単一光ファイバプローブによる表面張力測定

小澤 佑輔¹, 真田 俊之¹, 大石 真吾², 青島 紳一郎², 齋藤 隆之¹

¹静岡大学 工学部機械工学科 (〒432-8561 静岡県浜松市中区城北3-5-1)

²浜松ホトニクス(株) 中央研究所 (〒434-8601 静岡県浜松市浜北区平口5000)

Measurement of Surface Tension Using a Single-Tip Optical Fiber Probe

Yusuke OZAWA,¹ Toshiyuki SANADA,¹ Shingo OISHI,² Shin-ichiro AOSHIMA,² and Takayuki SAITO¹

¹Department of Mechanical Engineering, Shizuoka University, 3-5-1 Johoku, Naka-ku Hamamatsu, Shizuoka 432-8561

²CRL, Hamamatsu Photonics K.K., 5000 Hirakuchi, Hamakita-ku Hamamatsu, Shizuoka 434-8601

(Received October 22, 2008)

Optical fiber probing is widely applied to an efficient and reliable measurement for gas-liquid two-phase flows. For the measurement of small- and medium-size bubbles/droplets, we already developed a Four-Tip Optical fiber Probe (F-TOP) and a Single-Tip Optical fiber Probe (S-TOP). The influences of surface tension on the measurement accuracy are inevitably large due to their being direct-contact probing; i.e. the optical fiber probing is very sensitive to the surface tension. Turning to this disadvantage in bubbles/droplets measurement by the optical probes, this is a prominent characteristic able to be applied to surface tension measurement. In this study, we newly developed a measurement technique for surface tension using the S-TOP on the basis of improvement of the stated above. This measurement is based on the change of the direct proportional relationship between the gradients of the S-TOP signal and gas-liquid interface velocity. One can easily measure surface tension by using this method at a range lower than 60 mN/m. Uncertainty of surface tension measurement using this method is about 5 %.

Key Words: Surface tension, Single-Tip Optical fiber Probe (S-TOP), Gas-liquid two-phase flow, Wettability

1. はじめに

気液二相流は、原子炉や熱交換器に代表されるエネルギー機器ならびに化学反応装置等、工業分野において広く見られる複雑流動現象である。これらの装置の高効率化、高い安全性を実現するには、装置内の流動状態を高精度かつリアルタイムに計測し、最適な流動状態に保つ必要がある。これまで、気液二相流計測においては様々な手法が考案、利用されてきた。その中の一つに光ファイバプローブ法¹⁻⁵⁾がある。光ファイバプローブ法は、気相と液相の屈折率差を利用することで気泡・液滴特性を計測する方法である。これまで、我々は独自に開発した4点光ファイバプローブ(F-TOP)⁶⁻⁹⁾を用いて気液二相流を対象とした研究を行い、気泡の三次元運動を高精度に計測できることを示してきた。さらに、F-TOP等のマルチプローブによる計測が困難な微小気泡・微小液滴の径・速度の同時計測を可能にする、単一光ファイバプローブ(S-TOP)^{10,11)}を開発した。しかし、光ファイバプローブ法は接触計測であることから、表面張力の変化が計測精度に与える影響¹²⁻¹⁴⁾は大きい。一般的に、表面張力の変化は、気泡・液滴界面の挙動ならびに光ファイバ

プローブのぬれ性を変化させる。よって、光ファイバプローブ計測において、液相の表面張力を把握することは高精度計測を実現するために重要である。

本研究では上記を光ファイバプローブ計測の負の特性ではなく、むしろ優れた特性と捉え、S-TOPによる液相表面張力測定法^{15,16)}を開発した。従来の表面張力計測方法は、力の釣り合い(重力測定法：重力と表面張力との釣り合い)あるいは力の計測(力測定法：ワイヤーあるいは薄板に作用する力の計測)から表面張力を算出する方法である。これに対して、本提案の表面張力計測手法は、力の計測を必要とせず、光の計測のみより表面張力を計測するものである。

すなわち、S-TOPと気液界面との接触過程における界面の相対的な運動によるプローブ出力信号の変化特性から表面張力を算出・計測する方法である。本研究では、純水に界面活性剤を添加することで表面張力を任意に変化させて、種々の条件下で実験を行った。さらに、気液界面挙動を高速ビデオカメラで可視化し、接触過程と出力信号との関係を明らかにした。これらの知見に基づいて、従来の表面張力計測方法に代わる新たな表面張力計測法を提示する。

