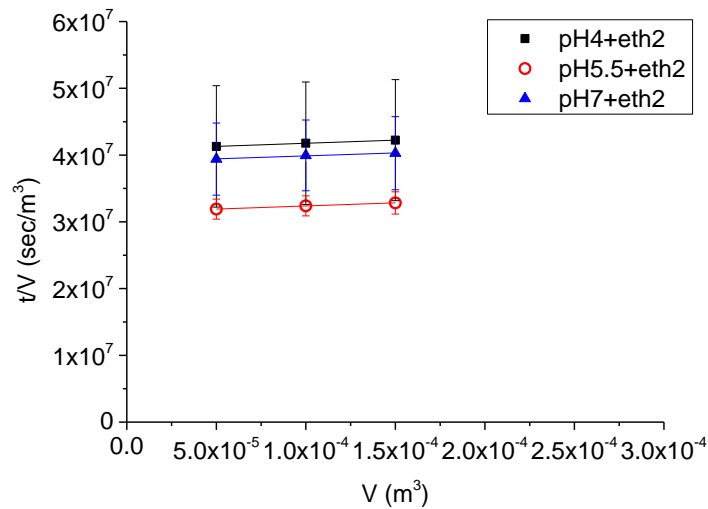
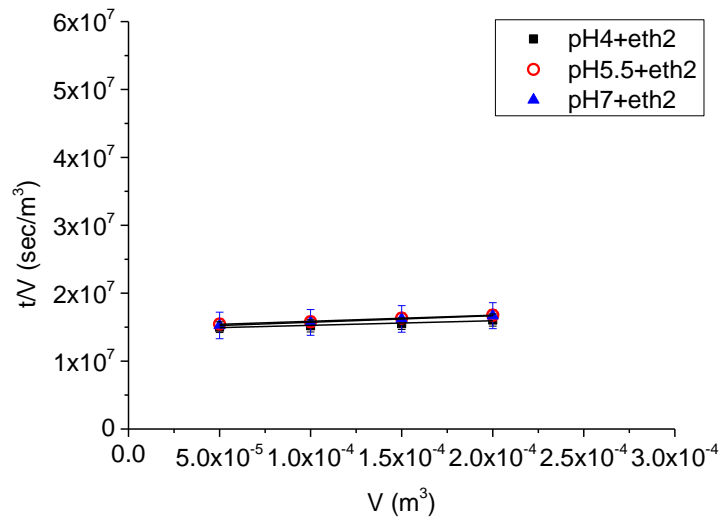


Fig. 4.6-27 pH4~7+eth2(a)2 片(b)3 片薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

由饋料批次增厚至 1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 V 與 t/V 其實驗結果如 Fig. 4.6-28，可觀察到具有接近的截距數值。由此可知，在同樣的培養基 pH 值下，不論是多片薄膜交疊或是饋料批次增厚，皆會使截距有提升的趨勢。



(a)



(b)

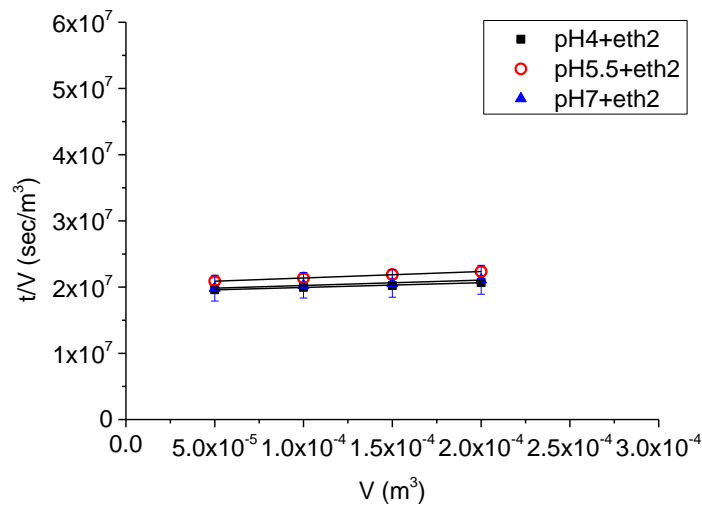


Fig. 4.6-28 pH4~7+eth2(a) 1.5 倍厚度(b)2 倍厚度薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

2 片薄膜、3 片薄膜、1.5 倍厚度、2 倍厚度薄膜之 WHC 與 R_m 之關係如 Fig. 4.6-29，雖然在此培養條件下可能會有產量偏低的情況出現，但仍可以觀察到與 4.3.5 章節相同的趨勢，在這三種培養條件下其 WHC 會非常接近，因此其薄膜阻力也會接近。厚度的改變會增加薄膜阻力且 2 片薄膜之薄膜阻力也約等於 2 倍厚度薄膜，亦可得知饋料批次增厚的 BC 應會與 2 片薄膜交疊具有相同的內部結構。而與 α 關係如 Fig.4.6-30，不論是 WHC 或厚度改變時 α 亦沒有發生改變。

