超音波音場における微小気泡の成長* (2周波数重畳法による Rectified Diffusion の増強効果)

吉澤 晋^{*1}, 高木 周^{*2}, 松本 洋一郎^{*3}

Growth of an Oscillating Microbubble in an Ultrasound Field (Enhancement of Rectified Diffusion with a Dual-Frequency Excitation Method)

Shin YOSHIZAWA^{*4}, Shu TAKAGI and Yoichiro MATSUMOTO

^{*4} Department of Electrical and Communication Engineering, Tohoku University,
6-6-05 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi, 980-8579 Japan

Acoustic cavitation has an important role in ultrasound applications, such as HIFU (High Intensity Focused Ultrasound) therapy. Control of the growth of the cavitation bubbles is one of the important factors to control the effects of the cavitating bubbles. Several researchers have shown that a dual-frequency excitation method can enhance the growth of the bubbles due to rectified diffusion and consequently enhances the effects of the cavitation. In this study, the growth of an oscillating bubble in an ultrasound field due to the rectified diffusion is numerically investigated. In the model, we consider the compressibility of the surrounding liquid, mist generation inside the bubble, and the heat and mass transfer through the bubble interface. Mass transfer is calculated by solving the gas diffusion equation in liquid phase with the boundary condition at the bubble interface. The results reveal that the dual-frequency excitation method can enhance the rectified diffusion in certain cases and it can be useful to control the growth of the cavitating bubbles.

Key Words: Micro-Bubble, Bubble, Rectified Diffusion, Medical Ultrasound, Cavitation

1. 結 論

気泡が振動すると、収縮時には、気泡内の不凝縮ガスの分圧が高いために気泡内の不凝縮ガスは周囲の液体に溶解し、膨張時には、気泡内の不凝縮ガスの分圧が低いために周囲の液体に溶解している不凝縮ガスが気泡内へ拡散する。この振動気泡における不凝縮ガスの出入りは、時間積分をすると気泡の溶解を妨げる方向にはたらく。これは rectified diffusion と呼ばれる。近年、超音波キャビテーションや微小気泡の活用が産業・環境・医療などの分野で進められており、気泡の生成から消滅に至る過程を制御する技術が注目されている。rectified diffusion は気泡の成長および溶解に深く関わるため、超音波音場における rectified diffusion を解析することは重要である。

この rectified diffusion については従来から多くの研究が行われてきた^{(1)~(7)}。Eller らは液相での不凝縮ガスの拡散方程式の近似解を求め、気泡内気体が等温変化するという仮定の下で気泡内不凝縮ガスのモル数の変化についての式を導き、気泡半径変化の数値解を用いて rectified diffusion の効果によって気泡の溶解速度がゼロになる変動圧力振幅 (rectified diffusion の閾値) について調べている⁽¹⁾。また、その後 Eller は気泡内不凝縮ガスのモル数について、等温変化の仮定を入れない形式に一般化し、気泡内気体が等温変化をする場合と断熱変化をする場合の違いについて調べている⁽²⁾。Crum は、Eller の式における気泡半径および不凝縮ガス圧力を解析的に求めて得られた rectified diffusion の閾値と、気泡半径、圧力振幅、表面張力をパラメータとして行った実験結果を比較している⁽³⁾。また、その後 Crum らは気泡振動の減衰の項を考慮して、より一般化した式を提案し、従来の式によって得られる rectified diffusion の閾値と比較している⁽⁴⁾。Church は、気泡の運動方程式として液の圧縮性が考慮された式を数値的に解き、Eller らによる式⁽¹⁾を用いて rectified diffusion の数値計算を行い、気泡の成長速度などを求

* 原稿受付 2008年6月20日。

^{*1} 正員、東北大学大学院工学研究科(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉6-6-05)。

^{*2} 正員、(独)理化学研究所(〒351-0198 和光市広沢2-1)。

^{*3} 正員、フェロー、東京大学大学院工学系研究科(〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1)。

E-mail: syoshi@ecei.tohoku.ac.jp

めている⁽⁹⁾。Yang らは、Fyrrillas らによる式⁽⁶⁾を用いて振動気泡の成長を計算している。また、rectified diffusion の閾値と気泡の界面不安定の閾値を数値計算によって算出し、超音波照射中において安定的に存在できる気泡半径を様々な粘性係数の下で求めている⁽⁷⁾。

