

泡の動力学に与える水の蒸発、凝縮の効果

早稲田大学大学院理工学研究科

物理学及び応用物理学専攻

(大槻研究室)

D2 安井 久一

1. 序論

本研究は、ソノルミネッセンス [1]、特に、最近注目を集めている「ピコ秒ソノルミネッセンス」 [2,3] の発光機構を解明することを動機としている。ソノルミネッセンスとは、超音波照射下の泡が、収縮する際に発光する現象のことである。ソノルミネッセンスは、1933年に、Marinescoらによって、偶然、実験で発見された。それ以後、数多くの実験的、理論的研究がなされてきたが、1991年に、S.J.Puttermanのグループが、「ピコ秒ソノルミネッセンス」を実験的に発見して、一躍注目を浴びるようになった。「ピコ秒ソノルミネッセンス」とは、照射している超音波の周期と同じ周期で泡が膨張、収縮を繰り返し、収縮するたびに、パルス幅50 ps以下のパルス光が放射される、という現象のことである。このパルス光のスペクトルは、黒体放射型で、温度に直すと25000Kから50000Kにもなる [3]。「ピコ秒ソノルミネッセンス」の理論としては、現在、C.C.Wuらによる、衝撃波説が有力である [4]。球形の泡壁の運動により、泡内に球形の衝撃波が成長し、泡の中心に達した際に、高温のプラズマができ、プラズマ内の電子が制動放射を起こすという理論である。しかし、その理論においては、泡の動力学に、水の蒸発、凝縮の効果、熱伝導の効果が取り入れられていない。我々は、まず、それらを取り入れたモデルを構築することから始めた [5]。

2. 断熱モデル

まず、簡単な計算において現在でもよく使われる、「断熱モデル」を見ておく。以下、水中に、球形の泡が存在し、それにその泡を中心とした球対称の超音波が入射する場合を考える。「断熱モデル」では、泡内の温度 (T)、圧力 (p) は、空間的に一様であると仮定する。そして、水温 (T_0) は常に一定で、泡壁で温度ジャンプ ($\Delta T = T - T_0$) が存在するものとする。泡内の内部エネルギー (E) は、泡の周囲の液体による pV 仕事によってのみ変化するものと仮定する (但し、 p は泡内の圧力、 V は泡の体積)。

$$\Delta E(t) = -p(t) \cdot \Delta V(t) \quad (1)$$

又、泡の半径 (R) の方程式としては、水の圧縮性を、 \dot{R}/c の1次まで取り入れた、Keller方程式を用いた (c は、水中の音速、 \dot{R} は、泡壁の速度)。

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{c}\right) R \ddot{R} + \frac{3}{2} \dot{R}^2 \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c}\right) = \left(1 + \frac{\dot{R}}{c}\right) \frac{1}{\rho_L} [p_B(t) - p_s(t + \frac{R}{c}) - p_\infty] + \frac{R}{\rho_L c} \frac{dp_B(t)}{dt} \quad (2)$$

ここで、 ρ_L は液体の密度、 $p_B(t)$ は、泡壁での液体の圧力、 $p_s(t)$ は、超音波等、外部から加わる液体の圧力の、時間的に変化する成分、そして、 p_∞ は、外部圧力の時間的に変化する成分（通常は、大気圧に等しい）である。泡に、泡の半径より十分大きな波長の超音波が照射されるとき、 $p_s(t) = -A \sin \omega t$ となる。但し、 A は、超音波の振幅、 ω は、超音波の角振動数である。 $p_B(t)$ は、泡内の圧力と次の関係がある。

$$p_B(t) = p(t) - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu\dot{R}}{R} \quad (3)$$

ここで、 σ は、液体の表面張力、 μ は、液体の粘性である。 $p(t)$ を計算する為には、ファンデルワールスの状態方程式を用いた。泡内温度 (T) と泡の内部エネルギー (E) との関係では、泡内気体の定積比熱の温度依存性を考慮した。

