

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24654185

研究課題名(和文) ソノプラズマの効率的生成技術の確立

研究課題名(英文) Development of a method for the efficient production of sonoplasmas

研究代表者

佐々木 浩一 (Sasaki, Koichi)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：50235248

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：我々が独自に見出したパンチングメタル板援用ソノプラズマ生成装置においてソノプラズマが効率的に生成されるメカニズムを提案した。パンチングメタル板の穴部のエッジなどの尖った部分で種となる気泡が生成され、第一ビヤークネス力によって鉛直下方に輸送された後、超音波圧力場分布の極小値の位置にキャビテーションバブルとしてトラップされることにより、定在化したソノプラズマが得られるものと考えられる。本方式は高電圧を用いない液中プラズマの生成法としてユニークであり、各種のソノケミストリープロセスの高速化に活用できるものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this work, we have proposed the mechanism by which the efficient production of sonoplasmas is achieved in a sonoplasma production system with the help of a punching metal plate. Small bubbles are produced at the sharp edges of holes on the punching metal plate. They are transported by the primary Bjerknes force toward the bottom side of the vessel, and are trapped at the dip in the distribution of the ultrasonic pressure. These processes result in standing cavitation bubbles with a high density. The present method is unique as a method for producing liquid-phase plasmas without using high voltages. It can be utilized for enhancing the rates of various sonochemistry processes.

研究分野：プラズマ応用工学

キーワード：ソノプラズマ 液中プラズマ 超音波 キャビテーションバブル

1. 研究開始当初の背景

プラズマ応用工学の研究分野では、2002年頃より、大気圧のような従来に比べて高いガス圧において非平衡プラズマを生成するための様々な方法が研究されるようになり、それらは、真空環境では扱うことのできない液体や生体材料とプラズマとの相互作用に関する実験で使用されるようになった。この方向性はさらに進み、本研究を開始するころには、液体中でのプラズマ生成に関する研究が注目を集めるようになってきた。

電気的エネルギー（放電）を用いて液体中でプラズマを発生させるには、大気圧プラズマの生成（低ガス圧プラズマの生成より高い電圧を必要とする）を遙かに超える非常に高い電圧の印加が必要となる。生体材料などのソフトな材料の液中プラズマ処理を考えると、高電圧の印加が材料組織の破壊などの障害を引き起こすことが予想され、高電圧の印加とは異なるソフトな液中プラズマの生成法が開発されれば、特徴ある液中プラズマプロセッシングが開拓できると考えられた。

一方、超音波工学の分野では、強力な超音波が照射された液体が発光を示す（ソノルミネッセンスと呼ばれている）ことが20世紀の前半から知られていたが、2005年にNatureに発表された論文（D. J. Flannigan and K. S. Suslick, Nature 434, 52 (2005)）により、超音波によって誘起されるキャビテーションバブルと呼ばれるダイナミックな気泡が圧壊する時にその内部が高温高压状態となり、プラズマが生成されて発光していることが示された。これは、電気エネルギーで無く音響エネルギーを用いたプラズマの生成であり、高電圧を用いない液中プラズマの生成法として注目に値する。

2. 研究の目的

上に述べた背景の中で、我々は、2010年頃、超音波が照射された水中にパンチングメタル板を挿入すると非常に高い効率でキャビテーションバブルが生成されることを、別の目的の実験の最中に偶然に見出していた。そこで、偶然に見出されたキャビテーションバブルの効率生成を特異な液中プラズマ生成と位置づけ、このプラズマをソノプラズマと名付け、何故この方法によってキャビテーションバブルが効率的に生成されるのかを解明することを目的として、本研究計画を策定した。

キャビテーションバブルの圧壊時にプラズマが生成されることが解明される以前から、キャビテーションバブルの圧壊により化学的に活性なラジカルが生成されることは知られていた。このように生成されるラジカルを活用して化学反応プロセスを進める方法はソノケミストリーと呼ばれ、日本ソノケミストリー学会が発足するなど、化学における一つの分野に成長している。キャビテーションバブルの圧壊によるラジカルの生成は

