極微量液体の流量計測に関する基礎的研究*

五十嵐 保^{*1}, 稲垣 進^{*1}, 西田 幸造^{*1}Fundamental Study on Flow Measurement
of Extremely Small Flow Rates of a Liquid

Tamotsu IGARASHI, Susumu INAGAKI, and Kouzou NISHIDA

Concerning with flow control and measurement of extremely small flow rates of a liquid, an experimental study on the mass of a falling droplet, m , from a capillary tube was carried out. The liquid used was water and methanol. The capillary tubes with outer diameters, D , from 1 to 10 mm, were made of teflon, brass and stainless steel. The main results obtained are as follows: (1) the mass of the droplet is given the following general equation regardless of the surface tension, σ , of the liquid, $m/\rho D^3 = 2.15(\sigma/\rho g D^2)^{1/06}$, (2) the above equation enables one to measure the flow rate for very small quantities.

Key Words: Mechanics, Fluid Measurement, Surface Tension, Drop Method, Capillary Tube, Mass Measurement, Dimensional Analysis

1. ま え が き

極微量の液体を連続的に供給する場合, その流量を直接測定することは困難である。しかし実用上の一例を挙げれば, 煙風洞実験に用いる煙発生器へのケロシンの供給は毛細管からの滴下によっている。また病院で用いられている点滴も同様である。これらの滴下量は 10 mg/s のオーダーで, 滴下液滴の質量は常に一定であることが必要である。従来の流量測定法では計測できないこのような極微量の液体の流量を測定または制御する方法として, 毛細管より滴下する液滴の数をカウントする簡便な手法が考えられる。

毛細管からの滴下液滴の精密な質量測定が Harkins と Brown⁽¹⁾により行われている。この測定は最も簡便で広く行われている表面張力測定法⁽²⁾⁽³⁾の一つで, 液滴法(Drop Method)と呼ばれている。すなわち滴下液滴の質量を測定し, その結果を用いて液体の表面張力を求める方法である。

以上の観点から毛細管からの滴下液滴の質量を精密に予測することは重要である。そこで2種類の液体に

対し滴下実験を行った。得られた結果を次元解析により定式化し, 滴下液滴の質量に関する一般関係式を得た。また Harkins と Brown の実験結果との比較を行った。さらに液滴法により表面張力を求める Harkins と Brown の手法についても検討した。

記 号

a : 定数 $= r/V^{1/3}$
 D, d : 毛細管の外径と内径
 g : 重力加速度
 M : 100 滴の質量
 m : 液滴の質量
 r : 毛細管の半径 $= D/2$
 T : 100 滴の滴下時間
 V : 液滴の体積
 ρ : 密度 $= m/V$
 σ : 表面張力
 ϕ : 式(5)の係数
 ψ : $r/V^{1/3}$ の関数 [式(6)]

2. 実験装置および方法

実験に用いた液体は水とメタノールである。実験は空気中で圧力 1 atm., 常温 20°C 付近で行われた。この

* 平成元年10月15日 第67期全国大会講演会において講演, 原稿受付 平成元年4月14日。

^{*1} 正員, 防衛大学校 〒239 横須賀市走索1-10-20。

状態での液体の密度 ρ と表面張力 σ を表 1 に示す。毛細管の材質は黄銅、テフロン、ステンレスである。黄銅管およびテフロン管の外径 D は 2, 2.5, 3, 4, 5, 6, 8, 10 mm, 内径 d はいずれも 1 mm である。ステンレス管の外径は 2.0(1.55), 1.6(1.15), 1.0(0.7) mm である。ただし括弧内は内径である。管はできるだけ肉厚で、正しい円形断面をもち、長さ方向に直角に鋭い端を有するように製作した。滴下の様相は図 1 (a) に示す状態から図 1 (b) のように毛細管に接する部分がくびれて滴下する。毛細管上部はピペットに接続し、液面にかかる圧力を調節して滴下速度を変化させた。上記 2 種類の液体に対し、滴下液滴の質量を測定した。液滴は 1 秒に 1 滴から 3 秒に 1 滴ぐらいの割合で滴下させ、この滴下速度の影響を調べた。ただし 1 滴の質量は微量なので、100 滴の総質量 M を精密天秤で測り、その 1/100 の値を 1 滴の質量 m とした。精密天秤の測定精度は ± 0.1 mg である。測定は 5 回繰返し行ったが、実験値のバラツキは 1 % 以下であった。最大値と最小値を除いた三つの値の平均値を実験値として採用した。

