

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 21 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26249016

研究課題名(和文) 高時間分解計測による超音波キャビテーションの時間領域での解明と粒子分級への応用

研究課題名(英文) Elucidation of acoustic cavitation in time domain by using highly-time-resolved measurement, and application of the results to particle-classification unit process

研究代表者

齋藤 隆之 (SAITO, TAKAYUKI)

静岡大学・グリーン科学技術研究所・教授

研究者番号：10324328

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,000,000円

研究成果の概要(和文)：水中に照射した超音波により発生する超音波キャビテーション気泡と水中に懸濁あるいは沈降している粒子との相互作用、運動メカニズムを明らかにした。これらの基礎研究成果を利用して数百マイクロメートルから2mmの固体粒子を径と密度の差により精密に分級・分離する基礎技術を開発した。開発した技術の分級精度を高めるとともに、プルシアンブルー粒子の優れたセシウム吸着特性とを融合することにより、セシウムの除染技術に応用する手法を開拓した。  
これらの研究成果は、トップクラスの国際ジャーナルに掲載されている。

研究成果の概要(英文)：The dynamics of solid particles that were dispersed in water under irradiation of ultrasound was investigated experimentally, as well as the dynamics of acoustic cavitation oriented bubbles (ACOBs). Furthermore, the interaction between the solid particles and ACOBs was investigated. On the basis of the above fundamental results, a novel capture/separation technology that precisely separates particles dispersed in water by the particle's diameter and density was developed.

We applied these to how to selectively decontaminate cesium from polluted water and developed new and basic technology of integrating our ultrasound technology and a Prussian blue technique. Our results were published in highly ranked international journals.

研究分野：混相流，光応用流体計測

キーワード：流体工学 混相流 気泡 超音波 キャビテーション ソノルミ 時間分解計測 粒子分離・分級

1. 研究開始当初の背景

1.1 学術的背景

従来の混相流研究は、主として空間領域に着目したものであり、時間領域に着目した研究例は極めて少ない。対象とする現象に合致した高い時間分解能で気泡に関わる物理素過程を研究し、新たな混相流物理を開拓する必要がある。超音波キャビテーションは時間設定の再現性の高さからその格好の研究対象である。

1.2 社会的背景

研究代表者が見出した kHz 帯域の超音波を利用した粒子操作・分離・分級は、発生した超音波起源のキャビテーション微小気泡に作用する音響放射力を利用するものであり、操作できる粒子径は数十  $\mu\text{m}$  から 1mm 程度である。プルシアンブルー二次粒子の粒径範囲と合致することから、セシウムを含む廃水処理に基盤技術(減容化技術)から貢献することができる。

2. 研究の目的

申請者らが開発してきた独自の高性能時間分解計測技術、光線追跡シミュレーションなどをさらに高度・高精度化し、  
 ①これまで着目されてこなかった kHz 帯域超音波によるキャビテーションの極短時間現象(気泡核生成、ソノルミ等)をフェムト秒~ピコ秒の時間分解能で、またキャビテーションの動力学(気泡収縮、拡散、周囲液相運動、音響放射力)をサブナノ秒~マイクロ秒の時間分解能で統合的に明らかにする。  
 ②溶存ガス種とその濃度によるこれらの現象の相違を素過程から明らかにする。  
 ③得た知見に立脚して、従来の MHz 帯域超音波では分離・分級が不可能であったサブミリ~ミリメートルの粒子を kHz 帯域超音波により、その粒径差と密度差により精密に分離・分級する技術を創製する。

3. 研究の方法、結果ならびに考察

3.1 極短時間の光学物理素過程(ソノルミネッセンスの発光計測)

独自に設計・製作したソノルミネッセンス生成装置を用いて、図1に示す計測方法によりソノルミネッセンスを測定した。液相にはアルゴンを溶存させた純水を用いた。ICCDカメラ付き分光器により時間平均発光分光測定を、またストリークカメラにより発光の

