

## 共焦点型光学センサーによる攪拌槽の混合測定

熊谷 宜久<sup>1\*</sup>・神代 早紀<sup>2</sup>・大村 直人<sup>1</sup>

<sup>1</sup>工学研究科応用化学専攻

<sup>2</sup>工学部応用化学科

(受付:October 27, 2009 受理:January 5, 2010 公開:January 18, 2010)

キーワード: 混合, 混合時間, 流動状態, 共焦点型光学センサー, 非接触

共焦点型光学センサーを用いて, 攪拌槽の混合及び流動状態について調べた。本実験で使用したセンサーは, 攪拌槽内に挿入する従来の方法とは異なり, 非接触で混合測定を行うことができるものである。実験では, トレーサーである蛍光染料を攪拌槽内に投入して蛍光強度を測定し, その応答波形より混合時間を求めた。まず, このセンサーは非常に微小な範囲の領域を測定でき, またその応答時間も非常に短いことを確認した。次にこのセンサーを用い, 攪拌槽の混合について調べた。予め, トレーサーを攪拌中心で投入した場合における混合時間のレイノルズ依存性を求めた。その結果を踏まえ, 混合に影響を与える要素として旋回・循環流, 固体的回転部, 及び液面くぼみの三点を推測した。その推測を検証するために応答波形及び混合時間を, トレーサー投入位置, 液面状態を変化させた場合と併せて観察・測定した。得られた結果より, 上述の推測が妥当であることに加え, 混合の過程を含めたより詳細な攪拌槽の流動状態を明らかにした。

### 緒言

混合プロセスにおいて, 効率よく混合することは重要な課題の一つである。混合の度合いを測る尺度の一つとして混合時間が挙げられる。この混合時間は, トレーサーを攪拌槽中に投入後, 槽内に均一に混合し, トレーサー濃度が時間変化に対して一定値に達するのに要する時間として定義される。この混合時間を研究することにより, 攪拌槽内のマクロな混合の評価ができる。

混合時間を測定する上でこれまでに数多くの技術が用いられてきた。混合測定技術の一例を次に挙げる。まず, Menisher *et al.*<sup>1)</sup>は, 塩基性溶液のフェノールフタレインの色を過剰な酸によって脱色させる方法を用いて混合時間を求めた。また, Sano and Usui<sup>2)</sup>は, 白金電極セルを用いて溶液中の電気伝導度を測定することで混合時間を求めた。この場合, 電解質がトレーサーとして作用している。この他にも, 電気抵抗や液晶等を用いて混合時間を測定する技術がある。これらの技術は, 実験室レベルの攪拌槽の混合測定に使用する限りにおいてはそれ程支障を生じなかった。

しかし, これらの技術を工業装置に応用する場合, 使用上の面で, または, コスト・精度において問題が生じる。例えば, 電気伝導度を測定因子とする技術では, 非電解質溶液の攪拌には使用できず, 電解質溶液であっても化学反応等によって電気伝導度が影響を受ける系では使用不可能である。電気抵抗を利用する技術では, 高いコストがかかってしまう。また, 攪拌槽の大きさ上の問題としても, 小型の攪拌槽では, 反応槽内に挿入されるセンサーが槽自体の大きさに対して相対的に大きくなり, センサーによる槽

内の流れの乱れが無視できなくなり正確に測定できない, もしくは測定不可能となってしまう。このため, より簡便な非接触型の測定法が求められているのが現状である。

これらの問題点を解消するために, Vallejos *et al.*<sup>3)</sup>は共焦点型光学センサーを試作した。これは従来のものと比較して高精度で扱いやすく, 低コストであるという特徴を持つ。また, 非接触のために攪拌槽中での流れを妨げず, 攪拌槽の大きさに依存せずに使用できる。さらに従来の可視化混合測定技術では, 攪拌槽が全て透明である必要があったが, 光学センサーでは測定に必要な箇所だけが透明であればよく, 極めて有用であると言える。ただし, 粒子懸濁系や乳化系等の不透明な系での使用は困難であるので, 注意が必要である。彼らはこのセンサーを用いてミリスケールでの攪拌翼による混合を調査し, 混合時間とレイノルズ数の相関性を見出した。