3. 次元解析

自然現象はすべて、関係する物理量の間の関係として記述される。いま滴下液滴の質量に関係する物理量を示すと、次のとおりである。

表 1 液体の物性

圧力は 1 atm., 室温 20°C 付近, 接触する気体は空気

Liquid	Density ρ [g/cm ³]	Surface tension σ [dyn/cm]
Water	0.9982	72.75
Methanol	0.793	22.5

図 1 滴下液滴

	記号	次元	単位
液滴の質量	m	[M]	g
管の外径	D	[L]	cm
液体の密度	ρ	[ML ⁻³]	g/cm ³
液体の表面張力	σ	[MT ⁻²]	dyn/cm
重力の加速度	g	[LT ⁻²]	cm/s ²

次元解析を行うと、これらの物理量の組合せからなる互いに独立な無次元物理量は $m/\rho D^3$ と $\sigma/\rho g D^2$ の二つである。したがって滴下液滴の質量は、次の一般式の形に書き表される。

$$\frac{m}{\rho D^3} = f\left(\frac{\sigma}{\rho g D^2}\right) \dots\dots\dots (1)$$

4. 実験結果および考察

メタノールに対し 100 滴の滴下に要した時間 T とその総質量 M の関係を図 2 に示した。管径 $D=1\sim 2$ mm はステンレス, $D=3\sim 6$ mm は黄銅である。水およびメタノールに対する外径 D の毛細管より滴下する液滴の質量 m の実測値が図 3 (a), (b) に示してある。図 3 (a) には Harkins-Brown⁽¹⁾ のガラスと黄銅の毛細管の実験結果が、図 3 (b) のメタノールの図中には Harkins らのガラスの毛細管によるベンゼンの実験結果がそれぞれ示してある。ベンゼンの 1 atm., 25°C における物性値は $\sigma=28.2$ dyn/cm, $\rho=0.874$ g/cm³ である。

4.1 滴下時間の影響 本実験では、液滴の滴下が流量制御と計測を目的としているため、滴下時間を短く 1 滴当たり 1～3 秒とした。一方、Harkins-Brown の実験は厳密な装置で十分な滴下時間、すな

図 2 滴下時間と液滴総質量の関係

わち1滴当たり1～11分もかけて行われた。彼らによれば、滴下時間が短くなると滴はわずかに重くなる。本実験の液滴の質量が Harkins-Brown の実験値より2%ほど高めの値を与えるのはこの滴下時間の差異によるとと思われる。しかし実用的見地からは滴下速さが1滴当たり1秒より遅ければ、滴下時間の影響はないと言える。

4.2 管外径と液滴質量の関係 水の場合、本実験結果は Harkins-Brown の実験結果と一致してい

る。ただし水およびメタノールに対するステンレス管のデータはやや高めの値を与えている。これは管径が小さいので注射針用のステンレス管を用いたため、肉厚が薄くその影響が現れたものと思われる。液滴の質量 m は液体の種類によらず管外径 D にほぼ比例して増大している。

4.3 管材質および液の物性の影響 次に毛細管の材質の影響をみる。水、メタノールの場合、液滴の質量に及ぼす毛細管の材質の影響は図示した範囲ではほとんどない。しかし水の場合、テフロン製の毛細管外径

(a) 水

(b) メタノール・ベンゼン

図3 液滴質量と管外径の関係

(a) 水

(b) メタノール・ベンゼン

図4 滴下液滴質量の無次元表示

が4 mm, 黄銅では10 mm を越えると液滴成長の様相は変化し, 不安定になる。このため液滴は小さくなり, 質量が減少する。液体の物性の影響については, 水滴の質量はメタノールの液滴に比べて約3倍大きく, 液滴の質量 m は表面張力 σ の大きさに比例していることがわかる。

