解説

音響キャビテーションの生成と その利用について

Generation of Acoustic Cavitation and Its Application

執筆者プロフィール

三留 秀人
Hideto MITOME

◎1979年名古屋大学大学院博士課程修了後、工業技術院機械技術研究所、1991年同名古屋工業技術研究所
◎研究・専門テーマは、非線形音響、音響放射圧、ソノケミストリー
◎正員、(独)産業技術総合研究所 先進製造プロセス研究部門 研究部門長
(〒463-8560 名古屋市守山区下志段味穴ヶ洞 2266-98 /
E-mail : h.mitome@aist.go.jp)

1. はじめに

液体中に強力な超音波を放射するとキャビテーションが生じ、種々の現象を引き起こす。これらは、眼鏡の洗浄器や超音波ホモジナイザなどへの応用として知られている。この現象は、超音波が粗密波であることにより、液体中に強制的に圧力変動が起き、負圧のときに液体中に存在する気泡核が成長することによるもので、配管内や船のスクリュー近傍で生じるキャビテーションと区別するために、音響キャビテーションと呼ばれる。

液体中に超音波を照射するには大きく分けて図1に示すような2通りの方法がある。(a)は超音波ホモジナイザのように超音波ホーンを液体中に浸すもので、ホーンからは強力な超音波が放射されるが、球面波で拡散するため、遠方では超音波強度は急激に低下する。いっぽう、(b)は超音波洗浄機の場合で、底面から放射される超音波は水面からの反射波とで定在波を形成し、水槽内の広い範囲にキャビテーションを発生させる。このような音響キャビテーションによって生じた気泡は超音波の周期に同期して膨張収縮を繰り返すが、圧縮過程では一気に断熱圧縮が起こるため、気泡内部は数千度から数万度、数百気圧から1000気圧を超える超高温、超高压となり、化学反応場として魅

力的な環境である。

ここでは、局所的にはばく大なエネルギーを持つ音響キャビテーションの生成と、それに作用する音響放射圧や音響流について解説するとともに、この現象を反応場等に積極的に利用する方法について紹介する。

2. 音響放射圧

光が放射圧として力を及ぼすことは、夏目漱石の小説「三四郎」の中にも出てくるのでご存じの方も多いと思うが、同様に、波動現象である超音波によっても物体に力が作用し、音響放射圧と呼ばれる。図1(b)のような定在波音場中では、波長に応じて周期的に音圧の分布が生じ、その中に置かれた微小粒子にはその分布に応じた力が作用する⁽¹⁾。その力は、図2に示すように、重くて堅い微粒子は音圧分布の節に、軽くて軟らかい微粒子は音圧分布の腹に向かう力を受ける。たとえば、食塩水を満たした円筒管内に媒質と同一密度の微小なポリスチレン粒子を懸濁させておき、円筒管の底面から超音波を照射すると、図3のように、定在波の共鳴状態に応じた微粒子の凝集が見られる⁽²⁾。

音響キャビテーションで生じた気泡にはどのような力が作用するのであろうか。気泡は軽くて軟らかいことから、音圧分布の腹に向かいそうであるが、気泡振動は必ずしも駆動超音波とは同相では振動しないため、共振半径より大きな気泡は節に向かう。(図4)しかしながら、これは気泡が微小振動しているときの話であり、実際には超音波の音圧が正弦波的に変動していても、気泡は図5に示すように非線形振動を起こす⁽³⁾。このため、線形振動を前提とした「共振半径」の概念は必ずしも適当ではなくなるが、基本的には大きな気泡は音圧の節へ、小さな気泡は音圧の腹へと向かう。

3. ソノルミネッセンス

超音波音場中での気泡の膨張収縮においては、膨張過程では軽い気体が重い液体を押すためゆっくり膨張するが、

図1 典型的な2種類の超音波照射装置

図2 微粒子に作用する音響放射圧

図3 食塩水中に形成された定在波音場中でのポリスチレン微粒子の凝集

図4 気泡に作用する Bjerknes 力

図5 光散乱法による超音波照射下での気泡半径の変化の実測値 (24.48kHz) ⁽³⁾

圧縮過程では重い液体が軽い気体を圧縮するため、断熱的に急激に圧縮が起き、気泡内は高温高压となり発光（ソルミネッセンス）が観察される。底面に超音波振動子を設置し、液体を満たした矩形容器内には図6の(a)のような定在波音場が形成されていることがシュリーレン法により光学的に示されるが、このとき中の液体がルミノール水溶液であると、(b)のような、定在波により形成される音圧分布の縞状構造に対応した発光が観察される。これは発光を生じるような微小気泡が音圧の節の位置に集まっていることを示している⁽⁴⁾。