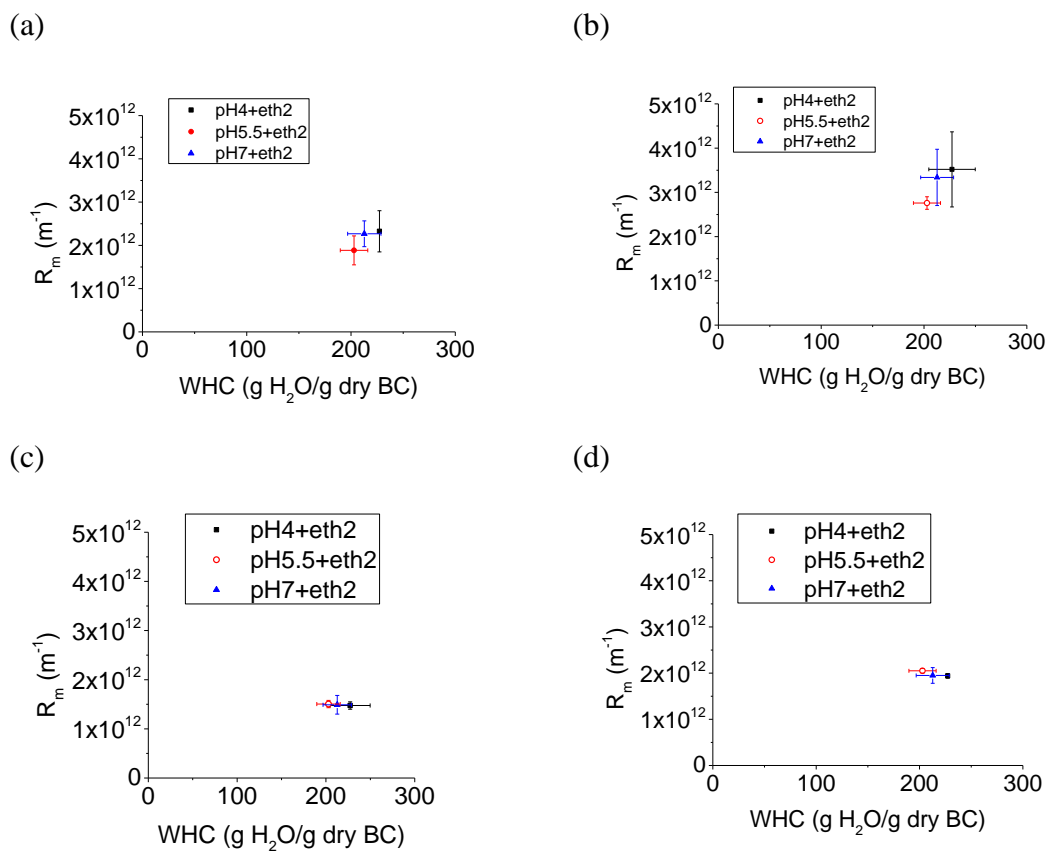


Fig. 4.6-29 pH4~7+eth2(a)2 片(b)3 片(c)1.5 倍厚度(d)2 倍厚度薄膜之之 WHC 與 R_m 關係圖

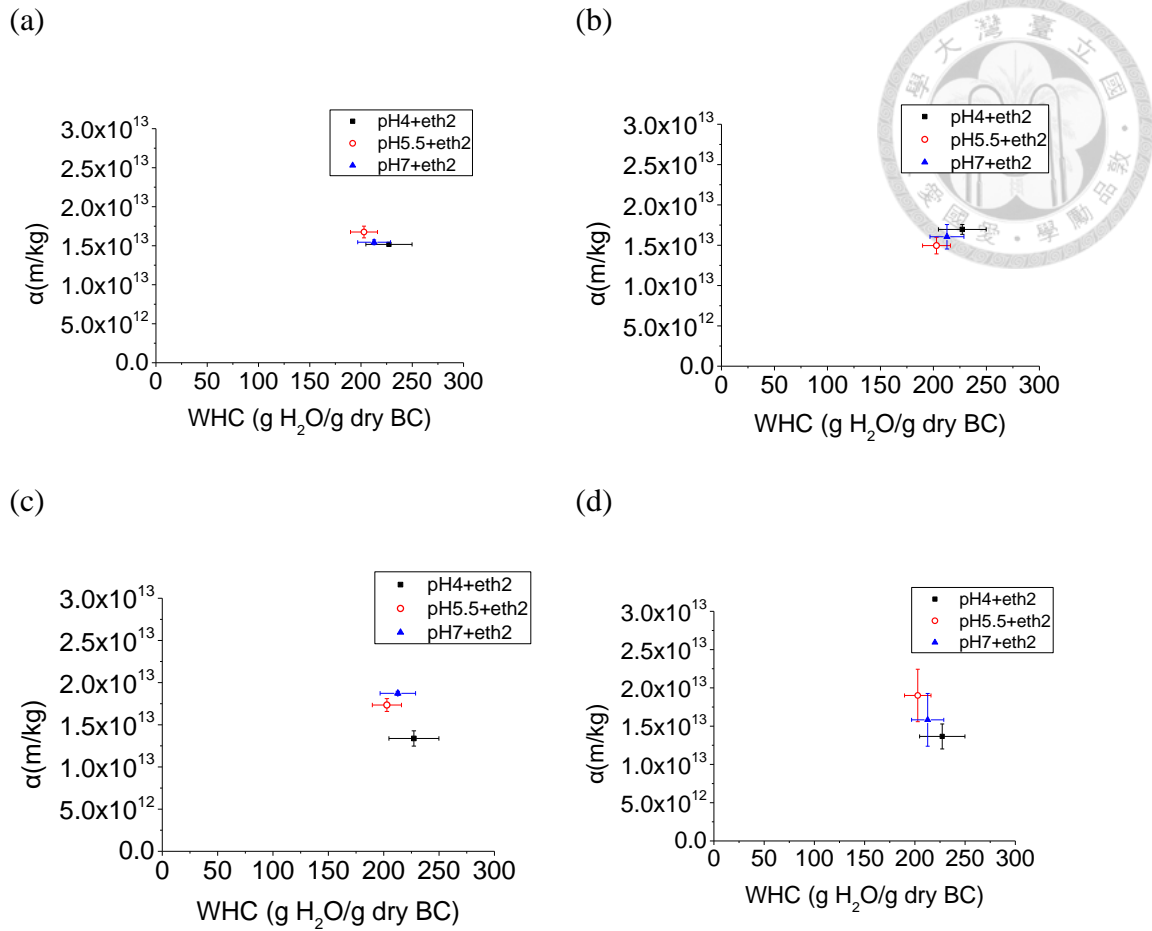



Fig. 4.6-30 pH4~7+eth2(a)2片(b)3片(c)1.5倍厚度(d)2倍厚度薄膜之 WHC 與 α 關係圖

4.7 BC 之 WHC、厚度與 R_m 、 α 之關係

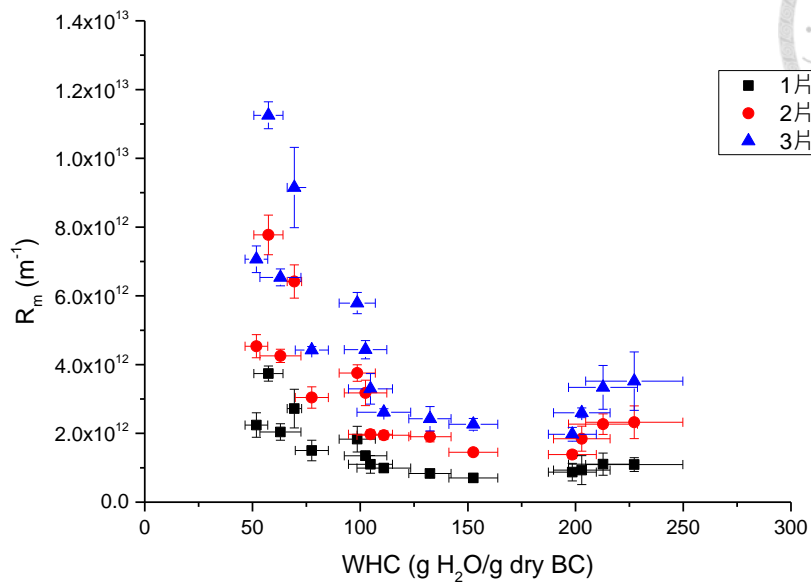


從 4.3 節、4.6 節中進行了不同 WHC、不同片數(厚度)之實驗，且獲得了不同的 R_m ，可以發現 BC 之 R_m 與 WHC 呈現反向關係，而與厚度呈正向關係，在此整理了所有培養條件之 BC 的 R_m 於不同 WHC、不同片數(厚度)之關係，如 Fig. 4.7-1。由於 WHC 是代表細菌纖維素的一個重要物理性質，由 Fig. 4.7-1(a) 可以得知當以多片薄膜交疊的時候可以看到當 WHC 在 50~150 g H₂O/g dry BC 時，WHC 與 R_m 具有明顯的反向趨勢；當 WHC >200 g H₂O/g dry BC 時與單片薄膜實驗時相同，WHC 較大的 BC，仍會因為機械性質較低，可能會有膜緻密的問題，導致 R_m 上升的情況，但是整體來看 WHC 與片數的改變對於 R_m 影響還是較顯著的，也有呼應 4.5 節所整理的結果。

而 Fig. 4.7-1 (b) 可以得知當以饋料批次靜置增厚時，在 WHC= 50~150 g H₂O/g dry BC 時，同樣可以觀察到 WHC 與 R_m 具有明顯的反向趨勢；而當厚度增加時對於薄膜的阻力亦有明顯的提升。此外，厚度提升至 1.5 倍厚度(3 mm) 時，其薄膜阻力約為 1 片薄膜(2 mm)之 1.5 倍；而 2 倍厚度(4 mm)或是 2 片交疊而成之 BC，所增加的薄膜阻力約為 1 片薄膜阻力之兩倍；3 片交疊而成之 BC，所增加的薄膜阻力也約為 1 片薄膜阻力之三倍，詳細數值則整理於 Table. 4.7-1 及 Table. 4.7-2。

而過濾比阻(α)與不同 WHC、不同片數(厚度)之 BC 其關係如 Fig. 4.7-2，可以看到不論是在哪一個 WHC、片數(厚度)之下，由於過濾物質本身沒有改變，且各薄膜皆為高親水性，因此得到的過濾比阻(α)約為 $(1.5 \pm 0.17) \times 10^{13}$ (m/kg)。

(a)



(b)

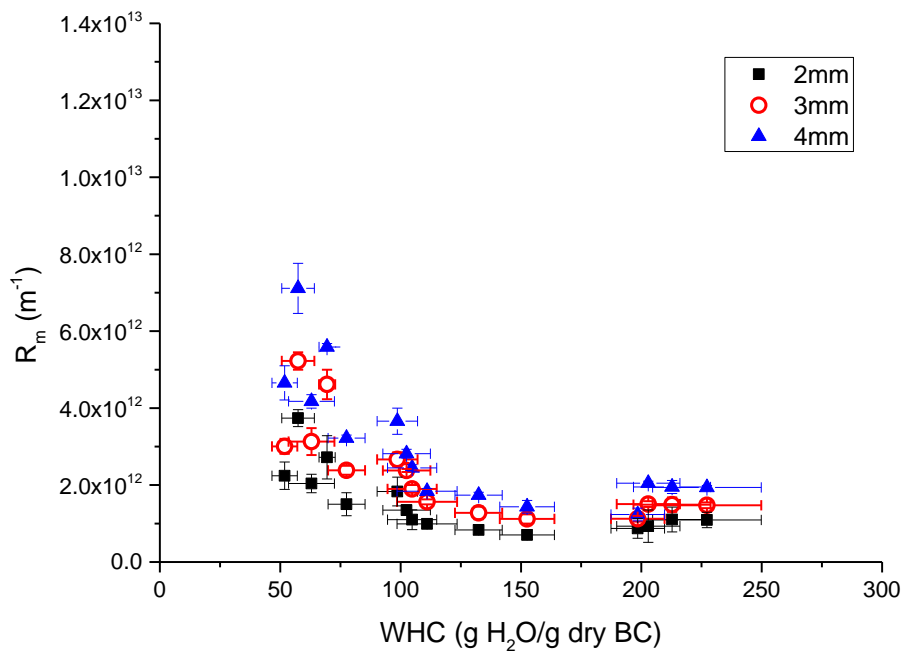
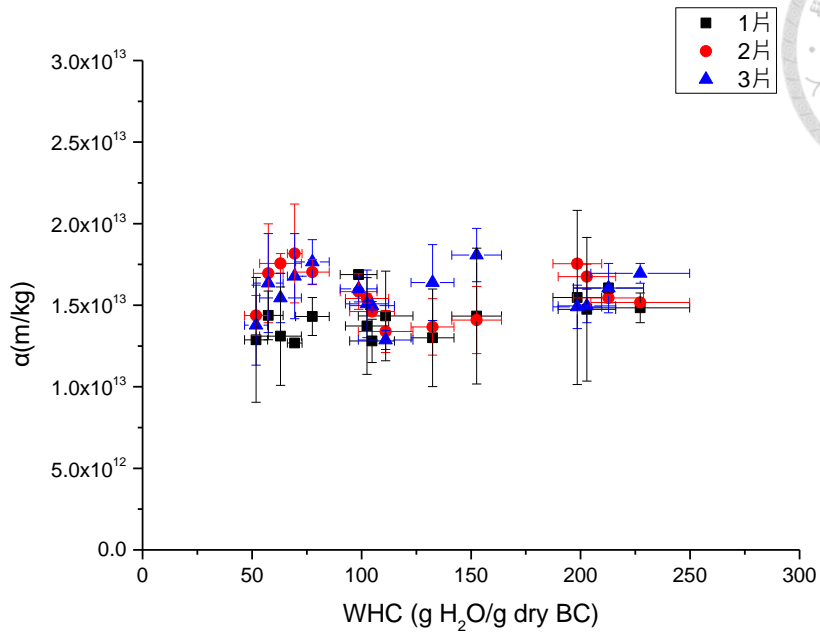


Fig. 4.7-1 (a)不同片數(b)不同厚度時，WHC 與 R_m 之關係圖

(a)



(b)

