

音響化学発光における複数音源の効果

山形大・工 柳田裕隆、若山実、増渕雄一、滝本淳一、小山清人

目的

超音波は医用診断や治療などに応用されている。近年、超音波による化学反応[1, 2]の医療への応用が注目されている。しかし、超音波によって化学反応を引き起こす場合には、非常に強力な超音波を照射する必要がある。そのため、人体への悪影響が心配されている。この方法を実際に応用するためには、低エネルギーの超音波で局所的な反応を起こす必要がある。そこで我々は、超音波の強度や波動の形態などを制御することによって、効率よく化学反応を起こすことを目的として実験を行う。

実験

我々は音圧分布と反応分布を次の手法によって測定した。

D) 音圧測定

音圧の測定はシュリーレン法によって行った。平行光が密度差のある測定対象物を通過すると、平行な光はfig. 2のように回折される。fig.1中の θ_m はequation 1で与えられる。

$$\sin(\theta_m) = m \frac{\lambda}{\Lambda} \quad \dots \text{equation 1}$$

m: 回折次数, λ : 光の波長(680nm), Λ : 超音波の波長(1.5mm)

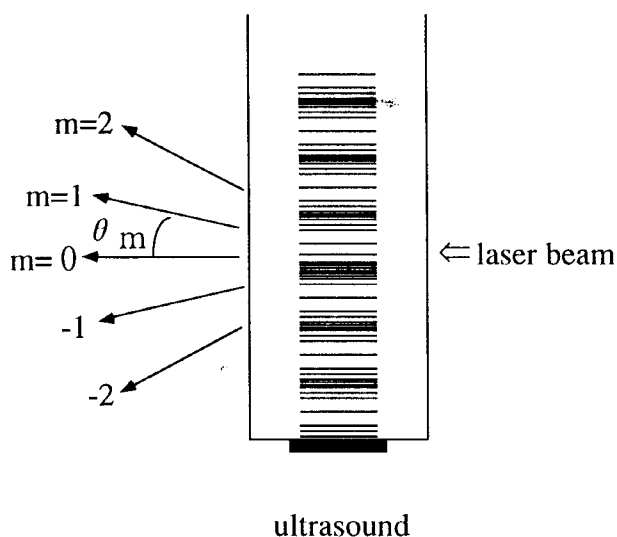


fig.1 Diffraction on the soundfield

m次の光の強度は密度差によって変化するが、音場が進行波音場の場合と定在波音場の場合ではその変化の仕方が異なっている。それぞれ equation 2(進行波)および equation 3(定在波)で表される。

$$I_m = J_m^2(v_R) \quad \dots \text{equation 2}$$

I_m : m 次の光の強度, J_m : m 次のベッセル関数

$$I_m = \sum_{s=-\infty}^{\infty} J_s^2\left(\frac{v_R}{2}\right) J_{m-s}^2\left(\frac{v_R}{2}\right) \quad \dots \text{equation 3}$$

v_R : Ramann-Nath パラメータ

また Ramann-Nath パラメータ v_R は equation 4 で表される。

$$v_R \equiv \frac{2\pi L}{\lambda} \Delta n \quad \dots \text{equation 4}$$

L : 音軸の幅(50mm), Δn : 屈折率の変化

進行波および定在波の場合の I_0, I_1 を v_R にたいしてプロットした。(fig2,3)

fig. 3は $\nu_R=2.4$ において0次光が消光する事を示している。 $\nu_R=2.4$ を式4に代入するとその時の屈折率の変化 Δn を求めることができる。水の圧力と屈折率の関係は既知であり、 $\nu_R=2.4$ のときの圧力差は118kpaである。

