

ソノケミストリーのための基礎超音波

メタデータ	言語: 出版者: 日本ソノケミストリー学会 公開日: 2023-11-30 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 崔,博坤 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10291/0002000130

ソノケミストリーのための基礎超音波

明治大学名誉教授 崔 博坤

本稿は、2022年3月、9月、および2023年3月の3回にわたって日本ソノケミストリー学会誌に掲載した解説文「ソノケミストリーのための基礎超音波」をまとめたものである。タイトルにはソノケミストリーとあるが、超音波の物理的基礎を丁寧に記述しているので、ソノケミストリー研究者に限らず一般の読者で超音波の基礎を学びたいという方には適しているのではないかと思う。掲載にあたりお世話になった日本ソノケミストリー学会編集委員の方々に謝意を表します。

出典：日本ソノケミストリー学会誌 Vol. 16, No. 1 (March 2022) pp.1-14.
Vol. 16, No. 2 (September 2022) pp.1-15.
Vol. 17, No. 1 (March 2023) pp.1-15.

目次

(第1回)

1章 超音波とは

- | | |
|----------------|---|
| 1.1 気体・液体中の縦波 | 4 |
| 1.2 音波の周波数と断熱性 | 5 |
| 1.3 音波の種類 | 6 |

2章 波動方程式

- | | |
|------------------|---|
| 2.1 気体・液体中の波動方程式 | 7 |
| 2.2 平面波と球面波 | 9 |

3章 音速

- | | |
|------------|----|
| 3.1 気体中の音速 | 11 |
|------------|----|

コラム 1 (ヘリウムを吸い込んで声をだすとドナルドダックのような 高い声になる。なぜだろうか?)	11
3.2 液体中の音速	12
3.3 固体中の波動方程式と音速	14
(第 2 回)	
4 章 音波の吸収と緩和現象	
4.1 音波吸収の表し方	17
4.2 音波吸収の原因	18
5 章 固有音響インピーダンスと定在波	
5.1 音波の反射	21
5.2 定在波	23
5.3 試料容器中での定在波	23
6 章 超音波の発生	
6.1 圧電効果 (ピエゾ電気効果, Piezoelectric effect)	27
6.2 超音波音場	28
6.3 超音波振動子	30
6.4 集束型振動子とホーン型振動子	31
コラム 2 (ポール・ランジュバンについて)	32
(第 3 回)	
7 章 超音波の測定	
7.1 超音波の検出	33
7.2 音速と吸収の測定法	36
7.3 音場分布の測定	37
7.4 超音波パワーの測定	38
8 章 音響キャビテーション	
8.1 気泡の生成と気泡振動	40
8.2 気泡にはたらく力(ビャークネス力)	42
8.3 気泡を含む液体中の音波伝搬	44
コラム 3 (ソノルミネセンス)	46
参考文献	47

はじめに

スマホや家電では、その動作原理を理解しなくても使いこなすのに何の問題もない。しかし、研究手段として何かを用いるときは、その基本を理解せずに新しい成果を望むことはできない。ソノケミストリーの研究を始めて間もない方、あるいはこれから研究しようとしている初心者の方に、これから 3 回に分けて超音波の基礎を解説する。市販されている超音波のテキストは、電気系の学生を対象にしたものがほとんどで、化学や生物を専攻してソノケミストリーを目指す人には敷居が高いのではないかと思う。また、一般向けに超音波を解説した本もあるが、正確な知識を学ぶには全く物足りない。超音波は波動であるから数式をある程度使わざるを得ないが、大学 1 年次に勉強した物理学テキストを参考にすれば理解できるように書くつもりである。ただ、著者は物理学の立場から超音波を長年研究してきたので、生物・化学的な常識に欠けている。おかしな箇所は適時ご指摘いただければ有り難い。

Basic Ultrasonics for sonochemistry

Pak-Kon Choi (Emeritus Professor, Meiji University)

E-mail: pkchoi@meiji.ac.jp

Abstract: Irradiation of ultrasound produces physical, chemical and biological effects to a propagating medium. Knowledge of basic ideas of ultrasonics is needed to apply ultrasound properly to chemical or biological materials and also helps to understand its effectiveness. A brief description of basic ultrasonics is given here for students who intend to study sonochemistry and also for beginners who are engaging in the research of sonochemistry. Contents include 1 What is ultrasound? 2 Wave equation, 3 Sound velocity, 4 Sound absorption and relaxation phenomenon, 5 Characteristic acoustic impedance and standing waves, 6 Generation of ultrasound, 7 Measurement of ultrasound, and 8 Acoustic cavitation.

1章 超音波とは (What is ultrasound?)

1.1 気体・液体中の縦波

空気中にある薄板が図 1.1(a)のように前後に振動しているとしよう。板が右側に動くと、接している空気分子は押されて分子が密の状態になる。板が反対に動くと、今度は分子が希薄になる。分子は隣の分子につきつぎに衝突していくので、密と疎の状態が右側に伝わっていく。これが音の波であり、疎密波あるいは縦波(longitudinal wave)ともよばれる。図のように空間的に粗密が変化し、また空間のある一点に固定して考えても時間的に同様に変化していることが波の特徴である。ここで注意したいのは、何が変位するかということである。空気の変位というとき、個々の分子の変位を指すわけではない。一個の分子はランダムな方向に熱運動しているが、ある程度の数の分子のかたまりをみると、熱運動に音波が加わって図 1.1(a)のように密度の大小が生まれてくるのである。このかたまりを**粒子**(particle)といい、“粒子の変位”などと表現する。密から次の密までの距離を波長という(図中の λ で示す)。疎密状態が伝わる速さは、温度や分子の質量に依存している。分子がある面に衝突する力が圧力になるので、分子が密な箇所では圧力も大きい。圧力は密度よりも測定しやすいので、圧力を音波の変数にするのがふつうである。このときの全圧力 P から大気圧(静圧) P_0 を引いたものを**音圧**(sound pressure)とよび、

$$p(t, x, y, z) = P - P_0 \quad (1-1)$$

のように、時間 t と空間座標 (x, y, z) の関数で表される。図 1.1(b)は、(a)の場合(ある時間 T_0)に相当する音圧 p の大きさを正弦波で表したものである。(c)、(d)は時間が Δt ずつ遅れてそれぞれ $T_0 + \Delta t$ 、 $T_0 + 2\Delta t$ の場合の圧力波形を表す。波が空間を進む速さを v とすると、 $v\Delta t$ だけ波のピークが右方向へずれていく。 v はある特定の位相が動く速さなので**位相速度**(phase velocity)とよばれる。粒子の変位はベクトル $\mathbf{u}(u_x, u_y, u_z)$ で表され、粒子は**粒子速度**(particle velocity)

$$\dot{\mathbf{u}} = \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} \quad (1-2)$$

で狭い範囲を前後に動いているだけである。この位相速度と粒子速度は全く異なるものなので注意する必要がある。

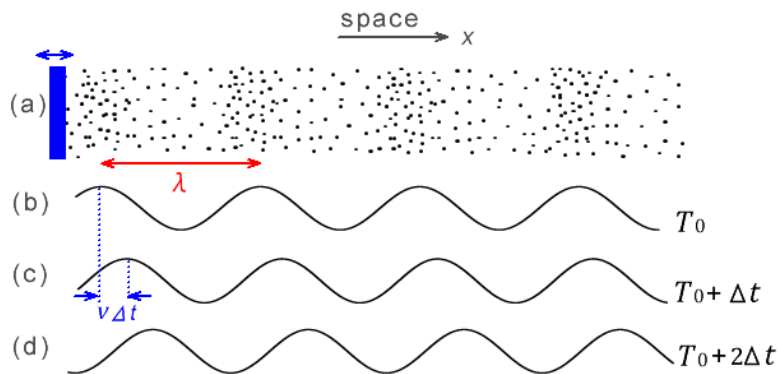


図 1.1 空気中の粗密波(縦波)の伝搬

ある位置に固定して考えて、そこを1秒間に通過する波の数を周波数 f という。 x 方向に進む波の変位 u を簡単な式で表現すると

$$u = A \cos 2\pi \left(ft - \frac{x}{\lambda} \right) = A \cos(\omega t - kx) \quad (1-3)$$

となる。 A は振幅で、 $\omega = 2\pi f$ を角周波数、 $k = 2\pi/\lambda$ を波数という。(1.3)式は高校物理でも習う式であるが、それを導くには後述の波動方程式が必要である。ここでは空気中を考えたが、液体中で考えても全く同様である。液体では粘性が表れるが、粘性は音波の減衰に関係する。(気体でも小さいながら粘性はある)なお、気体、液体を合わせて流体とよぶ。

1.2 音波の周波数と断熱性

我々が聞くことのできる音の周波数は、一般に20 Hzから20 kHzと言われている。これより低い音は超低周波音と言われ、高速道路橋やコンプレッサーなどから出る超低周波音は人体に頭痛などの悪影響を及ぼすことがある。20 kHz以上の高い音を一般的に超音波というが、その境界周波数はあいまいである。では、どこまで高い周波数の音が存在できるだろうか。ソノケミストリーで使われる超音波はせいぜい1 MHzであるが、理論的には10 T(テラ)Hz、つまり 10^{13} Hzくらいが高い周波数の限界である。図1.2に、この限界周波数のときの波の様子を示した。丸印は結晶中の原子を表している。原子間隔が $1/2$ 波長、つまり隣り合う原子同士が逆位相の関係になっている。わかりやすくするため原子の変位は横方向に描いてある。原子の間隔を0.3nm、音速を5000 m/sとすると、このときの周波数が約10 THzになるというわけである。THzまでいなくてもそんなに高い周波数の音は役に立つのか、と思うかもしれないが、皆さんが毎日使っているスマホの中ではGHz(10^9 Hz)くらいの音が役に立っている。数多くの電波から特定のものを選び出すフィルターの役目をはたす弾性表面波素子(SAW filter)でそれが使われている。

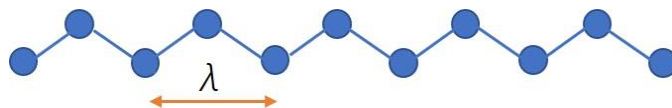


図1.2 高周波数限界での音波の様子。丸印は原子を表す。

次に、音波の断熱性について考える。図1.1(a)のところで、空気が密のところでは圧力が高くなると述べたが、そのとき温度はどうなるのか、という問題である。結論から言うと、密部分ではわずかに温度が高く、疎部分ではわずかに温度が低くなる。高校物理で等温過程、断熱過程について学んだはずである。大きな注射器に空気が入っているとしよう。針先はふさいで空気が漏れないようにしておく。ピストンを非常にゆっくり押し縮めると、ピストンのした仕事(エネルギー)は注射器から外側に熱になって逃げてしまうので、ピストン中の空気の温度は変化しない。逆にピストンを素早く押し縮めると、エネルギーは外側に逃げる間もなく注射器内の空気の温度を上げるのに費やされる。前者が等温過程、後者が断熱過程である。自転車タイヤに空気を入れるとき、素早くポンプを押すとタイヤが熱くなるはずである。これも断熱過程の例である。音波の伝搬が等温的あるいは断熱的のどちらになるかは、熱の逃げる速さ(熱伝導率)とピストンを押

す速さ（音波周期）で決まる。音波の周波数が低いとき、音波周期は大きいが波長も大きくなる。熱の逃げ方は距離の2乗に比例して遅くなるので、熱の逃げの方がずっと遅くなる。つまり断熱的である。音波周波数が高くなると、波長が小さくなるので徐々に断熱条件がくずれ方向になるが、それがくずれるのは波長が分子サイズくらいのときである。つまり図 1.2 の状況に近いときである。結論として、我々が扱う周波数の超音波は断熱過程にしたがう、と考えて間違いない。音波伝搬とは別の問題だが、この断熱性は、キャビテーション気泡が膨張収縮するときにも問題になってくる。もしもキャビテーション気泡の収縮がゆっくりで等温過程であるならば気泡内は高温にはならず、ソノケミストリーという分野も存在しないことになってしまう。

1.3 音波の種類

1.1 節で縦波について説明したが、音波にはその他いくつかの種類がある。図 1.3(a)は右方向に伝わる縦波を模式的に表す。青い線は“粒子”の変位を表すと考えてほしい。線が詰まっている箇所は圧力が高い（密度が大きい）ことを表している。図 1.3(b)では、伝搬方向に対して垂直な変位をもつ横波を表している。横波では密度は変化しない。図 1.3(c)は、自由表面を伝わる表面波である。この波の特徴は、表面に近いところだけにエネルギーが集中し、深い場所では変位しないことである。深さが1波長の長さに等しい部分にエネルギーの約 90%が集中している。（海面で考えると、波がいくら荒れても深いところは静かである。）

気体、液体、ゲル・生体組織、固体という伝搬媒質ごとにどんな波が存在できるかを表 1.1 にまとめた。ゲルと生体組織を別にした理由は、弾性的性質でみると液体と固体の中間の性質をもっているからである。また、典型的な物質の音速も示した。

まず、縦波はすべての媒質で伝搬できる。横波は、気体や液体では伝搬できず、形のある物質で伝搬できる。ゲルとして、お菓子のプリンやゼリーを例にとると横波速度は 1 m/s 程度と非常に小さい。生体組織でも 10~30 m/s である。ガラスなどの固体では 2000~3000 m/s であることを考えると、横波速度が小さい（後述のずれ弾性率が小さい）ことがゲル・生体組織の特徴を最もよく表すことになる。最後の表面波は種類が多い。液体では波長が大きい場合の重力波（海面の波）、波長が小さい場合の表面張力波が知られている。ゲル・生体組織では弾性波と擬似表面張力波（弾性と表面張力が共存する）が伝搬する。固体の表面波は弾性表面波あるいはレーリー(Rayleigh)波とよばれる。板状の場合はラム(Lamb)波とよばれる。レーリー波は分散性（周波数

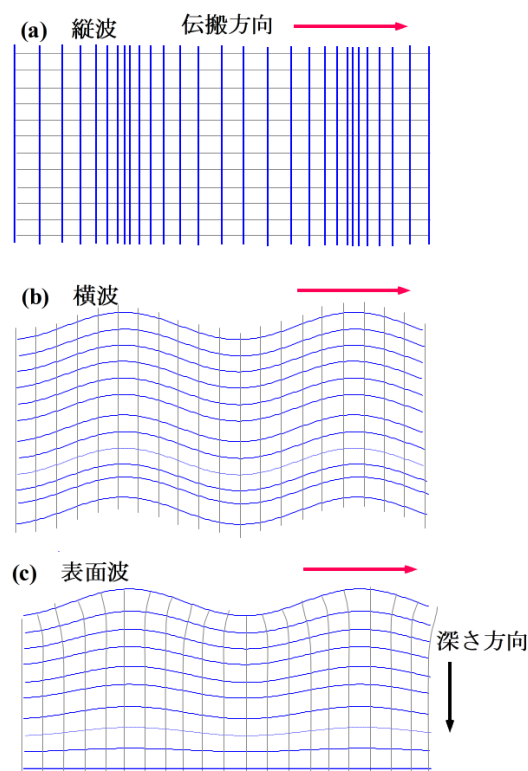


図 1.3 縦波、横波、表面波の粒子変位

によって音速が変わる現象)がないが、ラム波では大きな分散性がある。弾性表面波は通信機器や地震の分野で詳細に研究されている。

表 1.1 種々の媒質を伝搬する音波の種類

気体	縦波 (空気 : 340 m/s)	---	---
液体	縦波 (水 : 1480 m/s)	---	表面波 (重力波, 表面張力波)
ゲル, 生体組織	縦波 (約 1500 m/s),	横波 (数 m/s~数 10 m/s)	表面波 (擬似表面 張力波, 弾性波)
固体	縦波 (石英ガラス : 5970 m/s)	横波 (石英ガラス : 3760 m/s)	表面波 (Rayleigh 波) 板波 (Lamb 波) など

2章 波動方程式 (Wave equation)

2.1 気体・液体中の波動方程式

おもりとバネを交互につないだ図 2.1 のようなものを考えてみよう。左端のおもりをわずかに左右に揺らすと、その振動がバネを通して右方にどんどん伝わっていくことがイメージできるであろう。これは図 1.1(a)で示した空気中の縦波をモデル化したものである。このとき振動が伝わる速さは、何で決まるであろうか。おもりの質量 m が大きければ遅く、バネ定数 k が大きければ (バネが強ければ) 速く伝わるという予想がたてられるはずである。おもりの質量は**慣性**、バネ定数は**復元力**という基本的な概念と結びついている。では、空気中の縦波で慣性と復元力に相当するものは何であろうか。それは、空気の密度と弾性である。待てよ、空気に弾性があるのか、と不思議に思うかもしれない。注射器の先端をふさいでピストンを押してみると、相当力を入れないと押せないことがわかる。これは空気に弾性がある証拠である。つまり空気の体積を一定に保ったまま一様に力かけるときのみ弾性が生じる。空気の弾性を表す体積弾性率 K を、微小な圧力変化 dP と体積ひずみ dV/V の比で定義する。つまり

$$K = -\frac{dP}{dV/V} = -V \frac{dP}{dV} \quad (2-1)$$

圧力をかけると体積は小さくなるので、マイナスをつけて K が正になるようにしてある。以上のことは液体でも同様に成り立つ。



図 2.1 おもりとバネからなる縦波のモデル

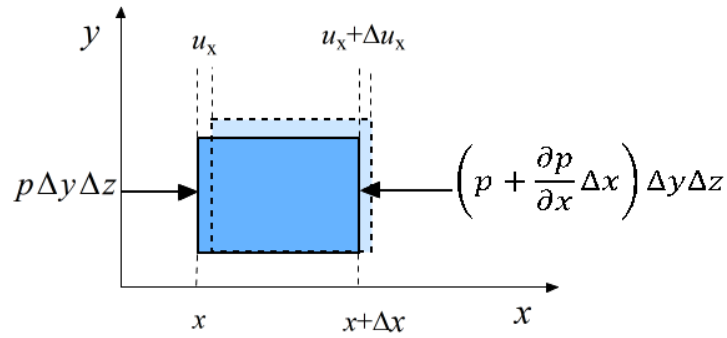


図 2.1 微小な体積要素にかかる圧力と変形

上のことを念頭において、音波の伝搬の基本式と音速を導いてみる。気体（液体）の中に、3辺の長さが $\Delta x, \Delta y, \Delta z$ の小さな体積要素を考える。図 2.1 はわかりやすくするため xy 平面で書いたが、 z 軸方向にも拡張して考えてほしい。音波がかかることによって $\mathbf{u}(u_x, u_y, u_z)$ だけ変位すると考えると、 Δx の長さは $\Delta x + \Delta u_x = \left(1 + \frac{\partial u_x}{\partial x}\right)\Delta x$ となる。 y, z 方向も同様に考えて、全体積 $\Delta V = \Delta x \Delta y \Delta z$ は以下のように変化する。

$$\begin{aligned} \Delta V' &= \left(1 + \frac{\partial u_x}{\partial x}\right)\Delta x \left(1 + \frac{\partial u_y}{\partial y}\right)\Delta y \left(1 + \frac{\partial u_z}{\partial z}\right)\Delta z \\ &\approx \left(1 + \frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} + \frac{\partial u_z}{\partial z}\right)\Delta x \Delta y \Delta z \end{aligned} \quad (2-2)$$

