

ソノルミネッセンス解析のための 気泡の新しい動力学

早大理工 安井 久一 (Kyuichi Yasui)

1. 序論

1988年、D.F.Gaitan は、単泡性ソノルミネッセンス (Single-Bubble Sonoluminescence (SBSL)) の実験に初めて成功した¹⁾。SBSL とは、超音波照射下の液体中の単一気泡からの発光現象のことである。発光は、気泡が強く収縮した際に起こる。実験によって、そのときの発光のパルス幅がわずかに 50 ps 以下でしかないことが明らかになった。気泡が収縮するたびに、50 ps 以下のパルス光が時計のようによくくり返しくり返し放たれる。しかし現在までのところ、理論的には、その発光機構は解明されていない。本論文では、SBSL を研究するために気泡の新しい動力学を構築した。本モデルでは、気泡壁における非平衡な水の蒸発、凝縮と気泡内外における熱伝導の効果が取り入れてある。そして、SBSL の条件下での数値シミュレーションをおこなった。本研究のもっとも重要な点は、SBSL の研究において初めて非平衡な水の蒸発、凝縮を取り入れた数値シミュレーションをおこなったことである。

2. モデル

超音波照射下の水中の単一気泡の挙動を考える。気泡は、非凝縮性気体（空気）と凝縮性気体（水蒸気）からなる。本モデルでは、気泡内の圧力は空間的に一様、温度は気泡壁近傍の薄い境界層を除いて空間的に一様と仮定する。境界層の厚さは、 $n\lambda$ (λ は気体の平均自由行程、 n は定数) で、その領域内では温度が位置（気泡中心からの距離）とともに線形に変化するものと仮定する²⁾。したがって、

$$\left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=R} = \frac{T_B - T}{n\lambda} \quad (1)$$

ただし、 r は気泡中心からの距離、 R は気泡の半径、 T_B は気泡壁での気体の温度、 T は気泡内部の温度である。

気泡壁では、気体分子運動論で知られる温度ジャンプ (ΔT) が存在するものとする。

$$T_B = T_{L,i} + \Delta T \quad (2)$$

ただし、 $T_{L,i}$ は気泡壁での液体（水）の温度で、 ΔT は次式で計算される。

$$\Delta T = -\frac{1}{2kn'}\sqrt{\frac{\pi m}{2kT_B}}\frac{2-a'\alpha_e}{\alpha_e}\kappa\left.\frac{\partial T}{\partial r}\right|_{r=R} \quad (3)$$

ただし、 k はボルツマン定数、 n' は気泡内の分子の数密度、 m は分子の平均質量、 α_e と a' は定数（ $\alpha_e = 1$, $a' = 0.827$ ）、そして κ は気体の熱伝導率である。式（１）と（２）を（３）に代入して ΔT を計算する。

本モデルでは、気泡壁での非平衡な水の蒸発、凝縮に伴って、気泡内の水分子数（ n_{H_2O} ）が時間とともに変化する。

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

ただし、 t は時間、 $\dot{m}$ は単位面積単位時間当たりの蒸発率である（ $\dot{m} < 0$ のときは凝縮を表す）。気体分子運動論による $\dot{m}$ の式は、文献（３）にある。本モデルでは、気泡外（液体）への空気の拡散を取り入れてあり、気泡内の空気分子数（ n_{air} ）も変化する。その計算方法も文献（３）にある。