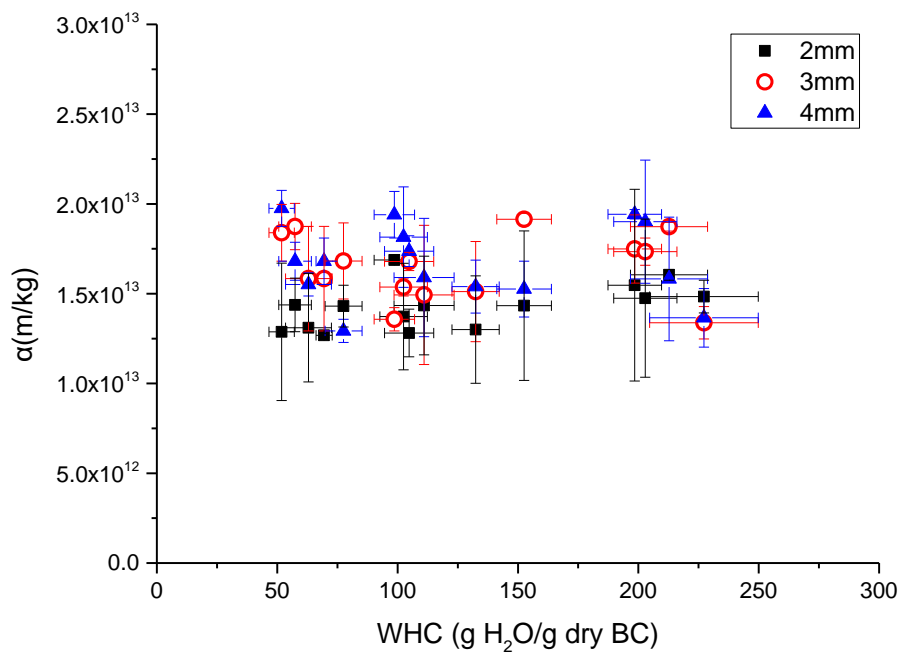


Fig. 4.7-2 (a)不同片數(b)不同厚度時，WHC 與 α 之關係圖

Table. 4.7-1 不同培養條件下的 BC 其 WHC 與片數和 R_m 之關係

培養基組成	WHC (g H ₂ O/g dry BC)	1 片之 R_m ($\times 10^{12}$) (m ⁻¹)	2 片之 R_m ($\times 10^{12}$) (m ⁻¹)	3 片之 R_m ($\times 10^{12}$) (m ⁻¹)
pH4+glu2	153±11	0.70	1.45	2.26
pH5.5+glu2	132±10	0.83	1.91	2.43
pH7+glu2	105±10	1.10	1.97	3.30
pH4+gly2	52±5	2.24	4.53	7.07
pH5.5+gly2	99±8	1.83	3.75	5.79
pH7+gly2	198±11	0.87	1.38	1.97
pH4+glu1+gly1	111±12	0.99	1.95	2.61
pH5.5+glu1+gly1	102±10	1.35	3.18	4.43
pH7+glu1+gly1	63±10	2.04	4.25	6.54
pH4 +glu0.5+gly1.5	78±8	1.50	3.05	4.43
pH5.5 +glu0.5+gly1.5	69±3	2.72	6.42	9.15
pH7 +glu0.5+gly1.5	57±7	3.74	7.77	11.3
pH4+eth2	227±23	1.09	2.33	3.52
pH5.5+eth2	203±13	0.93	1.88	2.76
pH7+eth2	213±16	1.11	2.27	3.34

Table. 4.7-2 不同培養條件下的 BC 其 WHC 與厚度、 R_m 之關係

培養基組成	WHC (g H ₂ O/g dry BC)	2mm 之 R_m ($\times 10^{12}$) (m ⁻¹)	3mm 之 R_m ($\times 10^{12}$) (m ⁻¹)	4mm 之 R_m ($\times 10^{12}$) (m ⁻¹)
pH4+glu2	153±11	0.70	1.12	1.44
pH5.5+glu2	132±10	0.83	1.28	1.74
pH7+glu2	105±10	1.10	1.90	2.45
pH4+gly2	52±5	2.24	3.01	4.66
pH5.5+gly2	99±8	1.83	2.67	3.66
pH7+gly2	198±11	0.87	1.13	1.24
pH4+glu1+gly1	111±12	0.99	1.57	1.84
pH5.5+glu1+gly1	102±10	1.35	2.38	2.82
pH7+glu1+gly1	63±10	2.04	3.13	4.18
pH4 +glu0.5+gly1.5	78±8	1.5	2.39	3.22
pH5.5 +glu0.5+gly1.5	69±3	2.72	4.62	5.59
pH7 +glu0.5+gly1.5	57±7	3.74	5.23	7.11
pH4+eth2	227±23	1.09	1.48	1.94
pH5.5+eth2	203±13	0.93	1.51	2.05
pH7+eth2	213±16	1.11	1.49	1.95

利用 Table. 4.7-1 所量測到的數值，可以找出薄膜阻力(R_m)與 WHC(θ)、厚度(L)之關係式如 Eq. 4.7-1。將 Eq. 4.7-2 與 Eq. 2.5-5 比較可知，BC 之 WHC 是一個類似於填充床空隙度(ϵ)的概念，WHC 越高代表著纖維內部空隙度越高，因此過濾速度快；WHC 越低代表纖維內部空隙度越低，因此過濾速度慢。

比起(Hassan et al., 2017; Zhuang et al., 2020)，本實驗可以量測出較符合實際情形之 BC 含水量，也能夠培養出不同產量、不同 WHC 範圍之 BC。將關係式與 1 片薄膜阻力的實驗數據利用 Matlab 軟體便可繪出 Fig. 4.7-3，往後於已知 BC 之 WHC、厚度的情況下，便可由此關係式來預測薄膜阻力值及過濾通量圖，如 Fig. 4.7-4。

$$R_m = 1.95 \times 10^{16} \times \theta^{-0.7} \times L \quad \text{Eq. 4.7-1}$$

$$u_c = \left[\frac{\theta^{0.7}}{1.95 \times 10^{16}} \right] \frac{1}{\mu} \frac{|\Delta P| \times g_c}{L} \quad \text{Eq. 4.7-2}$$

$$R_m = \text{BC 之薄膜阻力 (m}^{-1}\text{)}$$

θ = Water holding capacity, WHC (g H₂O/g dry BC)

L = 過濾前 BC 之薄膜厚度 (m)

u_c = 過濾速度 (m/sec)

μ = 過濾液黏度 (kg/m-sec)

$|\Delta P|$ = 過濾壓力差 (kg/m²)

$g_c = 9.8(\text{m/s}^2)$

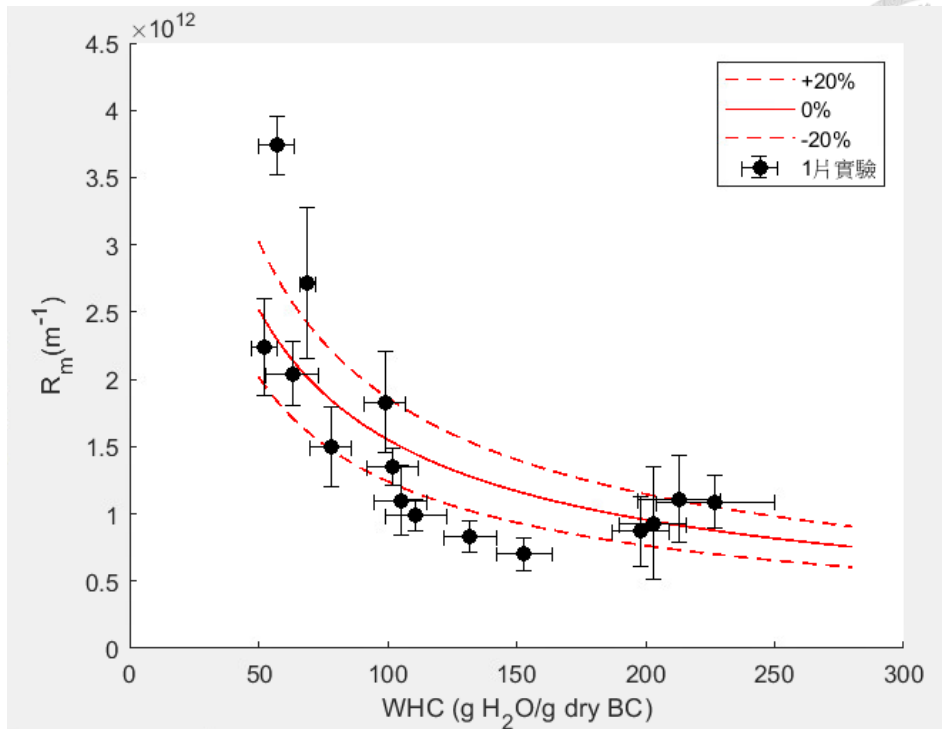


Fig. 4.7-3 不同 WHC 於單層薄膜時之薄膜阻力預測圖

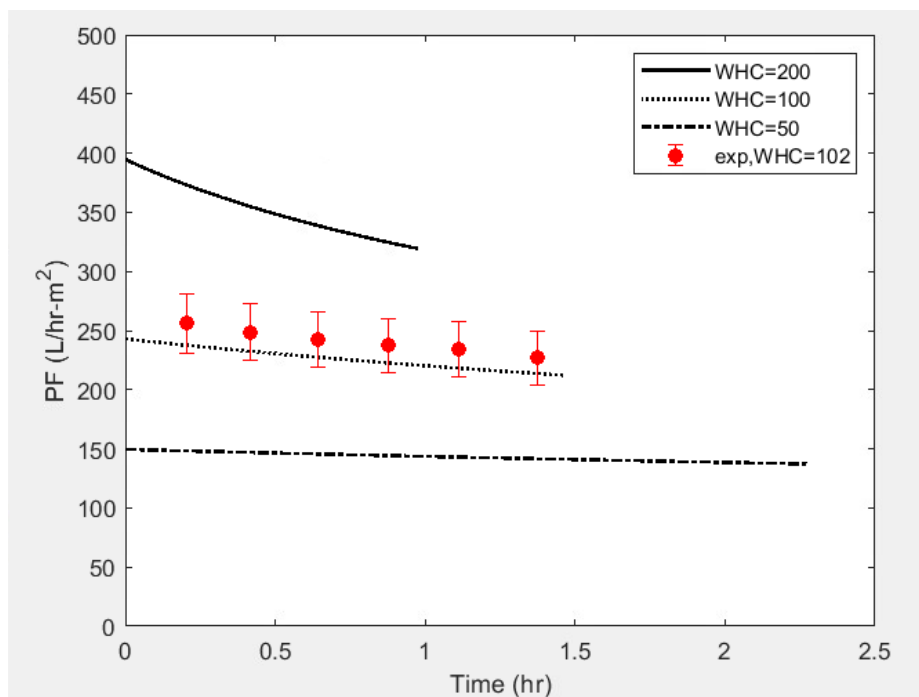


Fig. 4.7-4 預測 WHC=50、100、200g H₂O/g dry BC 之細菌纖維素的油水乳液過濾通量圖；線段為預測通量曲線，實點為實驗數據點。

4.8 清洗細菌纖維素薄膜



於工廠中進行廢水處理時，隨著過濾的進行，往往會出現薄膜積垢造成通量下降的問題，此時會定時使用反沖洗(Backflushing)的技術來使薄膜回復通量，亦即從過濾的反方向以清水沖洗，將停留在膜面的雜質沖洗掉，以維持過濾正常操作。由於 4.7 節中可以發現不同含水量的 BC 具有不同的過濾通量，而隨著過濾時間的增加，薄膜表面會累積越多的油汙，導致通量下降的問題。

因此本章節選用了四個不同的 WHC 範圍之 BC 做為參考，當某一點的過濾通量降至第一點過濾通量之 70~80% 時，將原本薄膜過濾面反轉，再以乾淨的去離子水進行反向過濾的動作，表示利用反沖洗來清洗停留在 BC 表面之油層，並討論其恢復量與可反覆使用次數，實驗結果如 Fig. 4.8-1。