第 2 式に移行するとき、変位は小さいとして 2 次以上の微少量は無視した。したがって、体積変化の割合は

$$\delta = \frac{\Delta V' - \Delta V}{\Delta V} = \frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} + \frac{\partial u_z}{\partial z} = \text{div } \mathbf{u} \quad (2-3)$$

となる。ここで div (divergent, 発散) という記号が出てきたが、ベクトルの各成分をそれぞれ x, y, z で偏微分して加える、という基本的な数学記号である。ここで、(2-1) 式で圧力変化を音圧 p と考えると

$$p = -K\delta = -K \text{div } \mathbf{u} \quad (2-4)$$

と変形できる。この式は、おもりのついたバネで出てくるフックの法則 ($F = -kx$) と同じ形である。はじめに述べたように、体積弾性率 K がバネ定数と同等であることがこの式からもわかる。

次に、この体積要素にニュートンの運動方程式を適用する。要素の全ての面に垂直に音圧が加わっている。 x 軸方向でみると図中で、左側の yz 面には力 $p\Delta y\Delta z$ が、右側の yz 面には力 $-\left(p + \frac{\partial p}{\partial x}\Delta x\right)\Delta y\Delta z$ がはたらく。正味の力は、足し合わせて

$$\Delta F_x = -\frac{\partial p}{\partial x}\Delta x \Delta y \Delta z \quad (2-5)$$

y, z 方向も同様に考えられるので、体積要素にはたらく力は

$$\Delta F = -\text{grad}p \Delta x \Delta y \Delta z \quad (2-6)$$

である。ここで $\text{grad}p = \left(\frac{\partial p}{\partial x}, \frac{\partial p}{\partial y}, \frac{\partial p}{\partial z}\right)$ である。密度を ρ とすると、体積要素の質量は $\rho \Delta x \Delta y \Delta z$ 、加速度は $\frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2}$ であるから、運動方程式（力＝質量×加速度）は

$$-\text{grad}p \Delta x \Delta y \Delta z = \rho \Delta x \Delta y \Delta z \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} \quad (2-7)$$

となり、上式を $\Delta x \Delta y \Delta z$ で割れば

$$-\text{grad}p = \rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} \quad (2-8)$$

となる。ここで、(2-8)式の両辺の div をとれば

$$-\text{div} \cdot \text{grad}p = \rho \frac{\partial^2 \text{div} \mathbf{u}}{\partial t^2} \quad (2-9)$$

だから、(2-4)式を使って $\text{div} \mathbf{u}$ を消せば

$$\text{div} \cdot \text{grad}p = \frac{\rho}{K} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} \quad (2-10)$$

書き直すと

$$\left(\frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial z^2}\right) = \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} \quad (2-11)$$

が得られる。ただし、

$$v = \sqrt{\frac{K}{\rho}} \quad (2-12)$$

である。(2-11)式は波の伝搬を表す最も基本的な式で、**波動方程式**とよばれる。(2-12)式の v は音速(位相速度)を表している。波動方程式は、音波に限らず弦を伝わる波、水面波、電磁波など波動全般の基礎式である。

2.2 平面波と球面波

x 軸方向にのみ伝搬する波を考えると、波動方程式(2-11)は

$$\frac{\partial^2 p}{\partial x^2} = \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} \quad (2-13)$$

と簡略化できる。上式を満たす音圧 p はどんな形になるだろうか。例えば、ある関数 f を考え

$$p = f\left(t - \frac{x}{v}\right) \quad (2-14)$$

として (2-13) 式に入れると

$$\text{左辺} = \text{右辺} = \frac{1}{v^2} f''\left(t - \frac{x}{v}\right),$$

であるから、 $p = f\left(t - \frac{x}{v}\right)$ は(2-13)式を満たす。つまり、変数が $t - \frac{x}{v}$ という形であれば f はサインでも三角形の関数でも何でもよいということになる（ただし、2階微分が可能という条件がつく）。それならば最もシンプルで現実にも可能な解として (1-3) 式のようなコサイン関数が最適

であろう。より一般性を増すため、(1-3) 式の代わりに

$$p(x,t) = P_0 e^{i(\omega t - kx)} \quad (2-15)$$

と複素数の形で書かれることが多い。上式の右辺の指数関数は

$$e^{i(\omega t - kx)} = \cos(\omega t - kx) + i \sin(\omega t - kx) \quad (2-16)$$

と書けるので、あとで(2-15)式の実数部のみを考えれば、(1-3) 式と同じになる。複素数にする理由は、微分や積分する際に簡単だからである。(2-15) 式で表される波を**平面波**といい、図 2.2(a) のように直線を並べて表す。この直線は図 1.1(b)の例えば最大値のところのみをつないだ線と思えばよい。同じ位相を表しているので**等位相面**という。なお、(2-14)式を満たす解はもう一つある。それは $p = g(t + \frac{x}{v})$ というもので、 $f(t - \frac{x}{v})$ とは反対方向 (x の負の方向) に進む波を表している。

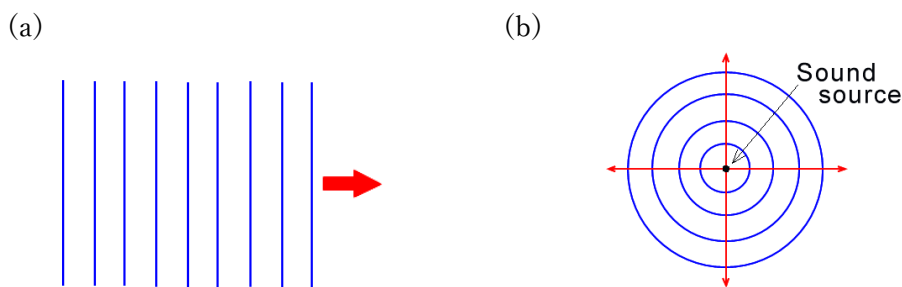


図 2.2 (a)平面波と(b)球面波。矢印は進行方向を表す

v がなぜ波の速度を表すのかを簡単に説明しよう。ある時刻 t , $x=0$ での波形は、 $p(t,0) = f(t)$ である。これと同じ波形が別の位置 x , 時刻 t' で観測されるとすると

$$p(t',x) = f\left(t' - \frac{x}{v}\right) = f(t) \quad (2-17)$$

となるはずだから、 $t' - \frac{x}{v} = t$, すなわち $t' = t + \frac{x}{v}$ となる。 x/v は速度 v で距離 x 伝わるまでの時間だから、 $x=0$ での波形が速度 v で距離 x 伝わったのち、時刻 t' で同じ波形として出現する、ということがわかる。

もし、音源のサイズが無限に大きければ平面波のみが伝搬することになるが、現実にそういうことは不可能である。音源サイズが有限の場合は、音波の回折効果によって波面が徐々に広がってしまう。特に音源近くでは複雑な回折効果のため強弱が表れる (6.2 節で詳しく議論する)。音源から遠く離れた場所では、音源が点のように小さく見えるので図 2.2(b) のような**球面波**となる。この場合、音源からの距離を r とすると、音圧の式は

$$p(r,t) = \frac{P_0}{r} e^{i(\omega t - kr)} \quad (2-18)$$

という形で書ける。 r が分母にあるので、進行するにつれて平面波と異なり波が減衰することになる。

3章 音速 (Sound velocity)

3.1 気体中の音速

音速は体積弾性率 K と密度 ρ で与えられることを (2-12) 式で示した。 K は (2-1) 式で圧力 P と体積 V の関係で決まるから、状態方程式がわかればより詳しく音速を調べることができる。気体の場合は熱運動が主役なのでそれが可能であるが、液体では状態方程式がよくわかっていないので、個々の液体で理論的に音速を求めることはできない。液体は、気体に比べると密度が 1000 倍近く大きい。つまり、分子の間隔が小さいので相互作用を無視できず、「バネ定数」に相当するものが複雑なのである。したがって音速が決められない、と言い換えることもできる。

まず、気体の音速を導いてみよう。よく知られているように理想気体の状態方程式は

$$PV = nRT \quad (3-1)$$

である。 n はモル数、 R は気体定数で $R=8.314 \text{ J}/(\text{mol K})$ 、 T は絶対温度である。1.2 節で、音波による圧縮膨張サイクルは断熱的であることを示した。断熱過程の PV 関係は

$$PV^\gamma = k \quad (k: \text{定数}) \quad (3-2)$$

である。 γ は定圧比熱と定積比熱の比である。(3-2)式を使って(2-1)式の K を求めると

$$K = -V \frac{\partial P}{\partial V} = \gamma P \quad (3-3)$$

であるから、これを(2-12)式に入れて

$$v = \sqrt{\frac{K}{\rho}} = \sqrt{\frac{\gamma P}{\rho}} \quad (3-4)$$

(3-1)式を使って P を消し、 $n=1 \text{ mol}$ とすると

$$v = \sqrt{\frac{\gamma nRT}{\rho V}} = \sqrt{\frac{\gamma RT}{M}} \quad (3-5)$$

M は 1 モル当たりの質量、つまり分子量(モル質量)である。(3-5) 式を使うと種々の気体の音速を求めることができる。空気について音速を求めてみる。酸素と窒素から成る空気の分子量は平均して $M=2.897 \times 10^{-2} \text{ kg/mol}$ 、また $\gamma=1.402$ として (3-5) 式に代入する。温度を摂氏温度 t_c に直すと

$$v_{air} \approx 331.5 + 0.6 t_c \quad [\text{m/s}] \quad (3-6)$$

という高校物理で習った式が得られる。(3-5) 式から分子量の小さいガスは音速が大きいことがわかる。例えばヘリウム (He) ガスでは、1008 m/s (20°C) という大きい値が得られる。

コラム 1 ヘリウムを吸い込んで声をだすとドナルドダックのような高い声になる。なぜだろうか？

人ののどから口までは 1 つの開管と言ってよい。声の出し方は、図のような両端があいた開管の共鳴と似ている。管の端にある声帯が震えて、共鳴した音がもう一方の端にある口からでる。種々の共鳴モードがあるが、図の点線で示されている最低次モードで考える。管の長さ L は半波

長に相当するので、波長は $2L$ に等しい。共鳴する周波数を f とすると、音速は $v = f \times 2L$ だから

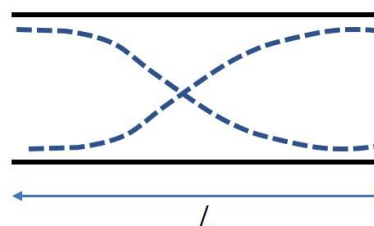
$$f = v/2L$$

空気のときの周波数を f_a 、ヘリウムのときを f_{He} とすれば

$$f_a = 344/2L, f_{He} = 1008/2L$$

だから、共鳴周波数は音速で決まり、ヘリウムのときの方が約3倍大きい。つまり、ヘリウムでは高い声が出やすいことになる。

以前、高校生がこの実験を行って窒息で死んだ事故があった。ヘリウムをたくさん吸い込んで肺から酸素がない状態が続くと窒息するのは当然である。最近ではヘリウムの中に酸素を混ぜて実験している。液体窒素を扱う際も似たような窒息事故があるので注意してほしい。



3.2 液体中の音速

前節で述べたように、気体と違って液体中での音速は (2-1)式以上のことはよくわからない。実験的に求められた種々の液体の音速と密度を表 3.1 に示す。

表 3.1 液体の音速と密度 (超音波便覧 (丸善) より引用)

物質名	化学式	温度 °C	音速 m/s	密度 kg/m ³ [$\times 10^3$]
炭化水素 (hydrocarbons)				
エチルベンゼン	C ₆ H ₅ C ₂ H ₅	20	1338	0.868
キシレン	C ₆ H ₄ (CH ₃) ₂	30	1299	0.8566
シクロヘキサン	C ₆ H ₁₂	20	1284	0.779
トルエン	C ₆ H ₅ CH ₃	20	1328	0.866
ヘキサン(n-)	C ₆ H ₁₄	20	1116	0.654
ベンゼン	C ₆ H ₆	20	1326	0.878
アルコール類・グリコール類・グリセリン・フェノール類				
エタノール	C ₂ H ₅ OH	10	1216	0.7978
		20	1182	0.7893
		30	1146	0.7807
エチレングリコール	CH ₂ OHCH ₂ OH	20	1666	1.1131
ジエチレングリコール	(C ₂ H ₄ OH) ₂ O	20	1598	1.116
ポリエチレングリコール		20	1608	
グリセリン	CH ₂ (OH)CH(O)	20	1923	1.2613
	-CH ₂ (OH)	30	1905	1.2553
フェノール	C ₆ H ₅ OH	50	1423	1.0499
n-プロピルアルコール	C ₃ H ₇ OH	20	1223	0.804
		30	1189	0.796
n-ブチルアルコール	C ₄ H ₉ OH	20	1258	0.81

メタノール	CH ₃ OH	10	1154	0.8007
		20	1121	0.7913
ケトン・エステル・エーテル・アルデヒド・カルボン酸				
アセトン	(CH ₃) ₂ CO	20	1190	0.7905
アセトアルデド	CH ₃ CHO	20	1110	0.78
エチルエーテル	(C ₂ H ₅) ₂ O	20	1006	0.7135
酢酸	CH ₃ COOH	20	1150	1.049
酪酸	C ₃ H ₇ COOH	20	1203	0.959
塩素化合物				
塩化エチレン	C ₂ H ₄ Cl ₂	20	1216	1.2524
塩化メチレン	CH ₂ Cl ₂	20	1093	1.336
クロロフォルム	CHCl ₃	20	1001	1.487
クロルベンゼン	C ₆ H ₅ Cl	20	1289	1.1042
四塩化炭素	CCl ₄	20	938	1.594
トリクロロエチレン	C ₂ HCl ₃	20	1049	1.477

表で示した液体では、温度上昇により音速は減少する。しかし、唯一温度変化が特異的なのは水である。図 3.1 に示すように、零度から温度とともに音速は上昇し、74°C付近で最大となり、より高温で減少する。この変化は図 3.2 に示す水素結合による水分子特有な構造と関連している。図でオレンジが酸素原子、青が水素原子を表している。水分子の2つの OH 結合のなす角度は約 105 度である。酸素は電気的に陰性で水素は陽性であるので、分子間で水素結合が生じ、クラスターができあがっている。水素結合は強くないが氷では水素結合によってがっちりした構造になっている。氷は水よりも密度が小さいことからわかるように、クラスターができることで体積は大きくなる。つまり低温ではクラスター構造のため圧縮されやすい（圧縮率が大きい）。温度が上がると水素結合は徐々に切れていくのでクラスター構造は減り、圧縮しにくくなる（圧縮率が小さくなる）。圧縮率と弾性率は逆数の関係だから、弾性率は温度とともに大きくなる。したがって音速は上昇する。熱膨張の影響は音速を下げる方向にはたらくので両者の兼ね合いで極大が生じることになる。なお、液体音速の議論は野村他著「液体および溶液の音波物性」（名古屋大学出版会、1994年）に詳しい。

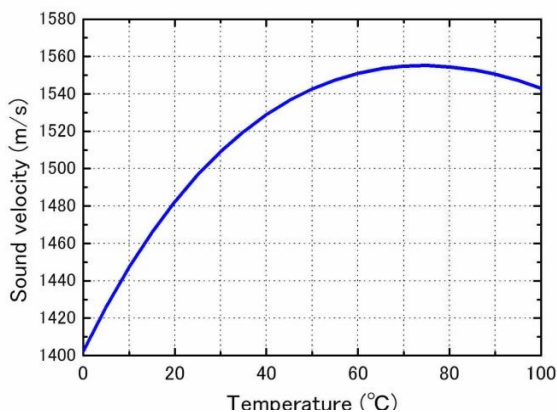


図 3.1 水中音速の温度変化

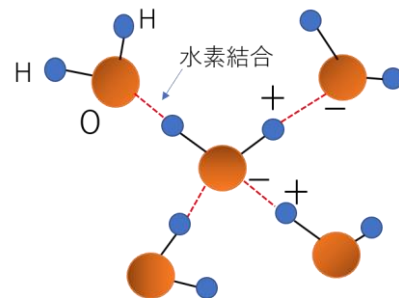


図 3.2 水分子の水素結合

3.3 固体中の波動方程式と音速

ソノケミストリーで固体を扱うことはほとんどないが、ゲルや生体組織などでは横波を扱うので、固体の波動伝搬の基礎を理解しておくことも必要である。

固体は体積だけでなく形も保持しようとする性質があるので、横波が出現する。固体にはガラスのような方向性のない物質（等方体という）と、結晶のように方向性のある物質がある。アルミや鉄などの金属は本来は結晶体であるが、身近にあるものは多結晶体といって微小な単結晶がランダムに積み重なったものなので、音波伝搬では等方体とみなしてよい。ただし、繊維状組織、木材などは方向性が存在する。等方体を扱う上でも方向性を考慮して議論する必要がある。