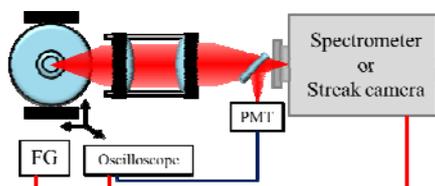


図1 発光時間履歴測定系

時間履歴を計測した。

図2に1 nsの時間幅で測定した発光時間履歴を示す。時間分解能は1psであった。同図に示すように高時間分解能測定では発光信号が離散的になっている。これは各時間で検出する発光強度が単一光子前後まで低下したためだと考えられる。

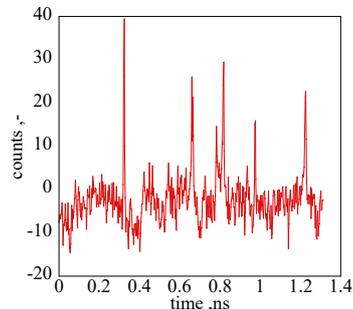


図2 発光時間履歴(1ns幅, 分解能1ps)

3.2 粒子凝集体内部のソノルミネッセンスの時間分解計測

ルミノールを溶かした超純水・空気溶存条件下で、粒子凝集体外部のソノルミネッセンスを、共焦点系を組み込んだ光電子増倍管により、また粒子凝集体内部のソノルミネッセンスを独自に開発した光ファイバプローブにより計測した(図3)。

図4に粒子凝集体内部のソノルミネッセンス強度の時間履歴を示す。粒子凝集体内部にもソノルミネッセンスが観測されることから、粒子凝集体内部においても活発に超音波キャビテーション気泡が生成され、粒子間に引力(第2ビヤークネス力)が作用して、粒子凝集が維持されることが分かった。

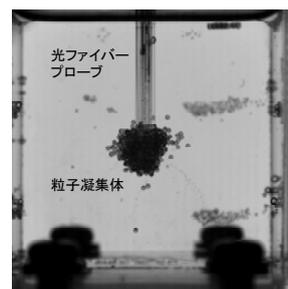


図3 粒子凝集体内部のソノルミ計測  
 粒子: ポリスチレン製, 粒径: 1000 $\mu\text{m}$ ,  
 密度: 1.06g/cm<sup>3</sup>, 粒子レイノルズ数: 15.1,  
 質量: 0.4g/個

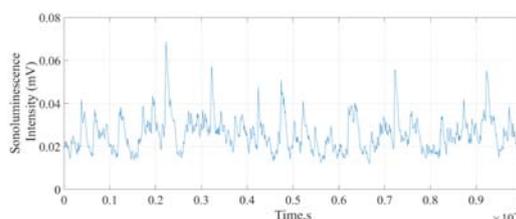


図4 粒子凝集体内部のソノルミネッセンス (ルミノール溶液・空気溶存条件)

なお、ピコ秒の時間分解能の計測結果と考察に関しては、論文発表前であることから、本報告では省略する。

### 3.3 音響的・流体力学的素過程

#### 3.3.1 溶存気体種とその濃度の制御

水に溶存する気体種とその濃度により、粒子凝集形態が大きくことなることが分かった。このため、水に溶存する気体種とその濃度を超音波振動と真空脱気とを併用して精密に制御する供試水製造装置を自作した。表1に示す5種類の供試水を利用して、精密な温度・圧力管理下で、各種実験を実施した。

表1 供試水の特性

Condition (Gas components)		Gas concentration [mM/L]	
GC1	Air-saturated water	0.03	0.26
GC2	CO <sub>2</sub> concentration-control water	20.7	0.10
GC3	Degassed water	0.03	0.10
GC4	CO <sub>2</sub> concentration-control water without degassing process	20.0	0.13
GC5	CO <sub>2</sub> -saturated water	28.9	0.05