本研究では, 以下のことについて実験・考察を行った。

- ・このセンサーとほぼ同じ構成のものを試作し, 検出領域及び応答時間を測定した。
- ・マグネティックスターラーの攪拌によるピーカー内の流動状態を, 混合時間とレイノルズ数の関係によって解析した。
- ・応答波形及び混合時間を, トレーサー投入位置または液面状態を変化させた状態で求めた。
- ・上記解析の妥当性及びより詳細な攪拌槽の流動状態について考察を行った。

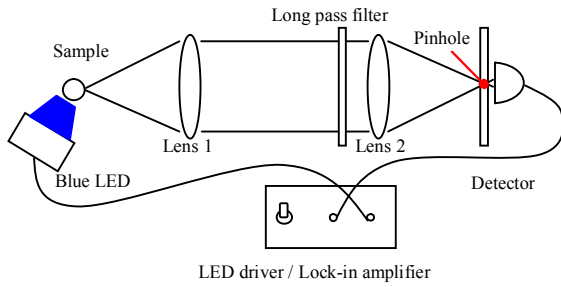


Fig. 1 Elements of the confocal optical sensor

## 1. 実験

### 1.1 光学センサー

今回試作した光学センサーの概要を Figure 1 に示す。このセンサーは、発光源の青色LEDと受光側の2枚のレンズ、フィルター、ディテクター、アンプ、AD変換器より構成されている。青色LEDの光により誘発された蛍光物質（試料）からの光を、フィルターにより分離して特定の波長の光のみ透過させ、レンズにより集光させる。この光をディテクターで感知し、その信号をアンプにより増幅する。最後に、増幅された信号をAD変換器により電圧の信号に変換して検出する。Figure 1中のピンホールによってレンズの焦点の合った光以外は遮断されるため、非常に高精度なセンサーとなる。

### 1.2 実験装置・試薬

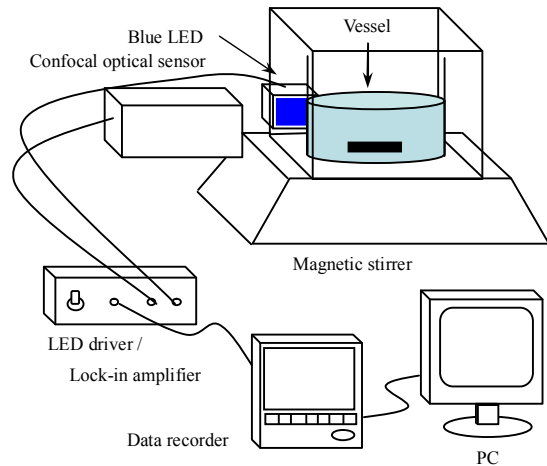
実験装置の形状を Figure 2 に示す。なお、攪拌子は直径8.1 mm、長さ29.8 mmの円柱状である。

直方体のアクリル製容器中に内半径  $R = 31.0$  mm の200 mL ビーカーを設置し、攪拌槽とした。液面の高さは32.5 mm で、その中心に検出点であるサンプル側共焦点の垂直方向の位置を合わせた。同じく水平方向の位置を、2.1章及び2.2.1節に示す実験結果を踏まえて、動作流体の準自由渦部に当たる、ビーカーの壁面から半径約0.7Rまでの範囲に合わせた。その位置に青色LEDの光が最も強く照射されるように、各機器を配置した。また、湾曲している攪拌槽界面での光の屈折を減らすため、アクリル製容器と攪拌槽の間も動作流体である水道水で満たした。水道水10.0 mL に対し蛍光染料のウラニン（フルオレセインナトリウム、特級、和光純薬工業（株））を0.740 gの割合で加えたものをトレーサーとした。