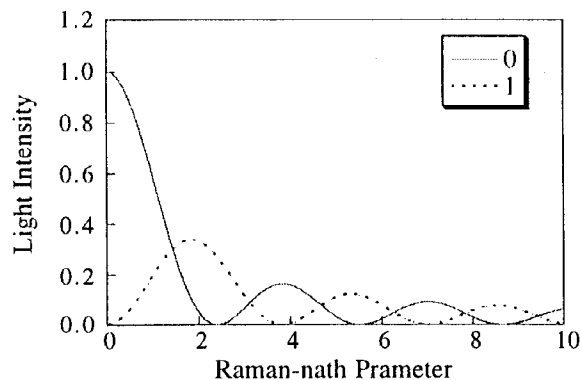


fig2. Light intensity of order 0 and 1 vs Raman-nath prameter on the running wave

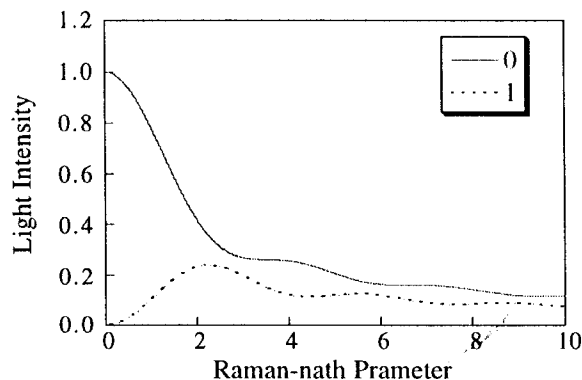


fig3. Light intensity of order 0 and 1 vs Raman-nath prameter on the standing wave

fig. 5 に進行波音場の場合の0,1次光の強度を超音波振動子(1MHz)への印可電圧0-55Vの範囲で測定した結果を示す。同様にfig. 6に定在波の場合の結果を示す。fig. 5が0次光が消光するときの印可電圧は22Vであり、そのときの音圧差は118kpaであることがわかった。また、fig. 6では印可電圧が11Vのときに1次光が最大の強度をとることから、そのときの音圧差は118kpaであることがわかった。

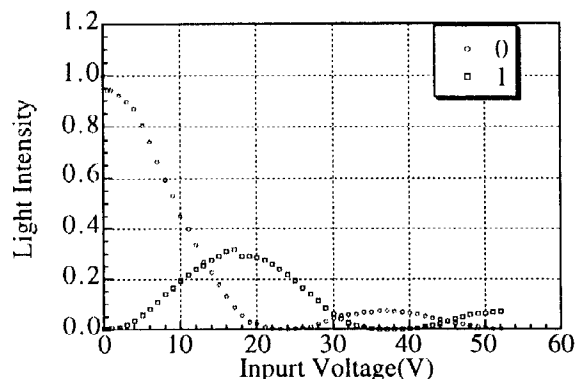


fig.4 Light intensity of order 0 and 1 vs input voltage on the running wave

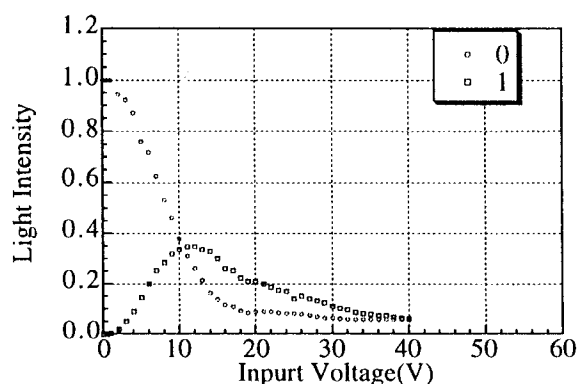


fig.5 Light intensity of order 0 and 1 vs input voltage on the standing wave

II)発光量測定

A 定在波・進行波

定在波音場や進行波音場、発散波音場と進行波音場などの音場での化学反応の分布を測定する。ルミノールはOHラジカルと反応する際に光を放射する[3]。この発光分布および強度を化学反応分布および反応量として測定する。進行波音場および定在波音場での発光強度の音圧依存性を測定した。定在波音場での発光は約120kpaから起こるが(fig. 7)、進行波音場では250kpaを越えても発光は起こらなかった。