#### 3.3.2 粒子凝集体の可視化実験

球状粒子凝集体、チェーン状粒子凝集体ならびに単一粒子の運動およびキャビテーション気泡の運動を可視化計測した。高速ビデオカメラとパルスレーザーおよび関数発生器とを同期させて、時間分解撮影した。なお、超音波振動子の発振周波数は 19.5kHz ~ 20.5kHz とした。

##### (1) 粒子運動とキャビテーション気泡の運動に関する結果と考察

図5は、単一粒子（ポリスチレン粒子：PS粒子とそれに付着したキャビテーション気泡を時間分解計測した一例である。キャビテーション気泡は数個から十数個の微小な気泡から形成されており、印加した超音波と同期して収縮を繰り返した。このキャビテーション気泡の運動方向と粒子の運動方向とが一致しており、第1ビヤークネス力を受けてキャビテーション気泡が音圧定在波の腹に向かうことにより粒子が移動して行くことが分かった。

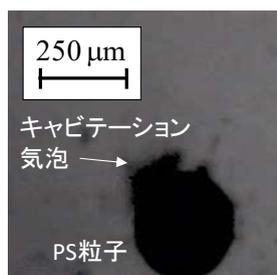


図5 PS単一粒子と粒子表面に付着したキャビテーション気泡

図6は、GC1とGC2における粒子凝集体の時間分解計測結果の一例である。粒子が蜜に凝集し、かつ凝集・離散を繰り返した。

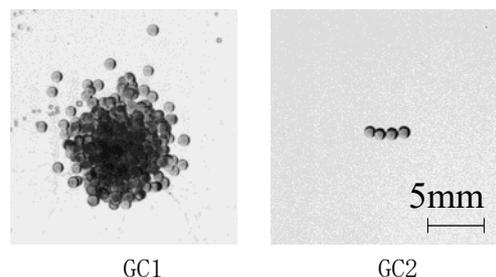


図6 粒子凝集体の時間分解計測結果の一例

##### (2) 粒子に付着したキャビテーション気泡の界面振動特性に関する結果と考察

粒子凝集形態の相違が何に起因するかを考察するために、キャビテーション気泡の界面振動を、その球等価径により評価した。図7はキャビテーション気泡の正規化球等価径をGC1とGC2とで比較したものである。CO<sub>2</sub>を含むGC2では滑らかな膨張と収縮であるのに対して、GC1では膨張に変動があり、収縮が急激であることと after bouncing が観察される。これらの相違が粒子に付着したキャビテーション気泡に作用する第2ビヤークネス力の相違と気泡近傍の液相運動の相違を生み出すことにより、粒子の凝集形態に相違が発生するものと考えられる。

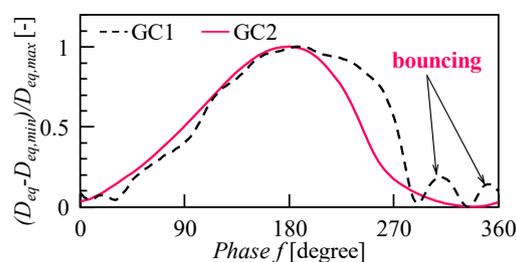


図7 溶存ガス種とその濃度による気泡界面振動の相違

##### (3) 溶存ガス種とその濃度による粒子凝集形態の相違に関する結果と考察

表1に示した5種類の溶存気体条件（GC1, GC2, GC3, GC4, GC5）に対応する粒子の凝集形態を図8に示す。溶存ガス濃度が低いGC3（脱気水）では、キャビテーション気泡が発生せず、粒子も凝集しなかった。すなわち、粒子に直接作用する音響放射力は極めて小さいと考えられる。

空気が飽和したGC1では、超音波の印加とともに、水槽底に沈殿していた粒子が、音圧定在波の腹付近に即座に上昇し、球状の粒子凝集体を形成する。水槽に入れたPS粒子の約80%が凝集する。