さらに近年では、こうした rectified diffusion の効果を超音波医療に結びつけた研究も行われている。強力集束超音波 (HIFU: High Intensity Focused Ultrasound) による治療では、体外で発生させた超音波を体内患部に集束させ、その高エネルギーを利用して切開することなく治療することができる。しかし、焦点での圧力振幅は数 MPa にも達して音響キャビテーションが発生するため、高精度で効率の良い治療を行うためには、これを制御することが必要不可欠である。Umemura らは、異なる 2 種類の周波数を重畳した超音波による音響化学活性効果の増強効果を研究している⁽⁸⁾⁽⁹⁾。そこでは、周波数を重畳することによって、特にそれぞれの周波数成分の負圧部分の位相を合わせることで、rectified diffusion による気泡成長が促進され、キャビテーションによる効果が高まるとしている。Sokka らは、超音波治療におけるキャビテーションの領域を制御することを目的として、この周波数重畳法を用いている⁽¹⁰⁾。そこでは、集束超音波の波形が焦点付近で大きく変化することに着目し、焦点付近で rectified diffusion の閾値を下げる波形を数値計算によって求め、超音波画像診断で用いられている微小気泡造影剤を気泡核として導入した実験によってその効果を検証している。

本研究では、この周波数重畳法に着目する。Sokka らはいくつかの大きさの気泡について、重畳する 2 種類の周波数成分の位相差と rectified diffusion の閾値の関係について詳しく調べている⁽¹⁰⁾。気泡の体積振動の振動振幅は共振などの影響によってわずかな条件の違いでも大きく影響するため、本稿では、いくつかの圧力波形および圧力振幅において、様々な初期半径をもつ気泡について rectified diffusion による気泡の成長を調べる。rectified diffusion を詳細に解析するためには、気泡の半径変化や気泡界面の不凝縮ガスの分圧などを正確に求める必要があり、そのため本稿では気泡界面における熱・物質輸送を詳細に取り扱うモデルを用いて数値計算を行う。

2. 気泡モデル

振動気泡の解析にあたっては、気泡内気体の状態変化に対し、ポリトロプ変化を仮定した解析も多いが、気泡の挙動には熱・物質輸送現象が大きく影響することがわかっている⁽¹¹⁾。したがって、これらの物理現

象に関する支配方程式を直接解くことが望ましく、実際にそのような数値計算も行われている⁽¹²⁾。しかしながら、そのような直接解法では、様々な計算条件や長い時間スケールでの変化などを計算するには、未だに計算負荷が高いのが現状である。そのため、実際の微小気泡振動の解析手法としては、気泡内部の物理量を一様と仮定、もしくは平均値で代表させて簡略化した球形気泡モデルが用いられることが多い。本稿では、微小気泡の rectified diffusion を解析するにあたり、液の圧縮性、気泡界面における熱・物質輸送、相変化、蒸気と不凝縮ガスの相互拡散、蒸気成分からのミスト生成を考慮した松本らによる球形気泡モデル⁽¹¹⁾を用い、そのモデルにおける気泡内の界面近傍の温度勾配を杉山らのモデル⁽¹³⁾によって評価する。

本モデルの詳細についてはそれぞれの文献にゆずり、ここではその概要のみを示すこととする。気泡界面の運動方程式は、気泡周囲の液の圧縮性、気泡界面における物質輸送を考慮した以下に示す Fujikawa & Akamatsu の式⁽¹⁴⁾を用いている。

$$R\ddot{R}\left(1-2\frac{\dot{R}}{c}+\frac{\dot{m}}{\rho_l c}\right)+\frac{3}{2}\dot{R}^2\left(1+\frac{4}{3}\frac{\dot{m}}{\rho_l c}-\frac{4}{3}\frac{\dot{R}}{c}\right)-\frac{\dot{m}R}{\rho_l}\left(1-2\frac{\dot{R}}{c}+\frac{\dot{m}}{\rho_l c}\right)-\frac{\dot{m}}{\rho_l}\left(\dot{R}+\frac{\dot{m}}{2\rho_l}\right) \quad (1)$$

$$+\frac{p_\infty-p_{l,r=R}}{\rho_l}-\frac{R\dot{p}_{l,r=R}}{\rho_l c}=0$$

$$p_{l,r=R}=p_v+p_g-\frac{\dot{m}^2(\rho_{vi}+\rho_{gi}-\rho_l)}{\rho_l(\rho_{vi}+\rho_{gi})}-2\frac{\sigma}{R}-4\frac{\mu_l}{R}\left(\dot{R}-\frac{\dot{m}}{\rho_l}\right) \quad (2)$$