固体中に図 3.3 のような、座標軸 x_1, x_2, x_3 に沿った微小体積要素を考える。三辺の長さは dx_1, dx_2, dx_3 である。流体では面に垂直な力しかはたらかないが、固体では面と平行な方向にも力がはたらく点異なる。 x_1 軸方向に垂直な面に注目しよう（図で影のある面）。この面にはたらく単位面積あたりの力（これを応力とよぶ）は、 T_{11}, T_{12}, T_{13} の3つある。2つの添え字は、応力がはたらく面と方向を指定している。例えば、 T_{12} とは x_1 軸に垂直な面にはたらく x_2 軸方向の応力を意味する。 x_2, x_3 軸でも同様な応力があるので、合計 $3 \times 3 = 9$ 個の応力が存在する。ただし、 $T_{ij} = T_{ji}$ が成り立つ。体積要素中のある点の音波による変位を $\mathbf{u} = (u_1, u_2, u_3)$ とすると、変位の勾配を表すひずみは

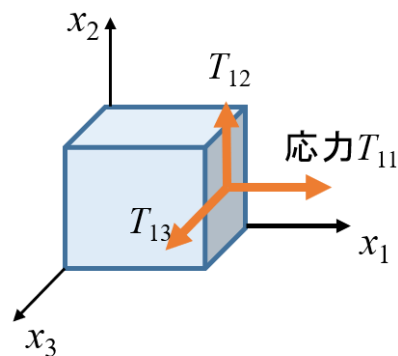


図 3.3 固体中の微小体積要素

$$s_{kl} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_l}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_l} \right) \quad (3-7)$$

と表すことができる。 $s_{11} = \frac{\partial u_1}{\partial x_1}$ は x_1 軸に垂直な面の x_1 軸方向のひずみを表す。流体の場合のフックの法則(2-4)に相当する式は、応力とひずみの関係から

$$T_{ij} = \sum_{k,l} c_{ijkl} s_{kl} \quad (3-8)$$

となる。 c_{ijkl} は、弾性定数（Stiffness tensor）とよばれ物質によって決まる定数である。 i, j, k, l は1~3の値をとるので弾性定数は81個の値が存在することになるが、全体が回転しないなどの制約のため21個に減る。物質の対称性によって更に数は減り、等方体では独立な弾性定数は2個になる。添字が4つあるとわかりにくいので、11→1, 22→2, 33→3, (23, 32)→4, (13, 31)→5, (12, 21)→6 という規則で2つに減らして表現する。シリコンやゲルマニウムの結晶系は立方晶であり、その場合の弾性定数は次のような行列で表される。

$$\mathbf{c} = \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{12} & c_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} \end{pmatrix} \quad (3-9)$$

独立な定数は c_{11}, c_{12}, c_{44} の 3 個である。さらに、等方体では

$$c_{11} = c_{12} + 2c_{44} \quad (3-10)$$

の関係があるので、独立なものは最終的に 2 個となる。 $c_{12}=\lambda$, $c_{44}=\mu$ と書いて、 λ , μ をラメ定数とよぶこともある。等方体の場合の(3-8)式は、添字を減らした表現で

$$\begin{aligned} T_i &= c_{12} \operatorname{div} \mathbf{u} + 2c_{44} s_i & \text{for } i=1, 2, 3 \\ T_i &= c_{44} s_i & \text{for } i=4, 5, 6 \end{aligned} \quad (3-11)$$

と簡単になる。

いま得られた弾性定数 c と縦波・横波の弾性率がどんな関係にあるかを、固体中の微小部分の変形 (図 3.4) で考えてみる。超音波は図の横方向に伝搬すると考える。体積弾性率 K では体積が一律に膨張収縮するので、(a) のような変形になる。図の上下では位相が 180° 異なっていてそれぞれ膨張・収縮を表している。体積弾性率は

$$K = c_{12} + \frac{2}{3}c_{44} \quad (3-12)$$

で表される。ずれ弾性は(b)のように超音波伝搬方向と垂直な面がずれた変形である。横波の弾性率は $G = c_{44}$ で表される。試料サイズに比べて波長がずっと小さい超音波の縦波では、(c)のように伝搬方向のみの変形になる。つまり超音波の伝搬方向と垂直な方向の変位は無視できるので、縦波弾性率は $M = c_{11}$ に相当する。(3-10), (3-12)式から M と K, G との関係が

$$M = K + \frac{4}{3}G \quad (3-13)$$

で与えられることになる。(3-13) 式は固体のみならず、ゲルや粘度の非常に大きい液体、生体組織では重要な関係式である。(3-13) 式の意味するところは、超音波による変形は体積変形だけでなく、ずり変形も含まれる、ということである。

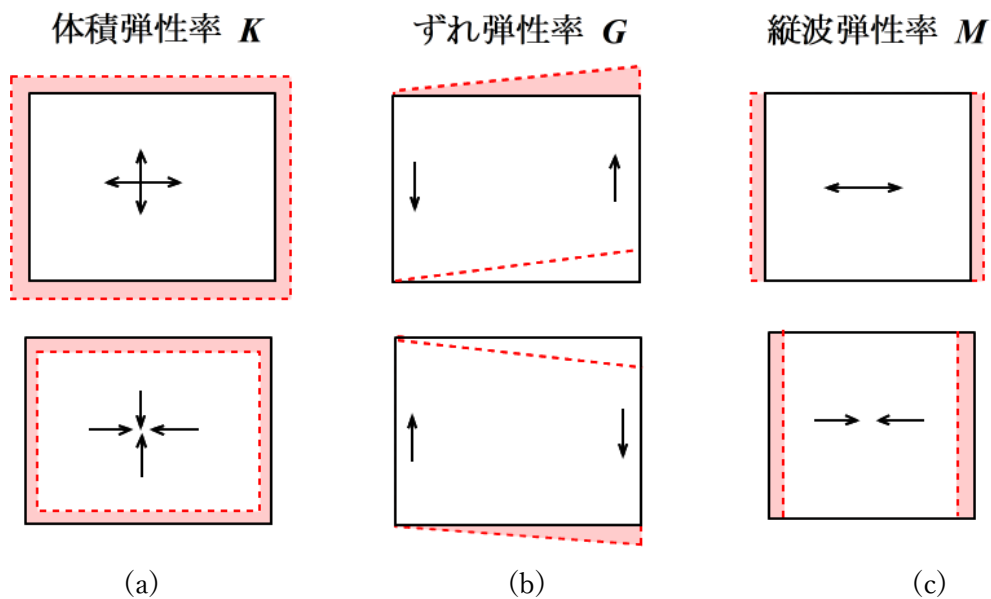


図 3.4 体積弾性(a), ずれ弾性(b), 縦波弾性(c)に関わる固体の変形。上段と下段では位相が 180° 異なる。矢印は力がかかる方向を示す。

次に固体の波動方程式を導く。図 3.3 で微小体積要素にはたらく x_1 軸方向の力は、面積 $dx_2 dx_3$ の面にかかる左右方向からの力の差となるので

$$\{T_{11}(x_1 + dx_1) - T_{11}(x_1)\} \times dx_2 dx_3 = \frac{\partial T_{11}}{\partial x_1} dx_1 dx_2 dx_3 \quad (3-14)$$

である。すべての面の力を足し合わせると、Newton の第 2 法則は結局次式で与えられる。

$$\rho_0 \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \sum_{j=1}^3 \frac{\partial T_{ji}}{\partial x_j} \quad (3-15)$$

(3-11) 式の応力の式を (3-15) 式に代入すると

$$\rho_0 \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = (c_{12} + c_{44}) \text{grad} \cdot \text{div} \mathbf{u} + c_{44} \text{div} \cdot \text{grad} \mathbf{u} \quad (3-16)$$

が得られる。これが**等方体の波動方程式**である。 $\text{div} \cdot \text{grad}$ はラプラシアンと同じである。この式から縦波、横波についての波動方程式を求めるには Helmholtz の定理という数学を使うが、結果だけを利用する。変位を縦波成分 \mathbf{u}_l と横波成分 \mathbf{u}_s の和として

$$\mathbf{u} = \mathbf{u}_l + \mathbf{u}_s$$

と表す。添字の l は longitudinal, s は shear の意味である。縦波に対しては $\text{rot} \mathbf{u}_l = 0$, 横波に対して $\text{div} \mathbf{u}_s = 0$ が成り立つので、それぞれ (3-16) 式から

$$\frac{\partial^2 \mathbf{u}_l}{\partial t^2} = \frac{(c_{12} + 2c_{44})}{\rho_0} \text{div} \cdot \text{grad} \mathbf{u}_l, \quad \frac{\partial^2 \mathbf{u}_s}{\partial t^2} = \frac{c_{44}}{\rho_0} \text{div} \cdot \text{grad} \mathbf{u}_s \quad (3-17)$$

書き直して

$$\text{縦波: } \frac{\partial^2 \mathbf{u}_l}{\partial t^2} = \frac{M}{\rho} \left(\frac{\partial^2 u_{l1}}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 u_{l2}}{\partial x_2^2} + \frac{\partial^2 u_{l3}}{\partial x_3^2} \right) \quad (3-18a)$$

$$\text{横波: } \frac{\partial^2 \mathbf{u}_s}{\partial t^2} = \frac{G}{\rho} \left(\frac{\partial^2 u_{s1}}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 u_{s2}}{\partial x_2^2} + \frac{\partial^2 u_{s3}}{\partial x_3^2} \right) \quad (3-18b)$$

という波動方程式が導かれる。波の位相速度は (2-11) 式と比べて

$$\text{縦波: } v_l = \sqrt{\frac{M}{\rho}}, \quad \text{横波: } v_s = \sqrt{\frac{G}{\rho}} \quad (3-19)$$

であることがわかる。表 3.2 に代表的な固体の音速(実験値)と密度を示した。

表 3.2 種々の固体の縦波音速, 横波音速, 密度 (超音波便覧 (丸善) より引用)

物質	縦波音速(m/s)	横波音速(m/s)	密度 (kg/m ³)
熔融石英	5968	3764	2200
パイレックスガラス	5640	3280	2320
サファイア (c 軸方向)	11100	6040	4000
アルミニウム	6420	3040	2700
真ちゅう (Cu70, Zn30)	4700	2110	8600
金	3240	1200	2790
ステンレススチール (347)	5790	3100	7910
PMMA (アクリル樹脂)	2720	1460	1180

4章 音波の吸収と緩和現象 (Sound absorption and relaxation phenomenon)

4.1 音波吸収の表し方

音波振幅が変化する原因は、伝搬媒質固有のものと、媒質の種類によらず伝搬経路などに起因する回折、反射、散乱等によるものがある。媒質固有のものを吸収 (absorption), すべて合わせたものを減衰 (attenuation) と呼ぶことがある。吸収と減衰をあまり区別しないで使うことも多いが、ここでは区別して議論する。まず、吸収による音圧の変化を定式化しよう。音波の音圧あるいは粒子変位を u とする。音波が距離 dx だけ伝搬するとき、変化量 du は u と dx に比例すると考えられるので

$$du = -\alpha u dx \quad (4-1)$$

が成り立つ。負号は値が小さくなることを表し、 α は比例定数である。上式を

$$\frac{du}{u} = -\alpha dx \quad (4-2)$$

と書き直し、積分すると

$$u = u_0 e^{-\alpha x} \quad (4-3)$$

と書けることがわかる。 u_0 は初期値である。(4-3)式は、音圧(変位)が距離とともに指数関数的に小さくなることを示している。定数 α を**吸収係数**とよぶ。

平面波を表すには

$$p(x, t) = P_0 e^{i(\omega t - kx)} \quad (2-15)$$

と書くことをすでに示したが、上式には音波吸収は表現されていない。そこで、波数 k を複素数に拡張した複素波数 k^* を考え、その虚部として吸収係数を導入する。すなわち

$$k^* = k - i\alpha \quad (4-4)$$

として、(4-4) 式を(2-15)式に入れると

$$p(x, t) = P_0 e^{i(\omega t - k^* x)} = P_0 e^{-\alpha x} e^{i(\omega t - kx)} \quad (4-5)$$

となり、音圧 p が距離とともに指数関数で減衰する波を表すことができる。音波強度あるいはエネルギーは音圧の 2 乗に比例するので、 $e^{-2\alpha x}$ で減衰する。 α の単位は [Np/m], または [dB/m] である。Np はネーパー (Neper) と読む。1 Np/m では、1 m の距離で e^{-1} (≈ 0.37) に減衰することになる。2つの単位の関係は

$$\alpha \text{ [dB/m]} = 20 \log_{10} e \alpha \text{ [Np/m]} = 8.686 \alpha \text{ [Np/m]} \quad (4-6)$$

となる。音速は $v = \omega/k$ で与えられるから音速を複素音速 v^* と考え、(4-4)式を用いて

$$\frac{1}{v^*} = \frac{k^*}{\omega} = \frac{k}{\omega} - i \frac{\alpha}{\omega} \quad (4-7)$$

とすれば、複素音速の虚部として吸収を導入することができる。縦波弾性率 M も複素数を使って

$$M^* = M' + iM'' \quad (4-8)$$

と表す。3章で導いた

$$v_l = \sqrt{\frac{M}{\rho}} \quad (3-19a)$$

で、音速も弾性率も複素数と考えて(4-7), (4-8)式を使うと

$$M' = \rho v^2 \frac{1 - (\alpha v / \omega)^2}{\{1 + (\alpha v / \omega)^2\}^2}, \quad M'' = \rho v^2 \frac{2(\alpha v / \omega)}{\{1 + (\alpha v / \omega)^2\}^2} \quad (4-9)$$

という式が得られるが、 $\alpha v / \omega$ が十分小さいとき、すなわち吸収が小さいときは

$$M' = \rho v^2, \quad M'' = \frac{2\rho v^3}{\omega} \alpha \quad (4-10)$$

と近似できる。したがって、音速と吸収係数は縦波弾性率 M^* の実部と虚部を使って

$$v = \sqrt{\frac{M'}{\rho}}, \quad \alpha = \frac{\omega}{2\rho v^3} M'' \quad (4-11)$$

と表すことができる。

4.2 音波吸収の原因

媒質固有の吸収にも、大きく分けて古典吸収と緩和吸収の2種類がある。古典吸収とは、粘性と熱伝導による吸収であり、19世紀から知られているので“古典(classical)”という名前が付いている、全ての物質で存在する。(2-11)式の波動方程式を導く際には粘性を無視した。粘性は音速には寄与しないが、吸収の原因となる。また、1.2節で音波伝搬が断熱的であることを説明したが、高温部から低温部への熱伝導は必ず起こるので、これも吸収の原因となる。この粘性と熱伝導による吸収の和として、古典吸収は

$$\alpha = \frac{2\pi^2}{\rho v^3} \left\{ \frac{4}{3} \eta + (\gamma - 1) \frac{\lambda}{c_p} \right\} f^2 \quad (4-12)$$

と表せる。ここで、 η は粘性率、 λ は熱伝導率、 c_p は定圧比熱、 γ は比熱比である。上式で α は周波数 f の2乗に比例することに注目してほしい。吸収量を比較するとき常に α/f^2 という量で考えれば周波数が異なっても物質のみの量で決まることになる。したがって吸収量というときは α そのものではなく、 α/f^2 を考えるのが一般的である。音波減衰の要因を表4.1にまとめた。

古典吸収だけで実験値を説明できるのはHeやArなどの単原子液体のみである。それ以外の液体では、実験値は古典吸収値よりもかなり大きい。分子の構造に由来する緩和現象による吸収がその差の原因である。少し面倒だが、緩和現象を以下で説明してみよう。温度、ひずみ、応力といった物理量はマクロな外部自由度である。一方、分子内振動や回転、あるいは化学反応の反応度などはミクロな内部自由度 ξ である。超音波が加わると、温度などの外部自由度は時間遅れなしに変化できるが、内部自由度が変化するには固有の時間がかかる。いま外部自由度が図4.1のようにステップ状に変化したとすると、 ξ は新しい平衡値 $\bar{\xi}$ に向かい、その時間変化は

表4-1 音波減衰の要因

媒質固有のもの (Absorption)	古典吸収 (粘性+熱伝導)
	緩和現象
伝搬によるもの	回折, 散乱, 反射など

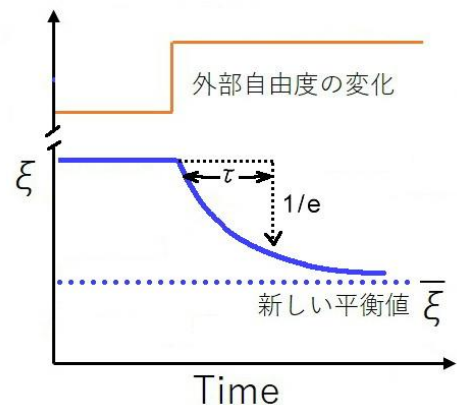


図4.1 内部自由度 ξ の時間変化

$$\frac{d\xi}{dt} = -\frac{\xi - \bar{\xi}}{\tau} \quad (4-13)$$

にしたがう。すなわち ξ は図 4.1 下のように時間変化する。変化量全体の 0.37 ($=e^{-1}$)倍まで達するのに必要な時間が時定数 τ である。 τ のことを**緩和時間**とよび、その現象に固有な値である。超音波による温度変化はステップ状ではなく周期的であり、新しい平衡値もそれに追従して周期的に変化する。 ξ は (4-13) 式にしたがってその変化に追いつこうとするが、超音波の温度変化があまり速いと追いつけなくなる。超音波の角周波数 ω を次の 3 段階で分けて考えると、

- ・ $\omega\tau \ll 1$ (低周波) のとき、平衡値の変化に ξ はつねに追いつける。
- ・ $\omega\tau \gg 1$ (高周波) のとき、平衡値の変化に ξ は追いつけない。
- ・ $\omega\tau \sim 1$ のとき、 ξ は平衡値になんとか追いつこうとするが位相が遅れる。この領域で音速・吸収の周波数変化が現れる。

のようになる。内部自由度 ξ の変化は、別の外部自由度の変化をもたらす。 ξ として例えば分子振動自由度を考えると、分子振動に関わる比熱 C_i が周波数によって変わり、定容比熱は次式のように変化することになる。

$$C_V = C_V^\infty + \frac{C_i}{1+i\omega\tau} \quad (4-14)$$

断熱圧縮率 β_s と等温圧縮率 β_T の関係は比熱比 γ を使って

$$\beta_s = \frac{\beta_T}{\gamma} \quad (4-15)$$

である。比熱が(4-14)のように周波数変化すれば、 γ も変化するから β_s も周波数変化する。 β_T は等温変化なので周波数に依存しない量である。弾性率は β_s と逆数の関係にあるので、結局、弾性率の周波数変化は

$$M'(\omega) = M_0 + (M_\infty - M_0) \frac{\omega^2\tau^2}{1+\omega^2\tau^2} \quad (4-16)$$

$$M''(\omega) = (M_\infty - M_0) \frac{\omega\tau}{1+\omega^2\tau^2} \quad (4-17)$$