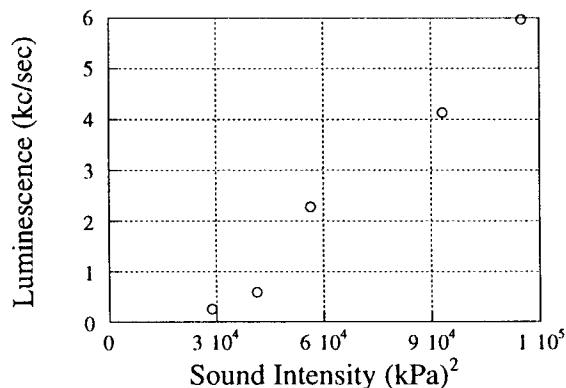


fig.6 Luminescence vs sound intensity on the standing wave

B 音源面積と発光量

直径が20mm,40mm,50mmと開口面積の異なる超音波周波数1MHzのトランスデューサを三種類用意し、発光強度と超音波強度の関係をそれぞれ測定した結果をfig.7に示す。fig.7より、面積が大きいトランスデューサを用いると発光が少ないエネルギーで効率よく行われることが分かった。

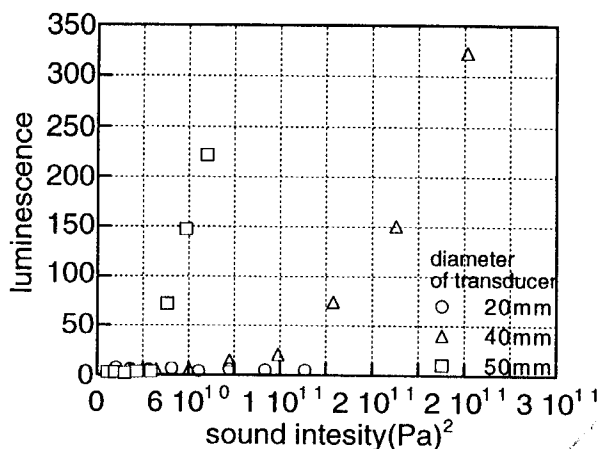


fig.7 dependence of sound intensity on the sono-chemical luminescence

B 超音波周波数と

キャビテーションしきい値

0.5MHz,1MHz,1.7MHzの超音波周波数が異なるトランスデューサを用いて発光をし始める超音波強度を測定した結果をfig.8に示す。fig.8は超音波周波数が高くなればなるほど発光を起こし始めるしきい値も高くなることを示しており、化学反応を効率よく行うためには、比較的低い周波数を用いた方が良いことが分かった。

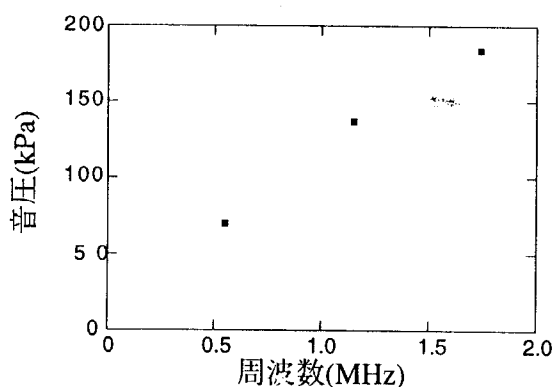


fig.8 sound pressure of cavitation threshold vs. sound frequency

C 凹面型トランスデューサによる発光

fig. 9に500kHzの凹面型トランスデューサによる発光分布を示す。トランスデューサの直径は100mm、焦点距離は180mmである。超音波は写真右側から左側に向かって照射した。焦点とトランスデューサの間の集束側の音圧と焦点以降の発散側の音圧は、強度も分布もほぼ同様であった。しかし、集束側では焦点以降の発散側よりも発光が強く、発光領域も広いことがわかった。