ここで、 R : 気泡半径、 c : 液相の音速、 $\dot{m}$: 気泡界面での質量流束、 ρ_l : 液相密度、 p_∞ : 無限遠方圧力、 ρ_{vi} , ρ_{gi} : 蒸気、不凝縮ガスの気泡界面での密度、 σ : 表面張力、 μ_l : 液相の粘性係数であり、またドットは時間微分を表す。また、気泡内部については、均一核生成による凝縮液滴に関する式と、以下に示す気泡界面の熱・物質輸送を考慮した気泡内混合物に対するエネルギー保存式を解いている。

$$\begin{aligned} & \left(C_{vg}M_g+C_{vv}M_v+C_{vl}M_l\right)\frac{d\bar{T}}{dt}-\frac{p_gM_g}{\rho_g^2}\frac{d\rho_g}{dt} \\ & -\frac{p_vM_v}{\rho_v^2}\frac{d\rho_v}{dt}-L\frac{dM_c}{dt}-S\lambda\left.\frac{\partial T}{\partial r}\right|_{r=R}+\Delta h_g\frac{dM_g}{dt} \\ & +\Delta h_v\left(\frac{dM_v}{dt}+\frac{dM_c}{dt}\right)+\Delta h_l\frac{dM_l}{dt}=0 \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、 C_v : 定積比熱、 $\bar{T}$: 気泡内平均温度、 p : 圧力、 M : 質量、 L : 液の潜熱、 S : 気泡の表面積、 λ : 熱

伝導率, Δh : 気泡界面でのエンタルピーの差であり, 添え字 g は不凝縮ガス, v は蒸気, c はミストを示している. 式中の気泡界面における熱伝導は, 気泡界面近傍の温度勾配を杉山らのモデル⁽¹³⁾ によって評価している. さらに, 液相部分については, 以下に示す液相でのエネルギー方程式, 液中での不凝縮ガスの拡散方程式を解いている.

$$\frac{\partial T}{\partial t} + u_l \frac{\partial T}{\partial r} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\lambda_l}{\rho_l C_l} \frac{\partial T}{\partial r} \right) \quad (4)$$

$$\frac{\partial c_{gl}}{\partial t} + u_l \frac{\partial c_{gl}}{\partial r} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 D_{gl} \frac{\partial c_{gl}}{\partial r} \right) \quad (5)$$

ここで, u_l : 液相速度, r : 半径方向座標, λ_l : 液相の熱伝導率, C_l : 液相の比熱, c_{gl} : 液相中の不凝縮ガス濃度, D_{gl} : 液相中の不凝縮ガスの拡散係数である.

3. 気泡モデルの検証

最初に, 竹村らによる直接数値計算⁽¹²⁾コードの計算結果との比較によって, 本気泡モデルの検証を行う.

計算条件を表 1 に示す. 気泡の初期半径は $1 \mu\text{m}$ または $10 \mu\text{m}$ とした. これらの気泡に対して圧力をステップ状に下げ, 気泡が収縮を始めた瞬間に圧力をステップ状に初期値に戻したときの半径変化を比較した. 圧力変化は, $100 \text{ kPa} \rightarrow 90 \text{ kPa} \rightarrow 100 \text{ kPa}$ と $100 \text{ kPa} \rightarrow 10 \text{ kPa} \rightarrow 100 \text{ kPa}$ の 2 通りとした. 結果を図 1~図 4 に示す. 縦軸はそれぞれの気泡の初期半径で無次元化している. 点線が直接数値計算結果を, 実線が本モデルによる計算結果を示している. いずれのケースにおいても両計算結果が良く一致していることがわかる.