となる。添字の 0 と ∞ は、それぞれ低周波極限、高周波極限の値を表す。また、緩和の大きさを表す量を緩和強度 r とよび、次式で定義する。

$$r = \frac{M_\infty - M_0}{M_\infty} \quad (4-18)$$

(4-11)式で弾性率の実部と虚部は、それぞれ音速、吸収と結ばれていることを示した。そのことを利用すると、吸収値は、 $r \ll 1$ のとき、古典吸収値 B を含めて

$$\frac{\alpha}{f^2} = \frac{A}{1+\omega^2\tau^2} + B, \quad \text{ただし } A = \frac{2\pi^2 r}{v_0} \tau \quad (4-19)$$

と表される。横軸を $\omega\tau$ の対数にして (4-19) 式を図示すると図 4.2 下段のようになる。 A は緩

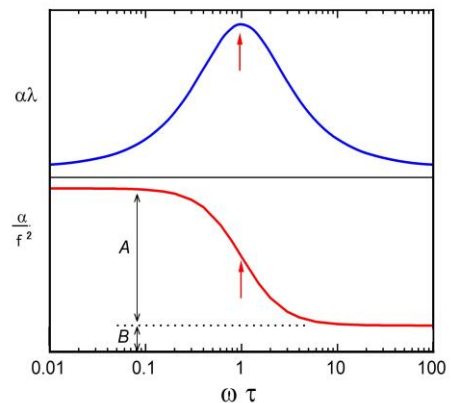


図 4.2 緩和現象による吸収の周波数変化。上図は、1 波長当たりの吸収。

和による吸収値変化分である。なお、1 波長当たりの吸収 $\alpha \lambda (= \alpha v / f)$ という値に直すと

$$\alpha \lambda = \pi r \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (4-20)$$

となり、図示すると図 4.2 上段のような釣り鐘型になる（ただし古典吸収値は含んでいない）。矢印で示すように $\omega \tau = 1$ のとき、 α / f^2 は変曲点をとり、 $\alpha \lambda$ は最大となる。なお、音速も同じ周波数領域で変曲点をもって上昇するが、その変化量は小さくてせいぜい数%である。

よく用いられる純水の吸収値がどれくらいかを考えてみよう。 α の値は周波数の 2 乗に比例して大きくなるが、 α / f^2 で表すと、 $\alpha / f^2 = 24 \times 10^{-15} \text{ s}^2/\text{m}$ (25°C) という値である。この値は低周波数から 10 GHz 近くまで変わらない。粘性と熱伝導による古典吸収のほか水素結合が関わる構造による緩和現象が 10GHz 以上にあると言われている。このように周波数依存性が高周波まで見られない物質は珍しい。水の減衰量を調べてみると、例えば $f = 1 \text{ MHz}$ では $\alpha = 0.024 \text{ Np/m}$ となり、1 m の伝搬で 2.4% しか減衰しない。しかし 10 MHz になると 1 m で 1/10 にまで小さくなる。したがってソノケミストリーでよく用いる 10 cm 程度の容器では、数十 MHz の高い周波数でない限り音波減衰を気にすることはない。ただし、キャビテーションによって気泡ができると、その気泡による減衰はかなり大きいので無視はできない。このことは最終章で触れる予定である。

超音波スペクトロスコピーという分野では、種々の周波数で吸収値を測定し、図 4.2 のような緩和曲線を得ることで緩和時間や緩和強度を求める。そこから種々の物性や化学反応のダイナミクスを議論することができる。次にその一例を示そう。

溶剤などに用いられる酢酸メチル (Methyl acetate) という分子には回転異性体が存在する。図 4.3 上で示したように、安定なのは cis 状態であるが、CO 結合が回転して trans という状態も存在する。trans 状態では 2 つのメチル基が近くにあるため反発し合い、cis 状態よりエネルギーが高い。2 つの状態はつねに行き来しているため、その反応速度や両者のエネルギー差を超音波吸収の測定から求めることができる。上で述べた内部自由度 ξ は、この場合は trans 状態にある分子の割合と考えてよい。図 4.4 は超音波吸収測定の結果である [1]。 α / f^2 の値は低周波では一定であるが、1MHz から数十 MHz にかけて減少し、再び一定値に近づく。図 4.2 で示したように、緩和時間が 1 つの曲線 (単一緩和) で実験値がよく表されていることがわかる。種々の温度で吸収を測定することにより、図 4.3 下のように両異性体間のエネルギー差、障壁エネルギーが求められた。この場合のような単純な分子では単一緩和になるが、高分子やタンパク質では緩和時間が複数存在する複雑な吸収スペクトルが得られている。

4 章の参考文献：[1] J.-R. Bae, P.-K. Choi, and K. Takagi, "Ultrasonic relaxation study in methylcyclohexane and methyl acetate by plano-concave resonator method" *J. Acoust. Soc. Jpn. (E)* **9**, 241-245 (1988).

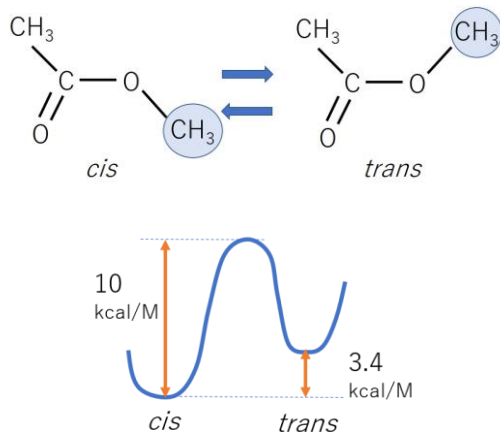


図 4.3 酢酸メチルの cis-trans 回転異性体 (上)とそのエネルギー図(下)。

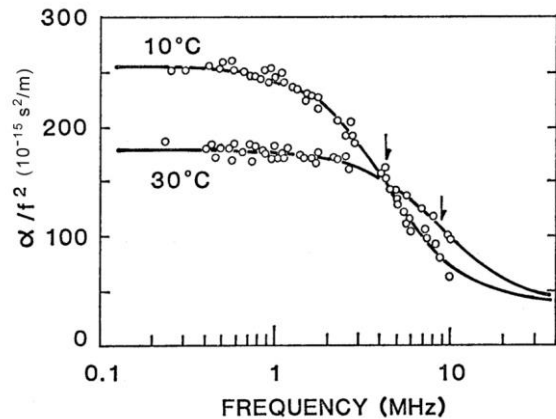


図 4.4 酢酸メチルの cis-trans 回転異性緩和による吸収変化。矢印は緩和周波数を示す。上記 J.-R. Bae et al.の文献より引用。

5 章 固有音響インピーダンスと定在波 (Characteristic acoustic impedance and standing waves)

5.1 音波の反射

試料容器中に超音波を照射すると、容器の対向面で反射してきた音波と干渉する結果、定在波ができることがある。実験で超音波を扱うときにやっかいな点は、この定在波の存在である。定在波の扱いを間違えると、超音波を出力しているつもりでも音圧があまり大きくない、ということになってしまう。

まず、反射において重要な役目をはたす音響インピーダンスという概念を導入する。インピーダンスは「抵抗」という意味である。電気抵抗は(電圧/電流)で定義されているが、音波の場合に「電圧」に相当するものは「音圧」、 「電流」に相当するものは粒子速度と考える。前回、波動方程式を導くときに出てきた

$$-\text{grad}p = \rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} \quad (2-8)$$

という式に、音圧の平面波の式

$$p(x, t) = P_0 e^{i(\omega t - kx)} \quad (2-15)$$

を入れると、加速度 (\mathbf{u} の 2 階微分) がわかるので、それを時間積分して粒子速度 $\dot{\mathbf{u}}$ が得られる。すると音圧と粒子速度の比として音響インピーダンス Z が定義される。平面波の場合は

$$Z = \frac{p}{\dot{u}} = \rho v \quad (5-1)$$

となり、媒質の密度と音速の積 ρv で与えられる。この積は物質固有の量なので固有音響インピー

ダンスという。なお、 Z は光の場合の屈折率に相当するものである。

さて図5.1のように、ある媒質1から別の媒質2に垂直に入射する波を考えよう。 p_1, p_{1r} は媒質1での入射音圧、反射音圧を表す。 p_2 は媒質2に透過した音圧である。進行方向を x とし、すべて平面波を仮定すると(2-15)式を使って

$$p_1(t, x) = P_0 e^{i(\omega t - k_1 x)} \quad (5-2a)$$

$$p_{1r}(t, x) = P_r e^{i(\omega t + k_1 x)} \quad (5-2b)$$

$$p_2(t, x) = P_t e^{i(\omega t - k_2 x)} \quad (5-2c)$$

となる。 P_0, P_r, P_t はそれぞれの振幅である。波数 k については、添字で媒質を表し、逆符号では反対方向に進むことに注意してほしい。また、それぞれの粒子速度は(5-1)式を使って

$$\dot{u}_1 = \frac{P_0}{\rho_1 v_1} e^{i(\omega t - k_1 x)} \quad (5-3a)$$

$$\dot{u}_{1r} = -\frac{P_r}{\rho_1 v_1} e^{i(\omega t + k_1 x)} \quad (5-3b)$$

$$\dot{u}_2 = \frac{P_t}{\rho_2 v_2} e^{i(\omega t - k_2 x)} \quad (5-3c)$$

である。密度 ρ と音速 v の添字はそれぞれの媒質中の値である。(5-3b)式右辺の負記号は粒子速度が反対向きであることを表す。境界面では、音圧の和、粒子速度の和が等しくなければならないので

$$\text{音圧: } P_0 + P_r = P_t, \quad \text{粒子速度: } \frac{1}{\rho_1 v_1} (P_0 - P_r) = \frac{1}{\rho_2 v_2} P_t \quad (5-4)$$

が成り立つ。よって、(5-4)式から透過波、反射波の振幅について

$$P_t = \frac{2\rho_2 v_2}{\rho_1 v_1 + \rho_2 v_2} P_0, \quad P_r = \frac{\rho_2 v_2 - \rho_1 v_1}{\rho_1 v_1 + \rho_2 v_2} P_0 \quad (5-5)$$

が求められる。固有音響インピーダンス Z で書き直すと

$$P_t = \frac{2Z_2}{Z_1 + Z_2} P_0, \quad P_r = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2} P_0 \quad (5-6)$$

となる。エネルギーの透過率 T 、反射率 R に直すと

$$T = 1 - \left| \frac{P_r}{P_0} \right|^2 = \frac{4Z_1 Z_2}{(Z_1 + Z_2)^2} \quad (5-7a)$$

$$R = \left| \frac{P_r}{P_0} \right|^2 = \left(\frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2} \right)^2 \quad (5-7b)$$

である。

例として、空気から水への反射と透過を計算してみよう。空気： $Z_1 = 415 \text{ kg}/(\text{m}^2\text{s})$ 、水： $Z_2 = 1.5 \times 10^6 \text{ kg}/(\text{m}^2\text{s})$ であるから $R = 0.9988$ 、 $T = 0.0012$ となる。すなわち透過率は約 1/1000 と非常に小さい。

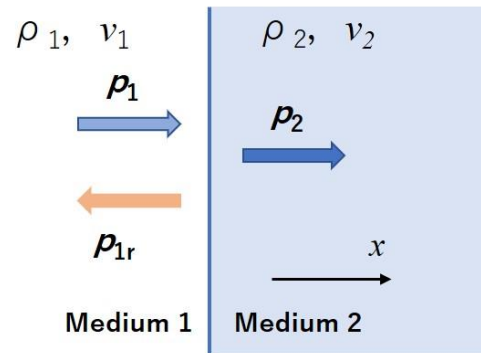


図 5.1 媒質 1 から媒質 2 への音波の透過と反射。 x 軸は入射波の進行方向である。

水から空気の透過でも同様であるから、プールの中で溺れた人の声は外にはほとんど聞こえないのである。そう考えると、超音波洗浄器から漏れるうるさい音は水中ではいかに大きいかということに改めてビックリする。

5.2 定在波

音波が境界壁に垂直入射し音圧反射率 r で反射される場合、領域 1 内で入射波と反射波は干渉する。

入射波と反射波は、時間項 $e^{i\omega t}$ を省略してそれぞれ

$$\begin{aligned} p_0 &= P_0 e^{-ikx} \\ p_r &= r P_0 e^{ikx} \end{aligned} \quad (5-8)$$

と表せるから、領域 1 内では両者は足し合わされて

$$p = P_0 (e^{-ikx} + r e^{ikx}) \quad (5-9)$$

となる。絶対値をとって

$$|p| = P_0 |1 + r e^{i2kx}| = P_0 \sqrt{1 + r^2 + 2|r| \cos 2kx} \quad (5-10)$$

一方粒子速度は、入射波と反射波の足し合わせで

$$\dot{u} = \frac{P_0}{\rho v} (e^{-ikx} - r e^{ikx}) \quad (5-11)$$

となり、その絶対値は

$$|\dot{u}| = \frac{P_0}{\rho v} \sqrt{1 + r^2 - 2|r| \cos 2kx} \quad (5-12)$$

である。領域 1 を水とし、空気への境界では、 $r \approx -1$ である。このとき負符号は位相が π だけ反転することを表す。その場合の(5-10), (5-12)式を計算すると、図 5.3 のようになる。音圧 (赤線) の極大が半波長おきに出現し、粒子速度 (青線) の極小の位置と一致する。その位置は

時間が経っても変わらない。このような波を**定在波** (Standing wave or Stationary wave) とよぶ。定在波では、**腹**(antinode)とか**節**(node)という表現を使うが、腹は音圧が極大の位置、節は音圧が極小の位置を指す。空気との境界では、音圧がゼロの場所は粒子速度が極大となる。このような境界を**自由端**とよぶ。これと反対に、水—ガラスの境界は水から見ると**固定端** (境界で音圧は極大) になる。これらは固有音響インピーダンス Z の大小関係で決まる。 Z の大きい媒質から小さい媒質に入射する際は自由端、と覚えるのがよい。なお、進行波の場合は定在波とは異なり、音圧と粒子速度の位相は一致する。

5.3 試料容器中での定在波

ソノケミストリー実験の試料容器中では、ほとんどの場合定在波ができています。5.2 節の議論を広げて、図 5.4 のように水中の音波が 2 枚の板の間で反射を繰り返す場合を考えてみよう。左側の板の位置を原点として進行右方向に x 軸をとり、距離 d だけ離れた別の板での反射率を 1 とする。右方向に進むはじめの音圧は(2-15)式で表されるが、右側の板で n 回反射された後、右方向に

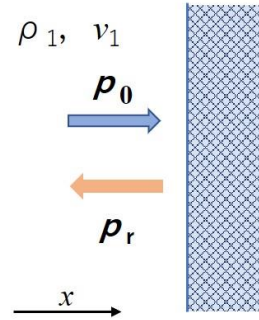


図 5.2 入射波が境界壁から反射率 r で反射される。

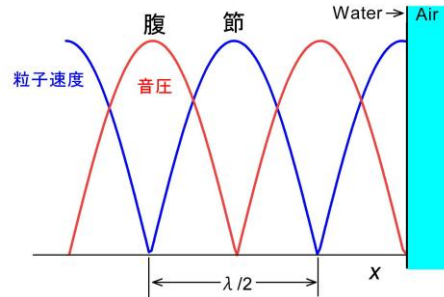


図 5.3 水—空気境界での定在波

進む音波の音圧は、ある位置 x の場所で

$$e^{i\omega t} e^{-ik(2nd+x)} \quad (5-13)$$

と表される。同様に左方向に進む音波は、反射が1回多いから

$$e^{i\omega t} e^{-ik\{(2n+1)d-x\}} \quad (5-14)$$

である。音波が無限回反射されるとすると、 $n=0$ から ∞ までの項を合計して

$$p(x,t) = P_0 e^{i\omega t} \sum_{n=0}^{\infty} \{e^{-ik(2nd+x)} + e^{-ik(2(n+1)d-x)}\} = P_0 e^{i\omega t} \frac{e^{-ikx} + e^{ikx} e^{-i2kd}}{1 - e^{-i2kd}} \quad (5-15)$$

が得られる。右側の板で音波を受波したときの強度 I を求めよう。 $x = d$ として上式を2乗し、さらに角周波数 ω の成分を時間平均すると、次式のように求められる。

$$I \propto \overline{p(d,t)p^*(d,t)} = \frac{2u_0^2(e^{\alpha d} - 1)}{(1 - e^{-2\alpha d})^2 + 4e^{-2\alpha d} \sinh^2\left(\frac{\omega d}{v}\right)} = I_0 \frac{1}{1 + \sin^2(\omega d/v) / \sinh^2(\alpha d)} \quad (5-16)$$

上式が最大となるのは $\sin^2\left(\frac{\omega d}{v}\right) = 0$ のとき、すなわち周波数

$$f_m = \frac{v}{2d} m \quad (m = 1, 2, \dots) \quad (5-17)$$

のときである。ただし、(4-4) 式のように波数 k の中に吸収係数 α を含めている。 α が小さいとき(5-16)式は

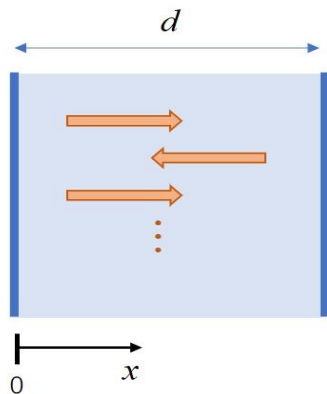


図 5.4 2枚の板の間で反射して往復する音波の干渉。

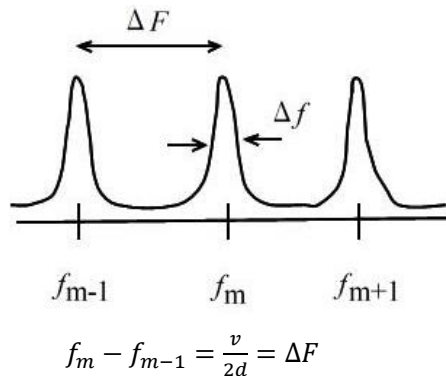


図 5.5 共鳴曲線。ピーク周波数は f_m ，ピーク間隔は ΔF ，ピーク半値幅は Δf である。

$$I = \frac{I_0}{1 + \left\{ \frac{2\pi}{\alpha v} (f_m - f) \right\}^2} \quad (5-18)$$

