

論文内容の要旨

論文題目 超音波場における極微細気泡生成過程に関する研究

氏名 幕田 寿典

1. 緒言

気泡は多くの化学プロセスあるいはバイオプロセスにおいて、液体への物質移動や浮遊粒子の分離手段などに用いられてきた。気泡は小さくなると体積あたりの表面積が大きくなり、液中への滞留時間が長くなるため、微細な気泡を使うことで投入したガスの溶解効率を高めることができる。また医療分野では、微細気泡の音響特性を使用した血管造影剤や気泡崩壊時の衝撃波による結石破壊などの研究がされている。

微細気泡の機能性を有効に活用するためには、気泡径のばらつきを抑えることが重要である。微細気泡の生成には様々な方法があるが、径のばらつきが比較的小さい方法としては超音波による気泡の微細化が挙げられる⁽¹⁾。この超音波による気泡または液滴の微細化現象は圧力振動による気液界面の乱れによるものとされている⁽²⁾。しかし、微細化した気泡の大きさは完全に均一ではなく数 μm から数十 μm 程度の分布を持つ^{(1),(3)}ため、個々の気泡が分裂する瞬間の過程は複雑で再現性が見られず、分裂に至るまでのメカニズムについては不明な点が多い。

著者らは、液体中に導入された針の先端に超音波を印加すると針先端から極めて微細な気泡が生成すること（微細気泡生成現象）を見出した。さらに、高粘度の液体、円管型の針および超音波を使用して気泡を微細化した際に、均一な径を持つ気泡を安定して生成すること（均一微細気泡生成現象）がわかった。本研究では、微細気泡生成現象と均一微細気泡生成現象について、気泡生成メカニズムと生成特性について実験結果と数値計算から解析した。

2. 実験および実験装置

実験は400×56×100 mmの亚克力製容器の下部からは針を挿入し、超音波が付与された液体中の針先付近の気液界面の挙動について高速度カメラを用いて撮影した。超音波振動子は18.77kHz, 42.15kHz, 76.10kHzの三種類の磁歪振動子を使用し、針は、内径0.13外径0.47の先端が22°にカットされた針と図1に示す七種類の円筒形状の針を使用した。液体には純水と表2に示す六種類のジメチルシリコンオイルを用いた。

Table 1 Inner and outer diameters of needles

	1	2	3	4	5	6	7	8
d_{in} [mm]	0.08	0.11	0.13	0.13	0.18	0.21	0.26	0.34
d_{out} [mm]	0.20	0.24	0.26	0.47	0.36	0.41	0.46	0.64

Table 2 Properties of KF-96 silicone oil

ν [mm ² /s]	5	10	20	30	50	100
σ [mN/m]	19.7	20.1	20.8	20.8	20.8	20.9

3. 微細気泡生成現象について

ここでは、純水と先端が 22° にカットされた針を用いた際に起こる微細気泡生成現象について説明する。超音波を印加しない場合図 1(a)に示すような 1mm 前後の気泡が生成する。そこに 18.77kHz の超音波を 10kPa の圧力振幅で印加すると図 1(b)に示すように非常に微細な気泡が生成されるようになる。ここで生成される微細気泡の径を測定すると個数平均が $8.5\mu\text{m}$ と極めて小さく、また、生成した気泡は全体の 95% が $20\mu\text{m}$ 以下にあることから、極めて微細な気泡が少ないばらつきで生成している。同様に 42.15kHz, 76.10kHz の周波数における生成した微細気泡の気泡径を測定したところ、周波数の上昇と共に、平均気泡径が小さくなっていることがわかった。この微細化特性は、加湿器などに見られる超音波による液滴微粒化現象に類似しており、200kHz 以下の周波数での液滴微粒化現象では、気液界面に生じる表面波の波頭から液体が飛び出すことにより微粒化が起こるとされている。また、その表面波の波長 λ は、液体の表面張力 σ と密度 ρ 、超音波周波数 f によって、Kelvin の式 $\lambda = (8\pi\sigma/\rho f^2)^{1/3}$ で表される⁽²⁾。