4.4 一般関係式 先に求めた無次元物理量を用いて, 式(1)の一般関係式を求める。水およびメタノールに対する図3に示した実験値を式(1)により再整理した。得られた結果を図4(a), (b)に示す。水, メタノール, ベンゼンいずれの場合も同一の式で記述される。すなわち, 液滴の質量は液体の種類によらず, 次式で与えられる。

$$\frac{m}{\rho D^3} = 2.15 \left(\frac{\sigma}{\rho g D^2} \right)^{1.06} \quad (2)$$

(0.06 ≤ σ/ρgD² ≤ 7)

4.5 液滴法について 簡便な表面張力測定法の一つである液滴法は垂直な管の下端より滴下する液滴の重量 mg から表面張力 σ を求める方法である。

簡単には, 図1(a)のように直径 D の管から滴下する液滴の重量 mg は管の先端の周囲の長さ πD に沿って垂直上方に働く表面張力 σ に釣り合うとして, 次式が得られる。

$$mg = \pi D \sigma \quad (3)$$

上式を式(1)の形に変形すると次式が得られる。

$$\frac{m}{\rho D^3} = \pi \left(\frac{\sigma}{\rho g D^2} \right) \quad (4)$$

しかし実際には, 図1(b)のように管の先端において液滴はくびれ接する面は垂直ではなく, 滴下液滴は生じた液滴の一部分である。その重量 mg は $\pi D \sigma$ よりかなり小さい。この修正は次の方法による。

$$mg = \pi D \sigma \phi \quad (5)$$

この係数 ϕ は Lohnstein⁽⁴⁾の理論によれば, 液滴の体積 V と管半径 r の関数となる。

$$1/\phi = \phi(r/V^{1/3}) \quad (6)$$

Harkins-Brown⁽¹⁾の詳細な実験によれば, $r/V^{1/3}$ に対する ϕ の値は複雑な変化をする。両者の関係は表2のようになる。液滴法ではまず液滴の質量 m と体積 V を求め, $r/V^{1/3}$ に対応する ϕ を表から求め, 式(5)より表面張力 σ を得る。彼らは $r/V^{1/3}$ が0.75から0.95の間では ϕ が1.66の一定値となるから, 滴の大きさがこの範囲にくるような管を用いるのがよいと結論している。

4.6 実験結果の検討 先述の本実験結果の式(2)と Harkins-Brown⁽¹⁾の液滴法との比較検討を行う。式(5)を式(1)の一般関係式に変形する。

$$\frac{m}{\rho D^3} = \frac{\pi}{\phi} \left(\frac{\sigma}{\rho g D^2} \right) \quad (7)$$

一方, 式(6)の変数 $r/V^{1/3}$ を a とおく。

$$r/V^{1/3} = a \quad (8)$$

$m = \rho V = \rho D^3/8a^3$ となるから, 式(1)の無次元数は, それぞれ次式で与えられる。

$$\frac{m}{\rho D^3} = \frac{1}{8a^3}, \quad \frac{\sigma}{\rho g D^2} = \frac{1}{\pi} \frac{\phi}{8a^3} \quad (9)$$

したがって式(7)の関係は表2の $r/V^{1/3} = a$, ϕ の値を式(9)に代入して得られる。本実験結果の式(2)と液滴法の近似式(3)および Harkins-Brown の式(5)を変形した式(4), (7)との比較を図5に示す。実験結果は近似式(4)の60~70%の値である。補正式(7)と式(2)は $\sigma/\rho g D^2 = 0.08 \sim 7.0$ の範囲で一致している。

4.7 表面張力測定法 以上の結果は Harkins-Brown⁽¹⁾の表面張力測定法が簡略化できることを示し

表2 Harkins-Brown の補正表 [文献(2)より]

$r/V^{1/3}$	ϕ	$r/V^{1/3}$	ϕ
0.30	1.3780	0.80	1.6667
0.35	1.4263	0.85	1.6688
0.40	1.4645	0.90	1.6672
0.45	1.4994	0.95	1.6572
0.50	1.5349	1.00	1.6398
0.55	1.5718	1.05	1.6183
0.60	1.6000	1.10	1.5923
0.65	1.6205	1.15	1.5608
0.70	1.6412	1.20	1.5302
0.75	1.6578