という式に近似できる。これを周波数 f の関数と考えると、(5-18)式は図 5.5 のようなとびとびのピークの集まりになる。つまり干渉の結果、周波数が f_m のときに音圧が最大となる。このような周波数を横軸にした曲線を**共鳴曲線 (共振曲線)**とよぶ。1つのピークの高さが半分になる半値幅は

$$\Delta f = \frac{\alpha v}{\pi} \quad (5-19)$$

のように α と音速 v で決まる。間隔が既知ならば音速はピーク間隔 ($\Delta F = v/2d$) よりわかるので、(5.19)式は α を求めるために使うことができる。この原理は**超音波共鳴法**という物性測定法と

して知られている。定在波で重要な点は、音波干渉の結果、一定距離のときとびとびの特定周波数で大きな強度が現れる、ということである。また、周波数を固定して距離 d を変化させても全く同様な議論ができる。その場合は**超音波干渉法**として知られ、特定の距離で大きな強度になる。ソノケミストリー実験で試料容器に入れる試料の高さを決めるときには、共鳴条件に十分留意する必要がある。

よく用いられる円筒容器中での 3 次元定在波はどうなるだろうか。これは少し複雑である。図 5.6 のような半径 a 、長さ L の円筒の中での定在波を考える。中心軸方向の座標を z 、半径方向の座標を r 、動径方向の座標を θ で表すことにする。これを円筒座標という。実験では、容器の底に超音波振動子があり、上方の水面（水—空気境界）に向かって音波を放射することが多い。5.2 節によると、水面は音波がほぼ 100% 反射する自由端になる。その後、 z 方向に反射をくり返して往復することになるが、往復するうちに回折のため横方向にも拡がり、円筒面でも反射するようになる。すなわち、 z 方向だけでなく r 方向、 θ 方向にも干渉する 3 次元定在波ができることになる。円筒面での反射率は 1 と考えてよいが、円筒側面の厚さが厚い場合は固定端、薄い場合は自由端に近くなる。（厚さと波長が近い場合、5.2 節で述べたような Z の大小だけでは固定端か自由端かは決められない）このような円筒容器中での音圧分布は、波動方程式を解くことで以下の式のように与えられる[1]。

$$p = A e^{im\theta} J_m(k_r r) \sin(k_z z) \quad (5-20)$$

A は振幅、 $e^{im\theta}$ 、 $J_m(k_r r)$ 、 $\sin(k_z z)$ はそれぞれ動径方向、半径方向、中心軸方向の分布を表す関

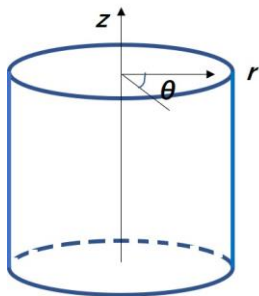


図 5.6 円筒座標(z, r, θ)

数である。 J_m は m 次のベッセル関数である。動径方向には対称で節がないとすると $m=0$ である。 k_r の中の n は半径方向のモード、 q は z 軸方向のモード(何波長分あるか)を指定する。半径方向、 z 軸方向の波数は

$$k_r = \frac{u_{0n}}{a}, \quad k_z = \frac{2\pi}{\lambda_z} \quad (5-21)$$

であり、自由空間での波数 k との関係は

$$k^2 = k_z^2 + k_r^2 \quad (5-22)$$

となる。 m, n, q の 3 つの次数を指定することで具体的な定在波モードが決定されるが、どのモードが出現するかは容器サイズや音波をどのように励起するかに依存している。 λ_z は z 軸方向の波長で、 u_{0n} は 0 次のベッセル関数を J_0 として $\partial J_0(k_r r) / \partial r = 0$ を満たすような解である。（ただし、円筒面が自由端のときは $J_m(k_r r) = 0$ を満たす解）音速 $v (= \omega/k)$ と波数との関係は

$$v = \frac{2\pi f}{k} = \frac{2\pi f}{\sqrt{k_z^2 + k_r^2}} \quad (5-23)$$

となる。実際の音圧分布は、ルミノール水溶液を使った音響化学発光（ソノケミルミネセンス）を用いて調べることができる。図 5.7 は内径 95 mm の円筒ガラスビーカー中で発光している写真である。上段は容器の上側から、下段は横から撮影したもので、周波数は 51, 73, 145 kHz の 3 種類である。発光気泡は音圧の腹、すなわち音圧が極大になる位置でトラップされる（ただし音圧が強すぎると腹からずれてくる）。上段の黄色線は、0 次のベッセル関数を表している。下段で

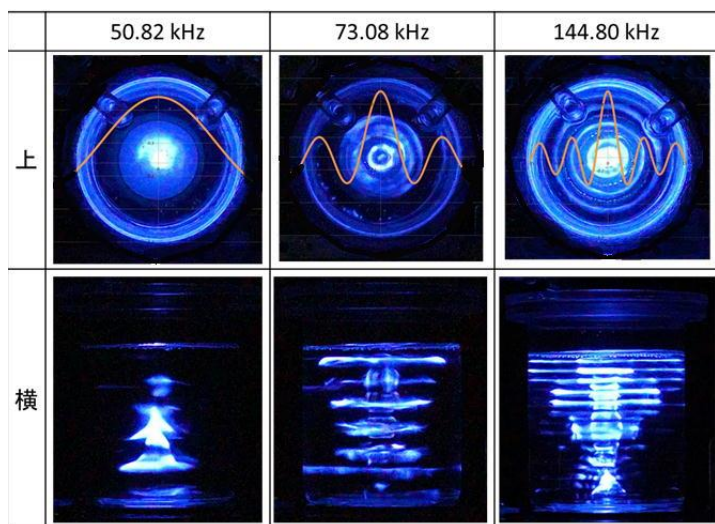


図 5.7 円筒容器でのルミノール発光写真。上段は容器上部から観察したもの。最外部の円は容器の壁を表す。下段は横から観察したもの。

51 kHz は $n=1$, 73 kHz は $n=3$, 145 kHz は $n=5$ に相当する。

は、部分的に複雑な音圧分布になっていることがわかる。詳細は不明だが、これは容器内の定在波だけでなく容器自身の振動の影響があるかもしれない。また、横からの発光分布を見ると、縞模様の間隔は $\lambda_z/2$ に相当するが、その λ_z を用いて $v = f\lambda_z$ から音速を求めている例が見られる。それは誤りで、正しくは (5-23) 式を用いる必要がある。正しく音速を求めると、文献値よりも小さくなることが知られている。その理由は気泡が水中に存在すると音速が下がるからである。容器内の定在波を特定するとき問題になることがもう一つある。それは、振動子が接着されている振動面が固定端、自由端のどちらであるか、という問題である。固体面なので固定端と考えがちであるが、自身が振動するので必ずしもそうとも言えない。実は振動面では振動速度が一定という条件になり、液面の高さに依存して固定端から自由端の間でいろいろな反射条件を取り得ることが実験的に示されている [2]。

5 章の参考文献： [1] P. R. Birkin et al. “Experimental and theoretical characterization of sonochemical cells. Part 1. Cylindrical reactors and their use to calculate the speed of sound in aqueous solutions” *J. Phys. Chem. A*, **107**, 306-320 (2003).

[2] 中嶋亮太, 李 香福, 崔 博坤「音響キャビテーションの水深、気泡核依存性」日本音響学会講演論文集, 1221-1222 (2015/03).

6章 超音波の発生 (Generation of ultrasound)

この章では、超音波発生の原理や種々の振動子について説明する。音の発生にはスピーカーがよく用いられている。動電型とよばれるスピーカーの原理を図 6.1 で簡単におさらいしよう。コーンと呼ばれる円錐形の紙(図中の黒実線)にコイルを巻いておく。このボイスコイルに流れる音楽信号電流と永久磁石からの磁場が直交するように配置する。コイルに電流が流れると、磁場や電流の向きと垂直な方向にローレンツ力がはたらく。つまり、図で左右方向に力がはたらくのでコーンが左右に振動することになる。その振動が音波となって聞こえるわけである。きれいな音を出すためにはコーン全体が一様に振動することが必要である。しかし、周波数を高くしていくと、中心部など一部しか振動しなくなる。小さいスピーカーが高音域、大きいスピーカーが低音域を受け持っているのはそのためである。したがってこの方式で超音波を出すことは難しい。超音波を出すにはピエール・キュリー (コラム 2 を参照) が発見した圧電効果を使う必要がある。

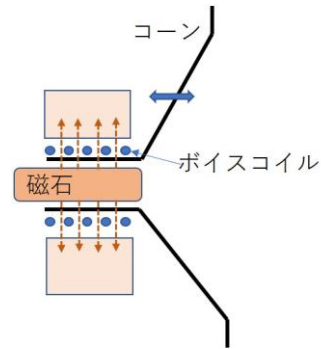


図 6.1 スピーカーの断面。ローレンツ力によってコーンが振動する。

6.1 圧電効果 (ピエゾ電気効果, Piezoelectric effect)

圧電効果には以下の 2 種類がある。

- 圧電気直接効果：ある物質にひずみ s や応力 T を加えると、電気分極が生じる現象
- 圧電気逆効果：逆に、図 6.2 のように電界 E を与えると、ひずみや応力が生じる現象

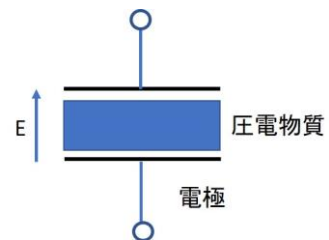


図 6.2 圧電効果

このような効果を持つ物質を圧電物質という。1880 年にキュ

リー兄弟は水晶が圧電効果をもつことをはじめて発見した。(水晶ガラスではなく、結晶でのみ生じる)。直接効果は超音波を受波するとき、逆効果は超音波を励起するときに関わってくる。

両者を合わせて圧電効果、あるいはピエゾ電気効果とよばれる。逆効果を式で書くと

$$\mathbf{T} = -e \mathbf{E} \quad (\text{厚さ一定のとき}) \quad (6-1)$$

となる。比例定数の e を圧電定数という。単位は $[\text{N}/(\text{Vm})]$ 。上式では、厚さが変わらないようにしたときに応力が発生する。厚さを固定しないときはひずみ s が生じ

$$\mathbf{s} = -d \mathbf{E} \quad (\text{厚さを固定しないとき}) \quad (6-2)$$

となる。 d も d 形式の圧電定数と呼ばれる (単位は $[\text{m}/\text{V}]$)。3.3 節で述べたように、応力や電場には方向性があるので圧電定数も弾性率と似たテンソルという量になり、(6-1)式は次のような行列で表される。添字の数字は 3.3 節と同様な意味をもつ (11→1 など)。

$$\begin{pmatrix} T_1 \\ T_2 \\ \dots \\ T_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e_{11} & e_{21} & e_{31} \\ e_{12} & e_{22} & e_{32} \\ \dots & \dots & \dots \\ e_{16} & e_{26} & e_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} \quad (6-3)$$

2つの圧電定数 d と e の間には、 $d = c^{-1}e$ (c は弾性率テンソル) の関係がある。

ではどのようにして圧電効果が生じるのかを、水晶を例に説明してみよう。図 6.3(a) は、電極板に挟まれた水晶結晶 (SiO_2) のシリコン (Si)、酸素 (O) 原子の構造を示している。この状態で全体としては中性であるが、Si は +、O は - の電荷をわずかに帯びている。(b) のように圧縮の力が加わり全体が押しつぶされると、+ 電荷中心は下方に、- 電荷中心は上方にずれるので、- から + 方向に向かう電気分極 (赤矢印) が生じる。すると上下の電極ではそれと反対の電荷が誘導される。つまり下側の電極板には電子が集まり、上側の電極板は + に帯電する。(c) のように引張り力を加えると、(b) とは逆のことが起こり、上側の電極板は -、下側は + に帯電する。誘電体の中でもこのような特別な構造をもつ物質が圧電性を示すことになる。

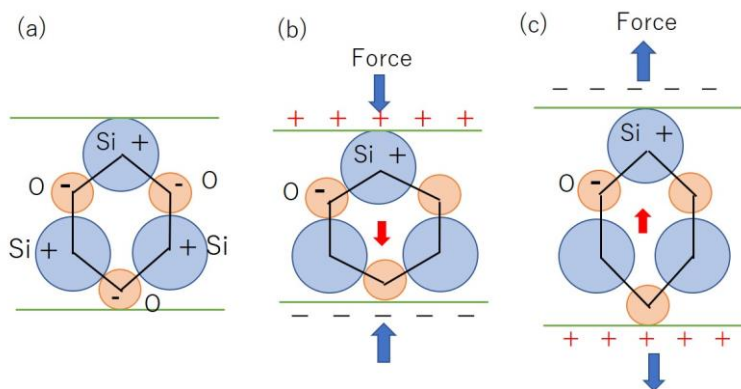


図 6.3 水晶 (SiO_2) の圧電直接効果の説明。赤矢印は電気分極を表す。

(a) 単純化した結晶構造

(b) 圧縮時の構造変化で分極 (赤矢印) が生じ上側電極が正に帯電する。

(c) 引張り時の構造変化で分極 (赤矢印) が生じ下側電極が正に帯電する

水晶は、以前は超音波振動子としてよく用いられたが効率があまりよくない。水晶は熱的、化学的に非常に安定で電気的特性も優れているので、今では精密な周波数発信素子として時計、コンピュータなどで欠かせないものになっている。

6.2 超音波音場

振動子から放射される超音波は、図 2.2(a) で示したような波面がきれいにそろった平面波になるのだろうか。振動面が無限に大きければそうなるが、振動面の大きさは限られているのでそうはならない。図 6.4 のように、面積 S の振動音源が速度 V で一様に厚さ方向 (図で左右方向) に振動しているとしよう。振動子の周囲は剛壁という動かない壁に囲まれている。音源部の微小面積 dS から距離 r の点 P に放射される波をまず考え、全音源面積からの寄与を足し合わせれば P 点での音圧を求めることができる。 dS は微小なのでここからは (2-18) 式のような球面波が放射される。ここで、速度ポテンシャル Φ という計算上便利な量を導入する。 Φ を距離で微分すると粒子速度 v が、時間で微分すると音圧 p が次式のように求められる。

$$v = -\nabla\Phi, \quad p = \rho \frac{\partial\Phi}{\partial t} \quad (6-4)$$

速度ポテンシャルという言葉は聞き慣れないと思う。重力ポテンシャルを距離で微分すると重力が求められるが、それと類似の概念と考えればよい。点 P での速度ポテンシャルは、音源面上で面積分して

$$\Phi = \frac{V}{2\pi} \iint \frac{\exp i(\omega t - kr)}{r} dS \quad (6-5)$$

であるので、音圧は、上式と (6-4) 式を使って

$$p = \rho \frac{\partial\Phi}{\partial t} = \frac{\rho\omega V}{2\pi} \iint \frac{\exp(-ikr)}{r} dS \quad (6-6)$$

と与えられる。周波数 1 MHz, 半径 14 mm の円形振動子から水中に音波が放射されるとして、(6-6) 式の絶対値を計算した例が図 6.5 である。図の左端に音源があり、右方向に音を放射している。縦軸は音源の半径方向距離である。赤が濃いほど音圧が大きい。音源からの距離 z が $z = a^2/\lambda$ (この場合約 $z=13$ cm) の位置で最大値をとる。それ以下で極大極小のくり返しが表れるのは、音源が円形で区切られることによる回折効果のせいである。音源が大きいほど、あるいは周波数が高いほど極大極小が目立つようになる。

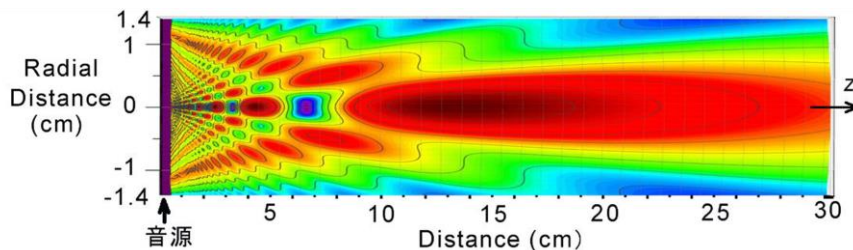


図 6.5 1 MHz 円形振動子からの超音波音場分布。左端にある音源の半径は 1.4 cm。

中心軸 (z 軸) 上のみの音圧変化だけを抜き出すと、音圧の式は

$$|p| = \rho c V \left| 2 \sin \frac{\pi}{\lambda} (\sqrt{a^2 + z^2} - z) \right| \quad (6-7)$$

のように簡単になる。

1 MHz の場合で(6-7)式を計算すると、図 6.5 と対応して図 6.6 上段のように伝搬方向に多くの強弱が表れる。ソノケミストリーでよく使われる周波数の 100 kHz, 20 kHz で、中心軸上の音圧変化がどうなるかを中段と下段で示した。低周波では、複雑な回折効果が音源のごく近くで起こるので、一見単純な変化になる。20 kHz では波長が音源サイズよりずっと大きいので、振幅が距離に逆比例しながら伝搬することがわかる。これはもう球面波と言ってよい。20 kHz 程度のホーン型振動子ではこのように距離とともに音圧が急激に下がることに留意したい。