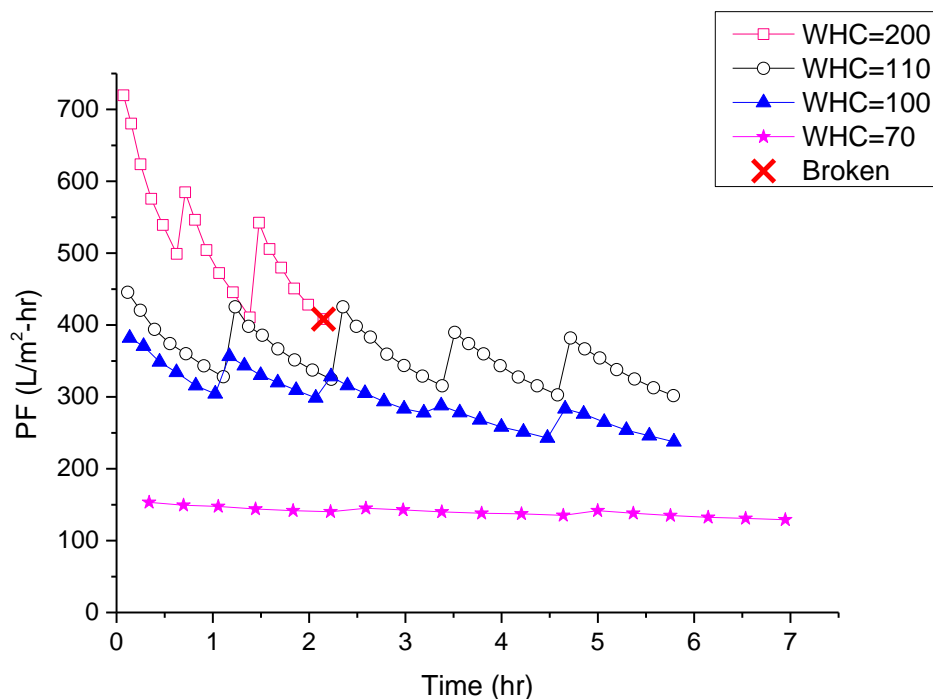


Fig. 4.8-1 不同 WHC 之 BC 薄膜之油水乳液過濾通量圖與恢復通量曲線

可以看到薄膜之 $\text{WHC}=200\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 時，具有最高的過濾通量，然而由於過濾的速度最快，因此在一小時內就由 $720\text{ L/m}^2\text{-hr}$ 降至 $500\text{ L/m}^2\text{-hr}$ ，經過反沖洗後通量回復至約 $600\text{ L/m}^2\text{-hr}$ ，約是乾淨薄膜原始通量之 85%，沒辦法 100% 回復至原始通量是因為薄膜內部是一個多孔結構，而過濾油品所造成的膜汙染可分為：可逆與不可逆汙染，不可逆汙染通常是雜質吸附於纖維上或孔洞中，沒辦法經由反沖洗而洗掉的，需透過化學藥劑來清洗；而可逆汙染則大部分可由反沖洗將其清洗乾淨。第二次清洗後通量回復率剩原始乾淨薄膜通量之 75%。而由於 $\text{WHC}=200\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 之薄膜機械性質較弱，因此在要進行第三次清洗時，就已經破損無法使用。

而 $\text{WHC}=110\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 與 $\text{WHC}=100\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 之薄膜，由於此兩者 WHC 接近，因此具有接近的過濾通量($400\text{ L/m}^2\text{-hr}$)，比起 $\text{WHC}=200\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 薄膜之通量較低，因此需要超過一小時後過濾通量才會降至起始通量的 70%，經由前兩次反沖洗後通量可回復至起始過濾通量之 95%，而第三次開始才會降至約原始通量之 75%。此外，由於 $\text{WHC}=100\sim 110\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 之薄膜因為纖維數量更多，其機械性質比 $\text{WHC}=200\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 薄膜更高，因此可進行更多次的反沖洗而不會破損，於 4.3.1 章節中有推測了(Zhuang et al., 2020)所使用的 BC 較接近於此 WHC 範圍，亦發現了相同的趨勢。

$\text{WHC}=70\text{g H}_2\text{O/g dry BC}$ 由於薄膜本身對於流體的阻力較大，因此通量下降程度沒有那麼明顯，超過兩小時後降至起始通量之 90%，雖然具有更好的機械性質及通量下降率，但是過濾速度就沒有其他三組來的優異。

V 與 t/V 關係如 Fig. 4.8-2，隨著過濾的次數增加，截距也隨之提升，由於清洗過後仍有些許沖洗不掉的積垢，造成了薄膜阻力也逐漸提高，詳細數值列於 Table. 4.8-1。



Table. 4.8-1 不同 WHC 之 BC 其薄膜阻力隨清洗次數之變化

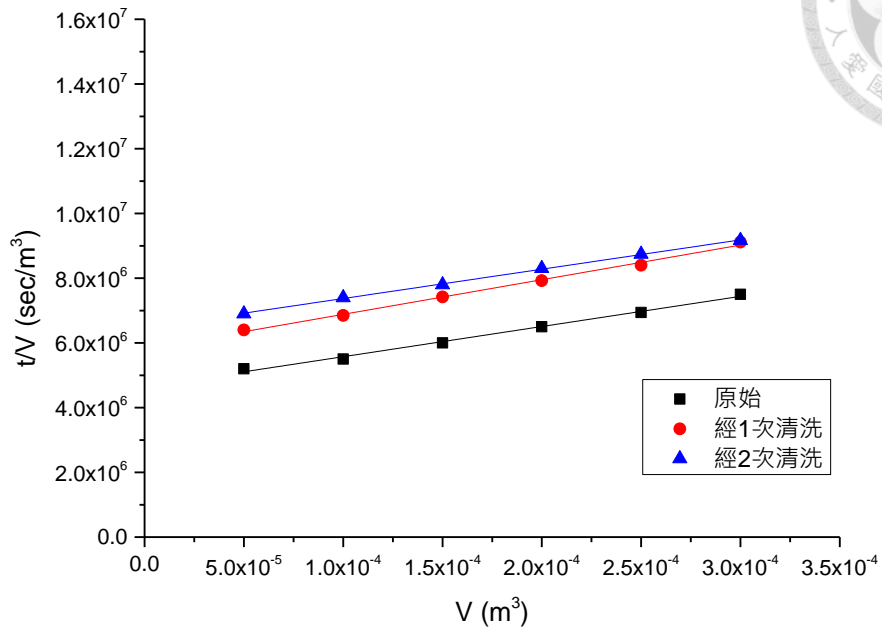
WHC	$R_m (\times 10^{12}) (m^{-1})$				
	原始	第一次清洗	第二次清洗	第三次清洗	第四次清洗
200	0.41	0.55	0.61	X	X
110	0.75	0.79	0.79	0.86	0.88
100	0.87	0.95	1.04	1.18	1.19
70	2.27	2.41	2.46	Δ	Δ

X: 薄膜破損無法使用

Δ : 未測量但薄膜尚未破損



(a)



(b)

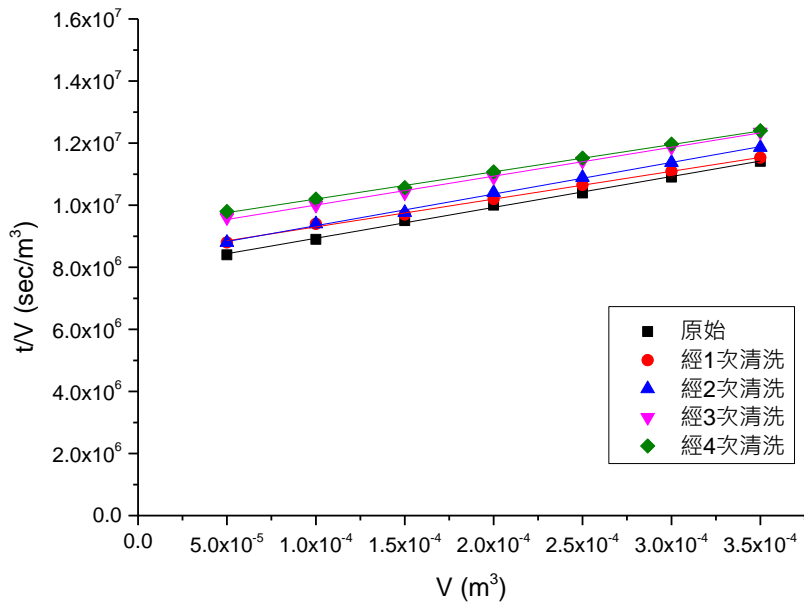
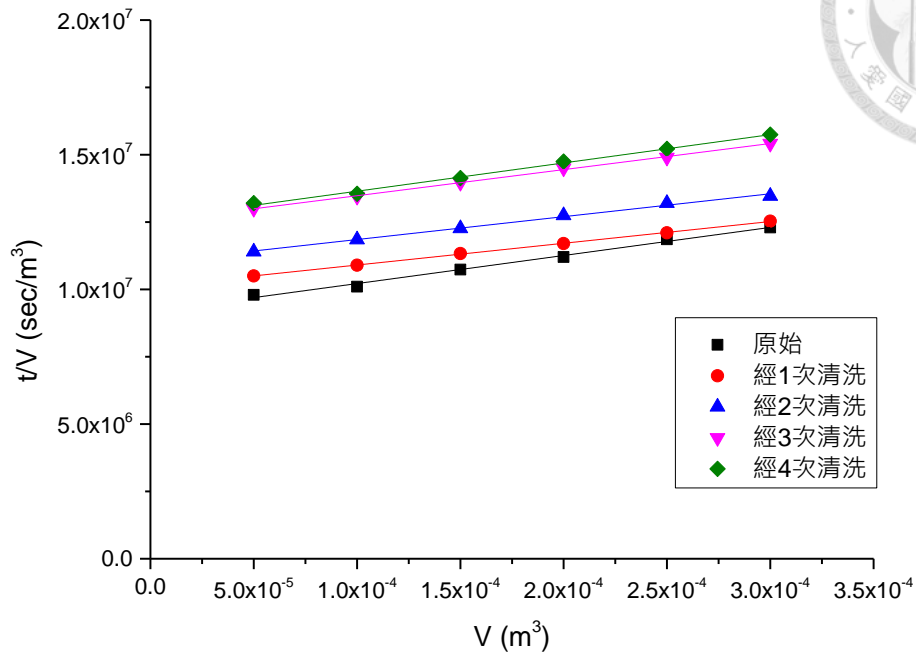


