

単泡性ソノルミネッセンス：実験家の立場から

電通大 電気通信

林 茂雄

1. はじめに

一個の気泡でキャビテーションを起こさせ、しかもそれを光らせることに米国の研究者が成功してから5年以上経過した[1, 2]。この発光はSBSL (single bubble sonoluminescence) と呼ばれ、数十ピコ秒のパルスが超音波に同期して発生する。発光この現象がなぜ起こるかはいまだに謎であり[3]、理論と実験の両面から活発な研究がなされている。

このSBSLには、気泡が潰れる時のサイズ(μm オーダー)と共振系のサイズ(cm オーダー)、励振音波の波長と発光波長、マクロな音響伝播とミクロな原子過程(あるいはプラズマ過程)など、質的に異なる量や現象が関与し、本質的に学際的テーマとなっている。

当然ながら、理論で考慮されるパラメータと実験で直接制御できるパラメータとの間にも質的相違があり、本稿ではまずその点を取り上げる。

次に、今後取り上げうる可変パラメータとして雰囲気圧があることを指摘し、どのような実験方法が可能かを考察する。

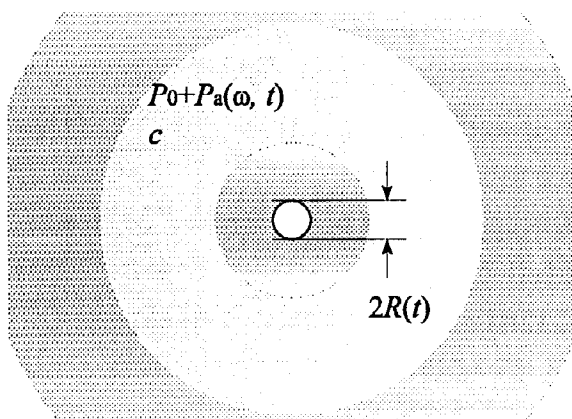


図1. 理論で考慮されるパラメータと変数

2. 系のパラメータと変数

図1は球対称な系について理論で考慮される基本的パラメータを図示したものである。

理論は、球対称なキャビテーションとみなして、すなわち気泡が半径 R のみで記述できるとして、解析するのが通例である。その他、十分離れた点における静水圧 P_0 、音圧 $P_a(\omega, t)$ 、気体濃度 c などが考慮される。

しかし、衝撃波説によれば、気泡内部を走る衝撃波面は中心に向かうに従って次第に不安定になり、潰れる瞬間(発光の瞬間)はグシャグシャになると考えられる。

この不安定性は、初期状態の非対称性に影響される。これは音場の非対称性に大いに関係するものと推測され、実験条件の明確な記述が本質的な意味をもつ。

音場依存性はわれわれの予備実験でも示唆された。軽いPZT振動子を用いたhigh- Q 実験とランジュバン振動子で駆動したlow- Q 実験ができた[4]ので、肉眼で輝度を比較したところ、前者の方が明るかった。

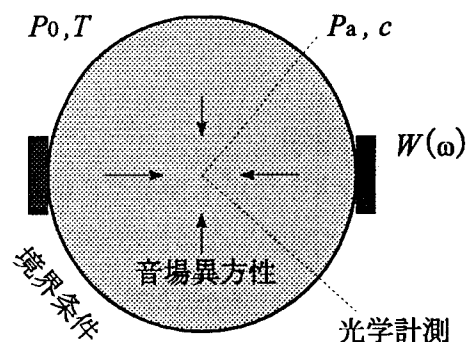


図2. 実験で制御・計測されるパラメータ

図2は実験で制御ないし計測されるパラメータを図解したものである。温度 T の共振系を角周波数 ω のトランスジューサで励振する。電力は W である。装置によって自由端か固定端か

が決まり(肉厚と波長の比が重要)、また異方性も装置設計で決まる。

パラメータ計測はSBSLの定量化において重要であるが、極めて困難なステップでもある。

発光位置における音場 P_a の非侵襲計測にはどこもまだ成功していない。Gaitanは自作のハイドロフォンを使用しているとのことであるが、ハイドロフォンによる音場の乱れは避けられない。Barberは球の外側における音場から内部音場を逆算しているが、いくつかの仮定が入り込んでいる。