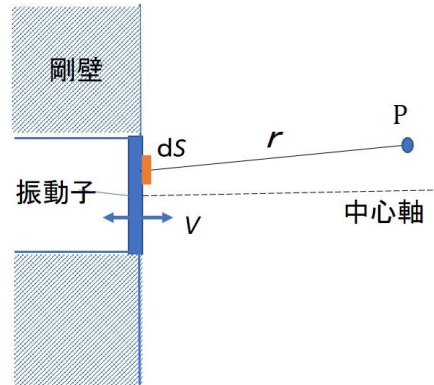


図 6.4 無限剛壁についた面積 S の振動板が速度 V で一様に振動する。

6.3 超音波振動子

現在、超音波振動子としてよく用いられているのはPZT(商標名)とよばれている圧電セラミクスである。これは、粉末状のチタン酸ジルコン酸鉛 ($\text{Pb}(\text{Ti,Zr})\text{O}_3$) を陶器のように焼き固めたものである。高電界をかけて永久分極を持つよう処理し、圧電性をもたせるようにしてある。鉛が環境に悪影響を及ぼすことがわかってきたので、近年は無鉛の材料開発も進んでいる。金属板でサンドイッチすればボルト締めランジュバン振動子 (BLT) になり、凹面状に加工すれば集束型振動子にもなる。この他の圧電物質として、ニオブ酸リチウム

(LiNbO_3)、高分子フィルム状のポリフッ

化ビニリデン (PVDF) などが知られている。圧電セラミクスは、超音波用に限らず加速度センサ、スピーカー、プリンターインクの射出用など多用途で使用されていることも知っておいてほしい。(以下に BLT の振動の様子が載っている

https://www.honda-el.co.jp/product/ceramics/lineup/transducer/blt_cleaner?hsLang=ja-jp)

超音波振動子では、振動振幅を大きくするため 5.3 節で述べたような共鳴現象を使う。したがって、使用したい周波数によって厚さが決まる。図 6.7 に厚さ b と波長 λ との関係を示した。 $b = \lambda/2, b = \lambda, b = 3\lambda/2$ のいずれの場合も機械的な共鳴状態を満たしている。しかし、振動子として使えるのは $b = \lambda/2, b = 3\lambda/2$ の場合のみである。この周波数をそれぞれ基本波、3 倍高調波という (奇数倍ならばよい)。振動子は両側に電極が付いているので一種のコンデンサーと見なせる。 $b = \lambda/2, b = 3\lambda/2$ の場合は、図からわかるように両端の振動位相が逆であるので厚さが変化し、蓄積される電荷量が変わるので電気信号として取り出せる。しかし、 $b = \lambda$ の場合は

両端の振動位相が同じなので厚さが変化せず、電荷量が変わらない。したがって、振動子としては使えないということになる。例えば、1 MHz の PZT 振動子の基本波に対する厚さは約 2 mm である。この振動子は上に述べた理由からその奇数倍の周波数でも使用できる。ただし、高周波ほど振動振幅は小さくなる。ボルト締めランジュバン振動子でも同様に高調波の周波数で発信可能であるが、形状が複雑なので周波数の単純な倍数にはならない。

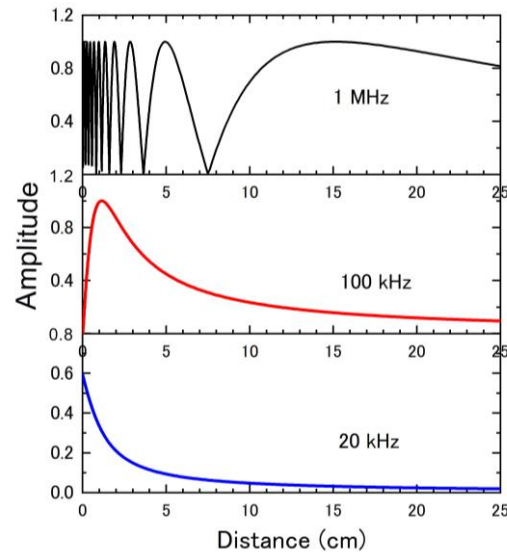


図 6.6 水中での中心軸上の音圧変化。周波数は上から 1 MHz, 100 kHz, 20 kHz。音源半径 1.4 cm で計算。

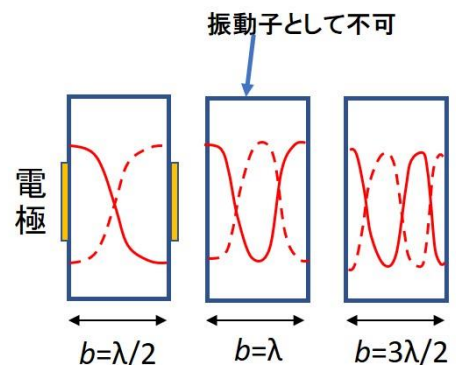


図 6.7 縦波用振動子の動作条件

6.4 集束型振動子とホーン型振動子

強力な超音波を放射するためによく用いられるのは、圧電セラミクスを凹面に加工した集束型振動子と、ホーン型振動子である。前者は 500 kHz 以上の高周波数、後者は数十 kHz の低周波数で用いられる。一様な厚さの凹面振動子を使うと、図 6.8 に示すように音波が集束され曲率中心のやや手前で大きな音圧が得られる。図 6.9 に中心軸上での音圧分布例を示した(周波数 1 MHz, 振動子半径 1.4 cm, 曲率半径 4 cm の場合)。平面型振動子で示した図 6.5 上と比べると最大値の位置が全く異なることがわかる。集束によって増幅される度合は、振動面上の平均値と比べて G 倍になり、曲率半径を D として G は次式で与えられる。

$$G = \frac{ka^2}{2D} \quad (6-8)$$

図 6.9 の例では $G=10$ に相当する。また、6.2 節で説明した回折効果のために焦点面では中心軸と垂直な方向にある幅をもつ(図 6.8 右図)。最大値から 3 dB 下がった値での幅 W は

$$W \approx 2 \left(\frac{1.62D}{ka} \right) \quad (6-9)$$

で与えられる。図 6.9 の例では $W=2.2$ mm である。より低い周波数で同じ増幅度を保とうとすると、音源半径を大きくしなくてはならない。実質的に集束音源が使えるのは 500 kHz 程度以上であろう。集束超音波は、医用では HIFU(High-Intensity Focused Ultrasound)としてガン手術等に用いられ、非破壊検査では狭い範囲の傷探しに使われている。

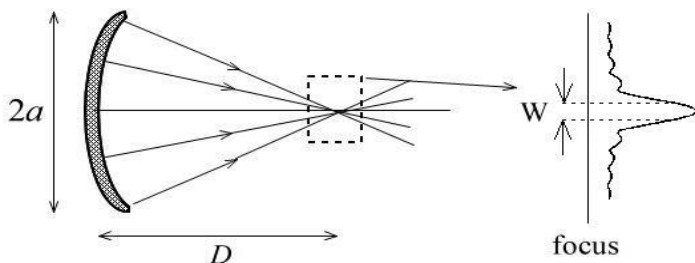


図 6.8 集束音源(曲率半径 D , 音源半径 a) と焦点面での径方向音圧分布

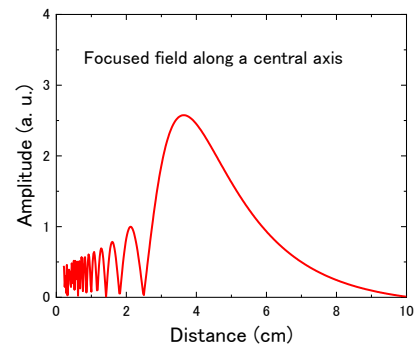


図 6.9 1MHz 集束音場の中心軸上音圧分布(曲率半径 4 cm, 音源半径 1.4 cm)

振動子にホーンをつけると振動速度を大きくすることができる。図 6.10 に段付きホーン(a)とエクスポネンシャルホーン(b)の 2 種類を示した。(a)では、左側、右側円筒の断面積をそれぞれ S_1, S_2 とすると、左端面と右端面の振動速度 v_1, v_2 の比は

$$\left| \frac{v_2}{v_1} \right| = \frac{S_1}{S_2} \quad (6-10)$$

となり、左側から振動を加えると v_2 は断面積の比だけ大きくなる。長さ L は波長の $n/2$ 倍 (n は整数) にする。真ん中の段の箇所は振動速度の節にする。(b)では断面積が指数関数的に減少している。この場合振動速度の拡大率は

$$\left| \frac{v_2}{v_1} \right| = \sqrt{\frac{S_1}{S_2}} \quad (6-11)$$

となる。ホーンは、ホモジナイザー、プラスチックの圧着、金属接合、カッター等に多く使われている。

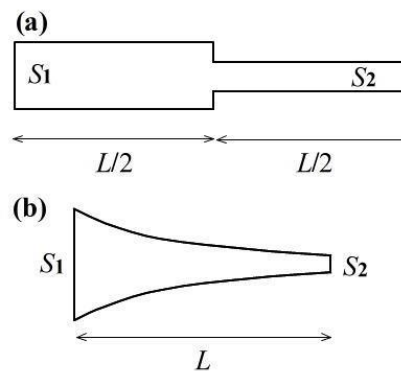


図 6.10 (a)段付きホーンと(b)エクスponentialホーン。 S は断面積。

コラム 2 ポール・ランジュバン(Paul Langevin, フランス, 1872-1946)について

超音波の生みの親とも言える物理学者ポール・ランジュバンについて紹介しよう。ランジュバンは、ピエール・キュリー(フランス物理化学工業学校)や J. J. トムソン (英国ケンブリッジ大) の指導を受け、気体の電離現象の研究で博士号を得た。恩師のピエール・キュリーは 1880 年に兄のジャックとともに水晶の圧電効果を発見している。この圧電効果の発見こそ、のちの水中物探査の開発につながっていく。さらにピエール・キュリーは妻のマリとともにラジウムの放射能を発見し、ノーベル賞をもらった(1903 年)。ラジウム放射能を測定する際に圧電効果が欠かせない役割を果たしたことも見逃せない。

大型商船タイタニック号が氷山に衝突して沈没した(1912 年)ことはよく知られている。事故の直後には、音波で水中物探査をするという特許が出ていたらしい。これをきっかけにソナーが発明された、とよく言われるが実際はそう単純ではない。1914 年に第 1 次世界大戦が始まり、ドイツの潜水艦 U ボートによって、タイタニック号と似た英国商船ルシタニア号が撃沈され多くの犠牲をだした。これが英仏などの怒りを買って、フランス政府は後にソナー ((SOund NAvigation and Ranging) とよばれる機器の開発をランジュバンに依頼した。ランジュバンは超音波を発生・検出するために恩師キュリーが発見した水晶の圧電効果を使えばよいことに気がつき、キュリーの水晶を借りて周波数 40 k Hz で大出力の装置を完成させた。40 k Hz の超音波を出力するには分厚い水晶が必要だが、そんなに厚い水晶は見つからないので薄い水晶を鉄板でサンドイッチして共振周波数を低くする工夫をした。この方式は現在でもボルト締めランジュバン (BLT) 振動子として使われている。こうして開発されたソナーは第 1 次大戦には間に合わなかったが、1920 年代には商船に備えられるようになり、現在では海底探査や魚群探知に欠かせないものになっている。また、この技術が種々の超音波研究を誘起した点でも大きな意義がある。アメリカのウッドは、ランジュバンの水槽実験で魚が死ぬのを見て強力超音波の威力に驚き、いろいろなソノケミストリーの実験を始めるようになった。(R. W. Wood and A. L. Loomis, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 4, 417-436(1927).)

ランジュバンは、磁性や相対論の研究などでも優れた業績を残した。ブラウン運動を記述する有名なランジュバン方程式も考案した。学問だけでなく、第2次大戦中のナチスへの抵抗運動、レジスタンス運動への参加、戦後の教育改革への貢献など平和主義的、人道主義的活動も積極的に行った。ランジュバンの社会貢献がいかに大きかったかは、1946年に国葬されたことからわかる。

コラム2は以下を参考にした：大谷隆彦「ポール・ランジュバン，行動の人」日本音響学会誌，44巻，716，805，879(1988)． K. S. Suslick, “The Dawn of Ultrasonics and the Palace of Science” *Acoustics Today* 15 (4), 38 (2019).

7章 超音波の測定 (Measurements of ultrasound)

超音波のどのような量を測るかは目的によって異なる。大きく分けると

- (1) 媒質の音速や吸収係数を測る。
- (2) 音圧（場合によっては音圧絶対値）やその分布（音場分布）を測る。
- (3) 音響パワーを測る。

などがある。ソノケミストリーや医用では(3)が重要であるが、超音波の応用は多岐にわたるので、(1)、(2)に関わる測定法は非常に多い。ここではまず超音波検出の原理を述べ、(1)～(3)のそれぞれについて代表的な例を述べる。

7.1 超音波の検出

超音波を検出するのに一般的な方法は、圧電効果を使うものである。6章「超音波の発生」で述べたように、圧電セラミクス振動子は音波を発生できるだけでなく受波も可能である。電極を付けた振動子に縦波が入射すると、厚さが変化するのでそれを電圧変化として取り出すことができる。また、光を利用して音波を検出する方法もある。超音波が媒質を伝わるとき、密度が周期的に変化するので同時に屈折率 n も変わることになる。これを利用して光学的な情報から超音波を検出することができる。光を使う方法は非接触なため音場を乱すことがなく、音場の可視化も容易なのでよく用いられている。3番目は超音波による放射圧や温度上昇を利用する方法である。これは7.4節で説明しよう。

7.1.1 ハイドロホン

空中で音波を検出するにはマイクロホンを使うが、水中で使うものをハイドロホンと呼んでいる。細いパイプの先端に圧電物質を仕込んで作製されている。音場中を移動させて音場分布を測定するのに用いたり、音圧絶対値を測るためにも用いられる。広い周波数域で使えるよう圧電物質としてはPVDF（ポリフッ化ビニリデン）膜を用いる場合が多い。市販のものはこのタイプの

ものが多く、音圧の絶対値校正もしてあるので高価である。図 7.1 は、PZT を使ったタイプのキャビテーション用ハイドロホンである。図右側はその感度の周波数特性である。PZT 単体では特定の周波数のみで感度が高いが、裏側にバック材を貼り付けることによって PZT の特性が平らになり広帯域で使えるようになる。

空中あるいは水中での強力な超音波を対象にした、光ファイバーハイドロホンも開発されている。対象媒質に置かれた光ファイバー端面からの反射光強度を調べると、超音波がないときは直流成分しかないが、超音波がある場合は媒質の屈折率が変化するので反射率も周期的に変化し、交流成分もでる。その直流、交流成分の比から屈折率変化、すなわち音圧を求めることができる。このような反射型タイプは、微小サイズ (0.1 mm 以下) という利点はあるが感度が低い。それを改良した Fabry-Perot 型、また多点測定のための Fiber Bragg grating などの方法も考案されている [2]。

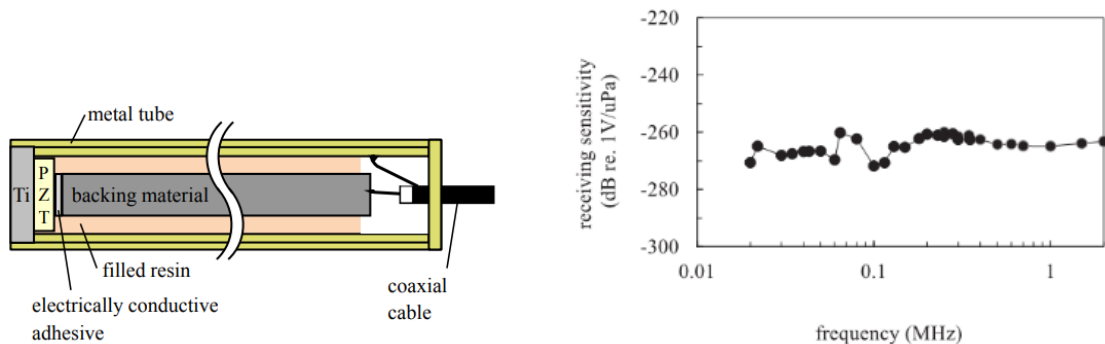


図 7.1 キャビテーション用ハイドロホン (直径 3mm) の例。右図は検出感度の周波数特性を表している。文献[1]より引用。

7.1.2 光学的方法

超音波と光は媒質の屈折率 n を通して相互作用する。超音波によって媒質の圧力が変化すると、屈折率も変化する。真空中の光速を c_0 とすると、媒質中の光速は c_0/n であるから屈折率の変化によって光速も変化することになる。光学的方法はいろいろな種類があるが、要点はこのことに尽きる。超音波の波長 Λ と光ビーム幅 d との大小関係によって取り扱いが変わってくる [3]。主に 1MHz 以下で用いられる (a) 光偏向現象、数 MHz で用いられる (b) ラマン・ナス光回折、数十から数百 MHz で用いられる (c) ブラッグ反射、数 GHz のフォノンに適用される (d) ブリュアン (Brillouin) 散乱が知られている。ここでは (a), (b) についてのみ説明する。

(a) 光偏向現象

超音波波長 Λ が光ビーム幅 d より十分大きい場合には、光が偏向するようになる。図 7.2 のように、上下方向に超音波が伝搬しているところに波長 λ の細い光が真横から入射する場合を考えよう。図で濃い部分の音圧が大きいとすると、光ビーム幅の中の a 点と b 点の箇所では感じる音圧が異なっている。b 点の方の音圧が大きいので屈折率も大きく、光速は a 点よりも小さくなっている。すると光が進むにつれて向きが b 点側 (下側) にずれてくる。超音波領域 (幅 D) のうち

は曲がり続け、空中に出ると直進する。トータルの偏向角を θ とする。超音波は上方に時間とともに進行しているから、偏向角も次式のように音波角周波数 ω で時間変化することになる。

$$\sin \theta = -\frac{v\lambda}{\Lambda} \cos \omega t \quad (7-1)$$

これは偏向角が小さい場合の近似式である。実際 θ は 1 度以上になることはあまりない。

(7-1)式の v はラマン・ナスパラメータという量で、

$$v = \frac{2\pi D \delta n}{\lambda} \quad (7-2)$$

で与えられる。 δn は屈折率の変化量であるから音圧に比例していて、20°Cの水では音圧振幅のピーク値 P_0 と

$$\delta n = 1.47 \times 10^{-10} [\text{Pa}^{-1}] \times P_0 \quad (7-3)$$

の関係がある。最大偏向角 θ_m は (7-1), (7-2) 式から

$$\sin \theta_m = \frac{2\pi D \delta n}{\lambda} \quad (7-4)$$

となる。偏向された光をスクリーン上で見ると拡がった像が見えるので、その拡がりから音圧絶対値の情報が得られる。また、ナイフエッジ法などを使うと超音波の有限振幅時間波形を調べることもできる[4]。(ナイフエッジ法：光ビームの半分をナイフエッジで隠し、残った光を高速フォトダイオードで検出する方法)