Fig. 4.8-2 (a)WHC=200 (b)WHC=110 之清洗前後過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

(c)



(d)

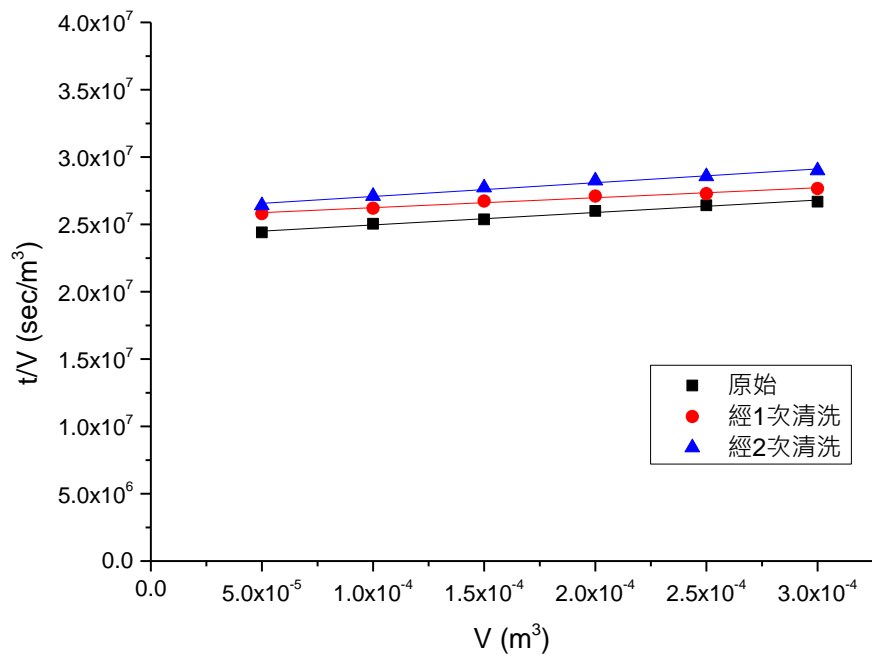


Fig. 4.8-3 (續) (c)WHC=100 (d)WHC=70 之清洗前後過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

4.9 不同過濾膜的比較

本實驗利用市面上所售的 Nylon 薄膜(孔徑 0.22 μm)與 pH5.5+glu2 薄膜 (WHC=130g H₂O/g dry BC)做比較，其油水濾液通量圖(Permeate flux, PF)如 Fig. 4.9-1，可以看到在相同過濾條件下，Nylon 薄膜雖然具有較高的起始過濾通量，但是過濾通量隨時間快速的下降，在約 0.1 小時後，過濾通量就已經低於 BC 了。

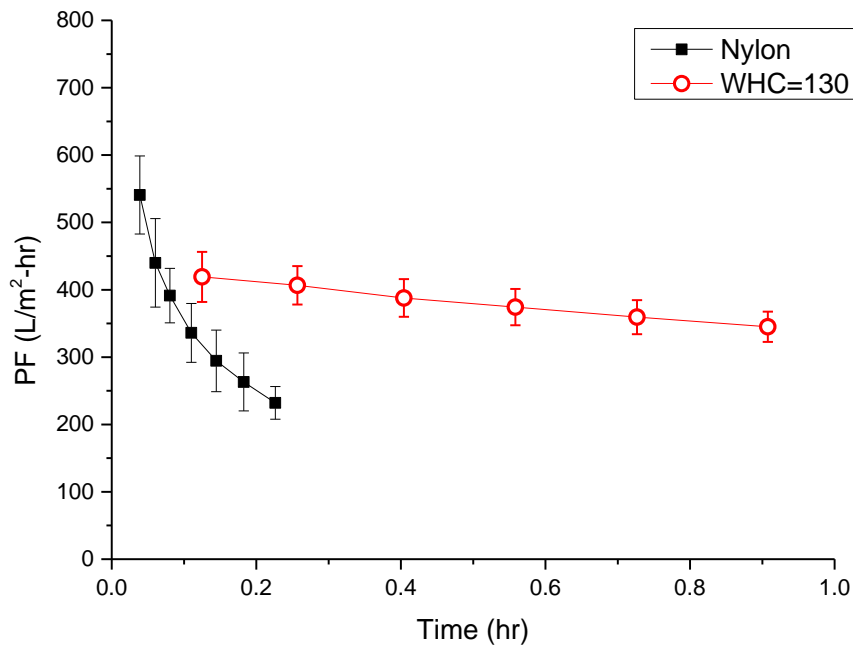


Fig. 4.9-1 Nylon 薄膜與 BC 薄膜之油水乳液過濾通量圖

V 與 t/V 關係圖如 Fig. 4.9-2，如上一段所述，Nylon 薄膜的起始過濾速度比 BC 快，因此可以看 Nylon 薄膜的截距明顯比 BC 低，代表著 Nylon 薄膜之薄膜阻力比 BC 低，但是當過濾液體中具有油的存在時，Nylon 薄膜過濾不到 50ml 時期過濾速度就已經比 BC 慢了，其斜率大幅度的上升，詳細數值列於 Table. 4.9-1。

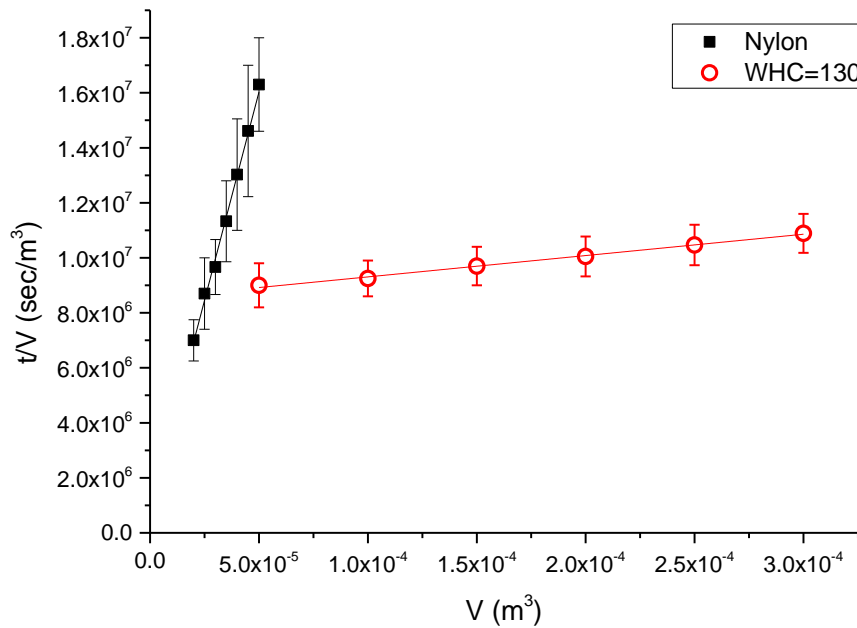


Fig. 4.9-2 Nylon 薄膜與 BC 薄膜之過濾油水乳液 V 與 t/V 關係圖

Table. 4.9-1 Nylon 薄膜與 BC 之薄膜比較

薄膜類型	R_m (m ⁻¹)	α (m/kg)	R(%)
Nylon	7.07×10^{10}	5.59×10^{14}	99%
BC	8.07×10^{11}	1.40×10^{13}	99%

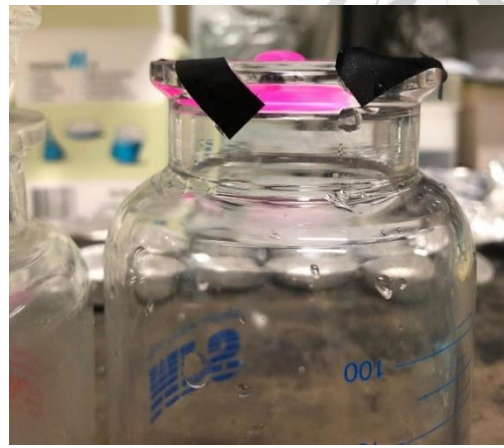
在文獻(Chakrabarty et al., 2008)提到了薄膜親水性差異可能會使得通量下降程度變高。(Dickhout et al., 2017)說明薄膜表面性質越接近疏水性時會對過濾油水乳液時產生負面影響，因此在此推測可能原因為 Nylon 薄膜碰到油滴後，使得膜的表面性質發生變化，由親水的性質變成極為疏水的性質，才導致過濾通量快速地下降。

因此為了證明 Nylon 薄膜是因為容易被油污染而導致膜表面變為疏水性，在此將大豆油染成粉色，並滴 0.1g 於乾淨的 Nylon 薄膜與乾淨 BC 薄膜上，等待約 30 秒後，待大豆油完全於膜表面攤開或被膜吸收後，再滴上去離子水，觀察水滴在薄膜表面上的情形。如 Fig. 4.9-3 所示，可以看到水滴於 Nylon 薄膜的粉色區域(有大豆油的部分)，會有明顯聚集的情況，而非粉色區域(無大豆油的部分)，則沒有水滴聚集；而 BC 則是完全觀察不到水滴聚集的情況，因此可以得知 BC 對油有更好的抗汙能力，而少許的大豆油就會讓 Nylon 薄膜的表面由親水性變為極為疏水，導致了過濾通量快速下降；而 BC 由於本身具高度親水性，油的污染亦沒有造成表面性質發生太大變化，比起 Nylon 薄膜雖然有較低的起始通量但是可以維持更長的時間的高過濾通量。

(a)



(b)



(c)



(d)