2. 光ファイバプローブ計測

2.1 計測原理

光ファイバプローブ法は、気相と液相の屈折率変化により生じる戻り光量(プローブ端面で反射される戻り光)の変化を捉え、光量変化の大きさを基に相検出を行うものである。光ファイバプローブ計測に用いるシステムをFig. 1に示す。光源に半導体レーザー(波長635 nm)(1)を使用し、射出されたレーザー光はビームスプリッター(2)を介して対物レンズ(3)で集光され、光ファイバプローブ(4)に入射される。入射光の一部はプローブ端面において反射した後、同経路を逆進し、ビームスプリッターで光路を直角に変える。さらに、偏光板(5)を介し光電子増倍管(6)に入射する。光電子増倍管で光電変換された後、A/D変換器(7)を介してPCに取り込まれる。Fig. 1内の矢印はレーザー光および信号の流れを示したものである。

光ファイバプローブと気泡との接触による戻り光量(出力信号)の一例をFig. 2に示す。プローブ端面が液相に覆われている場合、コア(光ファイバのコア)と液相の屈折率差が小さくなるために、光は端面を透過して液相に抜ける。一方、プローブ端面が気泡に接触すると、コアと気相の屈折率差は液相時と比べて大きくなり、端面

(1) Laser diode, (2) Beamsplitter, (3) Objective lens, (4) Optical fiber probe, (5) Polarizer, (6) Photo multiplier, (7) A/D converter, (8) PC

Fig. 1 Optics and photoelectric conversion.

Fig. 2 Typical signal of detecting a bubble.

で光が反射され、戻り光量が増加し始める(Fig. 2①. 光電子増倍管出力の増加開始)。さらに、気泡に覆われるプローブ端面の面積の増加とともに戻り光量が増加して、光電子増倍管の出力は増加する(Fig. 2②)。プローブ端面が完全に気泡に覆われる(Fig. 2③)と戻り光量の増加は抑制されて、光電子増倍管出力はほぼ一定値をとる(Fig. 2④)。その後、気泡の離脱に伴い(Fig. 2⑤)、端面は再び液相に覆われるために戻り光量が減少し、光電子増倍管出力も減少する(Fig. 2⑥)。液滴接触過程においては、気泡接触過程とはほぼ逆の増減現象を示す。

2.2 S-TOPによる表面張力計測の原理

S-TOPの最大の特徴は、端面形状が楔状であることである。本計測手法は、端面を楔状にすることで、端面を通過する気液界面速度によって変化する戻り光量の時間変化率を利用した速度計測手法である¹⁷⁾。S-TOPの先端構造及び拡大写真をFig. 3に示す。さらに、Fig. 4に端面を通過する気液界面と出力信号の関係を示す。出力信号は、端面を覆う気液界面の面積： S に比例して変化する。端面は楔状に加工しているため楕円型をしていることから、 S は以下の式で与えられる。

$$S = ab(h-0) + \frac{ab}{2}(\sin 2h-0) \quad (1)$$

Fig. 3 S-TOP for surface tension measurement. (a) Structure of S-TOP tip. (b) Micrograph of S-TOP.

Fig. 4 Relation between covered area S and photo-multiplier output V_p .

ここで、 $2a$ を楕円長軸長さ、 $2b$ を楕円短軸長さとする。また、光電子増倍管で検出される戻り光量(出力電圧信号： V_p)は S に比例するため、比例係数を β とすると、 V_p と S の間には以下のような関係が成立する。

$$V_p \propto \beta S \quad (2)$$

さらに、Fig. 4に示すように、端面が覆われる高さを h とすると、区間 h_1 、 h_2 の出力信号には比例直線関係が成立する。よって、その区間における気液界面速度を U_l 、気液界面がその区間を通過する時間を t とすると、

$$h = U_l t \quad (3)$$

となる。よって、以下の関係式が成立する。

$$V_p \propto \beta S = \beta' h = \lambda U_l t \quad (4)$$

ここで、 β' 、 λ は比例係数である。つまり、出力電圧信号： V_p と気液界面速度： U_l の間には以下のような関係式が成立し、気泡・液滴の気液界面速度の算出が可能となる。

$$U_l = \alpha \frac{dV_p}{dt} \quad (5)$$

さらに、次式を用いることで気泡・液滴の通過弦長： L の算出が可能となる。

$$L = U_l (t_2 - t_1) \quad (6)$$

ただし、 t_1 をプローブと気泡・液滴との接触開始時間、 t_2 を接触終了時間とする。

本計測原理は、液相表面張力により変化する光ファイバ端面のぬれ性変化を利用したものである。表面張力の変化により、プローブ端面に沿って成長するメニスカス

の速度が変化する。その際に生じる戻り光量の時間変化率と表面張力との関係をまとめた校正曲線を用いることで、S-TOPによる表面張力を測定するものである。本研究で開発したS-TOPによる表面張力測定技術により、種々の工業分野で重要なパラメータである表面張力を、従来とは全く異なる原理により簡易かつ高精度に測定することが可能となる。なお、端面角度は計測対象とする気相・液相の屈折率から、戻り光量変化(気相・液相レベル値の差)が最大となる角度を採用している。