3. 水の蒸発、凝縮を取り入れた新しいモデル1

「断熱モデル」との違いは、次の点である。水の蒸発、凝縮に伴い、泡内の水分子数 (n_{H_2O}) が変化する。

$$n_{H_2O}(t + \Delta t) = n_{H_2O}(t) + 4\pi R^2 \dot{m} \Delta t \quad (4)$$

ここで、 \dot{m} は、単位面積、単位時間当たりの正味の蒸発率である。（ $\dot{m} < 0$ の時は、凝縮を意味する。）

$$\dot{m} = \dot{m}_{eva} - \dot{m}_{con} \quad (5)$$

$$\dot{m}_{eva} = \frac{10^3 N_A}{M_{H_2O}} \frac{\alpha_M}{(2\pi R_v)^{1/2}} \frac{p_v^*}{T_0^{1/2}} \quad (6)$$

$$\dot{m}_{con} = \frac{10^3 N_A}{M_{H_2O}} \frac{\alpha_M}{(2\pi R_v)^{1/2}} \frac{\Gamma p_v}{T^{1/2}} \quad (7)$$

ここで、 \dot{m}_{eva} (\dot{m}_{con}) は、単位面積、単位時間当たりの実際の蒸発（凝縮）率である。 α_M は、蒸発、又は凝縮の係数（気体と液体の境界面に衝突した分子のうち、どれだけの割合の分子が、凝縮（又は蒸発）するのかを表す係数）、 R_v は、水蒸気の気体定数を ($J/kg \cdot K$) で表したものの、 p_v^* は、液体温度 T_0 における飽和蒸気圧、 p_v は、泡内の水蒸気分圧、そして、 Γ は、 \dot{m} 、 p_v 、 T の関数である。又、蒸発（凝縮）する水分子は、液体から泡内へ（泡内から液体へ）エネルギーを運ぶ。その為、泡の内部エネルギーの変化は、 pV 仕事と水分子の運ぶエネルギーとの和で与えられる。

$$\Delta E(t) = -p(t) \cdot \Delta V(t) + 4\pi R^2 \Delta t (\dot{m}_{eva} e_{eva} - \dot{m}_{con} e_{con}) \quad (8)$$

ここで、 e_{eva} (e_{con}) は、蒸発（凝縮）する水一分子によって運ばれるエネルギーである。泡の半径の方程式は、水の蒸発、凝縮の効果を取り入れて新しく導出した。

$$\begin{aligned}
& \left(1 - \frac{\dot{R}}{c} + \frac{\dot{m}}{c\rho_L}\right) R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c} + \frac{2\dot{m}}{3c\rho_L}\right) \\
&= \frac{1}{\rho_L} \left(1 + \frac{\dot{R}}{c}\right) \left(p_B - p_s\left(t + \frac{R}{c}\right) - p_\infty\right) \\
&\quad + \frac{\dot{m}R}{\rho_L} \left(1 - \frac{\dot{R}}{c} + \frac{\dot{m}}{c\rho_L}\right) \\
&\quad + \frac{\dot{m}}{\rho_L} \left(\dot{R} + \frac{\dot{m}}{2\rho_L} + \frac{\dot{R}\dot{m}}{2c\rho_L}\right) \\
&\quad + \frac{R}{\rho_L c} \frac{dp_B}{dt}
\end{aligned} \tag{9}$$

$p_B(t)$ は、次式で $p(t)$ と関係している。

$$p_B(t) = p(t) - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu}{R} \left(\dot{R} - \frac{\dot{m}}{\rho_L}\right) - \dot{m}^2 \left(\frac{1}{\rho_L} - \frac{1}{\rho_g}\right) \tag{10}$$

但し、 ρ_g は、泡内気体の密度である。

4. 水の蒸発、凝縮を取り入れた新しいモデル2

「モデル1」との違いは、泡内に温度勾配の存在を考え、熱伝導の効果を取り入れた点である。泡内部の泡壁周辺に、厚さ $n\lambda$ の境界層を考える (n は係数、 λ は気体分子の平均自由行程)。泡壁では、「断熱モデル」や「モデル1」とは異なり、次式で与えられる温度ジャンプ (ΔT) が存在するものとする。(前のモデルでは、常に、 $\Delta T = T - T_0$ としていた。)

$$\Delta T = \frac{1}{2R_g\rho_g} \sqrt{\frac{\pi m}{2kT}} \frac{2 - a\alpha_e}{\alpha_e} \kappa \frac{\partial T}{\partial y} \tag{11}$$