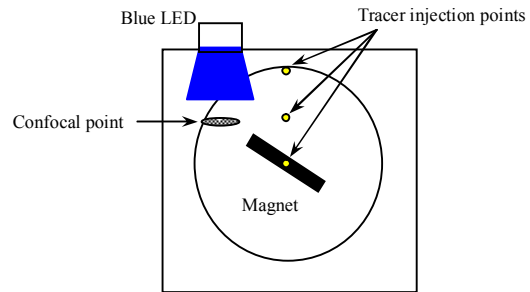
### 1.3 実験方法

#### 1.3.1 液面を開放状態にして行った実験

攪拌槽である200 mL ビーカーに、動作流体である水道水を100 mL 入れた。攪拌子を挿入し、マグネティックスターラーによりビーカー中心で攪拌した。回転数を10～1000 rpmの範囲で所定の値に設定した後、槽内の流動状態が安定になるまで待った。その後、トレーサーを Figure 2 に示す  $r = 0, R/2, R$ （攪拌中心を原点とする）の各トレーサー滴下位置で、シリンジにより1滴（約5～10  $\mu\text{L}$ ）ビーカーに滴下した。滴下量は、測定したデータを後で正規化するの、厳密には定めなかった。なおトレーサーは、液面状態に影響



a) The front view



b) The upper view of the vessel

Fig. 2 Experimental apparatus

を与えないように液面に滴下した。

#### 1.3.2 液面を平面状態に固定して行った実験

攪拌槽の液面をシリコン栓で押さえて液面を平面状態にした。1.3.1項の実験と同様に槽内の流動状態が安定になるまで待った後、トレーサー100  $\mu\text{L}$ を1.3.1の実験と同様の位置で、シリンジによりビーカーに注入した。トレーサーの注入位置は、正面から見て液面とほぼ同じ位置とした。

### 1.4 混合時間の決定方法

各実験でのトレーサー滴下時刻  $t$  を0 sとして、各時刻におけるトレーサー応答からの信号強度を測定し、その応答波形を解析することにより混合時間を求めた。応答波形の正規化値  $E$  及び混合時間  $\theta_M$  の定義をそれぞれ以下の2式に示す。

$$E \equiv \{X(t_1) - X(0)\} / \{X(t_x) - X(0)\} \quad (1)$$

$$\theta_M \equiv \{(E = 1 \pm 0.05) \text{に収束した時の経過時間} t\} \quad (2)$$

つまり、完全に混合した状態における  $E$  を1とし、ほぼ混合したとみなせる状態に至るまでに要した時間を  $\theta_M$  とした。

## 2. 結果と考察

### 2.1 光学センサーの特性

本実験で使用する光学センサーの性能を評価した。評価項目として、センサーの検査領域と応答時間を選択した。

まず、センサーの検査領域について記述する。**Figure 3**に、センサー受光部の前面に円形の蛍光体を、センサーの焦点が蛍光体のほぼ中心部にくるように配置し、蛍光体を奥行き方向 ( $x$ 方向)、垂直方向 ( $y$ 方向)、水平方向 ( $z$ 方向) に動かすことで得られた信号変化を示す。この図から、このセンサーは  $x, y, z$  の全方向に対して明確な共焦点をもつことがわかった。図より、センサーは  $x$  方向に約  $15 \text{ mm}$ 、 $y$  方向に約  $2.4 \text{ mm}$ 、 $z$  方向に約  $2.7 \text{ mm}$  の検査領域をもち、測定し得る検査領域は三次元では繭型の構造をとることが推定される。なお、 $x$  方向の検査領域に関しては全領域を測定できなかったため、信号変化図より検査領域を推定した。この図から、 $y, z$  方向と比較して、 $x$  方向の検査領域が広いことがわかる。これは、 $x$  方向が  $y, z$  方向と光学上の性質が異なるためである。例えばレンズ焦点距離、レンズ間距離及びピンホール径が一定の場合、レンズ径が小さくなると、 $z$  方向の検査領域が狭くなるのに対して、 $x$  方向では広がる。他にもセンサーへ入力される分光放射照度に対する出力信号の比例性等も検査領域及び正確性に影響を及ぼす。このセンサーの検査領域は本実験上の使用に耐えるものではあるが、精度をさらに高める際にはこれらの要素を吟味する必要がある。