気泡半径（ R ）の方程式としては、液体の圧縮性と気泡壁での水の蒸発、凝縮の効果を取り入れて新たに導出した次式を用いた（導出方法は、文献（４）に与えた）。

$$\begin{aligned} & \left(1 - \frac{\dot{R}}{c_\infty} + \frac{\dot{m}}{c_\infty \rho_{L,i}}\right) R \ddot{R} + \frac{3}{2} \dot{R}^2 \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c_\infty} + \frac{2\dot{m}}{3c_\infty \rho_{L,i}}\right) \\ &= \frac{1}{\rho_{L,\infty}} \left(1 + \frac{\dot{R}}{c_\infty}\right) \left(p_B - p_s\left(t + \frac{R}{c_\infty}\right) - p_\infty\right) \\ &+ \frac{\dot{m}R}{\rho_{L,i}} \left(1 - \frac{\dot{R}}{c_\infty} + \frac{\dot{m}}{c_\infty \rho_{L,i}}\right) \\ &+ \frac{\dot{m}}{\rho_{L,i}} \left(\dot{R} + \frac{\dot{m}}{2\rho_{L,i}} + \frac{\dot{m}\dot{R}}{2c_\infty \rho_{L,i}} - \frac{R}{\rho_{L,i}} \frac{d\rho_{L,i}}{dt} - \frac{\dot{m}R}{c_\infty \rho_{L,i}^2} \frac{d\rho_{L,i}}{dt}\right) \\ &+ \frac{\dot{m}}{\rho_{L,i}} \left(\frac{R\dot{R}}{\rho_{L,i} c_\infty} \frac{d\rho_{L,i}}{dt}\right) + \frac{R}{c_\infty \rho_{L,\infty}} \frac{dp_B}{dt} \end{aligned} \quad (5)$$

ただし、 $\dot{}$ は時間微分（ $\frac{d}{dt}$ ）、 c_∞ は気泡から十分遠いところでの液体（水）中での音速、 $\rho_{L,i}$ （ $\rho_{L,\infty}$ ）は気泡壁（気泡から十分遠いところ）での液体の密度、 $p_B(t)$ は気泡壁での液体側の圧力、 $p_s(t)$ は超音波の圧力、そして p_∞ は大気圧である。 $p_B(t)$ は気泡内の圧力（ $p(t)$ ）と次の関係がある。

$$p_B(t) = p(t) - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu}{R} \left(\dot{R} - \frac{\dot{m}}{\rho_{L,i}}\right) - \dot{m}^2 \left(\frac{1}{\rho_{L,i}} - \frac{1}{\rho_g}\right) \quad (6)$$

ただし、 σ は表面張力、 μ は液体の粘性係数、そして ρ_g は気泡内の密度である。超音波の波長が気泡半径に比べて十分に大きいときは、超音波の振幅を A 、角振動数を ω とすれば $p_s(t) = -A \sin \omega t$ となる。

気泡内の気体の状態方程式としては、ファンデルワールス方程式を用いた。

$$\left(p(t) + \frac{a}{v^2}\right)(v - b) = R_g T \quad (7)$$

ただし、 a と b はファンデルワールス定数、 v はモル体積、 R_g は気体定数である。

気泡内温度 (T) は次式より求める。

$$E = \frac{n_{air}}{N_A} \int_0^T C_{V,air}(T') dT' + \frac{n_{H_2O}}{N_A} \int_0^T C_{V,H_2O}(T') dT' - \left(\frac{n_t}{N_A}\right)^2 \frac{a}{V} \quad (8)$$

ただし、 E は気泡の内部エネルギー、 n_t は気泡内の全分子数 ($n_t = n_{air} + n_{H_2O}$)、そして $C_{V,air}(C_{V,H_2O})$ は温度 T における空気 (水蒸気) の定積モル比熱である。

気泡の内部エネルギーの変化 (ΔE) は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \Delta E(t) &= -p(t) \cdot \Delta V(t) + 4\pi R^2 \Delta t (\dot{m}_{eva} e_{eva} - \dot{m}_{con} e_{con}) \\ &\quad + 4\pi R^2 \Delta t \left. \frac{dm}{dt} \right|_{diff} e_{air} + 4\pi R^2 \Delta t \cdot \kappa \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=R} \end{aligned} \quad (9)$$

ただし、 $e_{eva}(e_{con})$ は蒸発 (凝縮) する水分子 1 つによって運ばれるエネルギー、 e_{air} は拡散する空気 1 分子によって運ばれるエネルギー、そして $\left. \frac{dm}{dt} \right|_{diff}$ は単位面積、単位時間当たりの空気の拡散率である。(9) 式の意味は文献 (3) にある。