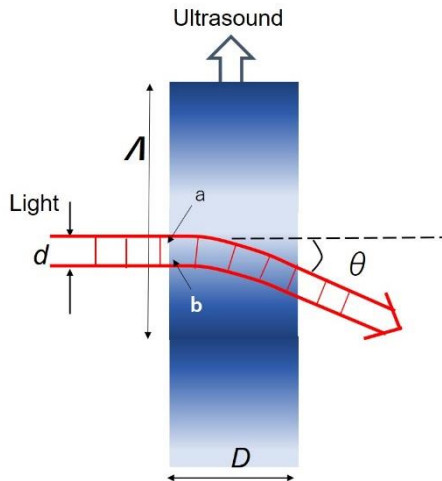


図 7.2 光偏向現象の原理図。光は右端の 패턴のように拡がる。

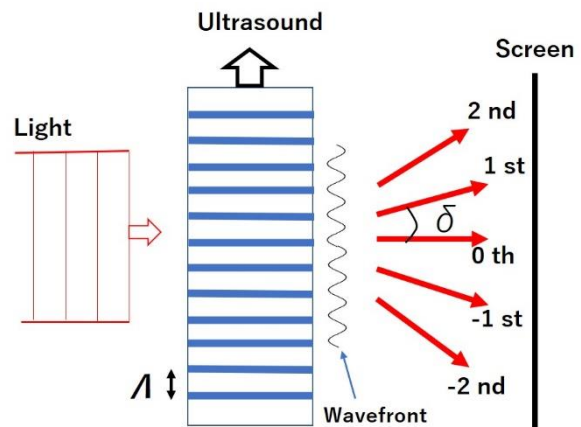


図 7.3 ラマン・ナス光回折の原理図。回折光は分離して現れる。

(b) ラマン・ナス(Raman-Nath)光回折

1935-6年に Raman と Nath によって定式化された方法である。図 7.3 にその原理図を示した。波長 Λ の超音波が下から上方向に伝搬し、真横から位相のそろった波長 λ の光が入射する。このとき、光の幅は超音波波長より十分大きいことに注意してほしい。光が超音波領域を通ると、屈折率が周期的に変化しているから光速度がそれに依って変化し、出射面では図のように光位相がサイン的に変わっている。光は種々の方向に拡がろうとするが、干渉の結果元の方向である 0 次

光、そして±1次光、±2次光……と特定方向にのみ強い回折光ができるようになる。 m 次回折光の0次光からの角度は

$$\sin \delta = \frac{m\lambda}{\Lambda} \quad (m=0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (7-5)$$

で与えられる。その回折光の強度は m 次のベッセル関数を使って $J_m(v)^2$ に比例することになる。 v は(7-2)式で与えられたラマンナスパラメータである。図 7.4 に、スクリーン上の回折光パターン例を示す。超音波周波数は 3 MHz である。最上部は超音波 Off の場合($v=0$)で、下にいくにつれて超音波が強くなる。上から 5 番目では 0 次光が消えているので、 $J_0(v) = 0$ を満たす $v = 2.4$ ということがわかり、そこから音圧も求められる。最下部は±1次光が消えているので $J_1(v) = 0$ の条件から $v = 3.8$ であることがわかる。

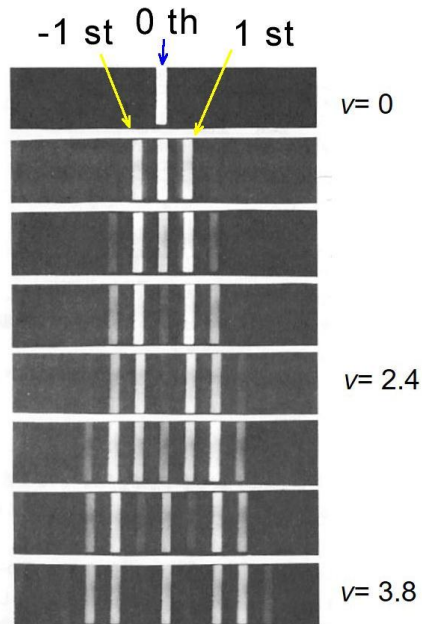


図 7.4 ラマン・ナス回折光のスクリーン上パターン。周波数は 3 MHz。下側ほど音圧が大きくなり、高次回折光が出る。文献[5]より引用。

7.2 音速と吸収の測定法

超音波伝搬特性のうち、最も基本的な量は音速と吸収である[6]。これらの量を測定することは物性研究としてももちろん重要であるが、媒質の温度、濃度等に依存する量なので、超音波を温度・濃度等のセンサーとして使う場合にも意味がある。このうち音速は測定周波数に依存しない、と言ってもよい。4章で説明した緩和現象によって音速はわずかに変化するもののせいぜい数%である。しかし、吸収量は基本的に周波数の2乗に比例して大きくなる。

音速測定法として、数 MHz の超音波パルスを利用する方法が多く考案されている。基本的なやり方は図 7.5 のようである。液体試料をはさんで励起用、受波用の振動子を平行に配置する。パルス発生器から赤で示したような DC パルス（一瞬だけのマイナスの高電圧）、あるいはバースト波（数波だけつづく AC 信号）を振動子に入射し、超音波パルスを伝搬させる。試料を通ったパルス信号を増幅し、オシロスコープで観測する。試料を一度透過したパルスとさらに一往復後のパルスの伝搬時間差から、往復伝搬時間 T が測定できる。振動子間の距離 D が分かれば、 $2D/T$ から音速が求められる。 D を直接正確に求めるのは難しいので、音速が正確に知られている水で測定して、あらかじめ D を決めておくのが一般的である。精度の高い測定には 2 枚の振動子をできる限り平行にすることが肝要である。なお、1 枚

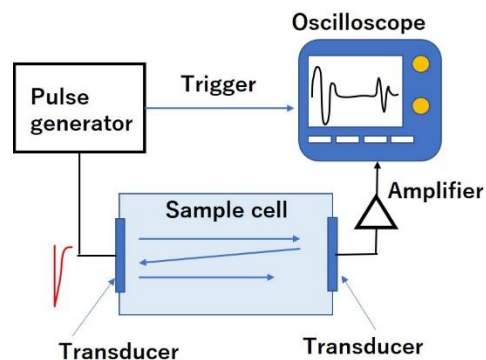


図 7.5 パルス法による音速測定

の振動子で励起，受波を兼用しても同様な測定が可能である。ただし，その場合は大振幅の励起パルスを受波側でカットする仕組みが必要である。

吸収測定も図 7.5 と同様な装置を使い，何度も往復反射するパルスの振幅を比べれば原理的に可能である。(パルスの振幅は距離とともに指数関数で減衰する。(4-5) 式を参照) しかし，音波の減衰には，本来の媒質吸収のほか回折損失や平行度のずれによる損失などがあるので，振動子の配置には十分な工夫が必要である。数 MHz から 200 MHz で用いられた液体試料セルの一例を図 7.6 に示す。上部の水晶振動子から出た超音波パルスは石英棒バッファを通して試料を伝搬し，下側の水晶振動子で受波される。石英バッファは伝搬時間を大きくするために使う。移動ネジで伝搬距離を変え，受波した音圧振幅の変化から吸収が求められる。

連続音波の共鳴現象を利用して，共鳴ピークの間隔から音速を，ピーク幅から吸収を求めることもできる。詳細は 5.3 節で述べたので参照してほしい。この場合，音波エネルギーをいかに損失なく容器に閉じ込めることができるかが精度のキーポイントとなる。凹面反射板などを用いると，100 kHz から 10 MHz までの吸収測定が可能である。

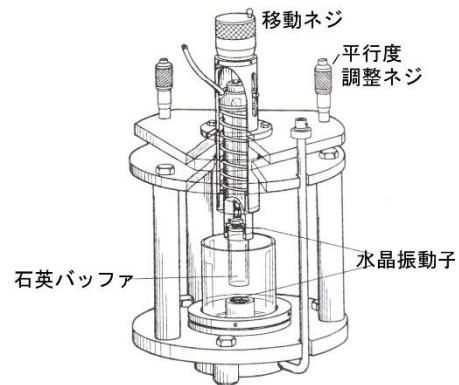


図 7.6 超音波吸収用試料セル。文献[7]より引用。

7.3 音場分布の測定

音場分布を測定するための最も単純な方法は，音場内に入れたマイクロホン（文中は「マイクロホン」）を 3 次元的にスキャンして音圧を計測することである。しかし，手間がかかること，マイクロホンが音場を乱すことなどからあまり用いられない。7.1.2 で述べた光学的な手法を用いれば非接触で迅速な測定が可能である。そのうち最もよく用いられるシュリーレン法について述べよう。図 7.7 のように，ラマン・ナス光回折の条件を満たすように音波波長に比べて幅広い平行光を入射する。光源からの光を一度絞りスリットを通すと点光源に近づくので，質のよい平行光が得られる。超音波領域を通過した光をレンズで絞り，ストップという小さい黒点で遮ってしまう。超音波の影響を受けない光はそのストップで全て止められカメラには入らない。しかし超音波による屈折率変化の影響を受け回折された光は，ストップをはみ出てカメラに入射する。つまり超音波のみ明るく映像化できることになる。超音波パルスのように一瞬しか出ないときは，パルスと同期するよう光源をストロボ的に発光させればよい。図 7.8 にそのように測定された例を示す。図の上側から 1 MHz のバースト状集束超音波が伝搬して，下に置かれた板に入射しようとする瞬間を撮った写真である。細かく見える横スジは超音波の波面で，焦点の位置は反射板表面にある。超音波励起とストロボ光源の発光時間を少しずつずらしてやれば超音波伝搬の動画が撮れる。光学的方法には，このほかシャドウグラフ法などがある [8]。

光学的方法の弱点は，光が通過する領域での積分効果を観察しているので，通過方向の音圧分布は見えないという点である。それを避けるには X 線 CT などで行われているトモグラフィーを

使う方法がある。

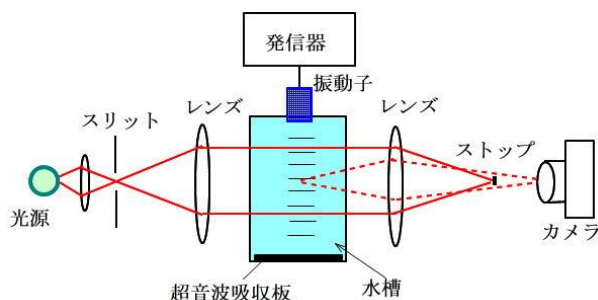


図 7.7 シュリーレン法の原理図



図 7.8 集束超音波が反射板に入射する瞬間の様子をシュリーレン法で撮影した例。(関西大山本健教授より提供)

7.4 超音波パワーの測定

まず、**超音波パワー**（**超音波強度**あるいは音響インテンシティともいう）の定義をしよう。音波が媒質に対して行う仕事率（単位時間当たりの仕事）は、[力]×[速度]であるから、 $\overline{p\dot{u}}$ で与えられる。上に付けたバーは時間平均を表す。平面進行波では、粒子速度は (5-1) 式から $\dot{u} = \frac{p}{\rho v}$ であるから、超音波パワーは

$$I = \frac{\overline{p^2}}{\rho v} \quad [\text{W}/\text{m}^2] \quad (7-6)$$

となる。ここで ρ は媒質密度、 v は音速である。音圧として振幅値を使うときは、上式を 2 で割る必要がある。 I は単位面積を単位時間あたりに通過するエネルギーである。単位時間の間には v [m] だけ動くから、単位体積当たりのエネルギー密度は、 I を v で割って

$$E = \frac{I}{v} = \frac{\overline{p^2}}{\rho v^2} \quad [\text{J}/\text{m}^3] \quad (7-7)$$

で与えられる。超音波パワーを測るには、校正された hidroホンを使って音圧を直接測る方法、音響放射力を測る天秤法、発生する熱を測るカロリメトリー法がある。

医用診断装置においては、安全性の観点からパワーを知ることが重要である。空間ピーク時間平均強度 I_{SPTA} [mW/cm²] は、時間平均して 1 パルスのエネルギーを求め、それに 1 秒当たりのくり返し周波数を掛けたものとして求められる。安全規格では、出力の最大値が $I_{\text{SPTA}}=720 \text{ mW}/\text{cm}^2$ と決められている。

7.4.1 天秤法

超音波によるエネルギーが伝わっている流体中に物体をおくと、物体に力がはたらく。これを**音響放射力**という。霧化器で見られるように、水中から水面に向かって音を伝搬させたときに水

面が盛り上がるのもこの音響放射力のためである。図 7.9(a)のように物体の面積を S 、反射率を R とすると、音波のエネルギー密度 E と放射力 F の関係は

$$F = SE(1 + R) \quad (7-8)$$

となる。エネルギーを完全に吸収するときは $F=SE$ 、完全に反射するときは $F=2SE$ になる。図 7.9(b)のように、物体にはたらく力を電子天秤で計測すると、超音波パワーを求めることができる。市販品の例では、適用周波数は直進性がよい 0.5 MHz から 10 MHz で、最大 10 W 程度まで測定できる。なお、水中で $I = 1 \text{ W/cm}^2$ のとき、完全吸収体では 68 mg 重/cm^2 の力がはたらく。

音響放射力を応用したものに、重力がはたらかない宇宙ステーション内での空中浮揚、細胞・微粒子・マイクロバブル等のマニピュレーションなどがあり、近年注目されている[9]。

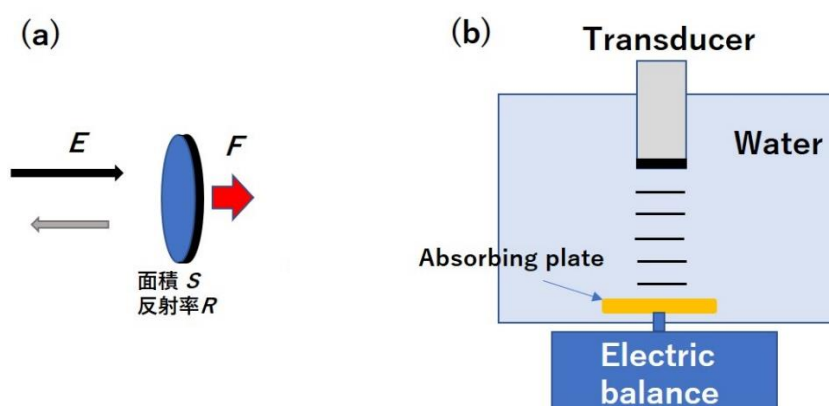


図 7.9 (a)音響放射力 F の原理, (b)超音波パワー測定装置の例

7.4.2 カロリメトリー法

超音波エネルギーは媒質で吸収され最終的には熱に変換されるので、温度上昇の割合から超音波パワーを求めることができる。それがカロリメトリー法である。質量 $M \text{ kg}$ の水を容器に入れて超音波を照射し、熱電対で温度上昇の時間変化を測定する。水の定圧比熱を $C_p (=4.18 \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1} \text{ at } 20^\circ\text{C})$ とすると、水に吸収された超音波パワー P は

$$P = \left(\frac{dT}{dt}\right) C_p M \quad (7-9)$$

で与えられる。 t は時間[s]で、 (dT/dt) は温度 T の増加速度である。発生した熱が容器ならびに外部に伝わらないことが望ましいが、1 分程度の温度増加速度を測るのであればそれほど断熱にこだわることなく測定できる。音響放射力を使ったパワー測定ではキャビテーション気泡があると測定の邪魔になるが、カロリメトリー法では気泡は超音波吸収を増加させるのでソノケミストリーに向いている方法である。ただし、熱電対は熱容量の小さいものを用い、熱電対に気泡が付着しないようにする。測定開始初期に熱電対と液体との間で起こる粘性減衰のため温度が上昇することが知られており、初めの数秒を避けて測定する必要がある。詳細は文献[10]を参照してほしい。

7 章の参考文献

[1] N. Okada *et al.* Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 07LE15 (2018).

- [2] M. Matsukawa *et al.* ed. “*Ultrasonics: Physics and applications*”, Chap.3, Institute of Physics, (2022).
 [3] W. R. Klein and B.D. Cook, IEEE Trans. Sonics and Ultrason. **SU-14**, 123 (1967).
 [4] P.-K. Choi, T. Ezawa, and G. Kudoh, J. Acoust. Soc. Jpn. (E) **20**, 4 (1999).
 [5] 根岸勝雄, 高木堅志郎「超音波技術」東大出版会(1984).
 [6] 渡辺好章編著, 音響学講座「超音波」コロナ社 (2022).
 [7] 野村浩康, 川泉文男, 香田忍「液体および溶液の音波物性」名古屋大学出版会 (1994).
 [8] N. Kudo, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 07HA01 (2015).
 [9] 小塚晃透, 畑中信一, 日本音響学会誌 **76**, 606 (2020).
 [10] 崔, 榎本, 原田, 興津編著「音響バブルとソノケミストリー」5章, コロナ社(2012).