次に、センサーの応答時間についてであるが、遮蔽物により光を遮断した時の反応時間を測定することにより求めた。その結果、 $0.1 \sim 0.2 \text{ s}$  でセンサーが応答することがわかった。

以上の結果より、この光学センサーは、本実験で使用する攪拌槽に対して非常に狭い領域を、短い応答時間で測定できるものであると判断した。

### 2.2 混合測定

#### 2.2.1 レイノルズ数の効果

本実験ではまず、自由液面下で攪拌中心 ( $r = 0$ ) からトレーサーを滴下した際のレイノルズ数  $Re$  と混合時間  $\theta_M$  の関係を求めた (**Figure 4**)。全体の傾向としては、レイノルズ数が大きくなるにしたがって混合が促進され、混合時間が短くなっている。ところが、図中の白抜き点で強調した  $Re = 1490$  及び  $2660$  では、逆の現象が見られた。特に  $Re = 2660$  の条件では、トレーサーが攪拌槽中心部に取り込まれてから、その他の領域に拡散するまでに時間差が生じることを肉眼で確認することもできた。また  $Re = 2660$  以上の条件では液面にくぼみが生じ、レイノルズ数の上昇と共に深くなる様子が観察された。

**Figure 5** に、円筒形攪拌槽内の一般的な流動形態を示す<sup>4),5)</sup>。a) では、各矢印の高さにおける旋回流速を縦軸で示した。b) は正面から見た循環流であり、液線密度の疎密によって流速の遅速を表した。攪拌槽円周方向の旋回速度は中心部から直線的に増加して、破線で囲んだ固体的回転部の半径  $r_c$  が最大となり、その外側の準自由渦部では緩やかに減少する。 $r_c$  は回転数とともに増大し、十分に大きな回転数では翼半径の約  $0.7$  倍となり、一定の値をとるようになる。つまり、固体的回転部と準自由渦部との境界は、回転数 (レイノルズ数に比例) と攪拌中心からの距離によって決定されると解釈できる。そ

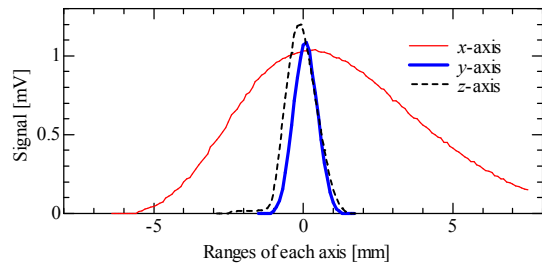


Fig. 3 Signal change in the axes of  $x, y, z$

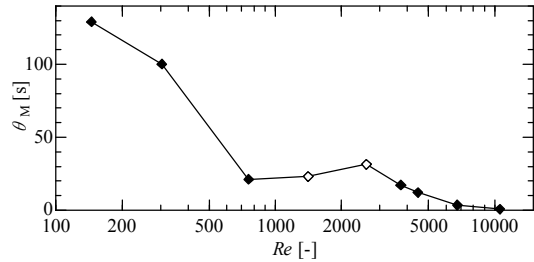


Fig. 4 Relations between Reynolds number and mixing time

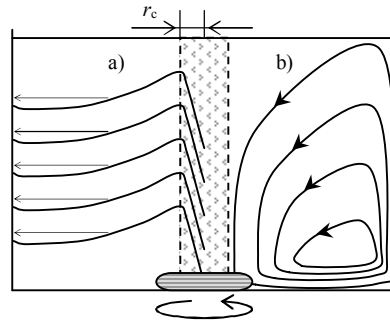


Fig. 5 Flow condition of liquid in the cylindrical stirred vessel about a) rotational flow and b) circulating flow