Table 1 Computational conditions

Non-condensable gas	Air
Liquid	Water
Initial gas concentration	100 % @ 100 kPa
Initial bubble radius, R_0	$1 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$
Initial ambient pressure	100 kPa
Initial temperature	293.15 K
Pressure fluctuation	Stepwise

Fig. 1 Time history of bubble radius
($R_0: 1 \mu\text{m}, p_{\infty}: 100 \text{ kPa} \rightarrow 90 \text{ kPa} \rightarrow 100 \text{ kPa}$)

Fig. 2 Time history of bubble radius
($R_0: 1 \mu\text{m}, p_{\infty}: 100 \text{ kPa} \rightarrow 10 \text{ kPa} \rightarrow 100 \text{ kPa}$)

Fig. 3 Time history of bubble radius
($R_0: 10 \mu\text{m}, p_{\infty}: 100 \text{ kPa} \rightarrow 90 \text{ kPa} \rightarrow 100 \text{ kPa}$)

Fig. 4 Time history of bubble radius
($R_0: 10 \mu\text{m}, p_{\infty}: 100 \text{ kPa} \rightarrow 10 \text{ kPa} \rightarrow 100 \text{ kPa}$)

次に, 強制振動における rectified diffusion の効果について, 同様にして直接数値計算結果と比較を行う. 計算条件を表 2 に示す. 気泡に与える圧力変動は周波数 2 MHz , 圧力振幅 150 kPa の正弦波とした. 気泡が激しく振動する条件で比較を行うため, 気泡の初期半径をこの条件における共振半径である $1.4 \mu\text{m}$ とした. これに対して圧力変動を $5 \mu\text{s}$ にわたって与え, その後初期圧力を保った状態でさらに $5 \mu\text{s}$ の計算を行った. それ以外の条件は表 1 と同一である. 気泡半径と気泡内不凝縮ガス質量の変化量の時間履歴を図 5 に示す. 気泡内不凝縮ガス質量は初期質量で無次元化している. 気泡内部の不凝縮ガス質量は, 気泡が膨張, 収縮によって増減を繰り返しながら徐々に増加している. さらに詳しく見ると, 気泡の収縮時には気泡が急激に収縮して気泡内圧力が増加するために, 不凝縮ガスの質量が急激に低下する. しかし, リバウンド後のわずかな時間に不凝縮ガスの質量は急回復し, ほぼ収縮前の値

まで戻る。その後、気泡半径が最大になるまで不凝縮ガスの質量は増加し続け、気泡が収縮を始めても、不凝縮ガスの輸送が時間遅れをもっているためにしばらくは不凝縮ガスの質量は増加し続ける。結果としてこの間に蓄積された分だけ 1 周期の振動の間に不凝縮ガスの質量が増加することになる。この計算においても両計算結果は良い一致が得られている。

Table 2 Computational conditions

Initial bubble radius, R_0	1.4 μm
Pressure fluctuation	Sinusoidal wave
Frequency of the pressure fluctuation	2 MHz
Amplitude of the pressure fluctuation	150 kPa
Duration time of the pressure fluctuation	5 μs (10 cycles)

Fig. 5 Time history of bubble radius and mass of non-condensable gas inside the bubble (R_0 : 1.4 μm , Δp : 150 kPa)

次に、図5に示した条件における液相中の不凝縮ガス濃度分布の時間履歴を図6に示す。ここでは、本モデルを用いた数値計算結果のみを示している。時間は4.08 μs から4.53 μs までであり、時間間隔は気泡が小さいときほど短くなっている。図(a), (b)ともに上側の図は気泡の収縮過程を示しており、下側の図は気泡の膨張過程を示している。図の横軸は、図(a)では気泡界面が0、無限遠方が1となるように半径方向座標の逆数をとっている。図(b)では気泡半径で無次元化された半径方向座標をとり、気泡界面近傍を拡大して液相中のガス濃度を示している。

気泡の収縮過程では、最初は気泡界面近傍のガス濃度が低く、液相から気泡内部に不凝縮ガスが輸送される。そして気泡の収縮に伴って気泡内部の不凝縮ガスの分圧が高くなり、気泡内部から液相にガスが溶け出していく。膨張過程では、今度は収縮時に気泡界面近傍にできたガス濃度の高い領域に近づく方向に気泡界面が移動し、収縮過程に溶け出したガスを気泡内に取