以下に、気泡壁での液体側の温度の計算方法を示す。まず、気泡壁でのエネルギー流連続の式は、次式になる。

$$\kappa_L \left. \frac{\partial T_L}{\partial r} \right|_{r=R} = \kappa \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=R} + \dot{m} L + (\dot{m}_{eva} e_{eva} - \dot{m}_{con} e_{con}) + \left. \frac{dm}{dt} \right|_{diff} (e_{air} - \Delta H_{air}) \quad (10)$$

ただし、 κ_L は液体 (水) の熱伝導率、 $T_L(r)$ は気泡の中心からの位置 r における液体の温度、 L は蒸発の潜熱、そして ΔH_{air} は空気の水への溶解熱である。

液体中の温度の位置依存性 ($T_L = T_L(r)$) は、次の境界条件を満たさなければならない。

$$T_L(R) = T_{L,i} \quad (11)$$

$$\left. \frac{\partial T_L(r)}{\partial r} \right|_{r=R} = \left. \frac{\partial T_L}{\partial r} \right|_{r=R} \quad (12)$$

$$T_L(r \rightarrow \infty) = T_\infty \quad (13)$$

$$\left. \frac{\partial T_L(r)}{\partial r} \right|_{r \rightarrow \infty} = 0 \quad (14)$$

ただし、 T_∞ は気泡から十分遠方での液体の温度である。本モデルでは液体温度の位置依存性は、指数関数で表されるものと仮定した (式 (15) (16))。

$(T_{L,i} - T_\infty) \frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R} < 0$ のとき

$$T_L(r) = (T_{L,i} - T_\infty) \exp \left(- \frac{\frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R}}{(T_\infty - T_{L,i})} (r - R) \right) + T_\infty \quad (15)$$

$(T_{L,i} - T_\infty) \frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R} > 0$ のとき

$$T_L = A \exp(-B(r - C)^2) + T_\infty \quad (16)$$

ただし

$$A = (T_{L,i} - T_\infty) \exp(Be_1^2)$$

$$B = \frac{\frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R}}{2(T_{L,i} - T_\infty)} \frac{1}{e_1}$$

$$C = R + e_1$$

$$e_1 = e_0 \left| \frac{T_{L,i} - T_B}{\frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R}} \right|$$

ただし、 e_0 はパラメータである。式(15)と(16)はどちらも境界条件((11) - (14))を満たしている。

本モデルでは、気泡周囲の液体側にも境界層の存在を仮定する。その境界層の厚さ δ_L は式(17)と(18)によって決まるものとする。

$(T_{L,i} - T_\infty) \frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R} < 0$ のとき

$$\delta_L = \frac{T_\infty - T_{L,i}}{\frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R}} \quad (17)$$

$(T_{L,i} - T_\infty) \frac{\partial T_L}{\partial r} \Big|_{r=R} > 0$ のとき

$$\delta_L = \frac{1}{\sqrt{B}} + e_1 \quad (18)$$

気泡壁での液体側の温度($T_{L,i}$)は次式で計算する。

$$T_{L,i}(t + \Delta t) = T_{L,i}(t) + \frac{4\pi R^2 \Delta t \cdot j_1 - 4\pi(R + \delta_L)^2 \Delta t \cdot j_2}{\frac{4}{3}\pi((R + \delta_L)^3 - R^3) \rho_{L,i} \cdot c_p} \quad (19)$$

ただし、 $j_1(j_2)$ は $r = R(r = R + \delta_L)$ における単位面積、単位時間当たりのエネルギーの流れ、そして c_p は液体（水）の定圧比熱である。

3. 計算結果

SBSL の条件下で数値シミュレーションをおこなった。気泡の初期半径は $4.5\mu\text{m}$ 、超音波の振動数と振幅はそれぞれ 26.5 kHz と 1.275 atm 、液温 (T_∞) と外圧 (p_∞) はそれぞれ 20°C 、 1 atm である。