3. 実験装置

3.1 実験装置及び方法

本研究では、光ファイバ(合成石英、コア径190 μm 、クラッド厚5 μm 、ジャケット厚15 μm)の先端をマイクロピペットペペラー(Sutter Instrument社製P-2000)を用いて35°の楔状に研磨し、注射針及びステンレスチューブに挿入・固定したものを表面張力計測用S-TOP(以下、単にS-TOP)として使用した(Fig. 3)。

実験装置の概略をFig. 5に示す。実験装置は、PCにより制御された精密自動ステージ(b)にS-TOP(c)を固定し、気相から液相へと100 $\mu\text{m/s}$ の速度で移動させ、気液界面と接触させた。煮沸脱気したイオン交換水が満たされたアクリル製矩形水槽(f)に、界面活性剤(1-Pentanol)を0, 500, 1,200, 2,500, 4,500, 7,000, 10,000, 14,000, 18,000 ppmの濃度で添加し、表面張力を変化させた。滴重法により計測した各濃度における界面活性剤水溶液の表面張力を、Table 1にまとめる。また、A/D変換器(Sample rate: 1 MHz)(e)と同期させた高速ビデオカメラ(g)(Phantom V9, Samplerate: 4,000 fps, 3.0 $\mu\text{m}/\text{pixel}$)を用い、S-TOPと気液界面との接触過程を可視化撮影した。なお、可視化光源にはハロゲンランプ(h)(出力200 W：日星電気製)を使用した。

3.2 信号処理

表面張力計測における典型的な出力信号及び信号処理の概略をFig. 6に示す。S-TOP信号を25点移動平均平滑

Fig. 5 Experimental setup. (a) Laser diode, (b) Servo actuator, (c) Single-tip optical fiber probe, (d) Photo multiplier, (e) A/D converter, (f) Acrylic water vessel, (g) High-speed video camera, (h) Halogen light source.

Table 1 Surface tension in each 1-Pentanol concentration (at 20.1 $^{\circ}\text{C}$).

1-Pentanol concentration [ppm]	Surface tension [mN/m]
0	75.7
500	71.4
1200	66.1
2500	57.2
4500	51.1
7000	44.2
10000	39.5
14000	35.0
18000	31.1

Fig. 6 Processing of S-TOP signal.

化処理後，出力電圧のヒストグラムを計算して液相レベル： V_L ，ならびに気相レベル： V_G を決定する¹⁸⁾．その液相レベルを0%，気相レベルを100%とし，任意の二点のしきい値： V_{thl} ， V_{thh} を定める．本実験においては， V_{thh} ：80%， V_{thl} ：20%とした．この二点を結ぶ直線を信号の傾きとし，信号の立ち下り時の傾きを g_{rd} とする． g_{rd} は次式により算出される．

$$g_{rd} = \frac{(V_{thh} - V_{thl})}{\Delta t} \cdot \frac{1}{(V_G - V_L)} \quad (7)$$

この表面張力によって変化するメニスカスの成長速度を特徴付ける g_{rd} と表面張力： σ との関係を，種々の既知の表面張力と温度下で求めて整理した後，被測定対象液の温度をパラメータとして，校正曲線を作成する．

4. 結果と考察

Fig. 7に表面張力の違いによる出力信号の変化を示す．表面張力の減少に伴い，出力信号の立ち下り時の傾きが鋭くなっていることが分かる．これは，表面張力の低下に伴い，S-TOPの材質である合成石英の臨界表面張力が表面張力より小さくなるためである．固体と液体間のぬれ性は，固体の臨界表面張力と表面張力の大小関係で決まる．本研究で取得した出力信号は，S-TOPと気液界面の接触で生じる物理現象の変化(すなわち，表面張力の変化によるメニスカス成長速度の変化)を十分に捉えていると考えられる．さらに，Fig. 8に高速ビデオカメラによって可視化された気液界面挙動の相違を，溶液の表面張力をパラメータとして，2 msec毎のスナップショットによって示す．表面張力 $\sigma = 75.7$ mN/m (純水)の場合，S-TOPと気液界面の接触によるメニスカスの成長速度が非常に遅い．次に，表面張力を減少させ $\sigma = 51.1$ mN/m (1-Pentanol濃度4,500 ppm)においては， $\sigma = 75.7$ mN/mと比較してメニスカスの成長速度が増加している． $\sigma = 31.1$ mN/m (1-Pentanol濃度18,000 ppm)の場合，接触開始から4 msec後には，S-TOP端面が液相にはほぼ完全に覆われている．前述したようにS-TOPと気液界面と