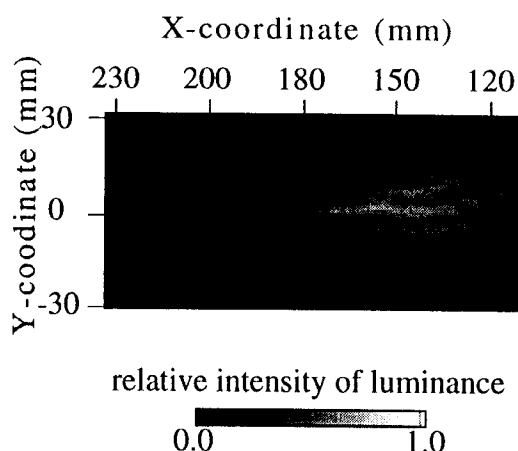
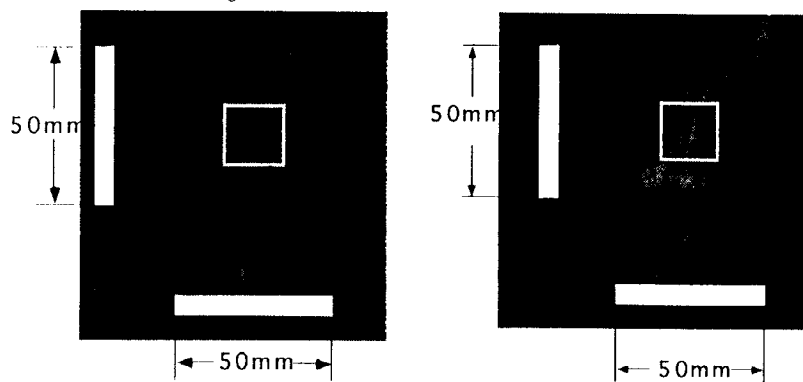


fig.9 Photograph of luminescence on the focusing point

C 複数音源による発光

凹面型トランスデューサによる音場をシュリーレン法で困難であるために、解析が比較的容易な平面型トランスデューサを2個用い、直交させて、疑似的な集束音場を形成させた。装置図をfig.8に示す。縦方向のトランスデューサだけを駆動したときの発光分布の写真を図.9(a)に、2個のトランスデューサを駆動したときの発光分布写真をfig.9(b)に示す。また、発光の強度をフォトマルチメーターで測定した結果を図.10に示す。2個のトランスデューサを同時に駆動すると発光強度が2倍以上になることが明らかになった。また、それぞれのトランスデューサによる音圧がキャビテーションしきい値を超えていないときは影響を及ぼさないことがわかった。



(a) distribution of chemical reaction by one transducer

(a) distribution of chemical reaction by two transducer

fig.10 distribution of chemical reaction

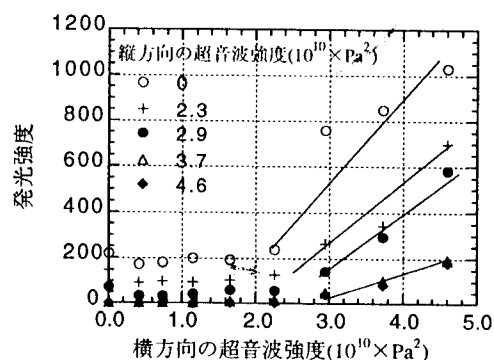
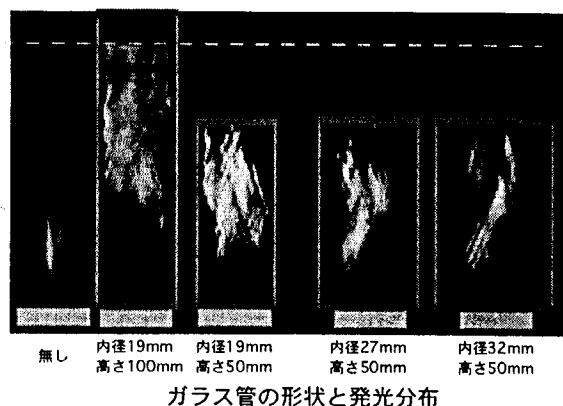