図6 シュリーレン法による超音波反応場の音圧分布とソルミネッセンスの発光分布 (ルミノール水溶液, 140kHz)

このときの気泡内がどうなっているかは興味あるところであるが、このような多数の気泡が存在するのではなく、1個の気泡のみを定在波音場でとらえ、超音波で励振させ発光させることに成功してから、理論解析も急速に発展した。単一気泡の発光についての報告は1962年の日本音響学会での吉岡らの報告が最初であったが、長く日の目を見ず、1990年ころのアメリカでのCrumやPutterman等のグループでの研究を契機に大きな注目を集めるようになった⁽¹⁾。数値シミュレーション結果によれば、発光は気泡内の状態に大きく依存している。図6はルミノール水溶液

図7 アンプ入力電圧に伴う振動子入力パワーと発光強度の変化 (132.2 kHz)⁽⁶⁾

の場合であるが、蒸留水であっても発光は観察される。しかしながら、発光のメカニズムは大きく異なる。すなわち、蒸留水の場合、気泡内部にある水蒸気が高温高压でプラズマ状態となり、電子の制動放射によって発光するプラズマ発光が主体となり、気泡内部で発光する。いっぽう、ルミノール水溶液の場合、水蒸気の分解によって生成されたOHラジカルが気泡外壁の液体にとけ込み、それによってルミノールの酸化反応が進むことによる化学発光で、気泡の周辺の液体が発光する。

4. ソノプロセスへの応用

ソノルミネッセンスを生じさせるような、マイクロではあるが超高温・超高压を常温・常圧下で容易に生じさせることができる音響キャビテーションは新たな反応場を提供するものとして注目を集めており、「ソノプロセス」という新しい領域を開拓しつつある。冒頭の図1で示したものは、どちらも液中に強力な超音波を放射し、そこで生じるキャビテーションを利用するものであるが、(a)は進行波音場であり、気泡挙動に起因する化学反応に有効な領域は超音波ホーン直下の狭い領域に限定されるが、気泡の圧壊時に生じる衝撃波による機械的な作用も期待される。いっぽう、(b)はこれまで述べてきた定在波音場を形成するもので、容器内の範囲を化学反応場として利用できる⁽⁵⁾。

では、ラジカルの生成量を増やすなど、化学反応の効率を増大させるには、超音波が強ければ強いほどよいのであろうか。図7はパワーアンプへの入力パワーとルミノール水溶液からのソノケミカル発光の強度を比較したものである。入力パワーの上昇とともに発光強度は増大するものの、ある点を境に、発光強度は急激に低下する⁽⁶⁾。このときのキャビテーションによる気泡の挙動を観察していると、発光が強い間は気泡は白い霧のように見えるが、発光が低下の後には、気泡が凝集しクラスタを形成している。

このような気泡の凝集の形成は、Bjerknes力によって説明される。音場中に置かれた物体に作用する力は、前述のように、音響放射圧あるいはそれを物体表面上で積分した音響放射力と呼ばれるが、気泡の場合は超音波による圧力

図8 Bjerknes力による気泡の合体と気泡の移動⁽⁸⁾

変動により顕著な膨張収縮を繰り返す、このようなケースは、とくにBjerknes力と呼ばれ、場の圧力勾配と体積の積の時間平均で表される。定在波音場中でのマクロな場である音圧分布によって気泡が受ける力は、プライマリ・ビヤークネス力であるが、気泡振動によってそこから超音波が再放射されそれによる音場で他の気泡が力を受け、これをセカンダリ・ビヤークネス力として区別する。この二次的な力は気泡の近傍でしか作用せず、さらに、気泡が同相で振動する時は引力として、逆相で振動するときは斥力として作用する。超音波の発光に寄与するような、共振半径より小さな気泡は基本的に同相で振動していると考えられることから、ある気泡の近くに他の気泡があったとすると引力が作用し、このメカニズムで気泡のクラスタが形成されていく。このようなクラスタが形成されると媒質である液体と気泡群の音響インピーダンスの差によりシールディング効果が生じ、超音波はクラスタの内部には入り込むことができなくなる⁽⁷⁾。さらに、図8に示すように、大きくなったクラスタは内部で気泡が合体し、超音波による圧力変動が最も大きな音圧の腹の位置からはじかれることになり、発光強度は減少、すなわちソノプロセスの効率は低下していくことになる⁽⁸⁾。