の固体的回転部には循環流はほとんどなく、旋回流だけが存在しているため混合が悪い。また、旋回・循環流等、動作流体の絶対速度は回転数にほぼ比例する。

以上を踏まえて、攪拌槽内の流動状態について考察する。攪拌槽内の混合に影響を与える要素として、旋回・循環流、固体的回転部、及び液面くぼみの三点を予測した。それらの効果の重ね合わせが実験結果に現れている。レイノルズ数の上昇に伴って旋回・循環流速が大きくなり、混合時間が短くなる。**Figure 4** 中白抜き点付近では、成長した固体的回転部にトレーサーが取り込まれ、準自由渦部に存在する検査領域に拡散するまでに時間を要する。さらにレイノルズ数が大きくなると液面のくぼみが深くなるにしたがって固体的回転部の領域が小さくなり、混合時間も短くなると考えられる。

#### 2.2.2 応答波形について

**Figure 6** に示すように、レイノルズ数が大きくなるにしたがって応答波形も以下の a, b, c のパターンへと変化していった。

- a: 信号強度が時間に対して頻繁に上下動する
- b: 信号の上下動が収まり、 $\Delta = 0$  に近づく
- c: 混合時間  $\theta_M$  が短くなり、 $\Delta$  の値が再び大きくなる

ここで  $\Delta$  は、応答波形のおおよその形状を評価するためのパラメータで、以下の式により定義した。

$$\Delta = (\text{トレーサー応答の最大正規化値}) - 1 \quad (3)$$

aからb, bからcへの遷移は, それぞれレイノルズ数1490, 6780～10520の間で起こった。各パターンから得られる流動状態及びその変化に関する情報を分析する。

レイノルズ数が大きくなるにしたがって波形応答が始まるまでの時間が短くなっている。これは液面と底面の中間に位置する検査領域に達するまでに要する時間が, レイノルズ数(回転数)に依存している, つまり旋回・循環流に乗って混合していることを示している。パターンbのなだらかなEの上昇は, 固体的回転部の存在を表しており, 準自由渦部に位置する検査領域へと徐々に拡散していることがわかる。パターンaではそのような挙動が観察されないことから, 回転数が小さいために固体的回転部が存在しないか, もしくは攪拌槽の液面までその影響が出ておらず, かつ小さいと考えられる。パターンbからcへの遷移について論ずる。Figure 7に, レイノルズ数 $Re$ と液面くぼみに起因する攪拌中心の底面からの液面高さ $h$ との関係を, 各波形パターンの範囲と共に示す。パターンbからcにかけて $h$ が小さくなり, 固体的回転部の高さ成分が減少していることがわかる。パターンcの応答波形ピークは, 固体的回転部中でのトレーサー混合が不十分なまま, 短時間で準自由渦部に行き渡ったことを示している。

### 2.2.3 トレーサー滴下位置の影響

混合領域による流動状態の違いを観察するために, トレーサー滴下位置を変化させてレイノルズ数と混合時間の関係を求めた (Figure 8)。同時に, Eq. (3)で定義した応答波形の形状評価パラメータ $\Delta$ の関係をFigure 9に示した。

固体的回転部の影響の見られない $Re = 150$ では,  $r = 0$  (攪拌中心)で滴下する方が他の2点で滴下する場合よりも混合時間が短い。これより循環流速が非常に小さく, ビーカー底部への流れが存在する攪拌中心に達するまでの時間差が生じている様子がわかる。パターンaの範囲では $Re = 760$ で各滴下位置の $\Delta$ が最大になる。これより低レイノルズ数側では, 流動状態によらない拡散混合が攪拌混合よりも優位で, 穏やかに混合されて $\Delta$ が小さいと解釈できる。

パターンbの範囲において,  $Re = 1490$ では $r = 0$ の,  $Re = 2660$ では $r = 0$ 及び $r = R/2$ の混合時間が大きくなっている。レイノルズ数が大きくなるにつれて全体的に, 特に $r = 0$ において顕著