数値シミュレーションの結果が、図 1 – 3 である（超音波の 3 周期分）。図 1 には、気泡の半径 (R) の時間変化が示してあるが、気泡が超音波と同一の周期で膨張、収縮を繰り返すことがわかる。図 2 は、気泡内の温度 (T) の時間変化を表しているが、これも超音波と同一の周期で振動している。また、気泡の膨張が等温変化で、収縮が断熱変化に近いものであることがわかる。図 3 は、気泡内の分子数の時間変化を表している。実線が総分子数 (n_t)、一点鎖線が水分子数 (n_{H_2O})、点線が空気分子数 (n_{air}) を表している。蒸発、凝縮によって水分子数が著しく変化することがわかる。また数値シミュレーションの結果、気泡収縮時に気泡内の水蒸気の分圧が 20°C の飽和蒸気圧より数桁も大きくなることがわかり、“非平衡” の効果が大きく効くことがわかった。

本シミュレーションの結果、気泡周囲の液温が、高温の気泡内からの熱伝導により著しく上昇することも明らかになった。

4. 結論

SBSL の研究のために、気泡の動力学の新しいモデルを構築した。本モデルでは、気泡壁における非平衡な水の蒸発、凝縮の効果、気泡内外における熱伝導の効果を取り入れた。数値シミュレーションの結果、非平衡な水の蒸発、凝縮が気泡振動の様子に大きく影響することがわかった。

文献

- 1) L.A.Crum, Phys.Today, 47(9),22(1994).
- 2) K.Yasui, J.Acoust.Soc.Am.,98,2772(1995).
- 3) K.Yasui, PhD thesis(Waseda University,1996).
- 4) K.Yasui, J.Phys.Soc.Jpn.,65,2830(1996).

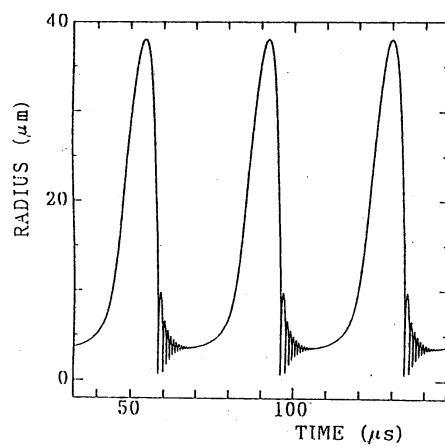


図 1. 気泡半径の時間変化（超音波の 3 周期分）.

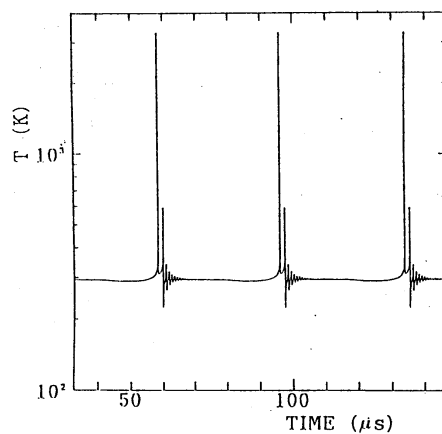


図 2. 気泡内温度の時間変化（超音波の 3 周期分）.

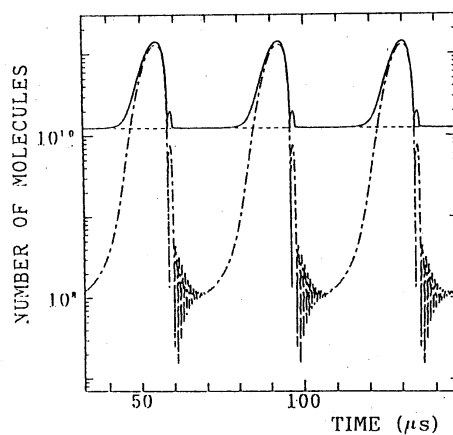


図 3. 気泡内の分子数の時間変化。実線は総分子数 (n_t)、一点鎖線は水分子数 (n_{H_2O})、点線は空気分子数 (n_{air}) を表す。