一方、針先に付着したミリオーダの気泡に圧力振幅 5kPa 以下の超音波を印加すると図 1(c)のように気泡表面に表面波が形成される。超音波周波数の上昇とともに表面波波長は短くなり、波長は、Kelvin の式で求めた値と一致することがわかった。さらにこの状態を続けると、微細気泡が徐々に表面から飛び出し、最終的にはミリオーダの気泡が崩壊する挙動が確認された。したがって、微細気泡の生成についても液滴微粒化現象と同様に超音波の印加によって界面に表面波が形成され、圧力振幅の増加によってその波頭から気体が離脱することによって気泡が生成していると考えられる。

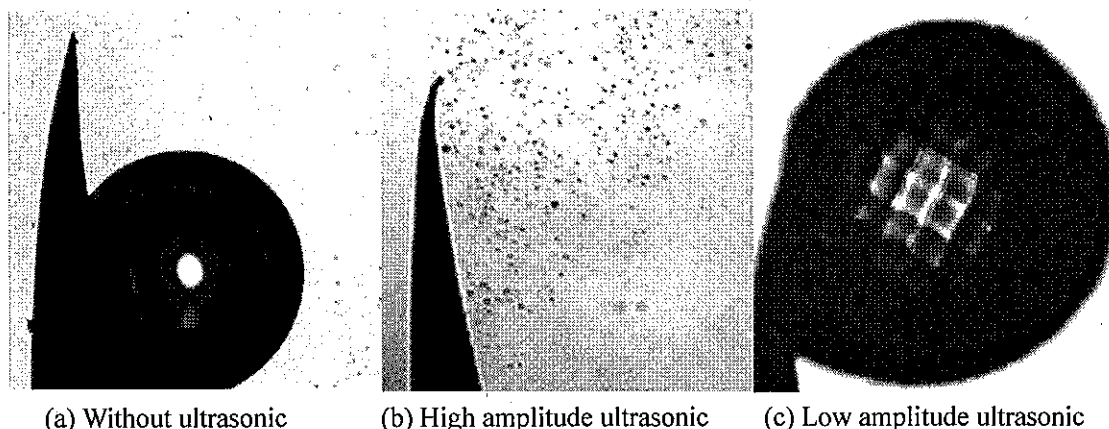


Fig.1 Photographs showing the bubble motion at needle tip under the ultrasonic pressure oscillation

4. 均一微細気泡生成現象について

針先端が 90° にカットされた円筒形状の針と、粘度が水の 5 倍以上のオイルを使用して、先に 3 章と同様に針先に超音波を印加すると、図 2 上の写真のように、まったく径の均一な気泡が連続して生成する。なお、図 2 上の写真は超音波周波数 18.8kHz, 圧力振幅 10.3kPa, 内径 0.13mm, 動粘度 $20\text{mm}^2/\text{s}$ 表面張力 20.8mN/m の条件で行った実験結果で、超音波の一周期を約 10 分割した連続写真である。界面の挙動について見ると、周期全般で界面は針の中心軸を回転軸とした軸対称な形状で振動している。また、気液界面が、針内部への収縮段階で突起を形成し、界面から突起が離脱することで微細気泡が生成していることがわかる。また、界面挙動や物性値の影響についてより詳細に調べるために、境界要素法による界面挙動のシミュレーションを行った。本計算においては Oguz の手法⁽⁴⁾を振動圧力と粘性を考慮できるように改良して行った。計算手法の詳細については参考文献(5)を参照されたい。シミュレーション結果を図 2 下のイラストに示す。計算

条件は超音波周波数 18kHz, 圧力振幅 10kPa, 内径 0.10mm, 動粘度 $7.5\text{mm}^2/\text{s}$, 表面張力 21mN/m , 界面の要素数 80 と設定した。粘度条件が実験値よりも低く設定してあるが, これは, 本計算では粘性の影響を移動境界の境界条件を介して近似的に考慮しており, 境界条件では境界層を無視してポテンシャルから速度勾配を求めているため, 速度勾配が実際より過剰に見積もられ粘性の影響が大きくなることによる。