プラズマの生成を経ていることから、ソノケミストリーを液中プラズマプロセッシングの一種と考えることもできる。プラズマ工学と超音波工学の間の学際領域となる新しい研究分野を開拓していくことは、本研究の長期的な目的となる。

3. 研究の方法

本研究で用いたソノプラズマ発生装置の概要を図1に示す。図1(a)に示すように、一辺が90 mmの角形容器の底面に周波数が32 kHzの超音波振動子が取り付けられている。容器の側面4方向は観測用の石英窓になっている。容器の内部に蒸留水を満たし、その水深を変えて実験を行った。用いた蒸留水にはガスバブリングなどの処理を施していない。水面の上方から一辺が40 mmで厚さが約1 mmのパンチングメタル板を挿入した。パンチングメタル板はアルミニウム製で、直径3 mmの穴が図1(b)に示す配置で開けられている。後で述べるように、ソノプラズマ（キャビテーションバブル）の生成効率は水深およびパンチングメタル板の位置に対して極め

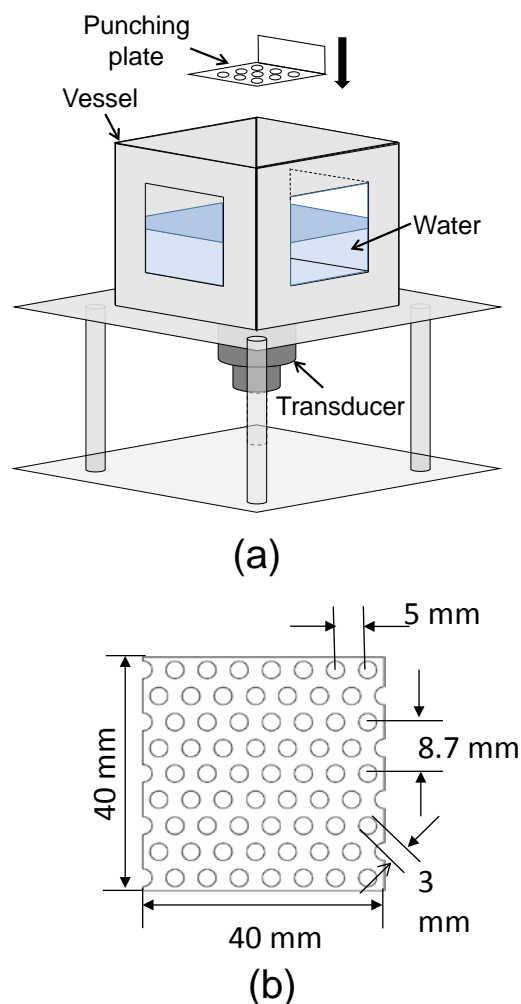


図1 ソノプラズマ生成装置の概要。(a) 超音波振動子を底面に持つ水槽、(b)水面の上方から挿入したパンチングメタル板

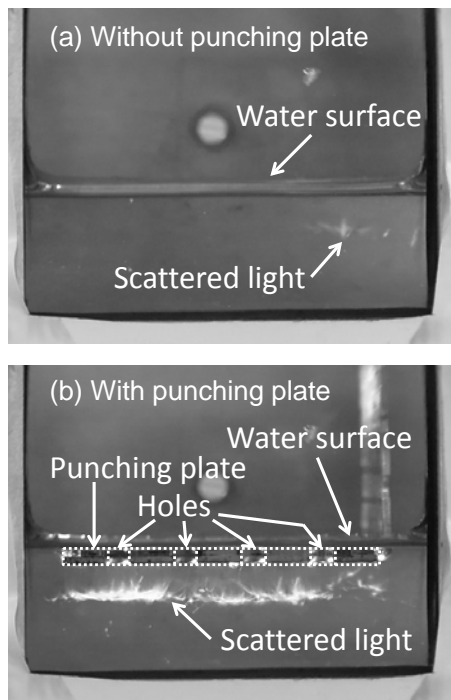


図 2 水槽内を白色ランプで照らすことによって得られたデジタルカメラ写真。(a)パンチングメタル板を挿入しない場合、(b)パンチングメタル板を挿入した場合。

て敏感に変化した。

生成されたキャビテーションバブルを目視で確認するために、容器側面の窓を介して白色ランプ光を照射した。キャビテーションバブルの生成効率を定量化する時には、照射光源を波長 532 nm の連続発振レーザーに取り替え、バブルによる散乱光を CCD カメラで撮影した。超音波振動子に印可された電力は、印可電圧と電流の波形から計算した。また、実際に水が吸収した電力は、カロリメトリ法によって評価した。キャビテーションバブルの膨張・収縮運動や位置の時間変化は、高速度カメラを用いたシャドウグラフ法によって動画を撮影する方法で調べた。ソノプラズマの発光は、ICCD カメラを用いて時間分解撮影した。また、水中での超音波圧力の空間分布を測定するために光波マイクロフォンと呼ばれる方法を用いた。