ここで、 R_g は、気体定数 ($J/kg \cdot K$)、 m は、気体一分子の質量、 k はボルツマン定数、 a と α_e は定数、 κ は気体の熱伝導率、 $\frac{\partial T}{\partial y}$ は温度勾配を表す。従って、泡壁の温度 ($T_0 + \Delta T$) と泡内温度 (T) が一般には異なる。温度勾配は、境界層の中で位置に関して一次関数で変化するものと仮定する。泡の内部エネルギーの変化 (ΔE) は、式(8)に、熱伝導の項を加えたものとなる。

5. 計算結果

以下は、 $20^\circ C$ の水中の半径 $4.5\mu m$ の泡に、振動数 $26.5kHz$ 、振幅 p_a の超音波を照射した時の計算結果である。(「ピコ秒ソノルミネッセンス」の条件に当たる)。

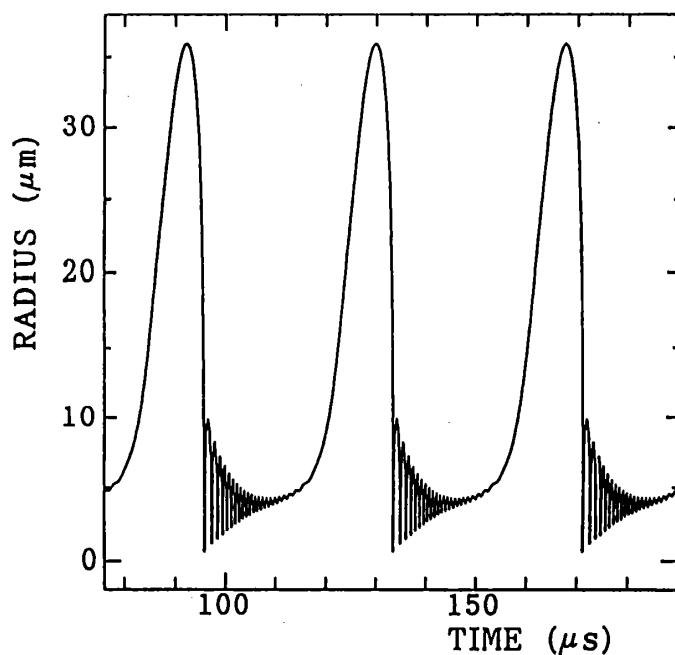


図1.「断熱モデル」による泡の半径の時間変化
(超音波の3周期分)。 $p_a = 1.325atm$ 。

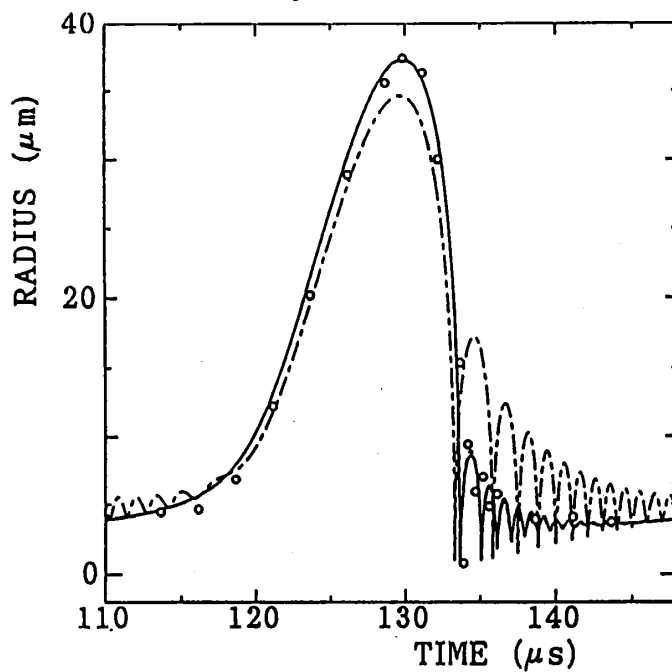


図2. 泡の半径の時間変化(超音波の1周期分)。
実線(点線)が「モデル2」で $n=3(n=7)$ の時。
一点鎖線は「モデル1」、丸は、実験データ。
 $p_a = 1.275atm$ 。