キャビテーションのキャラクタリゼーションは、今のところ光学測定でしかなくない。 $R(r)$ はMie光散乱によるが、球対称であるという仮定のもとに解析されている。散乱の二方向への異方性も調べられているが、再現性という点で問題があるようである。

スペクトル測定は、系の内部状態を探る唯一の手段であるが、水($\lambda < 240\text{nm}$)やパイレックス($\lambda < 330\text{nm}$)による光吸収が常につきまとう。

音場の非対称性への依存性はまだ十分には調べられていない。この一因として、対称音場を作ることに注意が向けられていたということが挙げられる。われわれのランジュバン振動子による発光実験は、その方向への一つの試みである[4]。

3. 共振器内の音場

SBSL実験での大きなボトルネックは、 W と ω の両方を同時に調節しなければ音圧 P_a の制御ができない点にある。すなわち、 W と ω は独立な実験パラメータである。

このことを定量的に理解するために、一様な媒質の中に半径 a の球殻状トランスジューサがあるような他励振動モデルを考えよう。その粒子速度を $p \exp(-i\omega t)$ とする。

速度ポテンシャル $\Phi(r, t)$ は、球内において次の波動方程式を満足する。

$$\nabla^2 \Phi - (\partial \Phi / \partial t)(2\kappa/c^2) - (\partial^2 \Phi / \partial t^2)(1/c^2) = 0 \quad (1)$$

κ は損失を表わすパラメータ、 c は音速である。

$\Phi(r, t) = \phi(r) \exp(-i\omega t)$ とおいて

$$\nabla^2 \phi(r) + k^2 \phi(r) = 0 \quad (2)$$

ここで k は複素波動ベクトル

$$k = (\omega^2 + 2i\kappa\omega)^{1/2}/c \doteq (\omega + i\kappa)/c \quad (3)$$

である。境界条件は

$$\partial \phi / \partial r|_{r=a} = p \quad (4)$$

であり、原点で有限な値を取るという条件から、 ϕ の関数形は

$$\phi(r) = A j_0(kr) \quad (5)$$

であり、 A は境界条件(4)から決まる定数である。原点における ϕ 値は

$$\phi(0) = -p/[k j_1(ka)] \quad (6)$$

であり、従って、原点における音圧振幅の周波数依存性は

$$P(\omega) = -p \partial \phi / \partial r|_{r=0} = \omega p p / [k j_1(ka)] \quad (7)$$

で与えられる。極大値近傍の挙動を調べるために

$$ka = a(\omega + i\kappa)/c \equiv a\omega_n/c + a(\Delta\omega + i\kappa)/c \quad (8)$$

とおく。ただし

$$\omega_n = \eta_n c/a \quad (9)$$

$$\Delta\omega = \omega - \omega_n \quad (10)$$

であり、 η_n は $j_1(x)$ の n 番目の零点である。(7)の分母は

$$|k j_1(ka)| \doteq (a\omega_n/c^2) |j_1'(a\omega_n/c)| |\Delta\omega + i\kappa| \\ = (a\omega_n/c^2) |j_1'(a\omega_n/c)| (\Delta\omega^2 + \kappa^2)^{1/2} \quad (11)$$

であるから、Lorentz型線幅式

$$P(\omega) \doteq (ppc^2/a) |j_1'(a\omega_n/c)|^{-1} (\Delta\omega^2 + \kappa^2)^{-1/2} \quad (12)$$

が得られる。

式(12)は、損失 κ =励振の周波数幅 $=\omega_n/Q$ を示している。中心周波数では

$$P(\omega_n) \propto pQ \quad (13)$$

であり、励振効率の低いトランスジューサを用いても Q 値が大きければ十分な音圧が得られることを示している。Scientific American[5]の

実験方法はこの原理に基づいている。

対称性のよい気泡を作るには Q 値の大きい装置を用いねばならないが、式(12)は周波数制御の重要性を示唆している。 Q の上限は 10^4 がもっともそんな値である[6,7]。 $\omega_0=25$ kHzの実験については、必要な周波数分解能 $\ll \kappa=2$ Hzである。そして中心周波数から κ 以上ずれると、もはや励振はできない。ちなみに、Scientific American[5]ではオーディオジェネレータを用いると述べられているが、Nature[2]ではmHz以下まで制御できるファンクションジェネレータを使用したとの記述がある。