4. 研究成果

(1) ソノプラズマの生成特性

図 2 は容器を白色ランプで照らした時に得られたデジタルカメラ写真で、キャビテーションバブルによる散乱光が白色の雲状に映っている。図 2(a)はパンチングメタル板を挿入しない場合で、この場合は市販の超音波洗浄機と似た状況になっている。この場合でも、キャビテーションバブルは時折弱く生成されるが、その位置は定まらず、白色の散乱光が容器内を動き回る様子が観測された。これに対し、パンチングメタル板を挿入すると、

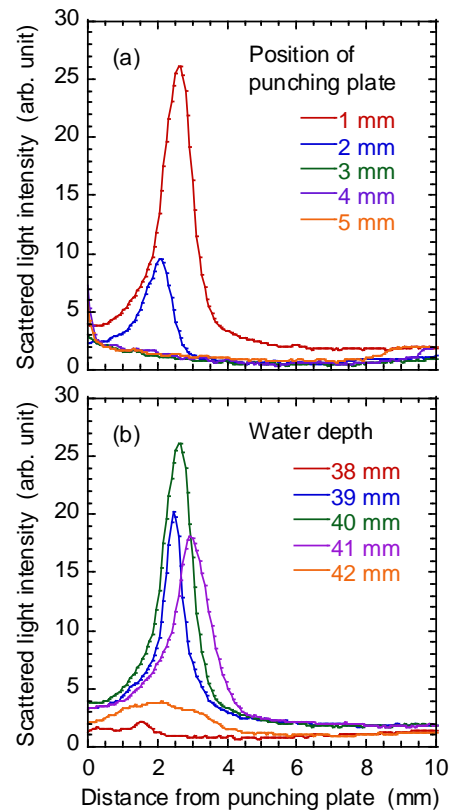


図 3 キャビテーションバブルに生成効率をあらわすレーザー散乱光の空間分布。(a)水深を 40 mm に保ってパンチングメタル板の位置を変化させた場合、(b)パンチングメタル板の位置を水面から 1 mm に保って水深を変化させた場合。

図 2(b)に示すように、パンチングメタル板の下方の位置にキャビテーションバブルが大量に生成され、その位置はおおむね定在化する様子が観測された。

図 2(b)に示したキャビテーションバブルの生成効率は、水深およびパンチングメタル板の位置に対して敏感に依存した。図 3 は、これらの実験パラメータに対するキャビテーションバブルの生成効率を示したもので、図の横軸はパンチングメタル板の下面からの距離、縦軸はレーザー散乱光の強度を示している。図 3(a)は、水深を 40 mm に保ち、パンチングメタル板の位置を変化させた場合の結果であり、パンチングメタル板の位置が水面から 1 mm であるとキャビテーションバブルの効率的生成が得られるが、最適位置から 1 mm のずれがあるとキャビテーションバブルの効率的生成が得られなくなることを示している。図 3(b)はパンチングメタル板の位置を水面から 1 mm に固定し、水深を変化させた場合に得られた結果で、水深は 40 mm が最適で、それから 2 mm のずれがあるとキャビテーションバブルの効率的生成が得られなくなることを示している。