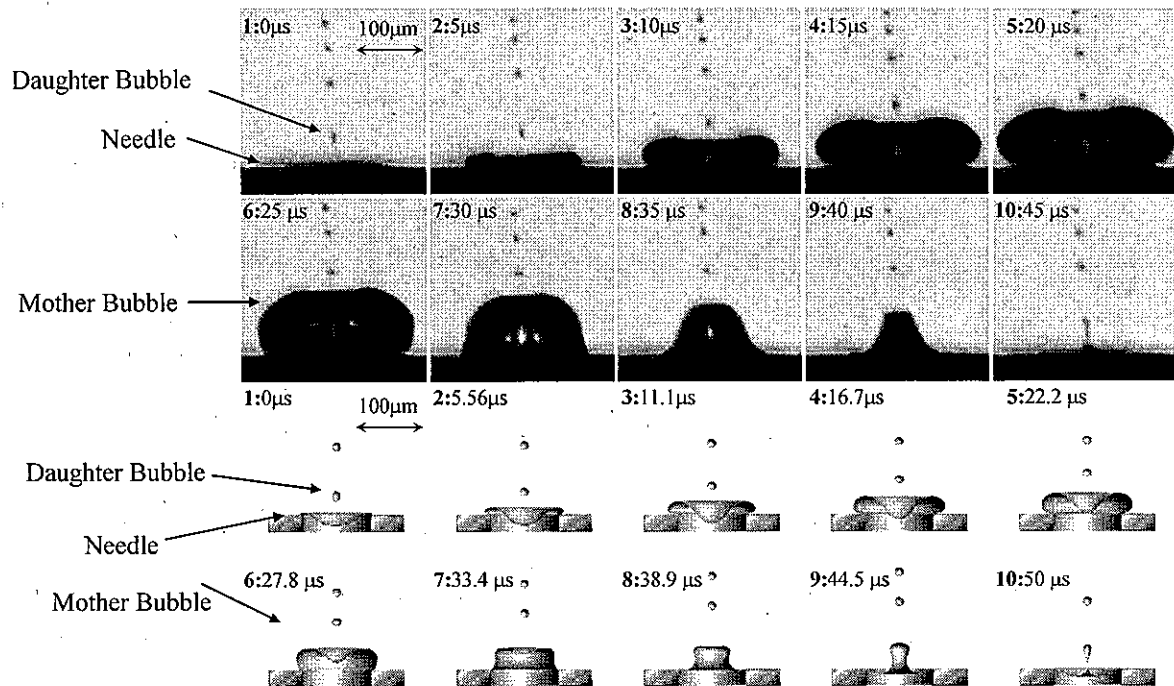


Fig.2 Comparison between experimental and calculated results

計算結果と実験結果を比較すると, 時間的な親気泡の振動はほぼ同じ挙動を示し, 良好な一致を示している。状態 1~4 では, 全体的に界面が液体側に引き出されるが, 中心点付近では液体が下向きに入り込み, その慣性の影響で液体側への膨出が遅れている。状態 5~8 では, 針との接触点付近では, 界面は内側へ入り込む一方で, 中心点付近では, 界面が凹んだ形状をしているために表面張力による外向きの応力が生じ, 引き続き外側へ膨らむ挙動を示す。針の接触点付近と中心点付近の界面挙動の違いにより, 界面形状は中心点付近が上方に突出した形状に徐々に遷移する。状態 9~10 においては, 界面全体が内側に入り込む挙動を示すが, くびれ部分の液体の内側に入り込む慣性力によって, 状態 10 で親気泡界面から子気泡が分離され, 親気泡の形状は図の一番左上の状態 1 へ戻る。計算では超音波の音圧は界面全体で一様であることから, 局所的な形状の違いは主に表面張力項によって起こると考えられる。したがって, 界面形状に応じて表面張力による圧力差が生じ, 界面挙動に局所的な時間的なずれが生じた結果, 最終的に中心部分にくびれができ, そのくびれ部分が外部液体によって引き離されることによって気泡が生成すると考えることができる。

5. 均一微細気泡生成現象の安定生成条件について

均一気泡が安定して生成する領域は, 液体の物性値や超音波周波数など複数のパラメータが影響を及ぼすため, 相対的な影響を代表した無次元的な整理が必要となる。そこで, 針の内径, 液体の粘度と表面張力, 超音波周波数を変えた全 91 条件の気泡生成の状態を, 均一な気泡が安定して生成する条件 (安定生成条件), 均一な気泡生成が間欠的あるいは, 複数の場所から起こる条件 (遷移生成条件), 均一な気泡生成がおこらず径のばらばらな気泡が生成する, または気泡生成が