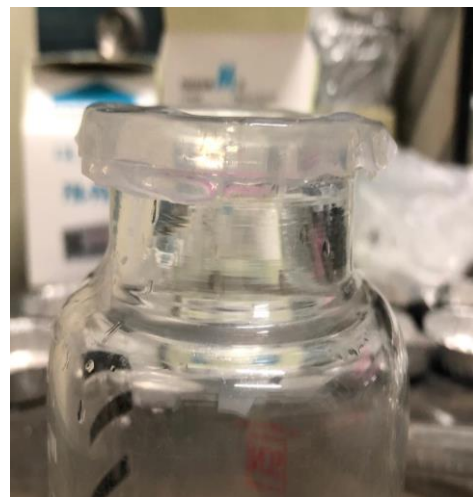
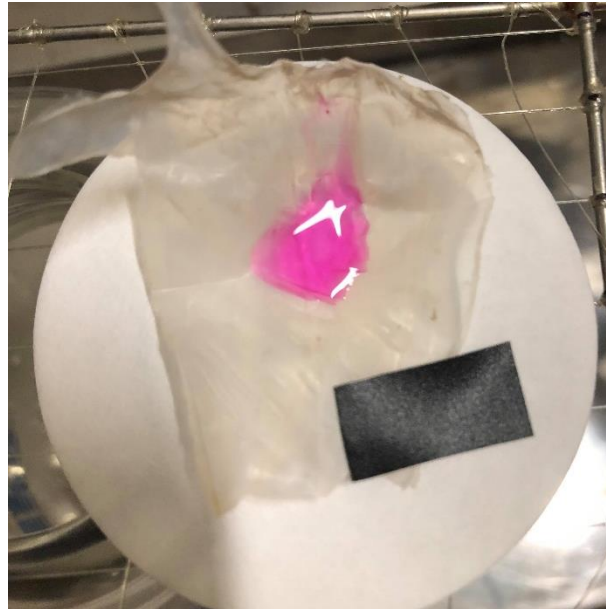


Fig. 4.9-3 濕薄膜吸收油後，水滴於膜表面之聚集情形(a)Nylon 薄膜 (b)Nylon 薄膜側面圖(c)BC 薄膜俯視圖(d)BC 薄膜側面圖

而乾燥後的 BC，在無水的情況下，仍對被染成粉紅色的油具有阻隔的效果，油滴不會滲透到底下的濾紙，如 Fig. 4.9-4。



(a)



(b)

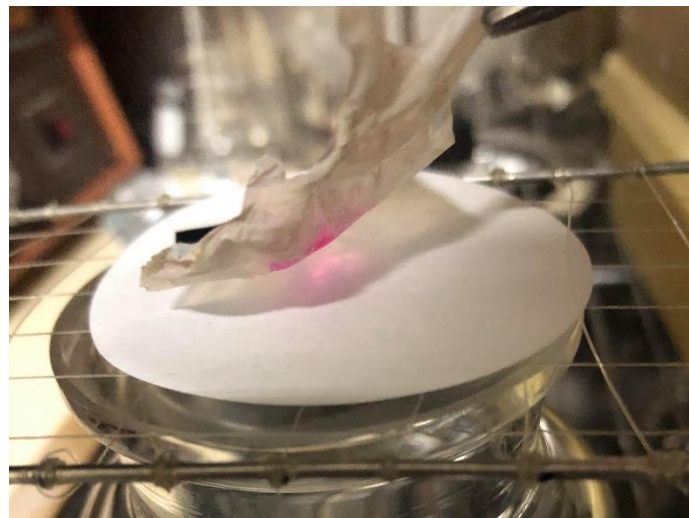


Fig. 4.9-4 乾燥後的 BC，油滴於膜表面之情形(a)俯視圖(b)側面圖

第五章 結論



本研究沿用先前實驗室之研究(范, 2020)，以不同的起始培養基 pH 值 (pH4、pH5.5、pH7)，並以不同的碳源(葡萄糖、甘油、葡萄糖和甘油混和、乙醇) 所組成的培養基，可以成功合成出不同產量(1.0~3.3g/L)之細菌纖維素，並利用(藍, 2017) 所開發的量測方法定量出細菌纖維素之含水量(Water holding capacity, WHC)，發現在同體積之下，產量與含水量具有反向關係，產量越高，代表纖維數量越多，而含水量越低代表內部結構較緊密。

根據(Ruth, 1946)所提出的過濾方程式做為計算公式，將不同含水量之細菌纖維素以過濾的方式進行油水分離，實驗結果顯示，不同 WHC(50~250 g H₂O/g dry BC)之細菌纖維素對油的排斥係數(Rejection coefficient, R)皆>99%，而且 WHC 與薄膜阻力(R_m)呈反向關係，WHC 越低(50 g H₂O/g dry BC)的 BC 其薄膜阻力可達 $3.74 \times 10^{12}(\text{m}^{-1})$ ；而 WHC 越高(200 g H₂O/g dry BC)的 BC 其薄膜阻力為 $1.00 \times 10^{12}(\text{m}^{-1})$ 。

本實驗亦利用(詹, 2013)所開發的饋料批次靜置培養方式所增厚的 BC，將 1.5 倍厚度、2 倍厚度與 2 片薄膜、3 片薄膜量測其薄膜阻力(R_m)，並發現 BC 之薄膜阻力(R_m)與厚度(L)成正向關係，其中 2 倍厚度與 2 片薄膜具有相同的薄膜阻力，且 2 片薄膜之 R_m 為 1 片薄膜之兩倍，3 片薄膜之 R_m 為 1 片薄膜之三倍。此外，不同 WHC 或不同厚度之 BC 皆具有相近的物性，因此大豆油之過濾比阻(Specific resistance, α)並沒有發生改變，其值為 $(1.50 \pm 0.17) \times 10^{13} (\text{m/kg})$ 。

將實驗最終結果可整理出薄膜阻力(R_m)與含水量(θ)、厚度(L)之關係式:

$$R_m = 1.95 \times 10^{16} \times \theta^{-0.7} \times L$$

往後便可透過已知的含水量和厚度來預測 BC 的薄膜阻力來評估 BC 對水溶液之通透速度，也可透過已知的 α 來預測過濾通量，而且薄膜阻力是整體薄膜所貢獻，依此來判斷薄膜的疏密程度，比起(Zhuang et al., 2020) 以電子顯微鏡所觀察的範圍更加全面。

由於細菌纖維素的特色(高親水性)使其具有成為油水過濾膜之潛力，比起市售的親水膜-Nylon，雖然兩者對於油的排斥係數皆>99%，但是 BC 能夠具有更長的操作時間而不會因為油汙染造成通量快速衰退的問題，且可以依照操作需求的不同，選擇具有不同薄膜阻力的 BC。此外，含水量越低的 BC 其機械性質越強(范, 2020)，可以容許清洗而不破損的次數也會增加，如 WHC=100 g H₂O/g dry BC 的 BC 至少可容許清洗 4 次而不會破損；而 WHC=200 g H₂O/g dry BC 的 BC 雖有較低的薄膜阻力，但是可容許清洗的次數則較少。

而可食用性、素食者可食用亦使得 BC 具有應用於膠囊外殼的材料，而且對於油溶性的藥物亦可採用 BC 來包覆而不會洩漏。若以 BC 作為膠囊包覆藥品例，便可利用不同的培養條件，控制 BC 內部之疏密程度，即不同的含水量或是改變厚度，便可使得 BC 對水溶液具有不同的通透速度，需要延長藥物釋放時則可以使用 WHC 較低的 BC(<125g H₂O/g dry BC)或是提升厚度；需要快速釋放時則可採用 WHC 較高(>125g H₂O/g dry BC)的 BC。





Fig. 4.7-3 之程式碼

```

clc
format long e
clear
c1=2*(10^-3); % 一片的厚度(m)
x=linspace(50,280,1000); % WHC 範圍
y1= ((1.95*10^16).*(x.^-(0.7))).*(1.2*c1); % 關係式+20%的 Rm
y2= ((1.95*10^16).*(x.^-(0.7))).*(1*c1); % 關係式+0%的 Rm
y3= ((1.95*10^16).*(x.^-(0.7))).*(0.8*c1); % 關係式-20%的 Rm
hold on
plot(x,y1,'r--','LineWidth',1); % 關係式+20%線
plot(x,y2,'r-','LineWidth',1); % 關係式+0%線
plot(x,y3,'r--','LineWidth',1); % 關係式-20%線
ex1=[153,132,105,52,99,198,111,102,63,78,69,57,227,203,213]; % 不同培養條件之
WHC
xneg = [11,10,10,5,8,11,12,10,10,8,3,7,23,13,16];
xpos = [11,10,10,5,8,11,12,10,10,8,3,7,23,13,16];
ey1=[7.0E+11,8.3E+11,1.1E+12,2.24E+12,1.83E+12,8.7E+11,9.9E+11,1.35E+12,2.0
4E+12,1.50E+12,2.72E+12,3.74E+12,1.09E+12,9.3E+11,1.11E+12]; % 不同培養條
件之 Rm
y1neg=
[1.21E+11,1.17E+11,2.58E+11,3.56E+11,3.75E+11,2.56E+11,1.20E+11,1.38E+11,2.
40E+11,2.97E+11,5.62E+11,2.20E+11,2.00E+11,4.21E+11,3.23E+11];
y1pos=
[1.21E+11,1.17E+11,2.58E+11,3.56E+11,3.75E+11,2.56E+11,1.20E+11,1.38E+11,2.
40E+11,2.97E+11,5.62E+11,2.20E+11,2.00E+11,4.21E+11,3.23E+11];
errorbar(ex1,ey1,y1neg,y1pos,xneg,xpos,'ko','MarkerFaceColor','k')
legend('+20%','0%','-20%','1 片實驗');
hold off
axis([0,300,0,4.5*10^12])
xlabel('WHC (g H_2O/g dry BC)')
ylabel('R_m(m^-1)')

```

Fig. 4.7-4 之程式碼



```

clear
clc
tspan=[0,3*10^-4];           % 收集過濾體積(0~300mL)
t0=0;                         % 過濾時間從 0 秒開始
a=0.89*(10^-3)*0.1*1.45*(10^13); %  $\mu = 0.89*(10^{-3})$ 、conc.= 0.1、 $\alpha =$ 
1.45*10^(13)，實驗量測出來的平均  $\alpha$ 
b=(0.000962^2)*9516*9.8;     % A= 0.000962、P= 9516、g= 9.8
c=2*(10^-3);                 % 厚度
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
d=200;                        % WHC=200
e=0.89*(10^-3)*(1.95*(10^16))*d^(-0.7)*c; %  $\mu*R_m$ 
f=0.000962*9516*9.8;
[v,t]=ode45(@(v,t) a*v/b+e/f,tspan,t0); % 令  $dV=dx$ 、 $dt=dy$ ， $v_1=1$  片的
過濾體積， $t_1=1$  片的過濾時間
y1=(v*10^3)/((t/3600).*0.000962); %  $y_1=1$  片 BC，ode 解出來的 Flux
plot(t/3600,y1,'k-','LineWidth',1.5);
axis([0,2,0,500]);
xlabel('Time (hr)');
ylabel('PF (L/hr*m^2)');
hold on
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
d=100;                        % WHC=100
e=0.89*(10^-3)*(1.95*(10^16))*d^(-0.7)*c; %  $\mu*R_m$ 
f=0.000962*9516*9.8;
[v,t]=ode45(@(v,t) a*v/b+e/f,tspan,t0); % 令  $dV=dx$ 、 $dt=dy$ ， $v_1=1$  片
的過濾體積， $t_1=1$  片的過濾時間
y1=(v*10^3)/((t/3600).*0.000962); %  $y_1=1$  片 BC，ode 解出來的 Flux
plot(t/3600,y1,'k:','LineWidth',1.5);
axis([0,2,0,500]);
xlabel('Time (hr)');
ylabel('PF (L/hr*m^2)');
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
d=50;                        % WHC =50
e=0.89*(10^-3)*(1.95*(10^16))*d^(-0.7)*c; %  $\mu*R_m$ 