この説明の妥当性は、超音波の場に強制的に循環ポンプ等で流動を与え、二次的なBjerknes力より大きな力で気泡クラスタの形成を阻害してやれば検証することができる。図9は反応槽内にポンプで流動を起こしたときのソノルミネッセンスの発光強度の違いを示したものである⁽⁹⁾。周波数が44.1kHzの場合は、予想どおり、流動で気泡のクラスタ化を阻害すると発光強度が大幅に上昇し、反応場として高効率化ができていたことがわかる。しかしながら、周波数が高い98.3kHzの場合は、流動の影響は全く反対に生じている。このことは反応に寄与する気泡の大きさに関係していることを示している。すなわち、超音波強度がほぼ同一でも、周波数が高いと1周期の時間が短く、気泡はその間に十分に大きく膨張しないため、圧縮過程で大きな圧縮比が得られず、気泡内温度はラジカルが形成されるほどには十分には高温にならないが、流動でクラスタ化が阻害されなければ気泡は合体し大きくなるので高い周波数で

図9 流動の有無によるソノルミネッセンス発光強度の変化

図10 薄膜を介して発生する音響流 (5MHz)

も発光する。しかし、このような気泡の成長が不十分の場合に流動を与えると、クラスタ化せずに元の個々の気泡に散らばるため、発光強度は逆に低下すると考えることができる。超音波をソノプロセスとして化学反応を実際に行うときは、反応槽の中をかくはんしたり、流通式にすることが考えられる。しかし、今述べたように、流動の存在は気泡の挙動に大きな影響を及ぼすことになる、たとえ超音波の強度が同一であっても、そこで生じる反応には大きな違いが生じる。このことはソノプロセスに最適な周波数や超音波強度は、使用する装置に依存することを意味し、反応や効率の比較をするときに十分な注意が必要であることを意味している。

さらには、超音波は「物体」だけではなく伝搬経路で吸収減衰があると「伝搬媒体」にも力を及ぼし、音響流（アコースティックストリーミング）を発生させることが知られている。この現象は超音波が伝搬しさえすればいいので、図10に示すように、薄膜を介しても音響流は発生するので⁽¹⁰⁾、この現象を非接触かく拌機構としても利用可能であると同時に、ソノプロセスには大きな影響を及ぼす。

5. おわりに

本稿では、液体中に強力な超音波を放射したときのキャビテーション現象と、それによって生じる発光（ソノルミネッセンス）や反応場の特徴について論じた。反応場への超音波利用は古くから試みられてきたが、これまで化学系の研究者と超音波工学の電気系あるいは物理系の研究者とのコミュニケーションは十分ではなかった。現象はそれにとどまらず、流体力学を初めとする機械工学系の研究者からの知見を必要としている。ソノプロセスは常温・常圧下

で超臨界等の超高温・超高压の反応場をいとも簡単に生じさせることが可能である。省資源、省エネルギーが声高に叫ばれている今日、地球規模での持続的発展が可能で強力な産業を育成していくうえでも、古い超音波の新しい発展に機械工学の研究者の方々の寄与を心から期待したい。

(原稿受付 2007年12月5日)

●文 献

- (1) Mitome, H., Micro Bubble and Sonoluminescence, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**-5B (2001), 3484-3487.
- (2) 三留秀人, 超音波浮揚とアコースティック・ストリーミングー強力超音波による定在波音場についてー, 電子情報通信学会技術研究報告, **87**-410 (1988), 39-46.
- (3) Kozuka, T., Hatanaka, S., Yasui, K., Tuziuti, T. and Mitome, H., Simultaneous Observation of Motion and Size of a Sonoluminescing Bubble, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41**-5B (2002), 3248-3249.
- (4) Hatanaka, S., Mitome, H., Tuziuti, T., Kozuka, T., Kuwabara, M. and Asai, S., Relationship Between a Standing-Wave Field and a Sonoluminescing Field, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**-5B (1999), 3053-3057.
- (5) Mitome, H., Hatanaka, S. and Tuziuti, T., Observation of Spatial Nonuniformity in a Sonochemical Reaction Field, *Nonlinear Acoustics at the Turn of the Millennium: ISNA 15*, (2000), 473-476.
- (6) Hatanaka, S., Yasui, K., Kozuka, T., Tuziuti, T. and Mitome, H., Influence of Bubble Clustering on Multibubble Sonoluminescence, *Ultrasonics*, **40**-1-8 (2002), 655-660.
- (7) Leighton, T. G., *The Acoustic Bubble*, (1994), 521, Academic Press.
- (8) Hatanaka, S., Yasui, K., Tuziuti, T., Kozuka, T. and Mitome, H., Quenching Mechanism of Multibubble Sonoluminescence at Excessive Sound Pressure, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**-5B (2001), 3856-3860.
- (9) Mitome, H., Relationship among Sound Field, Bubble Behavior and Sonoluminescence, *Proc. World Congress on Ultrasonics 2003*, (2003-9), 585-589.
- (10) Mitome, H., Study of the Generation Mechanism of an Acoustic Jet Through Visualization Experiments, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**-Suppl. 30-1 (1991), 60-62.