円筒形共振器では、半径 a と長さ h の二つの形状パラメータに周波数が依存する。(1)に $\Phi(r, t) = \psi(\rho) u(z) \exp(-i\omega t)$ を代入し、今度は自由端境界条件を満足している自励振動子と考えると

$$\psi(\rho) = J_n(k_{nm}\rho) \cdot \begin{matrix} \cos m\theta \\ \sin m\theta \end{matrix} \quad (14)$$

$$u(z) = \sin k_s z \quad (15)$$

が得られる。ここで、

$$k_{nm} = \eta_{nm}/a \quad (16)$$

$$k_s = s\pi/h \quad (s>0) \quad (17)$$

η_n は $J_n(x)$ の m 番目の零点である。(3)に対応する式は

$$\omega \doteq c[(\eta_{nm}/a)^2 + (s\pi/h)^2]^{1/2} - i\kappa \quad (18)$$

$$\equiv \omega_{rms} - i\kappa$$

となる。

現実には起こりうるものとして、高さ h が微小量変化した場合に音圧がどれだけ下がるかという問題が考えられる。そこで、高さが αh だけ増えたとすると、

$$\Delta\omega = -\alpha\omega_{rms} \cdot a^2/[a^2 + (\eta_{nm}h/s\pi)^2]$$

となるから、相対的変化量は

$$\Delta\omega/\kappa = -\alpha Q \cdot a^2/[a^2 + (\eta_{nm}h/s\pi)^2] \quad (19)$$

と見積もられる。

仮に、0.01 mlの水滴を、高さ10 cm、半径5

cmの共振器に滴下したとすると、 $\alpha \doteq 10^{-5}$ となる。もし $Q \sim 10^4$ であれば $\Delta\omega/\kappa \sim 0.1$ になり、音圧に変化が生じる。

類似のトラブルはフラスコに水滴を滴下した場合にも起こりうる。

筆者の経験では、ここで見積もったよりも共振器ははるかに敏感であり、注意深い音場制御が必要である。そのために音場のモニターをきちんとすべきである。

4. SBSLの圧力効果

静水圧 P_0 は音響実験で重要なパラメータの一つである。例えば、I-イオンの音響化学反応速度と音響発光(MBSL)の圧力依存性(0.7~3 bar)が調べられている[8]。それによれば、電力 W が一定ならば、ある P_0 値まではMBSL輝度が上昇するが、やがて下降する。輝度を高くするには、 W をあげるのがよい。

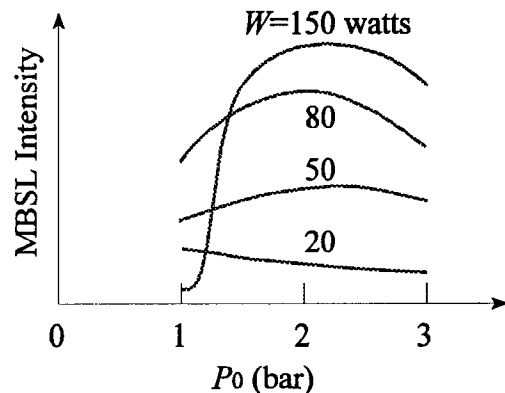


図4. HengleinのMBSL実験結果

この結果をSBSLにそのままあてはめるわけにはいかない。例えば、 W は音圧 P_s を規定するが、SBSLが生じる音圧範囲は有限である[9]。

P_0 値をパルス的に微小量上げる実験が報告されている[10]。それによれば、脱気しなくても静水圧を上げれば発光させられるという。この現象は、静水圧を上げればHenryの法則によって気体溶解度が上がり、飽和度が下がる