り込みながら膨張していくことになる。このとき、図(b)の拡大図を見ると、気泡界面のごく近傍のみで濃度勾配が逆転している。これは、膨張とともに気泡界面での液相中のガス濃度が急激に低下したためである。これによって気泡界面近傍で大きな濃度勾配が生じ、液相中から気泡内へのガス輸送が大きくなっている。結果として収縮過程に溶け出したガスを急速に気泡内に取り込み、リバウンド後のわずかな時間に気泡内部の不凝縮ガスの質量が収縮前とほぼ同じ値にまで回復することになる。そして、その後の膨張過程だけでなく収縮過程の初期においても、周囲のガス濃度は気泡界面の液相中のガス濃度よりも高い値を保持し、位相遅れをもって液相中の溶存不凝縮ガスが気泡内部に輸送され続ける。そのため、全体として気泡内部の不凝縮ガスの質量が増加することになる。本モデルでは、液相中での不凝縮ガスの拡散方程式に関しては直接数値計算と同様に解いているため、このような一連の過程を解析することが可能である。

Fig. 6 Non-condensable gas concentration distribution in the liquid from 4.08 μs to 4.30 μs for the compression phase and from 4.30 μs to 4.53 μs for the expansion phase (R_0 : 1.4 μm , Δp : 150 kPa)

- (a) The distribution from the bubble interface to infinity
(b) The distribution near the bubble interface

4. 単一周波数の圧力変動による rectified diffusion

ここからは、様々な大きさの気泡について rectified diffusion による気泡内不凝縮ガスの質量の変化を調べる。はじめに単一周波数の圧力変動下での計算を行う。計算条件を表3に示す。初期気泡半径は $0.2\ \mu\text{m}$ から $5\ \mu\text{m}$ とし、 $0.2\ \mu\text{m}$ から $2\ \mu\text{m}$ までは $0.02\ \mu\text{m}$ ごと、 $2\ \mu\text{m}$ から $3\ \mu\text{m}$ までは $0.05\ \mu\text{m}$ ごと、 $3\ \mu\text{m}$ から $4\ \mu\text{m}$ までは $0.1\ \mu\text{m}$ ごと、 $4\ \mu\text{m}$ から $5\ \mu\text{m}$ までは $0.2\ \mu\text{m}$ ごとに变化させた。圧力変動は、超音波治療で一般的に用いられる周波数領域を考慮して $1\ \text{MHz}$ もしくは $2\ \text{MHz}$ の正弦波とした。圧力振幅は $50\ \text{kPa}$ から $300\ \text{kPa}$ までとした。rectified diffusion については、圧力変動を $20\ \mu\text{s}$ 与えた後、さらに $5\ \mu\text{s}$ の間初期圧力で保って振動を緩和させ、 $t = 25\ \mu\text{s}$ のときの気泡内不凝縮ガスの質量の変化を調べた。

周波数が $1\ \text{MHz}$ のときの結果を図7に、 $2\ \text{MHz}$ の時の結果を図8に示す。図の横軸は対数で表示した初期気泡半径であり、それぞれの上側の図は初期半径で無次元化された最大気泡半径を、下側の図は初期質量で無次元化された $25\ \mu\text{s}$ 後の気泡内不凝縮ガスの質量変化を表している。Eller らによる球形気泡振動における気泡内不凝縮ガスの変化量の近似解⁽¹⁾では無次元気泡半径の1乗および4乗の時間平均の関数となっていることなどからもわかるように、最大気泡半径と不凝縮ガス質量の変化量については高い相関がある。結果を見てみると、圧力振幅の増大によって、圧力振幅が $50\ \text{kPa}$ のときの共振気泡よりもはるかに微小な気泡の最大気泡半径と不凝縮ガス質量の増加量が大きく増加している。この傾向は、周波数の低い $1\ \text{MHz}$ の結果においてより顕著に表れている。このような半径 $1\ \mu\text{m}$ を下回る微小な気泡は、超音波医療の微小気泡造影剤に最初から含まれていたり、またそれよりも大きい気泡が分裂して発生したりする⁽¹⁵⁾。そのため、超音波治療ではそのような微小な気泡の影響も考慮されるべきであると考えられる。また、気泡内不凝縮ガス質量は、周波数 $1\ \text{MHz}$ 、圧力振幅 $300\ \text{kPa}$ 、初期気泡半径 $0.48\ \mu\text{m}$ の気泡において 11.7% 増加している。本計算では $20\ \mu\text{s}$ 間の強制振動における気泡内不凝縮ガス質量の増加を求めているが、超音波治療では秒オーダの超音波照射が行われる。したがって、rectified diffusion による気泡成長は、超音波治療中のキャビテーションの制御において大きな影響を持っていると言える。なお、照射時間だけでなく圧力振幅についても実際の超音波治療との差異があると考えられるが、超音波の集束過程における体組織の吸収やキャビテーション気泡による散