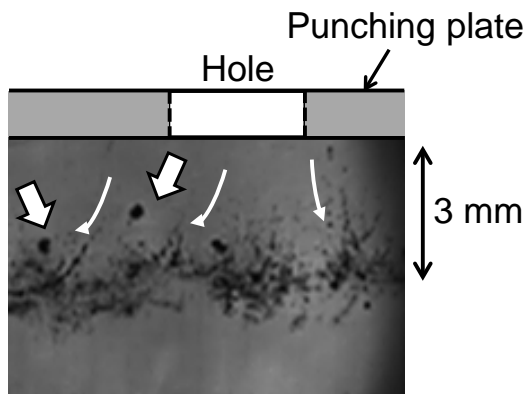


図 4 シャドウグラフ法によって得られた高速動画の一コマ。パンチングメタル板の直下において小さな気泡が生成され、それが容器下方に輸送されて定在化する様子が観測された。

(2) ソノプラズマの発光特性

超音波の周期にあたる $30 \mu\text{s}$ を $3 \mu\text{s}$ ごとに 10 分割し、各時間帯におけるソノプラズマの発光像を ICCD カメラを用いて撮影した。また、レーザー散乱光の 2 次元像を同じように時間分解撮影した。キャビテーションバブルの圧壊時には気泡サイズが小さくなるので、レーザー散乱光は弱まる。実験の結果、ソノプラズマの発光はレーザー散乱光が弱まる時刻において主に観測され、発光位置はキャビテーションバブルが存在する位置（パンチングメタル板の下方）であることがわかった。これにより、キャビテーションバブルの圧壊により発光が生じていることが確かめられた。しかしながら、レーザー散乱光が見られる時間帯においてレーザー散乱光とは異なる位置から発光が観測されることもわかった。これは、レーザー散乱計測では観測できないサイズ（レーザー波長よりかなり小さい）のキャビテーションバブルが発光領域において存在し、それらの圧壊時刻はキャビテーションバブル板下方のキャビテーションバブルの圧壊時刻と異なることを示唆している。

(3) シャドウグラフ動画撮影

拡大光学系を用い、空間分解能が $20 \mu\text{m}$ 程度のシャドウグラフ動画撮影を行ったところ、超音波の周期で膨張・収縮運動する直径が $100 \mu\text{m}$ 程度のキャビテーションバブルを確認した。バブルサイズは最大バブルサイズの時刻に対してほぼ対象に時間変化していることが観測された。一方、拡大率を低下させてより広い視野でのシャドウグラフ動画を撮影したところ、バブルの種とも呼ぶべき小さな気泡がパンチングメタル板の直下において生成され、それが容器下方に輸送され、定在化する様子が観測された。この様子を図 4 に示す。定在化位置に置いてバブルが衝突すると、それらは合体し、より大きなバブル