からであると解釈できる。

実験結果を解析したKondicによれば[11]、圧力をと上げるだけでは輝度が下がるが、静水圧と音圧を同時に上げれば輝度が上がるはずであるとのことである。ただし、彼のモデルは大気圧から若干上がったところまで有効であり、大幅な上昇については予測が困難とのことである。

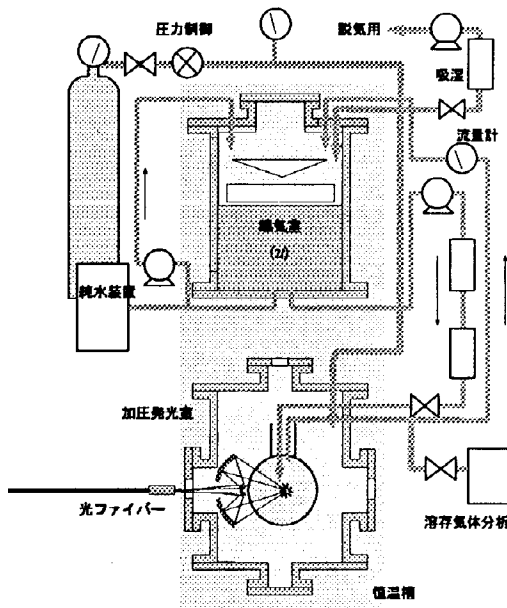


図4. 高圧実験装置の設計図

このような事情を考慮して、図4のような高圧実験装置を考案した。ちりによる汚染を防止し溶存気体濃度を制御してSBSL実験するには閉鎖循環系が望ましい。高圧過程は化学プラントで実現されているので、高圧装置そのものには技術的問題はないが、SBSLを観測する上で以下のような問題に直面する。

- ①循環系で水面高さの制御をいかに行うか。
- ②閉鎖系で「種」気泡をどう導入するか。
- ③閉鎖系で音圧をどうモニターするか。
- ④高圧系で溶存気体分析をいかに行うか。
- ⑤高圧系で溶存気体濃度制御をいかに行うか。

ラフな図面ではあるが、今後この分野の研究を進める上で参考になるのではないかと考え

ている。

5. おわりに

SBSLは神秘的な現象であると同時に、奥の深いテーマでもある。いろいろな分野の知恵が結集できればさらに発展していくと思われる。

文献

- [1] D.F. Gaitan and L.A. Crum; "Sonoluminescence from single bubbles," J. Acoust. Soc. Am., Suppl. 1, **87**, S141 (1990).
- [2] B.P. Barber and S.J. Putterman: "Observation of synchronous picosecond sonoluminescence," *Nature* **352**, 318-320 (1991).
- [3] 安井久一: "謎が深まるソノルミネッセンス," パリティ (1997, 7月号), pp. 4-11.
- [4] 林 茂雄, 國分崇生: 信学技報 US97-10, 63-70 (1997).
- [5] R.A. Hiller and B.P. Barber, "Producing light from a bubble of air," *Scientific Amer.* **272**, 78 (Feb., 1995).
- [6] M. Greenspan and C.E. Tschiegg: "Radiation-induced acoustic cavitation; Apparatus and some results," J. Res. Nat. Bur. Stand. **71C**, 299-312 (1967).
- [7] T. Ohsawa and Y. Wada: "Resonance reverberation method for ultrasonic measurement of liquids from 10 to 300 kilocycles," *Jpn. J. Appl. Phys.* **6**, 1351-1356 (1967).
- [8] A. Henglein and M. Gutiérrez: "Sonochemistry and Sonoluminescence: Effects of external pressure," *J. Phys. Chem.* **97**, 158-162 (1993).
- [9] M.P. Brenner, S. Hilgenfeldt, and D. Lohse, "Why air bubbles in water glow so easily," in *Nonlinear Physics of Complex Systems: Current Status and Future Trends*, Ed. J. Parisi et al. (Springer, 1996) pp. 79-97.
- [10] L. Kondic, C.K. Chan, and C. Yuan; "Sonoluminescence: Discussion of some new experimental results," *J. Acoust. Soc. Am.* **100**, No.4, Pt. 2, 2678 (1996).
- [11] L. Kondic, private communication.