逸・反射などによって大きく変動するため、一般的に比較することは難しい。

Table 3 Computational conditions

Initial bubble radius, R_0	$0.2 \sim 5\ \mu\text{m}$
Pressure fluctuation	Sinusoidal wave
Frequency of the pressure fluctuation	$1\ \text{MHz}, 2\ \text{MHz}$
Amplitude of the pressure fluctuation	$50 \sim 300\ \text{kPa}$
Duration time of the pressure fluctuation	$20\ \mu\text{s}$

Fig. 7 Maximum bubble radius and non-condensable gas mass difference inside the bubble after $20\ \mu\text{s}$ of pressure fluctuation at a frequency of $1\ \text{MHz}$

Fig. 8 Maximum bubble radius and non-condensable gas mass difference inside the bubble after $20\ \mu\text{s}$ of pressure fluctuation at a frequency of $2\ \text{MHz}$

5. 2周波数重畳法による rectified diffusion

前節の数値計算結果より、周波数を低くして圧力振幅を大きくすれば、非常に微小な気泡も含めて rectified diffusion による成長を促進させられることがわかった。しかし、実際の超音波治療を考えた場合、低い周波数と大きな圧力振幅は体組織への侵襲性とのトレード・オフとなる。したがって、周波数を低くしたり、圧力振幅を高くしたりせずとも、rectified diffusion による成長を促進させ、音響キャビテーションの崩壊圧やそこでの発熱などを効果的に制御できる手法があれば、超音波治療のみならず様々な超音波アプリケーションで有効な手法となる。そのような手法として研究されているものとして周波数重畳法がある。ここでは、2種類の周波数を重畳させた波形を用い、その波形の違いによる rectified diffusion への影響を調べる。2周波数重畳波形は以下の式によって与えた。

$$p_{\infty} = A_1 \sin(2\pi f_1 t) + A_2 \sin(2\pi f_2 t - \phi) + p_0 \quad (6)$$

ここで、 f_1 , f_2 はそれぞれの周波数、 A_1 , A_2 はそれぞれの周波数成分の圧力振幅、 ϕ は2種類の周波数成分の音波の位相差である。今回の計算では、 $f_1 = 1$ MHz, $f_2 = 2$ MHz, $A_1 = A_2 = 100$ kPa, $\phi = 0, \pi/2, \pi, 3\pi/2$ とした。図9にそれぞれの位相差の波形を示す。位相差が $\pi/2$ のときには1 MHz の超音波と2 MHz の超音波の正圧ピークが重なって強め合うが、負圧ピークに関しては1 MHz の負圧ピークに対して2 MHz の正圧ピークが重なって打ち消し合う。反対に、位相差が $3\pi/2$ のときには、負圧ピークが重なって強め合う。なお、用いた波形以外の計算条件は前節と同様である。

これらの波形を与えたときの最大気泡半径と気泡内不凝縮ガスの質量変化を図10に示す。無次元最大気泡半径では、初期半径 $2.5\mu\text{m}$ 前後に1 MHz の成分の共振によると考えられるピークが、初期半径 $1.4\mu\text{m}$ 前後に2 MHz の成分の共振によると考えられるピークが見られる。位相差 $3\pi/2$ のときにピークを示している、初期半径 $1.34\mu\text{m}$ および $2.6\mu\text{m}$ の気泡の気泡半径および不凝縮ガス質量の時間履歴を図11に示す。初期半径 $1.34\mu\text{m}$ の場合、圧力変動に追従して振動し、強め合った負圧ピークによって最大気泡半径が大きくなり、不凝縮ガス質量が増加していることがわかる。一方、初期半径 $2.6\mu\text{m}$ の場合、気泡は主として1 MHz の周期で振動している。これは、初期半径 $2.6\mu\text{m}$ の気泡の固有振動数が2 MHz よりも低く、2 MHz の圧力変動には十分に追従できないためである。