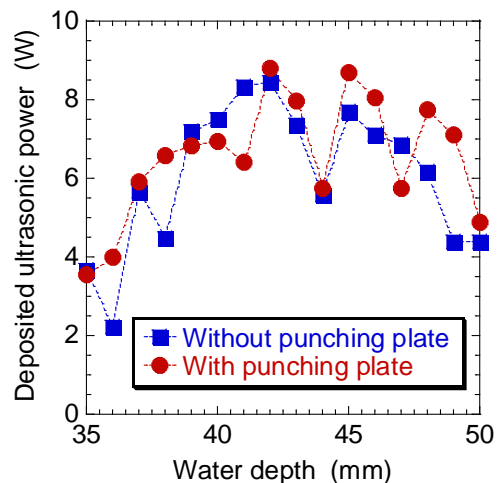


図 5 水が吸収した電力の水深に対する依存性。

となった後は浮力によって容器上方に輸送される様子が見られた。

(4) 電力測定

超音波振動子に印可される電力、および、水が吸収した電力の水深およびパンチングメタル板の位置に対する依存性を測定した。図 5 はカロリメトリー法によって測定した吸収電力の水深に対する依存性で、パンチングメタル板の有無の場合の比較を示している。パンチングメタル板を挿入した場合、その位置は水面から 1 mm とした。この結果から、このシステムは水深が $37\text{-}50 \text{ mm}$ の範囲において弱い共鳴状態にあり、吸収電力が大きくなることがわかる。吸収電力が最大となるのは水深が 42 mm の時であるが、図 3(b) に示すように、このときキャビテーションバブルの効率的生成は得られていない。また、吸収電力はパンチングメタル板の挿入に影響されない。したがって、図 3 に示したキャビテーションバブルの効率的生成は吸収電力では説明できないことがわかった。

(5) 光波マイクロフォンによる超音波圧力分布測定

光波マイクロフォンは、超音波場の粗密構造によるレーザー光の回折を利用した音響場の検出技術で、信号強度は超音波場の圧力に比例する。光計測であるため非接触であり、レーザービームのスポットサイズの空間分解能で超音波圧力の水深方向分布を測定することができる。実験結果を図 6 に示した。横軸はパンチングメタル板下面からの距離である。水深およびパンチングメタル板の位置は、それぞれ、 40 mm および水面から 1 mm の最適位置に設定されている。この図で重要な点は、パンチングメタル板からの距離が $1.5\text{-}2 \text{ mm}$ の位置において超音波圧力が極小値を取り、それがキャビテーションバブルの定在位置とほぼ一致する点である。

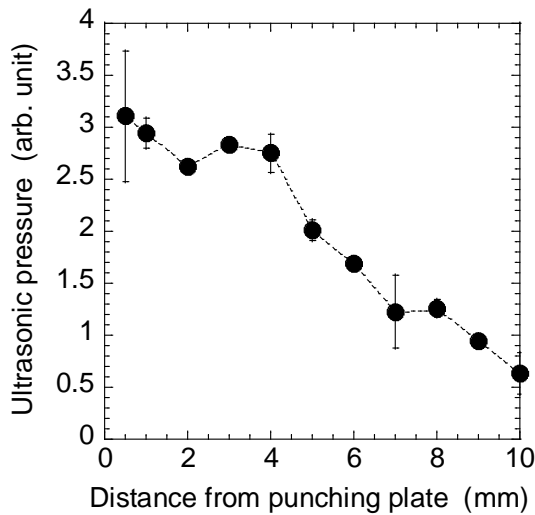


図 6 光波マイクロフォンによって測定した超音波圧力の水深方向分布。

(6) ソノプラズマ効率生成のメカニズム

パンチングメタル板の挿入はキャビテーションバブルの効率的生成に必須だが、図 5 に示すように、それは吸収電力に影響を与えていない。図 4 に示したように、小気泡がパンチングメタル板の直下で生成される様子が観測されたことから、パンチングメタル板の穴のエッジなどの尖った部分が小気泡の生成を促進し、それがパンチングメタル板の役割であると考えられる。最大サイズに対して対象な膨張・収縮運動をする直径が 100 μm 程度のキャビテーション気泡に作用する第一ビヤークネス力は、超音波圧力の低い方向に向かうと考えられる。これにより、パンチングメタル板直下で生成された小気泡は鉛直下方に向かって輸送されるが、図 6 に示したように超音波圧力分布には極小値が存在するので、キャビテーション気泡はそれにトラップされ、定在化するものと考えられる。最適な水深が図 5 に示した弱い共鳴の範囲にあり、大きな吸収電力が得られることはキャビテーションバブルの効率的生成の必要条件のひとつと考えられるが、それは最も重要な条件では無いと考えられる。以上のように、実験結果に基づき、本研究の方式によりキャビテーションバブル（即ちソノプラズマ）が効率的に生成されるメカニズムを提案することができた。