図5 式(2)と液滴法の式(4), (7)との比較

図6 補正係数 ϕ と $\sigma/\rho g D^2$ の関係

ている。すなわち、補正係数 ϕ を用いた式(5)が一般関係式(2)で記述できる。両式より補正係数 ϕ は次のように定式化できる。

$$\phi = 1.46 \left(\frac{\sigma}{\rho g D^2} \right)^{-0.06} \dots \dots \dots (10)$$

係数 ϕ が表2に示したように $r/V^{1/3}$ に対し複雑に変化する。そこで表2を $\phi - \sigma/\rho g D^2$ の関係に直して図6に示した。式(10)の適用範囲は $0.10 \leq \sigma/\rho g D^2 \leq 1.3$ で、実験値との誤差は1%以内である。なお係数 ϕ がほぼ一定値1.66~1.67になるのは、 $\sigma/\rho g D^2 = 0.08 \sim 0.16$ の範囲である。

5. 結 論

液体の極微量流量の計測と制御に関連して、毛細管より滴下する液滴の質量測定について実験的解析を行った。得られた主要結果は次のとおりである。

(1) 毛細管からの滴下液滴の個数をカウントすることにより極微量の流量を計測することができる。

(2) 滴下液滴の質量はほぼ管外径 D および表面張力 σ に比例する。液滴の質量は液体の種類によらず次の無次元表示式で与えられる。

$$\frac{m}{\rho D^3} = 2.15 \left(\frac{\sigma}{\rho g D^2} \right)^{1.06} \quad (0.06 \leq \sigma/\rho g D^2 \leq 7)$$

上式は表面張力測定法に適用できる。

(3) 1滴当たり1秒より遅い滴下では滴下時間の影響はない。毛細管の材質の影響はメタノールに対してはない。しかし水の場合、テフロンでは管外径4 mm、黄銅では10 mm が限界である。

(4) Harkins-Brown の補正式は次のように変形できる。

$$\frac{m}{\rho D^3} = \pi \left(\frac{\sigma}{\rho g D^2} \right)^{\frac{1}{\phi}}$$

この係数 ϕ は定式化でき、次式で与えられる。

$$\phi = 1.46 \left(\frac{\sigma}{\rho g D^2} \right)^{0.06} \quad (0.10 \leq \sigma/\rho g D^2 \leq 1.3)$$

終わりに本実験の遂行に際し、多大のご援助をいただいた本学の飛澤昌太郎教授に謝意を表す。

文 献

- (1) Harkins, W. D. and Brown, F. E., *J. Am. Chem. Soc.*, **41** (1919), 499-524.
- (2) 関根, 物理実験法, (1954), 183, 三友社.
- (3) 白井・ほか3名, 基礎教育-物理学実験, (1969), 78, 学術図書.
- (4) Lohnstein, T., *Ann. Physik*, **4**, 20 (1906), 237 and 606, **4**, 21 (1907), 1030.

討 論

〔質問〕 牧 博 司〔東京理科大学理工学部〕

(1) この程度の流量範囲は、浮子式面積流量計で測定可能と思われるが、ご調査願いたい。

(2) この測定法は連続測定ではないと思われるが、いかがか。

〔回答〕 (1) 流量範囲について、JIS B 7551 (1981)、フロート形面積流量計によれば、液体用で最小の流量計の有効測定範囲は1~10 mL/min である。また、メーカーのカタログによれば、水用で0.06~0.6 L/h で両者は一致している。したがって、水

に換算した質量流量は16.7~167 mg/s となる。本実験で滴下速度を1 s 当りに1滴とすれば、ほぼ同程度の流量となることはご指摘のとおりである。しかし滴下速度を数 s から10 s と遅くすることによりさらに低流量まで測定可能となる。

(2) ご指摘のように厳密には連続測定ではない。しかし実地的見地からは微量の液体の供給はかなり長時間にわたると考えられる。したがって、液の流量測定や制御にとって問題になるとは考えない。