ここでもう一度図10を見てみると、最大気泡半径についても不凝縮ガスの質量増加についても、初期半径が $2\mu\text{m}$ 程度以下であれば圧力波形の負圧ピークの大きさと強い相関があり、位相差 $3\pi/2$ のときの結果が最も大きい値を示している。しかし、それ以上大きい気泡に対しては負圧ピークの大きさと相関は見られず、波形による結果の違いもそれほど大きくはない。それでもわずかに大きい気泡において波形の違いによる結果の違いが存在するのは、収縮時には気泡の共振周波数が上昇して2 MHz の圧力変動成分の影響を受けるためであると考えられる。したがって、結果は気泡の収縮時が2 MHz の圧力変動成分のどの位相に相当するかによって影響され、負圧ピークの大きさと相関は必ずしも見られないということになる。また、2 MHz の圧力変動成分の主たる影響が気泡の収縮時に限定されるために位相差による結果の違いがそれほど大きくなっていないと考えられる。

Fig. 9 Pressure fluctuation waveform for dual-frequency excitation method

Fig. 10 Maximum bubble radius and non-condensable gas mass difference inside the bubble after 20 μs of dual-frequency pressure fluctuation

Fig. 11 Time history of the pressure fluctuation, bubble radius, and non-condensable gas mass inside the bubble

最後に単一周波数の圧力変動による結果と、2周波数重畳波形による結果の比較を図12, 13, 14に示す。2周波数重畳波形はそれぞれの成分の圧力振幅が100 kPa、位相差 $3\pi/2$ であり、単一周波数の波形の周波数は1 MHzまたは2 MHzである。図12は単一周波数波形の圧力振幅が100 kPaのときの比較結果である。初期半径 $2.5\mu\text{m}$ 前後のピークは、2周波数重畳波形の結果と1 MHzの結果でほとんど差異はなく、やはり2 MHzの成分がほとんど寄与していないことがわかる。一方で、それよりも小さい気泡に対しては2周波数重畳波形の結果が最も大きい値を示しており、2 MHzの成分が寄与していることがわかる。単一周波数波形の圧力振幅を141 kPaにしたときの結果を示したものが図13である。このケースでは、単一周波数波形と2周波数重畳波形の圧力波のエネルギーが等しくなっている。結果を見ると、1 MHzの圧力変動の共振に起因するピークについては、1 MHzの単一周波数の結果が最も大きい値を示しているが、2 MHzの圧力変動の共振に起因するピークについては、2周波数重畳波形の不凝縮ガス質量の結果と2 MHzの単一周波数の結果がほぼ等しく、さらに小さい半径 $1\mu\text{m}$ 程度以下の気泡に対しては2周波数重畳波形の結果が最も大きい値を示しており、2周波数重畳波形の大きい負圧ピークの効果が見られている。さらに単一周波数波形の圧力振幅を増加させ、200 kPaのときの結果を比較したものが図14である。このケースでは、全ての波形が同じ負圧ピークを持つ。このような比較では、2周波数重畳波形

の結果が最も高い値を示す領域がほとんど見られなくなる。すなわち、2周波数重畳波形によって rectified diffusion による気泡の成長を促進させる場合、それぞれの成分の負圧ピークが重なって強め合った波形がそれぞれの周波数成分による単一周波数の波形に対して常に効果的に作用すると言えるのは、圧力波のエネルギーを基準に比較した場合で、かつ高い方の周波数よりも高い固有振動数を持つ気泡に対してであると言える。

Fig. 12 Maximum bubble radius and non-condensable gas mass difference inside the bubble after 20 μs of single-frequency or dual-frequency pressure fluctuation, which is the summation of two kinds of the single-frequency pressure fluctuation

Fig. 13 Maximum bubble radius and non-condensable gas mass difference inside the bubble after 20 μs of single-frequency or dual-frequency pressure fluctuation, either of which has the same energy

Fig. 14 Maximum bubble radius and non-condensable gas mass difference inside the bubble after 20 μ s of single-frequency or dual-frequency pressure fluctuation, either of which has the same peak negative pressure