空気の溶存濃度が低く、CO<sub>2</sub>が溶存したGC2では、球状の粒子凝集体が形成されず、3~

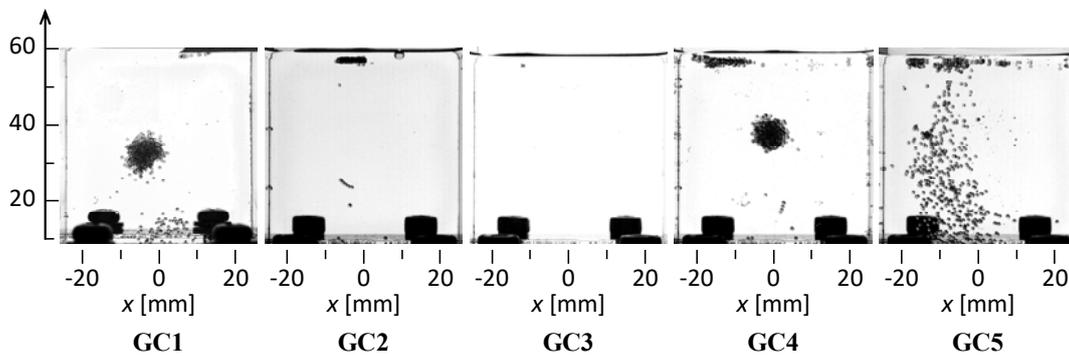
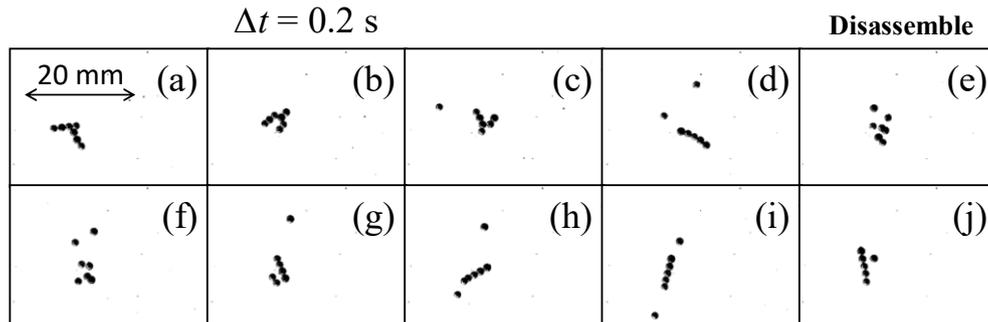


図8 溶存ガス種とその濃度による粒子凝集形態の相違



Disassemble

図9 GC2におけるチェーン状粒子凝集体の経時変化

8個のPS粒子がチェーン状に凝集する。3, 5, 7の奇数個で構成される頻度が高い。

空気が飽和し、CO<sub>2</sub>が溶存したGC4では、球状の粒子凝集体とチェーン状の粒子凝集体の双方が形成される。空気の溶存濃度が低く、CO<sub>2</sub>が飽和したGC5では、球状の粒子凝集体とチェーン状の粒子凝集体はともに形成されず、粒子は水面にトラップあるいは水槽内を循環する。

3.2の光ファイバプローブによる粒子凝集体内部のソノルミネッセンスの結果ならびに3.3.2(2)の結果から、粒子表面に付着したキャビテーション気泡の界面振動の相違により、凝集形態が変化すると考えられる。図9は、GC2における鎖状粒子凝集体の経時変化の一例である。7個の粒子が分裂と凝集を繰り返している。音圧の空間分布の計測結果を考慮すると、音圧分布の変動と音圧勾配によりこの興味深い現象が生じていると考えられる。