起こらない条件（不生成条件）三つに分類した。その結果について、表面張力と慣性の比である Weber 数(以下 We)と、粘性と慣性の比である Womersley 数(以下 Wo)を用いて整理した。なお We と Wo は、液体の表面張力 σ と密度 ρ と動粘度 ν 、超音波周波数 f 、針の内径 d_m を用いて $We = \rho f^2 d_m^3 / \sigma$ 、 $Wo = d_m (f/\nu)^{1/2}$ で表される。

図 3 は全 91 条件の分類結果を Wo と We で整理した図である。図中の○は安定生成条件、△は遷移生成条件、×は不生成条件を表す。図 3 をみると○は $2 < Wo < 5$ 、 $We < 300$ の範囲に収まっており、均一気泡生成がこの条件下で起こることがわかる。

$Wo > 5$ の場合、振動による慣性の影響が粘性の影響よりも支配的となり、様々な径の気泡が気液界面より多数放出される。逆に $Wo < 2$ の場合は、粘性の影響の方が慣性よりも支配的であるため、界面がなだらかになり突起が形成されないため、気泡は生成しない。また $We > 300$ の場合、慣性の影響が表面張力の影響よりも顕著であるため、相対的に界面の復元力が低下する。したがって、 $Wo > 5$ の時と同様に、多数の様々な径の気泡が生成する。

以上のことから、界面が周期的に収束し、かつ突起状の形状を形成できる条件、 $2 < Wo < 5$ 、 $We < 300$ の場合に均一な径の微細気泡は生成する。

6. 結言

液中の針先に超音波を印加した際に起こる微細気泡生成現象ならびに均一微細気泡生成現象について解析を行った結果、次の知見を得た。

微細気泡生成現象は超音波によって気泡表面に生じる表面波から飛び出すことによって生じ、その気泡径は周波数の上昇とともに小さくなる。

均一微細気泡生成現象は、界面が対称性の強い形状で周期的に振動し、その界面上の突起が液体によって離脱することによって生成する。また、突起が安定して形成されるためには表面張力と粘性の条件が重要であり、その条件は 2 つの無次元数で $2 < Wo < 5$ 、 $We < 300$ で表される。

参考文献

- (1) 幕田寿典, 東京大学修士論文, 2001
- (2) 千葉近, 超音波噴霧, (1990), 166, 山海堂.
- (3) Walmsley, A. D., Laird, W. R. E. and Williams, A. R., Gas bubble fragmentation in an ultrasonic field, *Ultrasonics*, **23**(1985), 170-172.
- (4) Oguz, H. N. and Prosperetti, A., Dynamics of bubble growth and detachment from a needle, *J. Fluid Mech.*, **257**(1993), 111-145.
- (5) 幕田寿典, 竹村文男, 飛原英治, 松本洋一郎, 庄司正弘, 超音波場における均一微細気泡生成過程 第一報 均一気泡生成に対する粘性の影響, *機論 B*, **70**-699(2004), 2758-2767.

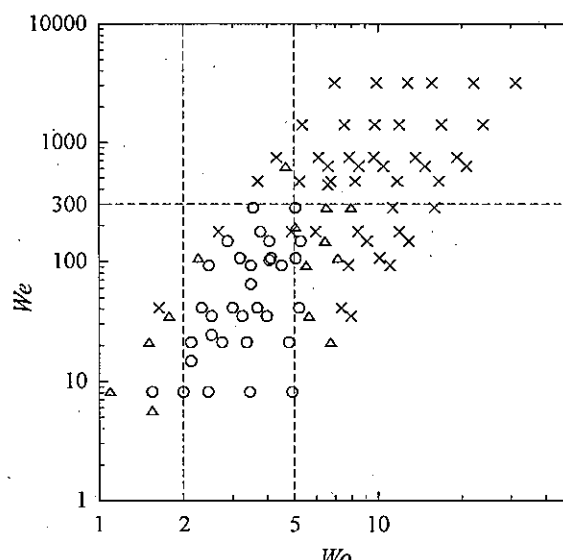


Fig.3 State diagram of bubble generation