(7) その他の成果

図 6 に示した超音波圧力の空間分布を確かめるために、境界要素法に基づく超音波場の解析を行ったが、実験結果を説明する計算結果は得られなかった。このとき、気泡の存在が超音波場の構造を大きく変えることがわかり、気泡が存在する場での超音波場の圧力分布の解析が今後の課題に残された。

ソノプラズマの効率的生成がソノケミストリーの効率を高めることを確かめるため

に、塩化金酸水溶液から金ナノ粒子を析出させるベンチマークテストを実施した。その結果、パンチングメタル板を挿入しない場合に比べて金ナノ粒子の析出速度は 10 倍近く高まり、本方式の効果が確認された。

また、最終年度には、ソノケミストリーの効率および非平衡性をさらに高めることを目的に、本研究の方式で生成したキャビテーション気泡内で放電プラズマを生成する実験を行った。超音波の周期で点滅するグロー状のプラズマの生成が確認され、放電プラズマで生成したラジカルを内包したキャビテーションバブルが圧壊することによる新しいソノケミストリー反応場の実現に向けての展望が開けた。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

1. 佐々木浩一, 「音響キャビテーションとプラズマ」, 日本機械学会誌 117, 449-452 (2014) (査読無, 解説論文)
2. Y. Iwata, N. Takada, and K. Sasaki, “A simple method for efficient generation of standing cavitation bubbles”, Appl. Phys. Express 6, 127301-1-4 (2013) (査読有)

[学会発表] (計 20 件)

1. 高橋裕太, 佐々木浩一, 「液相レーザーアブレーション誘起キャビテーション気泡周辺での放電現象」, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 2015 年 3 月 11 日～14 日, 東海大学(神奈川県平塚市)
2. Y. Takahashi and K. Sasaki, “Characteristics of electrical discharge in a cavitation bubble induced by liquid-phase laser ablation”, 20th Workshop on Advanced Plasma Processing and Diagnostics, 2015 年 1 月 27 日～28 日, 北海道大学(北海道札幌市)
3. 佐々木浩一, 「プラズマによって生成されるキャビテーションとキャビテーションによって生成されるプラズマ」, 第 7 回超音波とマイクロバブルの相互作用に関するシンポジウム, 2014 年 12 月 19 日, 横浜国立大学(神奈川県横浜市)
4. 佐々木浩一, 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 「パンチングメタル板を用いた音響キャビテーション発生装置におけるソノルミネッセンス」, 第 35 回超音波エレクトロニクス基礎と応用に関するシンポジウム, 2014 年 12 月 3 日～5 日, 明治大学(東京都千代田区)
5. 佐々木浩一, 「レーザーおよび超音波誘起気・液マルチフェーズプラズマの創製とプラズマ診断」, プラズマコンファレンス 2014, 2014 年 11 月 18 日～21 日, 朱鷺メッセ(新潟県新潟市)
6. 高田昇治, 林祐衣, 後藤元信, 佐々木浩