(4)チェーン状粒子凝集体を形成するとキャビテーション気泡の振動特性に関する結果と考察

球状粒子凝集体内部の粒子凝集メカニズムを推定するために、球状の粒子凝集体とチェーン状の粒子凝集体の双方が形成されるGC4で、粒子に付着したキャビテーション気泡の振動特性を計測した。図10にその一例を示す。3個のPS粒子間にトラップされたキャビテーション気泡は完全に同期し、第2ビヤークネス力が作用していることが分かった。一方、気泡の収縮振幅に相違があり、これが粒子凝集にアンバランスを生む原因

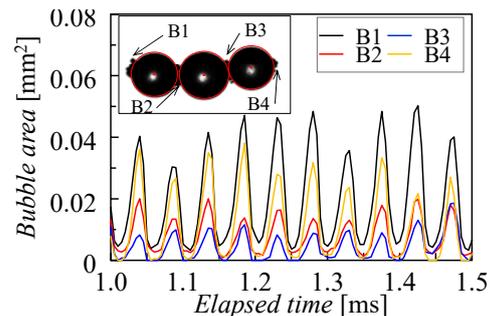


図10 粒子凝集体に付着したキャビテーション気泡の振動特性 (GC4)

と考えられる。

粒子凝集体内部のソノルミネッセンスの計測結果とこの気泡の界面振動の計測結果から、球状粒子凝集体内部でも同様の現象が発生していると考えられる。これが、球状粒子凝集体における粒子運動の変動を生じさせる原因と考えられる。

### 3.3.3 液相速度分布に関する結果と考察

液相の速度分布計測には、シーディング粒子として粒径8μmのロードミンB粒子を用い、シャープカットフィルタを介することにより、キャビテーション気泡からのレーザーの散乱光をカットした。また、流速計測には、空間フィルター粒子画像法を用いた。

粒子や粒子凝集体には流体抗力が作用する。これを計算するために、粒子を加えない状態で、水槽内部における液相速度の分布を上述の方法により、各ガス溶存下で計測した。

脱気したGC3では、液相運動は発生していない。すなわち、本研究における超音波照射

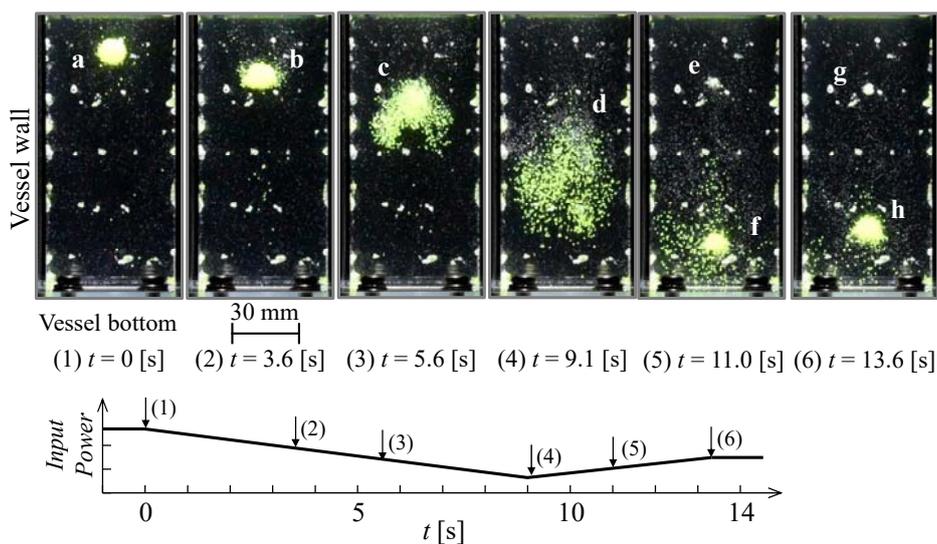


図 1 1 印加超音波の振幅制御による粒径の異なる粒子の分離と分級

条件では、液相に直接作用する音響放射力は極めて小さいことが分かった。液相運動は、発生したキャビテーション気泡の浮力とキャビテーション気泡に作用する第 1 ビヤークネス力によるものであることが分かった。