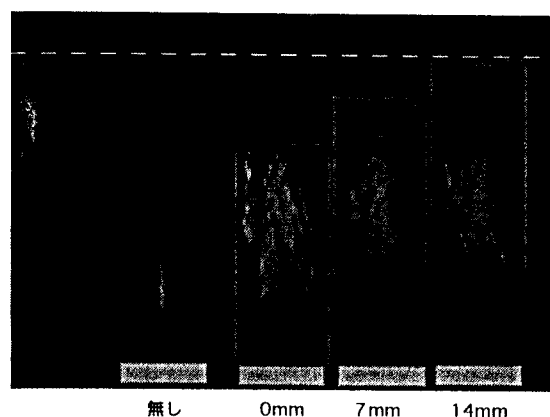
fig.11 luminescence vs. sound intensity

D ガラスの筒による影響

トランスデューサ(直径20mm)のほぼ同等の直径であるガラス管を、音軸を囲むように設置した。ガラス管はトランスデューサの直径と同様の20mm, 27mm, 32mmの三種類を用意した。ガラス管の高さは50mmであり、ガラス管の直径が20mmのものは100mmのものも用意した。なお、トランスデューサから水面までの距離は約65mmである。それぞれのガラス管を設置したときの発光の結果を図.12(a)に示す。次に高さ50mmのガラス管三種類を徐々に水面方向に動かして発光の分布を測定した。発光の分布を撮影した結果を図.12(b)に示す。それぞれの発



(a) distribution of chemical reaction by using various diameter of cylindrical glass



(b) distribution of chemical reaction on the various position of cylindrical glass

fig.12 distribution of chemical reaction

光の強度をフォトマルチメータで測定した結果を fig.13 に示す。発光はガラス管を設置するとガラス管が無い場合に比べて急激に明るくなる事がわかった。また、50mmの高さのガラス管を設置したときに比べて、水面よりも上に突き抜ける100mmのガラス管を設置したときの方が発光が効率よく行われることがわかった。また、ガラス管を水面方向に移動させた場合は発光の強度にあまり変化が無いが、発光はガラス管とともに移動することがわかった。

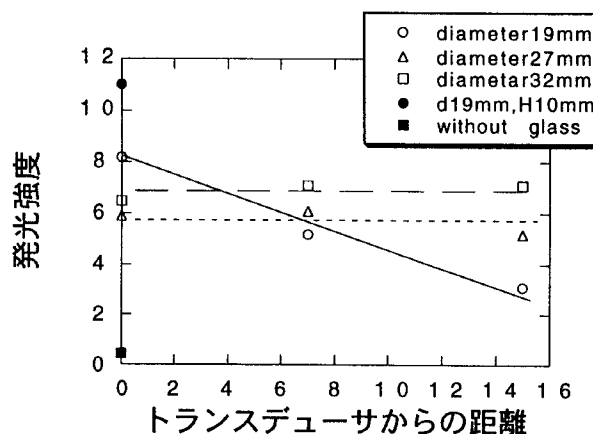


fig.13 luminescence vs. distance between transducer and bottom of cylindrical glass

まとめ

音場の形態が同じ場合は化学反応はある超音波強度を超えると線形に増加する。

音場の形状が異なる場合は化学反応は超音波強度だけでは決まらない。

定在波での発光、複数音源による発光、ガラスの筒をおいた場合の発光の結果から、発生したキャビテーションを音圧の変化ある場所に保持しておく事が、化学反応を効率良く起こすためには必要である可能性が高い。

References

- [1] W. R. Wood and A. L. Loomis, Phil. Mag, 4(7), 413(1927)
- [2] Mason, T.J. and Lorimer, J.P. Sonochemistry-Theory, Applications and Uses of ultrasound in Chemistry E. Horwood Publishers/J. Wiley and sons, New York(1988)
- [3] F. Trabels et. al, Ultrasonics sonochemistry, 3, s125(1996)