- 二,「水中キャビテーション気泡内で生成された放電プラズマの観察」, プラズマコンファレンス 2014, 2014 年 11 月 18 日～21 日, 朱鷺メッセ(新潟県新潟市)
7. K. Sasaki, Y. Iwata, S. Tomioka, S. Nishiyama, and N. Takada, “Optical emission in a sonoplasma production system with the help of a punching metal plate”, 67th Annual Gaseous Electronics Conference, 2014 年 11 月 3 日～7 日, Raleigh (USA)
 8. 高田昇治, 林祐衣, 神田英輝, 後藤元, 佐々木浩一, 「超音波誘起キャビテーション気泡内での放電現象の観察」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 17 日～20 日, 北海道大学(北海道札幌市)
 9. 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 佐々木浩一, 「パンチングメタル援用ソノプラズマ発生方式における吸収超音波電力の影響」, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 17 日～20 日, 青山学院大学(神奈川県相模原市)
 10. K. Sasaki, “A simple method for producing standing sonoplasmas”, 5th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Application for Nitride and Nanomaterials and 7th International Conference on Plasma-Nano Technology and Science, 2014 年 3 月 2 日～6 日, 名城大学(愛知県名古屋市)
 11. Y. Iwata, S. Nishiyama, S. Tomioka, N. Takada, and K. Sasaki, “Mechanism of efficient generation of cavitation bubbles in a sonoplasma production system assisted by a punching metal plate: effect of power deposition”, 8th International Conference on Reactive Plasmas, 2014 年 2 月 3 日～7 日, 福岡国際会議場(福岡県福岡市)
 12. 佐々木浩一, 「超音波を用いた液中プラズマの生成」, プラズマ・核融合学会九州・沖縄・山口支部第 17 回支部大会, 2013 年 12 月 21 日～22 日, 佐世保高専(長崎県佐世保市)
 13. 佐々木浩一, 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 「パンチングメタル板を用いた定在化音響キャビテーション発生のメカニズム」, 2013 年 11 月 20 日～22 日, 同志社大学(京都府京都市)
 14. K. Sasaki, Y. Iwata, S. Tomioka, S. Nishiyama, and N. Takada, “Mechanism of efficient production of standing sonoplasmas with the help of a punching metal plate”, 66th Annual Gaseous Electronics Conference, 2013 年 9 月 30 日～10 月 4 日, Princeton (USA)
 15. 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 佐々木浩一, 「光マイクロフォンによるソノプラズマ生成装置における超音波強度分布測定」, 2013 年 9 月 16 日～20 日, 同志社大学(京都府京田辺市)
 16. 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 佐々木浩一, 「パンチングメタルを有するソノプラズマ発生装置におけるソノルミネッセンスの時分解撮影」, 第 60 回応用物理学会学術講演会, 2013 年 3 月 27 日～30 日, 神奈川工科大学(神奈川県厚木市)
 17. 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 佐々木浩一, 「パンチングメタルを有するソノプラズマ生成装置におけるシャドウグラフィメーキング」, 第 30 回プラズマプロセッシング研究会, 2013 年 1 月 21 日～23 日, アクトシティ浜松(静岡県浜松市)
 18. 佐々木浩一, 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 「定在化したキャビテーションバブルの効率的生成法の開発」, 第 33 回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム, 2012 年 11 月 13 日～15 日, 千葉大学(千葉県千葉市)
 19. K. Sasaki, Y. Iwata, S. Nishiyama, S. Tomioka, and N. Takada, “An efficient method for producing standing sonoplasmas with the help of a metal mesh”, 65th Annual Gaseous Electronics Conference, 2012 年 10 月 23 日～26 日, Austin (USA)
 20. 岩田悠史, 西山修輔, 富岡智, 高田昇治, 佐々木浩一, 「金属メッシュの挿入によるソノプラズマの効率的生成」, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 11 日～14 日, 愛媛大学(愛媛県松山市)
6. 研究組織
- (1)研究代表者
 佐々木 浩一 (SASAKI KOICHI)
 北海道大学・大学院工学研究院・教授
 研究者番号：50235248
- (2)研究分担者
 富岡 智 (TOMIOKA SATOSHI)
 北海道大学・大学院工学研究院・准教授
 研究者番号：40237110
- 西山 修輔 (SHUSUKE NISHIYAMA)
 北海道大学・大学院工学研究院・助教
 研究者番号：30333628
- 高田 昇治 (TAKADA NORIHARU)
 名古屋大学・大学院工学研究科・技術専門員
 研究者番号：50422788