```



```
f=0.000962*9516*9.8;
[v,t]=ode45(@(v,t) a*v/b+e/f,tspan,t0); % 令  $dV=dx$ 、 $dt=dy$ ， $v1=1$  片的過
濾體積， $t1=1$  片的過濾時間
y1=(v*10^(3))./((t./3600).*0.000962); %  $y1=1$  片 BC，ode 解出來的 Flux
plot(t./3600,y1,'k-','LineWidth',1.5);
axis([0,2.5,0,500]);
xlabel('Time (hr)');
ylabel('PF (L/hr*m^2)');

%%%%%%%%%%%%%%
et1=[0.203,0.418,0.643,0.876,1.11,1.375];
% 以 pH5.5+glu1+gly1 為例-1 片的過濾時間(hr)

ev1=[5*10^(-5),1*10^(-4),1.5*10^(-4),2*10^(-4),2.5*10^(-4),3*10^(-4)];
% ev1 = pH5.5+glu1+gly1 為例-實驗值之 1 片的過濾體積(m^3)

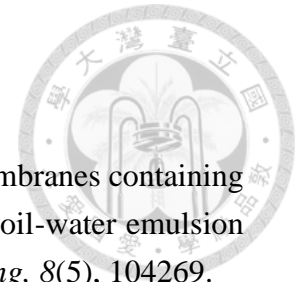
eyy1=(ev1*10^(3))./((et1).*0.000962);
% eyy1 = pH5.5+glu1+gly1 為例-1 片 BC，實驗值的 Flux

err1=[25,24,23,23,22.9,22.55];
% pH5.5+glu1+gly1 為例-1 片 flux 的標準差

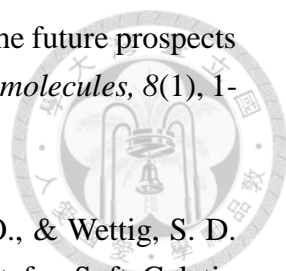
errorbar(et1,eyy1,err1,'ro','MarkerFaceColor','r');
legend('WHC=200','WHC=100','WHC=50','exp,WHC=102');

hold off;
```

參考文獻

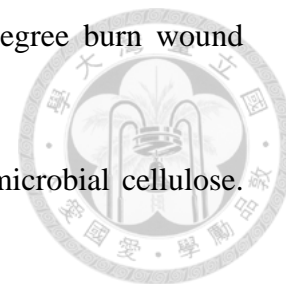


- Abdalla, O., Wahab, M. A., & Abdala, A. (2020). Mixed matrix membranes containing aspartic acid functionalized graphene oxide for enhanced oil-water emulsion separation. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 8(5), 104269.
- Amemiya, T., Mizuno, S., Yuasa, H., & Watanabe, J. (1998). Development of emulsion type new vehicle for soft gelatin capsule. I. Selection of surfactants for development of new vehicle and its physicochemical properties. *Chemical and Pharmaceutical Bulletin*, 46(2), 309-313.
- Arslan, O., Aytac, Z., & Uyar, T. (2016). Superhydrophobic, hybrid, electrospun cellulose acetate nanofibrous mats for oil/water separation by tailored surface modification. *Applied Materials & Interfaces*, 8(30), 19747-19754.
- Azeredo, H., Barud, H., Farinas, C. S., Vasconcellos, V. M., & Claro, A. M. (2019). Bacterial cellulose as a raw material for food and food packaging applications. *Frontiers in Sustainable Food Systems*, 3, 7.
- Azuma, Y., Hosoyama, A., Matsutani, M., Furuya, N., Horikawa, H., Harada, T., . . . Fujita, N. (2009). Whole-genome analyses reveal genetic instability of *Acetobacter pasteurianus*. *Nucleic Acids Research*, 37(17), 5768-5783.
- Brown, A. J. (1886). XLIII.—On an acetic ferment which forms cellulose. *Journal of the Chemical Society, Transactions*, 49, 432-439.
- Carman, P. C. (1937). Fluid flow through granular beds. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 15, 150-166.
- Chakrabarty, B., Ghoshal, A., & Purkait, M. (2008). Ultrafiltration of stable oil-in-water emulsion by polysulfone membrane. *Journal of Membrane Science*, 325(1), 427-437.

- 
- Czaja, W. K., Young, D. J., Kawecki, M., & Brown, R. M. (2007). The future prospects of microbial cellulose in biomedical applications. *Biomacromolecules*, 8(1), 1-12.
- Damian, F., Harati, M., Schwartzenhauer, J., Van Cauwenberghe, O., & Wettig, S. D. (2021). Challenges of Dissolution Methods Development for Soft Gelatin Capsules. *Pharmaceutics*, 13(2), 214.
- Deng, Y., Zhang, G., Bai, R., Shen, S., Zhou, X., & Wyman, I. (2019). Fabrication of superhydrophilic and underwater superoleophobic membranes via an in situ crosslinking blend strategy for highly efficient oil/water emulsion separation. *Journal of Membrane Science*, 569, 60-70.
- Dennis, A., Farr, S., Kellaway, I., Taylor, G., & Davidson, R. (1990). In vivo evaluation of rapid release and sustained release Gelucire capsule formulations. *International Journal of Pharmaceutics*, 65(1-2), 85-100.
- Dickhout, J. M., Moreno, J., Biesheuvel, P., Boels, L., Lammertink, R. G., & de Vos, W. M. (2017). Produced water treatment by membranes: a review from a colloidal perspective. *Journal of Colloid and Interface Science*, 487, 523-534.
- Djekic, L., Jankovic, J., Čalija, B., & Primorac, M. (2017). Development of semisolid self-microemulsifying drug delivery systems (SMEDDSs) filled in hard capsules for oral delivery of aciclovir. *International Journal of Pharmaceutics*, 528(1-2), 372-380.
- Feng, X., Yu, Z., Long, R., Sun, Y., Wang, M., Li, X., & Zeng, G. (2020). Polydopamine intimate contacted two-dimensional/two-dimensional ultrathin nylon basement membrane supported RGO/PDA/MXene composite material for oil-water separation and dye removal. *Separation and Purification Technology*, 247, 116945.
- Gadim, T. D., Loureiro, F. J., Vilela, C., Rosero-Navarro, N., Silvestre, A. J., Freire, C. S., & Figueiredo, F. M. (2017). Protonic conductivity and fuel cell tests of nanocomposite membranes based on bacterial cellulose. *Electrochimica Acta*, 233, 52-61.

- Gao, H., Sun, Q., Han, Z., Li, J., Liao, B., Hu, L., . . . Huang, J. (2020). Comparison of bacterial nanocellulose produced by different strains under static and agitated culture conditions. *Carbohydrate Polymers*, 227, 115323.
- Gorgieva, S., & Trček, J. (2019). Bacterial cellulose: Production, modification and perspectives in biomedical applications. *Nanomaterials*, 9(10), 1352.
- Hamoudi, M., Bourasset, F., Domergue-Dupont, V., Gueutin, C., Nicolas, V., Fattal, E., & Bochot, A. (2012). Formulations based on alpha cyclodextrin and soybean oil: an approach to modulate the oral release of lipophilic drugs. *Journal of Controlled Release*, 161(3), 861-867.
- Harker, J., Backhurst, J., & Richardson, J. (2013). *Chemical Engineering Volume 2* (Vol. 2): Elsevier.
- Hassan, E., Hassan, M., Abou-zeid, R., Berglund, L., & Oksman, K. (2017). Use of Bacterial Cellulose and Crosslinked Cellulose Nanofibers Membranes for Removal of Oil from Oil-in-Water Emulsions. *Polymers*, 9(9). doi:ARTN 38810.3390/polym9090388
- He, F., Yang, H., Zeng, L., Hu, H., & Hu, C. (2020). Production and characterization of bacterial cellulose obtained by *Gluconacetobacter xylinus* utilizing the by-products from Baijiu production. *Bioprocess and Biosystems Engineering*, 43(5), 927-936.
- Hestrin, S., & Schramm, M. (1954). Synthesis of cellulose by *Acetobacter xylinum*. 2. Preparation of freeze-dried cells capable of polymerizing glucose to cellulose. *Biochemical Journal*, 58(2), 345.
- Hong, S. K., Bae, S., Jeon, H., Kim, M., Cho, S. J., & Lim, G. (2018). An underwater superoleophobic nanofibrous cellulosic membrane for oil/water separation with high separation flux and high chemical stability. *Nanoscale*, 10(6), 3037-3045.
- Jiji, S., Udhayakumar, S., Maharajan, K., Rose, C., Muralidharan, C., & Kadirvelu, K. (2020). Bacterial cellulose matrix with in situ impregnation of silver

nanoparticles via catecholic redox chemistry for third degree burn wound healing. *Carbohydrate Polymers*, 245, 116573.



Jonas, R., & Farah, L. F. (1998). Production and application of microbial cellulose. *Polymer Degradation and Stability*, 59(1-3), 101-106.

Kozeny, J. (1927). Uber kapillare leitung der wasser in boden. *Royal Academy of Science, Vienna, Proc. Class I*, 136, 271-306.

Krystynowicz, A., Czaja, W., Wiktorowska-Jeziarska, A., Gonçaves-Miśkiewicz, M., Turkiewicz, M., & Bielecki, S. (2002). Factors affecting the yield and properties of bacterial cellulose. *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology*, 29(4), 189-195.

Lee, K. P., Arnot, T. C., & Mattia, D. (2011). A review of reverse osmosis membrane materials for desalination—development to date and future potential. *Journal of Membrane Science*, 370(1-2), 1-22.