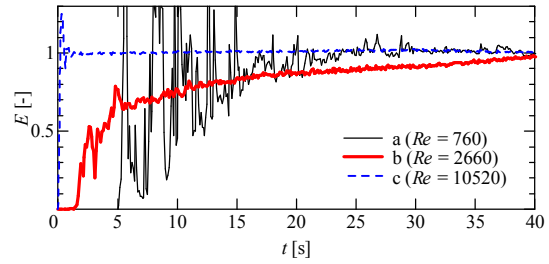


Fig. 6 Time trace of normalized signals

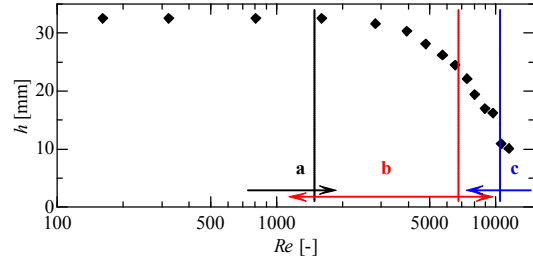


Fig. 7 Relations between Reynolds number and height of the mixing center

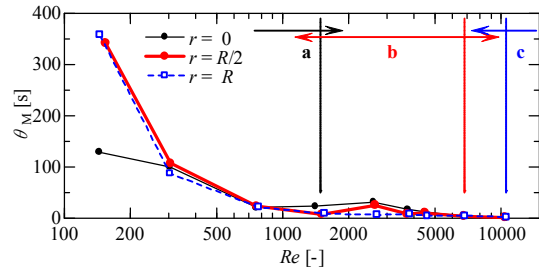


Fig. 8 Effect of injection point of tracer on mixing time

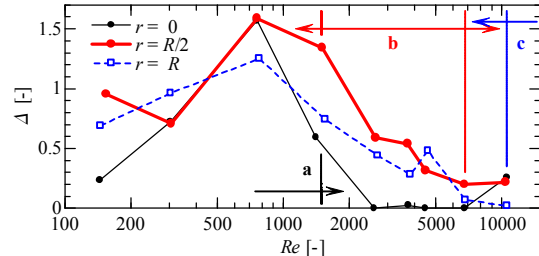


Fig. 9 Relations between Reynolds number and  $\Delta$

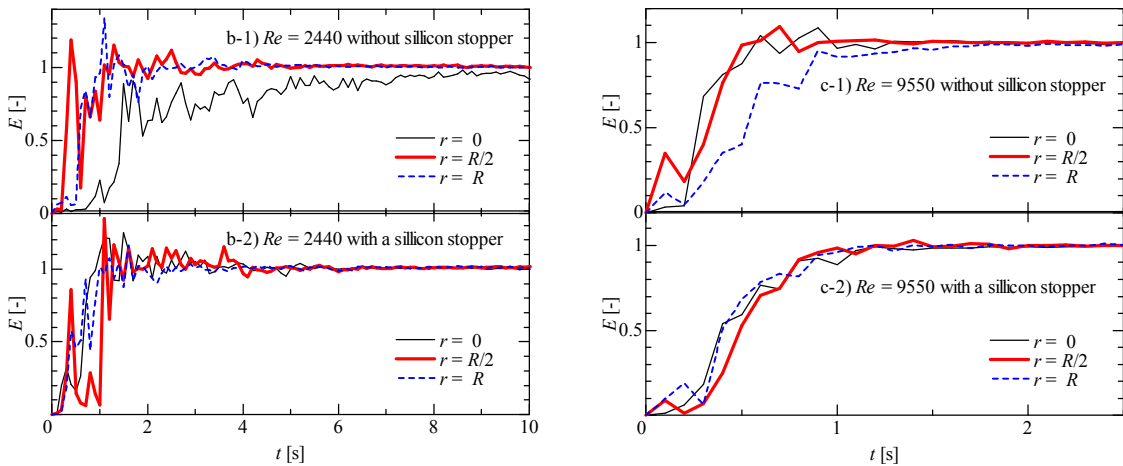


Fig. 10 Effect of injection point of tracer without or with a silicone stopper at  $Re=2440$  (b-1, 2) and  $Re=9550$  (c-1, 2)

に $\Delta$ が減少することと併せて、固体的回転部の影響及びレイノルズ数増加に伴う $r_c$ の増加を示している。

パターンcの範囲の $Re = 10500$ において、 $r = R$ の場合のみ、 $\Delta$ が小さくなっており、前述のくぼみ効果が攪拌中心側に限定されていることの証左となっている。