### 3.3.4 粒子群に作用する力の考察

粒子群運動、液相運動から粒子に作用する力を求めて、間接的に粒子群に作用する音響放射力を求めた。表 2 にチェーン状粒子凝集体に作用する力を、表 3 に球状粒子凝集体に作用する力をまとめる。気泡に作用する音響放射力（第 1 ビヤークネス力）が支配的であることが分かった。

表 2 チェーン状粒子凝集体に作用する力

Force	[ $\mu\text{N}$ ]	Ratio to $F_g$
$F_g$	1.2	-
$F_B$	0.027	2.3%
$F_D$	0.32	27.5%
$F_{ac,b}$	0.809	70.2%

表 3 球状粒子凝集体に作用する力

Force	[ $\mu\text{N}$ ]	Ratio to $F_g$
$F_g$	178.3	-
$F_B$	7.86	2.7%
$F_D$	18.5	10.4%
$F_{ac,b}$	155.0	86.9%

## 4. 研究成果

以上のように、20kHz 程度の超音波によって形成されるキャビテーション気泡、発生するソノルミネッセンスを高い時間分解能で計測するとともに、キャビテーション気泡の界面振動特性と溶存ガス種とその濃度ごと

に明らかにした。また、粒子の凝集形態、粒子に作用する力を解析した。

これらの結果を基に、図 1 1 に示す新しい粒子の分離・分級技術を創製した。印加超音波の振幅を制御することにより密度が同じで粒径の異なる粒子をその径ごとに分離・分級することができた。セシウムを吸着したプルシアンブルー粒子をその粒径と密度ごとに分離・分級する基盤技術であり、システム化することで、プルシアンブルー粒子の減容化を安全に行う技術と成り得るものである。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者に下線)

[雑誌論文] (計 2 1 編) \*責任著者

- 1) Muramatsu, H. and \*Saito, T., An innovative unit operation of particle separation/classification by irradiating low-frequency ultrasound into water, *AIChE Journal*, **64**, 1564-1572 (2018).
  - 2) Kuwahara, A., Aiba, Y., Nankawa, T. and \*Matsui, M., Development of isotope analytical method based on diode laser absorption spectroscopy using arc-jet plasma wind tunnel, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, in print, (2018).
  - 3) Muramatsu, H. and \*Saito, T., The relationship between bubble motion and particle flocculation pattern under 20-kHz-ultrasound irradiation in water, *Chemical Engineering Science*, **170**, 195–203 (2017).
  - 4) \*Matsui, M. and Yamada, T., High sensitive translational temperature measurement using characteristic curve of second harmonic signal in wavelength modulation spectroscopy, *Review of Scientific Instruments*, **88**, 013105, (2017).
- ほか 1 7 編

[学会発表] (計 2 0 9 件)

◇国際会議 (計 8 6 件) \*責任著者

- 1) Muramatsu, H. and \*Saito, T., The relationship between bubble motion and particle flocculation pattern under 20-kHz-ultrasound irradiation in water, 13th International Conference on Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Reactor Engineering (GLS-13), 2017. Invited.
- 2) Yamada, T., and \*Matsui, M., Evaluation of Time Resolution in Translational Temperature Measurement by Wavelength Modulation Spectroscopy, 11st International Symposium on Applied Plasma Science, 2017.
- 3) Yamada, T., \*Matsui, M., Time Resolution of Electron Density Measurement using Mach Zehnder Interferometer in Arc Discharge Plasma, 69th Annual Gaseous Electronics Conference, 2016.
- 4) Muramatsu, H., Yanai, S., Mizushima, Y. and \*Saito, T., A novel particle separation technique using 20-kHz-order ultrasound irradiation in water, 9th International Symposium on Cavitation (CAV2015), 2015.  
ほか 8 2 件.