6. 結 論

本研究では、既存のモデルを組み合わせで直接数値計算の結果と良く適合する気泡モデルを構築し、様々な気泡半径、圧力振幅、圧力波形における rectified diffusion の計算を行った。2 周波数重畳波形において位相差をパラメータとして結果を比較することにより、2 つの周波数成分のうち高い方の周波数よりも高い固有振動数を持つ気泡に対しては、それぞれの周波数成分の負圧ピークが重なって強め合う波形が最も気泡を成長させることがわかった。また、負圧ピークが重なった 2 周波数重畳波形と単一周波数波形の結果を比較した。圧力波のエネルギーを等しくした比較により、固有振動数の高い気泡に対して 2 周波数重畳法が効率的に作用することがわかった。さらに 2 周波数重畳法には、単一周波数波形と比べて様々な気泡半径をもつ気泡の成長が期待されること、集束超音波の波形が焦点付近で大きく変化することを利用できる⁽¹⁰⁾ ことなどの利点が考えられ、適切に用いることで超音波キャビテーションの制御に有効な手法となることがわかった。

謝 辞

本研究では、産業技術総合研究所の竹村文男博士より球形気泡振動の直接数値計算コード⁽¹²⁾の提供を受けた。また、東京大学の杉山和靖准教授から次元縮約モデル⁽¹³⁾に関する多くの助言をいただいた。なお、本

研究は文部科学省科学研究費補助金[特別研究員奨励費 19・8140]の助成を受けて行われた。ここに記して謝意を表す。

文 献

- (1) Eller, A. and Flynn, H.G., Rectified diffusion during nonlinear pulsations of cavitation bubbles, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 37, No. 3 (1965), pp. 493–503.
- (2) Eller, A., Bubble growth by diffusion in an 11-kHz sound field, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 52, No. 5 (1972), pp. 1447–1449.
- (3) Crum, L.A., Measurements of the growth of air bubbles by rectified diffusion, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 68, No. 1 (1980), pp. 203–211.
- (4) Crum, L.A. and Hansen, G.M., Generalized equations for rectified diffusion, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 72, No. 5 (1982), pp. 1586–1592.
- (5) Church, C.C., Prediction of rectified diffusion during nonlinear bubble pulsations at biomedical frequencies, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 83, No. 6 (1988), pp. 2210–2217.
- (6) Fyrrillas, M. and Szeri, A.J., Dissolution or growth of soluble, spherical, oscillating bubbles, *J. Fluid Mech.*, Vol. 277 (1994), pp. 381–407.
- (7) Yang, X., Roy, R.A., Holt, R.G., Bubble dynamics and size distributions during focused ultrasound insonation, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 116, No. 6 (2004), pp. 3423–3431.
- (8) Umemura, S., Kawabata, K., Sasaki, K., Enhancement of sonodynamic tissue damage production by second-harmonic superimposition: theoretical analysis of its mechanism, *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelec., Freq. Contr.*, Vol. 43, No. 6 (1996), pp. 1054–1062.
- (9) Umemura, S., Kawabata, K., Sasaki, K., *In vitro* and *in vivo* enhancement of sonodynamically active cavitation by second-harmonic superimposition, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 101, No. 1 (1997), pp. 569–577.
- (10) Sokka, S.D., Gauthier, T.P., Hynynen K., Theoretical and experimental validation of a dual-frequency excitation method for spatial control of cavitation, *Phys. Med. Biol.*, Vol. 50 (2005), pp. 2167–2179.
- (11) Matsumoto Y., Beylich A. E., Influence of homogeneous condensation inside a small gas bubble on its pressure response, *J. Fluids Eng.*, 107-2 (1985), pp. 281–286.
- (12) F. Takemura and Y. Matsumoto. Influence of internal phenomena on gas bubble motion, *JSME International Journal, Series B*, Vol. 37 (1994), pp. 736–745.
- (13) Sugiyama K., Takagi S., Matsumoto Y., A New Reduced-Order Model for the Thermal Damping Effect on Radial Motion of a Bubble, *Trans. JSME, Series B*, Vol. 71 (2005), pp. 1239–1246.
- (14) Fujikawa, S. and Akamatsu, T., Effect of the non-equilibrium condensation of vapour on the pressure wave produced by the collapse of a bubble in a liquid, *J. Fluid Mech.*, Vol. 97, No. 3 (1980), pp. 481–512.
- (15) May, D.J., Allen, J.S., Ferrara, K.W., Dynamics and fragmentation of thick-shelled microbubbles, *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelec., Freq. Contr.*, Vol. 49, No. 10 (2002), pp. 1400–1410.