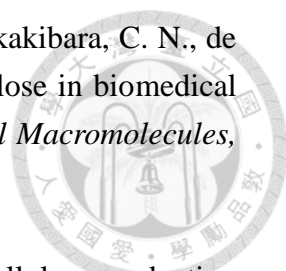
Lehtonen, J., Chen, X., Beaumont, M., Hassinen, J., Orelma, H., Dumée, L. F., . . . Rojas, O. J. (2021). Impact of incubation conditions and post-treatment on the properties of bacterial cellulose membranes for pressure-driven filtration. *Carbohydrate Polymers*, 251, 117073.

Lin, D., Lopez-Sanchez, P., Li, R., & Li, Z. (2014). Production of bacterial cellulose by *Gluconacetobacter hansenii* CGMCC 3917 using only waste beer yeast as nutrient source. *Bioresource Technology*, 151, 113-119.

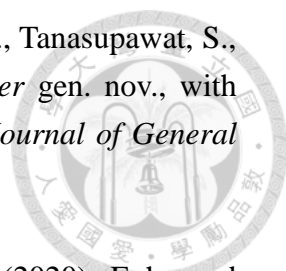
Lin, S.-P., Calvar, I. L., Catchmark, J. M., Liu, J.-R., Demirci, A., & Cheng, K.-C. (2013). Biosynthesis, production and applications of bacterial cellulose. *Cellulose*, 20(5), 2191-2219.

Listiarini, K., Sun, D. D., & Leckie, J. O. (2009). Organic fouling of nanofiltration membranes: Evaluating the effects of humic acid, calcium, alum coagulant and their combinations on the specific cake resistance. *Journal of Membrane Science*, 332(1-2), 56-62.

- Lustri, W. R., Barud, H., Barud, H., Peres, M. F., Gutierrez, J., Tercjak, A., . . . Ribeiro, S. J. L. (2015). Microbial cellulose—biosynthesis mechanisms and medical applications. *Cellulose-Fundamental Aspects and Current Trends, 1*, 133-157.
- Mahwachi, M., & Mihoubi, D. (2020). Pressure and Porosity Profiles During Filtration–Expression Process. *Theoretical Foundations of Chemical Engineering, 54*, 370-379.
- Miyashiro, D., Hamano, R., & Umemura, K. (2020). A review of applications using mixed materials of cellulose, nanocellulose and carbon nanotubes. *Nanomaterials, 10*(2), 186.
- Ng, D. Y. F., Chen, Y., Dong, Z., & Wang, R. (2019). Membrane compaction in forward osmosis process. *Desalination, 468*, 114067.
- Nikzad, J., Shahhosseini, S., Tabarzad, M., Nafissi-Varcheh, N., & Torshabi, M. (2017). Simultaneous detection of bovine and porcine DNA in pharmaceutical gelatin capsules by duplex PCR assay for Halal authentication. *DARU Journal of Pharmaceutical Sciences, 25*(1), 1-11.
- Niyazbekova, Z. T., Nagmetova, G. Z., & Kurmanbayev, A. (2018). An Overview of Bacterial Cellulose Applications. *Eurasian Journal of Applied Biotechnology*(2), 17-25.
- Okiyama, A., Shirae, H., Kano, H., & Yamanaka, S. (1992). Bacterial cellulose I. Two-stage fermentation process for cellulose production by *Acetobacter aceti*. *Food Hydrocolloids, 6*(5), 471-477.
- Pacheco, G., Nogueira, C. R., Meneguim, A. B., Trovatti, E., Silva, M. C., Machado, R. T., . . . Barud, H. d. S. (2017). Development and characterization of bacterial cellulose produced by cashew tree residues as alternative carbon source. *Industrial Crops and Products, 107*, 13-19.
- Persson, K. M., Gekas, V., & Trägårdh, G. (1995). Study of membrane compaction and its influence on ultrafiltration water permeability. *Journal of Membrane Science, 100*(2), 155-162.

- 
- Picheth, G. F., Pirich, C. L., Sierakowski, M. R., Woehl, M. A., Sakakibara, C. N., de Souza, C. F., . . . de Freitas, R. A. (2017). Bacterial cellulose in biomedical applications: A review. *International Journal of Biological Macromolecules*, *104*, 97-106.
- Rangaswamy, B., Vanitha, K., & Hungund, B. S. (2015). Microbial cellulose production from bacteria isolated from rotten fruit. *International Journal of Polymer Science*, *2015*.
- Ross, P., Mayer, R., & Benziman, M. (1991). Cellulose biosynthesis and function in bacteria. *Microbiological reviews*, *55*(1), 35.
- Ruth, B. (1946). Correlating filtration theory with industrial practice. *Industrial & Engineering Chemistry*, *38*(6), 564-571.
- Singhsa, P., Narain, R., & Manuspiya, H. (2018). Physical structure variations of bacterial cellulose produced by different *Komagataeibacter xylinus* strains and carbon sources in static and agitated conditions. *Cellulose*, *25*(3), 1571-1581.
- Strickley, R. G. (2004). Solubilizing excipients in oral and injectable formulations. *Pharmaceutical Research*, *21*(2), 201-230.
- Sulaeva, I., Henniges, U., Rosenau, T., & Potthast, A. (2015). Bacterial cellulose as a material for wound treatment: Properties and modifications. A review. *Biotechnology Advances*, *33*(8), 1547-1571.
- Sulaeva, I., Hettegger, H., Bergen, A., Rohrer, C., Kostic, M., Konnerth, J., . . . Potthast, A. (2020). Fabrication of bacterial cellulose-based wound dressings with improved performance by impregnation with alginate. *Materials Science and Engineering: C*, *110*, 110619.
- Tabaïi, M. J., & Emtiazi, G. (2016). Comparison of bacterial cellulose production among different strains and fermented media. *Applied Food Biotechnology*, *3*(1), 35-41.

- Tabarsa, T., Sheykhnazari, S., Ashori, A., Mashkour, M., & Khazaeian, A. (2017). Preparation and characterization of reinforced papers using nano bacterial cellulose. *International Journal of Biological Macromolecules*, *101*, 334-340.
- Tantratian, S., Tammarate, P., Krusong, W., Bhattarakosol, P., & Phunsri, A. (2005). Effect of dissolved oxygen on cellulose production by *Acetobacter* sp. *J Sci Res Chula Univ*, *30*, 179-186.
- Teow, Y. H., Amirudin, S. N., & Ho, K. C. (2020). Sustainable approach to the synthesis of cellulose membrane from oil palm empty fruit bunch for dye wastewater treatment. *Journal of Water Process Engineering*, *34*, 101182.
- Udegbumam, O. E., & Ademiluyi, J. O. (2018). Problems and prospects of cake filtration theories. *International Journal of Research in Environmental Studies*, *5*(3), 42-47.
- Ullah, H., Badshah, M., Mäkilä, E., Salonen, J., Shahbazi, M.-A., Santos, H. A., & Khan, T. (2017). Fabrication, characterization and evaluation of bacterial cellulose-based capsule shells for oral drug delivery. *Cellulose*, *24*(3), 1445-1454.
- Ullah, H., Santos, H. A., & Khan, T. (2016). Applications of bacterial cellulose in food, cosmetics and drug delivery. *Cellulose*, *23*(4), 2291-2314.
- Vandamme, E., De Baets, S., Vanbaelen, A., Joris, K., & De Wulf, P. (1998). Improved production of bacterial cellulose and its application potential. *Polymer Degradation and Stability*, *59*(1-3), 93-99.
- Williams, W. S., & Cannon, R. E. (1989). Alternative environmental roles for cellulose produced by *Acetobacter xylinum*. *Applied and Environmental Microbiology*, *55*(10), 2448-2452.
- Xue, S., Li, C., Li, J., Zhu, H., & Guo, Y. (2017). A catechol-based biomimetic strategy combined with surface mineralization to enhance hydrophilicity and anti-fouling property of PTFE flat membrane. *Journal of Membrane Science*, *524*, 409-418.

- 
- Yamada, Y., Yukphan, P., Vu, H. T. L., Muramatsu, Y., Ochaikul, D., Tanasupawat, S., & Nakagawa, Y. (2012). Description of *Komagataeibacter* gen. nov., with proposals of new combinations (Acetobacteraceae). *The Journal of General and Applied Microbiology*, 58(5), 397-404.
- Yang, S., Wang, T., Tang, R., Yan, Q., Tian, W., & Zhang, L. (2020). Enhanced permeability, mechanical and antibacterial properties of cellulose acetate ultrafiltration membranes incorporated with lignocellulose nanofibrils. *International Journal of Biological Macromolecules*, 151, 159-167.
- Zahan, K. A., Nordin, K., Mustapha, M., & Mohd Zairi, M. N. (2015). Effect of incubation temperature on growth of *Acetobacter xylinum* 0416 and bacterial cellulose production. *Applied Mechanics and Materials*, 815,3-8.
- Zhijiang, C., Ping, X., Cong, Z., Tingting, Z., Jie, G., & Kongyin, Z. (2018). Preparation and characterization of a bi-layered nano-filtration membrane from a chitosan hydrogel and bacterial cellulose nanofiber for dye removal. *Cellulose*, 25(9), 5123-5137.
- Zhong, C., Zhang, G.-C., Liu, M., Zheng, X.-T., Han, P.-P., & Jia, S.-R. (2013). Metabolic flux analysis of *Gluconacetobacter xylinus* for bacterial cellulose production. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 97(14), 6189-6199.
- Zhuang, G.-L., Wu, S.-Y., Lo, Y.-C., Chen, Y.-C., Tung, K.-L., & Tseng, H.-H. (2020). *Gluconacetobacter xylinus* synthesized biocellulose nanofiber membranes with superhydrophilic and superoleophobic underwater properties for the high-efficiency separation of oil/water emulsions. *Journal of Membrane Science*, 605, 118091.
- 范千鈺. (2020). 培養條件對細菌纖維素之乾重、含水量、機械性質的影響. 臺灣大學化學工程學研究所學位論文.
- 黃翔瑜. (2010). 以 *Gluconacetobacter xylinus* 連續式生產細菌纖維素薄膜之研究. 臺灣大學化學工程學研究所學位論文.

詹詠蓁.(2013). 以 *Gluconacetobacter xylinus* 饋料批次靜置生產細菌纖維素之研究. 臺灣大學化學工程學研究所學位論文.

謝榕庭.(2010). 以 *Gluconacetobacter xylinus* 生產細菌纖維素之研究. 臺灣大學化學工程學研究所學位論文.

藍翊蓁.(2017). 利用瀝乾法測量細菌纖維素含水量與乾燥後復水量. 臺灣大學化學工程學研究所學位論文.