次に、 $h$ の変化をもたらす液面くぼみを除去した流動状態との比較を行った。液面を平面状態に固定するシリコン栓の有無による応答波形及の違いをFigure 10に示す。なおシリコン栓を使用する都合上、全ての条件においてトレーサー投入方法を滴下から注入に変更して比較した。

パターンbの範囲の $Re = 2440$ においては、Figure 7より自由液面状態における $h$ の変化は1 mm程度なので、液面形状はシリコン栓によってほとんど変化しない。自由液面下でのb)-1図では、攪拌中心からトレーサー投入した場合だけが固体的回転部に取り込まれていることがわかるが、シリコン栓有りのb)-2図ではいずれも取り込まれている様子が見られない。これは、シリコン栓表面によるせん断力が液面付近の固体的回転部を破壊した上で、各投入位置による効果を均質化したためだと考えられる。

パターンcの範囲の $Re = 9550$ においては、Figure 7より自由液面状態における $h$ の変化は15～20 mm程度と、元の半分～1/3程度の高さに変化している。自由液面下でのc)-1図では、その影響で $r = 0$ 及び $R/2$ の混合時間が小さくなっているが、シリコン栓有りのc)-2図では混合時間が大きくなって $r = R$ の波形に沿うように変化している。これは、シリコン栓によって固体的回転部の $h$ が維持されて混合が妨げられたことと、 $Re = 2440$ と同様に、シリコン栓表面によるせん断力が各投入位置による効果を均質化したためだと考えられる。この場合も液面付近の固体的回転部は破壊されるが、 $h$ が維持される効果の方が大きいことが見て取れる。

### 結 言

本実験で使用した共焦点型光学センサーは、微小な範囲の領域を測定できることがわかった。また、その応答時間も非常に短いことから、混合測定技術としては非接触であることも含めて非常に将来的性のある手段になると言える。

この共焦点型光学センサーを用いて、ビーカー内のスターラーによる攪拌について調べた。動作流体として水道水を用いてレイノルズ数と混合時間の関係を求めた。その結果から攪拌槽内の混合に影響を与える要素として、旋回・循環流、固体的回転部、及び液面くぼみの三点を予測した。そのことを数種の測定により裏付けた上で、混合の過程を含めたより詳細な攪拌槽の流動状態を以下の通り明らかにした。

レイノルズ数などによる流動状態の変化を模式的にFigure 11に示す。 $Re = 1490$ 付近未満では、レイノルズ数の増加に伴って、拡散混合優位から攪拌混合優位の状態へと変化する。a)-1図のように固体的回転部が生じていない、もしくはa)-2図のように攪拌槽の液面までその影響が出ておらず、かつ小さい。 $Re = 1490$ 付近以上からはb)図のような、外部の準自由渦部への混合の悪い、固体的回転部を持った状態に遷移してゆく。 $Re$ が6780を越えてさらに大きくなると、c)図のように $r_c$ が増加するものの、固体的回転部の高さが液面くぼみによって顕著に低くなる。結果としてその領域が小さくなって滞留