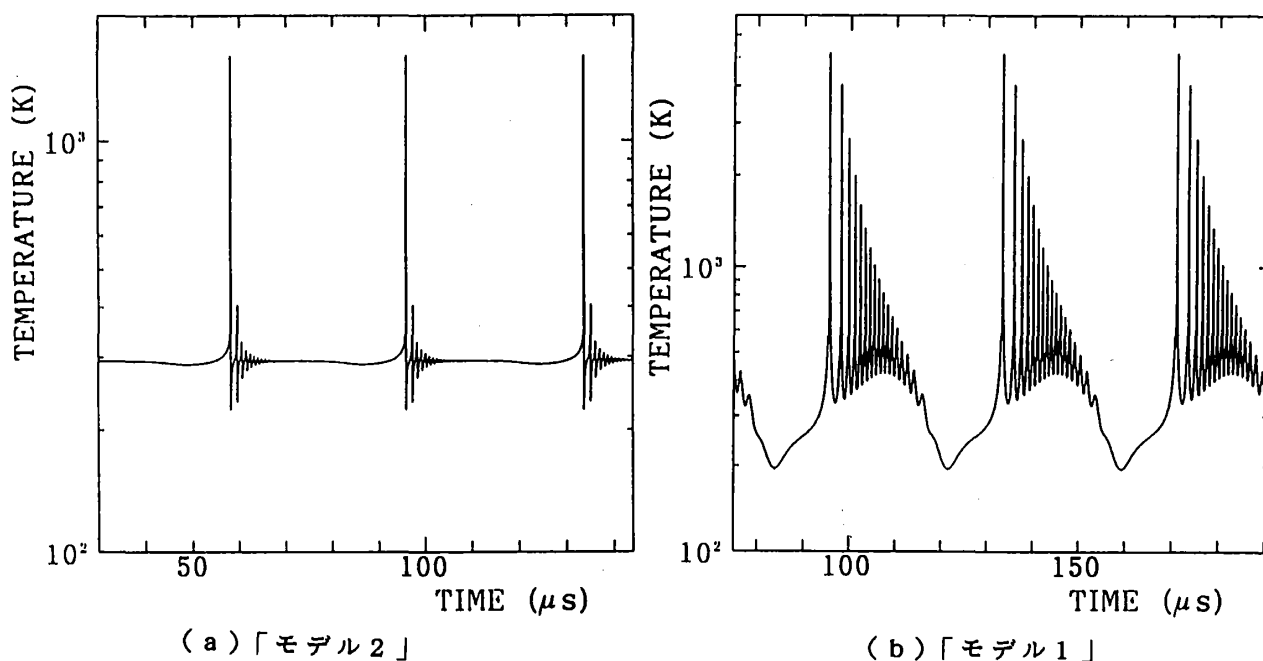


図3. 温度の時間変化(超音波の3周期分)。

6. 結論

泡内への水の蒸発、凝縮、泡内の熱伝導を取り入れた、泡の動力学の新しい簡単なモデルを構築した(「モデル2」)。その結果、泡の半径の時間変化について、実験データと良い一致をみた。又、水の蒸発、凝縮、泡内の熱伝導が共に、泡の動力学に大きく影響することが分かった。

「ピコ秒ソノルミネッセンス」の研究の為には、さらに、水の蒸発(凝縮)の潜熱の効果を取り入れた計算が必要である。

7. 参考文献

[1] R.E.Verral and C.M.Sehgal, "Sonoluminescence", in *Ultrasound, its chemical, physical, and biological effects*, edited by K.S.Suslick, (VCH Publishers 1988), Chap.6, pp227-286.

[2] B.P.Barber and S.J.Putterman, *Nature* 352,318(1991).

[3] R.Hiller, S.J.Putterman, and B.P.Barber, *Phys.Rev. Lett.*69,1182(1992).

[4] C.C.Wu and Paul H.Roberts, *Phys.Rev.Lett.*70,3424(1993).

[5] 既に、水の蒸発、凝縮を取り入れたモデルはある。

S.Fujikawa and T.Akamatsu, *J.Fluid Mech.* 97,481(1980).

しかし、本研究のモデルとは、多くの点で異なる。又、本研究とは異なり、液体中の圧力波生成に主眼を置いた計算である。