の接触過程が表面張力の値に応じて変化する，Fig. 7に見られるように出力の立ち下がり信号の傾きに変化が生じている．

Fig. 9にS-TOPからの出力信号の傾きと表面張力の関係(S-TOPによる表面張力測定における校正曲線)を示す．表面張力の減少に伴い，出力信号の傾きが小さくなっていることが確認できる．特に， $\sigma = 60$ mN/m以下の範囲では表面張力の減少に伴う g_{rd} の変化率が大きく，高精度な計測が可能な範囲である．さらに，Table 2にS-TOPによる表面張力計測における不確かさをとりまとめる．この不確かさは，66 mN/m 付近で最大になっている．この範囲においては，合成石英ファイバの臨界表面張力と液相の表面張力の差が小さいために，メニスカス成長が不安定であるためと考えられる．しかし， g_{rd} の変化が大

Fig. 7 Typical output voltage signals.

Fig. 8 Snapshots of gas-liquid interface behavior. (a) $\sigma = 75.7$ mN/m, (b) $\sigma = 51.1$ mN/m, (c) $\sigma = 31.1$ mN/m.

Fig. 9 Relationship between the g_{rd} of S-TOP signal and surface tension.

Table 2 Uncertainty in surface tension measurement using newly developed S-TOP.

Surface tension [mN/m]	Positive [%]	Negative [%]
75.7	4.2	- 4.5
71.4	7.6	- 7.0
66.1	10.9	- 9.7
57.2	9.0	- 4.8
51.1	5.7	- 6.3
44.2	5.6	- 6.2
39.5	6.0	- 4.0
35.0	5.5	- 3.4
31.1	1.6	- 1.8

きい60 mN/m以下の範囲では、計測の不確かさは減少し、高精度な計測が可能である。また、S-TOPの出力信号の不確かさを表面張力換算で考えた場合、 $\sigma = 35.0$ mN/mで最大となるが、その値は5 %以下となり、本計測手法による表面張力測定の有効性が確認できたと考えられる。

5. 結 言

本研究では、液相表面張力変化に伴うS-TOP(Single-Tip Optical fiber Probe)のぬれ性変化を利用した表面張力計測法を開発した。これにより、S-TOPを用いることで気泡・液滴の径及び速度の計測に加え、工業技術における重要なパラメータとなる表面張力を計測することが可能となった。さらに、従来の光ファイバプローブによる気泡・液滴特性のさらなる高精度計測が期待される。また、表面張力計測における不確かさは、表面張力換算で5 %以内となり、高精度計測が可能であることを確認した。

今後は、更に広範囲の液相表面張力に対応した校正曲線を作成する。また、表面張力が既知の純物質を対象に計測を行い、計測精度のさらなる検証を行う。

参考文献

- 1) A. Cartellier: Rev. Sci. Instrum. **61** (1990) 874.
- 2) A. Cartellier and J. L. Achard: Rev. Sci. Instrum. **62** (1991) 279.
- 3) A. Cartellier: Rev. Sci. Instrum. **63** (1992) 5442.
- 4) A. Cartellier: Nucl. Eng. Design **184** (1998) 393.
- 5) H. Moongeun, A. Cartellier, and J. E. Emil: Int. J. Multiphase Flow **30** (2004) 393.
- 6) 齋藤：光ファイバプローブによる気泡計測方法及び装置 特許番号3018178 (2000)。
- 7) R. F. Mudde and T. Saito: J. Fluid Mech. **437** (2001) 203.
- 8) T. Saito and R. F. Mudde: ICMF'01 (2001).
- 9) T. Saito, Y. Ishigaki, and Y. Mizuno: ICMF'04, Paper No.113 (2004).
- 10) 齋藤，北村，梶島，幡野：日本機化学会論文集中編 **65** (1999) 2619.
- 11) 齋藤，梶島：日本機化学会論文集中編 **68-674** (2002) 2719.
- 12) B. B. Sauer and W. G. Kampert: J. Colloid and Interface Science **199** (1998) 28.
- 13) S. Rebouillat, B. Steffenion, and B. Salvador: Chem. Eng. Sci. **57** (2002) 3953.
- 14) D. Seveno, G. Ogonowski, and J. De Coninck: Langmuir **20** (2004) 8385.
- 15) 齋藤，真田，小澤：界面物性測定装置及び方法 日本国特許 PCT/JP2008/54789.
- 16) 小澤，齋藤他：レーザー学会学術講演会第28回年次大会，予稿集 (2008) 148.
- 17) T. Saito: ICMF'07, Paper No. KN9 (2007).
- 18) 坂本，齋藤他：光ファイバーを利用した屈折率の異なる光透過性流体の混相流動状態の計測方法および装置 特許出願番号2005-037 501 (2005)。