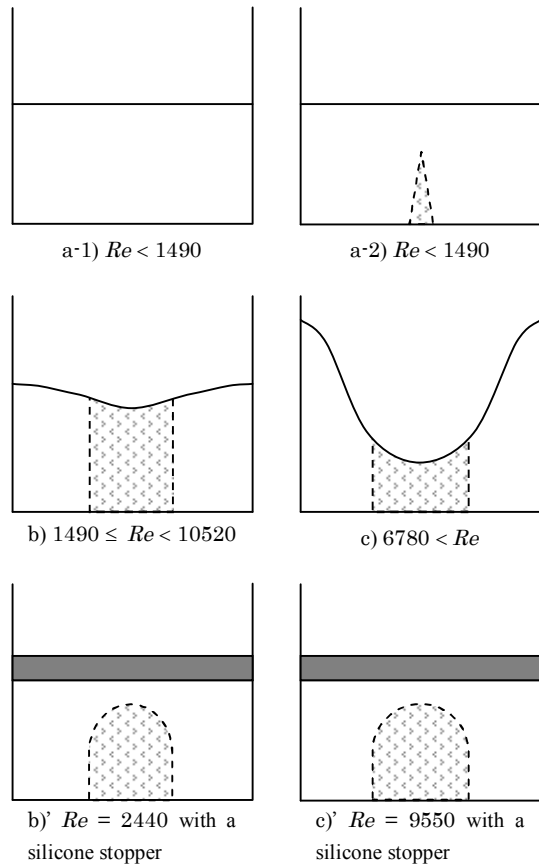


Fig. 11 Relations between Reynolds number and Flow condition of liquid in the cylindrical stirred vessel

時間も短くなる。したがって、準自由渦部との混合が迅速に行われる。ただし、固体的回転部内での混合は不十分である。シリコン栓によって液面を平面状態に固定した場合、 $Re = 2440, 9550$ においてそれぞれb)', c)' 図のように、 $r_c$ に相違はあるものの、いずれも固体的回転部の上部が破壊された状態となる。自由液面の際には前者では固体的回転部から外部への混合が悪く、後者では良かったものが、液上部でのせん断力によって均質化される。なお、後者において混合が悪くなった原因は、液面くぼみの消失である。

### Nomenclature

$E$	=	normalized signal	[-]
$h$	=	height of the mixing center	[mm]
$N$	=	revolution number of impeller	[rps]
$R$	=	internal radius of the vessel	[mm]
$r$	=	distance between tracer injection position and the mixing center	[mm]
$r_c$	=	radius of cylindrically rotating zone	[mm]
$Re$	=	Reynolds number	[-]
$t$	=	time	[s]
$X(t)$	=	signal recorded at any $t$	[mV]
$\Delta$	=	shape estimation parameter of signal	[-]

$\theta_M$  = mixing time (95% homogeneity) [s]

#### Literature Cited

- 1) Menisher, T., M. Metghalchi and E. B. Gutoff; "Mixing Studies in Bioreactors," *Bioprocess Eng.*, **22**, 115-120 (2000)
- 2) Sano, Y. and H. Usui; "Interrelations among Mixing Time, Power Number and Discharge Flow Rate Number in Baffled Mixing Vessels," *J. Chem. Eng. Japan.*, **18**, 47-52 (1985)
- 3) Vallejos, J. R., Yordan Kostov, Mark R. Marten, and Govind Rao; "Confocal Optical System: A Novel Noninvasive Sensor To Study Mixing," *Biotechnol. Prog.*, **21**, 1531-1536 (2005)
- 4) Kagakukougaku-kai Kansai-shibu, 12th Course of Practical Chemical Engineering (in Japanese), 382-383 (2006)
- 5) Kamei, S.; Theory and Calculation of Chemical Machinery (in Japanese), 2nd ed., pp. 436 (1975)

## Mixing Measurement by Means of Confocal Optical Sensor in Stirred Vessel

Norihisa KUMAGAI<sup>1\*</sup>, Saki JINDAI<sup>2</sup>, and Naoto OHMURA<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Graduate School of Engineering, Department of Chemical Science and Engineering*

<sup>2</sup>*Faculty of Engineering, Department of Chemical Science and Engineering*

**Key words:** Mixing, Mixing Time, Flow condition, Confocal Optical Sensor, Noninvasive

Mixing and flow condition in stirred vessel was investigated by means of a confocal optical sensor. This sensor can measure mixing without invasion unlike existing sensors. Experiments were conducted in a vessel using fluorescent dye as a tracer. Mixing times were estimated by signals from the tracer. As a result of the investigation of this sensor itself, excellent selectivity both space and time was made sure. Then mixing in the vessel was investigated by using this sensor. Relation between mixing time and Reynolds numbers when put the tracer in the center of the fluid surface was measured preliminarily. With this result, three elements; rotational/circulating flow, cylindrically rotating zone, and surface hollow were presumed which influence the mixing. Then signal pattern and mixing time were measured, while tracer injection position or surface condition changes. As a result, in addition to the propriety of above three elements, more elaborate flow condition in stirred vessel including mixing process was clarified.