◇国内学会 (計 1 2 0 件)

- 1) 相羽祇亮, 桑原彬, 松井信, 塩化ストロンチウム粉末を混合したアルゴンアークジェットの発光スペクトルの相対強度測定, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年.
- 2) 小野貴裕, 松井信, キセノン・アルゴン混合比のレーザー維持プラズマ生成条件への影響, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 2017 年.
- 3) 村松浩也, 齋藤隆之, Consideration of forces acting on a particle held in a sound pressure field, 化学工学会第 82 回年会講演会, 2017 年.
- 4) 村松浩也, 齋藤隆之, 水中に照射した kHz 帯超音波による粒子凝集形態に関する研究, 混相流シンポジウム 2016, 2016 年.  
ほか 1 1 6 件.

展示会 (計 3 件)

- 1) 齋藤隆之, 村松浩也, An innovative solid particle separation-classification process in a liquid-solid multiphase system, 9th International Conference and Expo on Separation Techniques, 2018.
- 2) 齋藤隆之, 村松浩也, 低周波超音波を利用した粒子の分離・分級装置, 静岡大学新技術説明会, 2016 年.
- 3) 齋藤隆之, 村松浩也, 低周波超音波を利用した粒子の分離・分級装置, イノベーション・ジャパン 2015~大学見本市&ビジネスマッチング~, 2015 年.

図書 (計 3 件)

- 1) 齋藤隆之ほか, 日本機械学会編・流体計測法応用編, 2. 6. 2 光ファイバプローブ法,

印刷中, (2018).

- 2) 齋藤隆之ほか, 日本機械学会編・流体計測法応用編, 2.7.1 LIF による CO2 濃度と PIV 速度分布同時計測, 印刷中, (2018).
- 3) 齋藤隆之ほか, 海水の疑問, 日本海水学会編, 上ノ山周編著, 成山堂書店, 93-98, (2017).

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 粒子分離方法及び粒子分離装置  
発明者: 齋藤隆之、村松浩也、矢内沙祐里、水嶋 祐基  
権利者: 国立大学法人静岡大学  
種類: 特許  
番号: 特願 2015-243292  
出願年月日: 平成 27 年 12 月 14 日  
国内外の別: 国内  
○取得状況 (計 0 件)

[その他]

◇受賞 (計 2 1 件)

研究代表者 (計 2 件)

- 1) 齋藤隆之, 日本機械学会賞, 流体工学部門賞, 光ファイバーをはじめとする高度な光学計測による気液二相流現象の解明とその工学的応用, 2015 年 11 月 7 日.  
ほか 1 件.

研究代表者の指導学生 (計 1 3 件)

- 1) 矢内沙祐里, 日本機械学会, 学生優秀講演賞, 溶存気体成分に依存した超音波粒子凝集過程の可視化, 日本機械学会第 93 期流体工学部門講演会, 2015 年 11 月 7 日.  
ほか 1 2 件.

研究分担者の指導学生 (計 6 件)

- 1) Kuwahara, A., Aiba, Y., Nankawa, T., and Matsui, M., 2018 Winter Conference on Plasma Spectrochemistry, Elena Dodova and John Danku Memorial Award, Development of Isotope Analytical Method Based on Diode Laser Absorption Spectroscopy Using Arc-Jet Plasma Wind Tunnel, 2018 年 1 月 8 日.  
ほか 5 件.

◇ホームページ等

齋藤研究室

URL: <http://flow.eng.shizuoka.ac.jp/>

静岡大学グリーン科学技術研究所

URL: <http://www.green.shizuoka.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齋藤 隆之 (SAITO, Takayuki)

静岡大学・グリーン科学技術研究所・教授  
研究者番号: 1 0 3 2 4 3 2 8

(2) 研究分担者

松井 信 (MATSUI, Makoto)

静岡大学・工学部・准教授

研究者番号: 9 0 5 4 7 1 0 0