8章 音響キャビテーション (Acoustic cavitation)

8.1 気泡の生成と気泡振動

炭酸飲料ボトルの栓を空けるときに気泡ができるのはよくご存じであろう。これはボトル内の圧力が急に減少するためである。音波による圧力変化でも気泡が生成する。いま、音圧が1気圧以上の音波を水に照射したとしよう。水中の圧力は図 8.1 のように大気圧を中心に増減するが、矢印で示したマイナスのピーク周辺ではゼロ以下になる。ここで気泡が生まれると古い本には書いてあるが、そう言いたいわけではない。ここでは水を引き裂くような力が

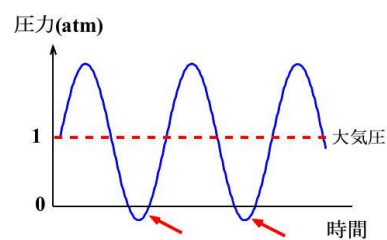


図 8.1. 1 気圧以上の音圧。矢印部では水を引き裂くような力がはたらく。

かかるが、水分子同士は水素結合のため簡単には分離しない。引き離す圧力を計算すると約 1,000 気圧になるという。溶存空気やゴミを十分排除した場合、音圧 100 気圧位までキャビテーションが起きなかったという実験結果もある。しかし、我々が通常扱う水では（どんな蒸留水であっても）空気やゴミが多く含まれており、1 気圧程度の音圧でキャビテーションは起こってしまう。実際には容器壁や固体粒子であるゴミには微細な気泡が付着していて、それらが核となって溶解している空気を取り入れながら気泡として成長する。脱気した水ではキャビテーションは起きにく

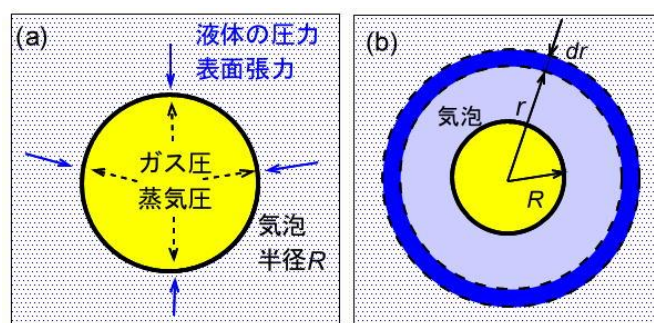


図 8.2 (a)気泡壁での力のつりあい。(b)気泡内外の座標。気泡中心から r の距離にある厚さ dr の液体球殻を考える。

くなる。音圧のプラス側では気泡は収縮するので音圧と同期して気泡は膨張収縮をくり返しながら大きくなる。次に、気泡の膨張収縮振動を定式化してみよう。

図 8.2(a)のように、水中に半径 R の微小な球形気泡が存在するとしよう。気泡にかかる力は、気泡内部から液体側に向かってガス圧 P_g と蒸気圧 P_v 、そして液体側から気泡壁に向かっては液体の圧力 P_B と表面張力である。両者が平衡して

$$P_g + P_v = P_B + \frac{2\sigma}{R}, \quad (8-1)$$

が成り立つ。ここで、液体の圧力 P_B とは大気圧 P_0 + 音圧 $p(t)$ と考えればよい。 $\frac{2\sigma}{R}$ は表面張力 σ から生じるラプラス圧力で、半径が小さいほど大きくなる。音圧変化により P_B が変わると、(8-1)式を平衡させるように気泡半径とガス圧も変化する。水蒸気は気泡内圧力によって一部は凝縮するので、蒸気圧 P_v は一定である。

液体がもつ運動エネルギーの考察から気泡の膨張収縮振動の基本方程式を導くことができる。気泡壁が速度 \dot{R} で膨張すると、気泡中心から r の距離にある周囲液体も速度 \dot{r} をもって dr だけ変位する (図 8.2(b))。気泡壁が動いた分だけ液体体積も変化する (非圧縮性)

$$4\pi r^2 \dot{r} = 4\pi R^2 \dot{R}, \quad (8-2)$$

が成り立つ。液体密度 ρ を用いると厚さ dr の液体球殻部がもつ運動エネルギーは $\frac{1}{2}\rho r^2 \times 4\pi r^2 dr$ だから、液体全体の運動エネルギーは r で積分すればよく、(8-2)式を使って

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2}\rho \int_R^\infty \dot{r}^2 4\pi r^2 dr = \frac{1}{2}\rho \int_R^\infty \frac{R^4 \dot{R}^2}{r^2} dr = 2\pi\rho R^3 \dot{R}^2, \quad (8-3)$$

となる。一方 P を初期径 R_0 のときの (ガス圧+蒸気圧) とすると、気泡にかかる圧力がなす仕事は

$$\int_{R_0}^R (P_B - P_i + \frac{2\sigma}{R}) 4\pi r^2 dr \quad (8-4)$$

である。(8-4) 式の仕事は、(8-3)式の液体の運動エネルギーと気泡表面での粘性損失の和に等しいはずだから、そのエネルギー等式を R で微分することで次の **Rayleigh-Plesset** の式を導くことができる。

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho} \left[P_g + P_v - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu\dot{R}}{R} - P_0 - p(t) \right] . \quad (8-5)$$

$$\text{ただし } P_g = \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} - P_v \right) \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} \quad (8-6)$$

ここで、 μ は液体の粘性率、 R_0 は初期気泡径、 $\gamma (= C_p/C_v)$ は気体の比熱比である。(8-5)式は気泡振動の最も基礎となる式である。気泡内ガスは(8-6)式のように断熱変化すると仮定している。したがって気泡が収縮すると高温高压の状態になることが予測できる。音圧が大きくてソノルミネセンスが起きるような場合は、Rayleigh-Plesset の式では不十分で液体の圧縮性を考慮した Keller-Miksis の式を適用する必要がある [1]。(8-3)式の運動エネルギーを $\frac{1}{2}m_{\text{eff}}\dot{R}^2$ と書くと、その有効質量 $m_{\text{eff}} = 3 \times \frac{4}{3}\pi R^3 \rho$ は、気泡体積の 3 倍分の液体質量と一致することになる。音圧が小さくて気泡径の変化が小さいとき、気体の圧力をバネとみなすと、気泡振動はおもりとバネからなる線形な系と見なすことができ、その共振周波数は **Minnaert**(ミンナルト)の式

$$f_0 = \frac{1}{2\pi R_0} \sqrt{\frac{3\gamma P_0}{\rho}} \quad (8-7)$$

で与えられる。空気気泡の場合、 f_0 を kHz、 R_0 を mm で表すと、上式は

$$f_0 R_0 \approx 3 \quad (8-8)$$

という覚えやすい式となる。半径 0.1mm の気泡ではおよそ $f_0=30$ kHz ということになる。ただし、実際のキャビテーション気泡では音圧が大きいため気泡径変化は非線形になり、ある周波数で共振する気泡径は(8-8)式で予想されるよりずっと小さくなる。0.8–2 気圧の音圧に対する気泡径の時間変化を図 8.3 に示す。ここでは Keller-Miksis の式で計算してある。図上側は音圧の位相を示す。音圧が最小のときに気泡径が最大を示すのではなく、位相が $\pi/2$ 程度遅れていることに注意してほしい。これは気泡がほぼ共鳴状態で振動していることを表している。

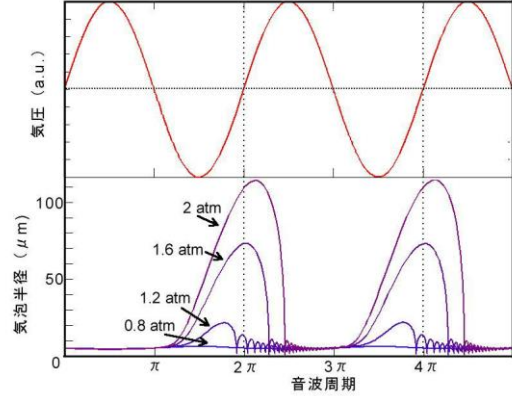


図 8.3 気泡にかかる音圧(上)と気泡半径の時間変化(下)

図 8.3 で、1.2 気圧以上の場合のように最大径と最小径の差が非常に大きくなると、断熱圧縮のため最小径のときに気泡内温度が数千度、圧力も千気圧近くになる。その結果、水分子が分解されて OH ラジカルができ、またソノルミネセンスとよばれる青白い光を放射する。最大温度と最大圧力は、それぞれ

$$T_{\max} = T_0 \left(\frac{R_0}{R_{\min}} \right)^{3(\gamma-1)}, \quad P_{\max} = P_0 \left(\frac{R_0}{R_{\min}} \right)^{3\gamma} \quad (8-9)$$

から見積もることができる。 T_0 、 P_0 は音波がないときの気泡内の温度と圧力、 R_0 は初期気泡径、 R_{\min} は最小半径、 γ は比熱比である。ただし、(8-9)式では気泡内がガスのみという仮定で、水蒸気存在などは無視しているため過大評価していることになる。

気泡内で生成された OH ラジカルは活性酸素の一種であり、他分子との反応性が強いことが知られている。その一部は液体側にもれ出して周囲の分子を分解する働きがあり、ソノケミストリー応用には重要である。ルミノール分子と反応すると青い発光を呈する(図 8.5 参照)。これはソノケミルミネセンスとしてよく知られている。ソノルミネセンスと比べると発光強度が 2 桁位大きいので、キャビテーション検出にも用いられている。

8.2 気泡にはたらく力 (ビャークネス力)

前節では 1 個の気泡の膨張収縮について考えた。実験室で扱うサイズの容器中では超音波の定在波が伝搬しているのが普通であるので、定在波の中で気泡がどのような力を受けるかを考える。超音波の音圧を気泡面積にわたって積分したものが受ける力であるが、面積積分を体積積分に変換するガウスの定理を使うと、次式のように表せる。

$$F_{B1} = -\langle V \nabla p \rangle \quad (8-9)$$

この力を第1ビャークネス (Bjerknes) 力という。Vは気泡の体積、 ∇p は圧力の空間勾配、 $\langle \rangle$ は1周期での時間平均を表す。音圧が $p = P_0 \sin kx \cos \omega t$ 、気泡半径が $R_0 + A \sin kx \cos \omega t$ で表されるとき、(8-9) 式から

$$F_{B1} = \frac{3AkV_0P_0}{4R_0} \sin 2kx \quad (8-10)$$

となる。第1ビャークネス力と音圧の関係を図8.4で示したが、発光する気泡はこの力のために音圧の腹の位置でつり合うことになる。図8.5に、円筒ビーカー内のルミノール水溶液から発光する写真を示した。横スジ状に発光している位置が音圧の腹に相当する。ただし、中心部は音圧が大きいのので腹からのずれが生じている。初期気泡径が共振径より大きなものは音圧節にトラップされる。超音波洗浄器中ではっきり目に見える大きな気泡等は節にトラップされていてほとんど膨張収縮していない。

多数の気泡が存在する場合、気泡同士は相互作用して合体や分裂、クラスター化など複雑な運動をすることになる。音圧のほかに気泡には他の気泡が膨張収縮することによって生じる圧力も加わる。これを第2ビャークネス力とよぶ。2個の気泡の場合、

$$F_{B2} = -\langle V_2 \nabla p_1 \rangle = -\frac{\rho}{4\pi r^2} \langle \dot{V}_1 \dot{V}_2 \rangle, \quad (8-11)$$

と表される。添え字は2個の気泡を区別する数字である。rは2個の気泡間距離である。2個の気泡が同位相で振動するときは引力がはたらくが、逆位相の場合は斥力がはたらく。複雑な気泡運動の例を図8.6に示そう。(a)は角ガラス容器中で動くキャビテーション気泡を通常のカメラで写したものである。周波数は82 kHz、音響パワーは11Wである。白く見えるのが気泡で、音圧腹に向かって直線的に動き回っている。いわゆるストリーマという気泡群である。(a)の中の2 mm

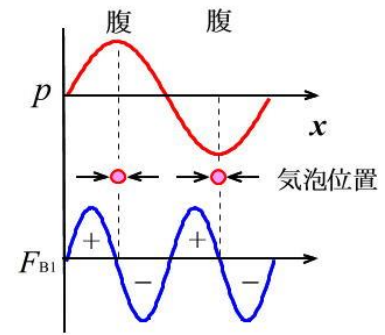


図8.4. 定在波音圧と第1ビャークネス力の関係。矢印は力のはたらく方向を示す。

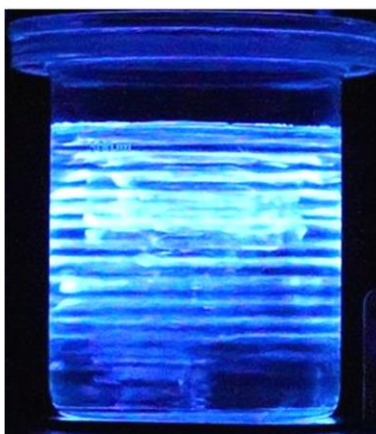


図8.5. 円筒ビーカー内でのルミノール発光写真 (周波数 145 kHz)。定在波音圧の腹の位置で発光する。

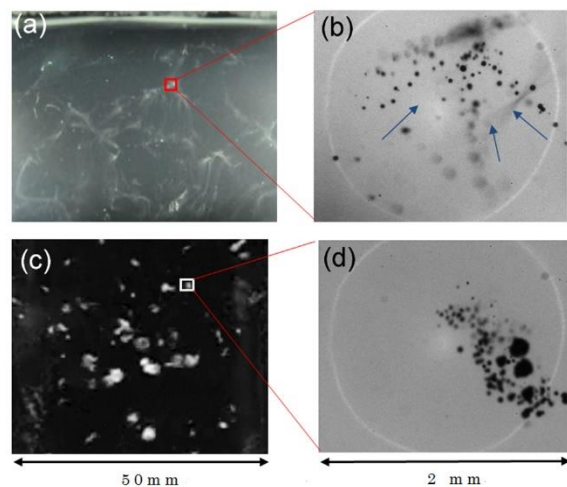


図8.6. 82 kHzでの気泡運動の例 (a)11W, (c)16W。(b), (d)は(a), (c)を拡大して影絵として高速撮影したもの。文献[2]より引用。

角部を拡大して高速度カメラ（100万コマ/s）で撮影したのが(b)である。数十 μm サイズの気泡が矢印方向に動いている。移動した先では合体や分裂を繰り返している。パワーを16Wまで上げると、気泡間にはたらく力が大きくなって(c)で示すような雲状のクラスターが観測できる。(c)中の2mm角部を拡大して高速度撮影したのが(d)である。小さい気泡と非球形振動する大きな気泡が非常に複雑な振動をしている。そのビデオが以下に載っているのを見ていただきたい。
<https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2014.02.008> (8-11)式で表されるのは2体間の力だけなので、多数の気泡間の相互作用を表すのは非常に困難である。

8.3 気泡を含む液体中の音波伝搬

最後に、音響キャビテーションとは直接関係はないが、気泡を含む水中での音速について述べる。水中の音速が約1500m/sであることは常識であるが、気泡を含む水では空気中の音速である約340m/sよりも小さくなり得ることはあまり知られていない。いま、水中に空気気泡が体積分率 β （porosity or void fraction）の割合で一様に存在するとしよう。音波周波数は気泡の共振周波数（(8-7)式参照）よりも十分小さいとして音速を求めてみよう。空気の密度と音速をそれぞれ ρ_1, c_1 、水の密度と音速をそれぞれ ρ_2, c_2 とすると、気泡を含む水の平均密度は

$$\rho = \beta\rho_1 + (1 - \beta)\rho_2 \quad (8-12)$$

である。弾性率(ρc^2)の逆数である圧縮率についても加成性が成り立つので、気泡を含む水の音速を c として

$$\frac{1}{\rho c^2} = \frac{\beta}{\rho_1 c_1^2} + \frac{1-\beta}{\rho_2 c_2^2} \quad (8-13)$$

が成り立つ[3]。以上の2式から ρ を消すと

$$\frac{1}{c^2} = \frac{\beta^2}{c_1^2} + \frac{(1-\beta)^2}{c_2^2} + \frac{\rho_1 c_1^2 + \rho_2 c_2^2}{\rho_1 \rho_2 c_1^2 c_2^2} \beta(1 - \beta) \quad (8-14)$$

が導かれる。(8-14)式で求めた音速の計算例を図8.7に示す。簡単のため、 $\rho_1 = 1 \text{ kg/m}^3, \rho_2 = 1000 \text{ kg/m}^3, c_1 = 340 \text{ m/s}, c_2 = 1500 \text{ m/s}$ とした。図の横軸は β を対数で10%まで示している。気泡分率が1%のとき音速は約100m/s、10%では33m/sとなる。気体の音速値よりも小さくなり得るのは一見不思議であるが、次のように考えればよい。音速が $\sqrt{M/\rho}$ であることを思い出してほしい。全体の密度は気泡の影響をわずかしか受けないので空気の密度より1000倍近い大きさなのに、対し、弾性率 M は水と比べて気泡の影響で大きく減少するので、結局音速は空気音速よりも小さくなり得る。

上で述べたことが成り立つのは、音波の周波数が低く、気泡がごくわずかしか膨張収縮振動しないような場合である。周波数が気泡の共振周波数に近くなると、気泡振動の影響をきちんと考

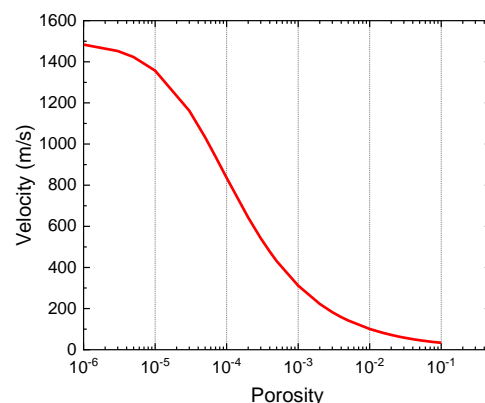


図 8.7 気泡を含む水の音速。横軸は気泡の体積分率 β 。

慮する必要がある。すなわち周波数により音速が変化することになる。半径 R_0 の気泡が単位体積中に n 個あるとすると、 $\beta = n(4/3)\pi R^3$ であるから β が圧力により変化するという条件を考える必要がある。詳細な導出は文献[4,5]を見てもらうとして、結果は

$$\frac{1}{c^2} = \frac{\beta^2}{c_1^2} + \frac{(1-\beta)^2}{c_2^2} + \frac{3\beta(1-\beta)}{R_0^2(\omega_0^2 - \omega^2 + 2ib\omega)} \quad (8-15)$$

という式になる。 ω は音波の角周波数、 ω_0 は気泡の共振角周波数である。上式は複素数で表されており実部が音速、虚部は気泡振動による減衰を表す項で b はその吸収を表す量である。音速の計算値(実線)と実験値を比べた例を図 8.8 に示す。低周波では一定であるが、共振周波数近くで大きく変化し、高周波側では低周波側の値よりも大きくなる。音波減衰も共振周波数近くで非常に大きくなる。

キャビテーションによって気泡が生まれるような場合、気泡数が分裂・合体のため安定しない等の理由で音速がどうなるかを予測することは難しい。100-200 kHz でのルミノール発光を使った円筒容器内の発光パターン(図 8.5 のような)から音速を求めた実験例がある[6]。それによると、音速は 868-1063 m/s であった。すなわち、図 8.8 によると発光気泡の平衡半径は測定周波数で決まる共振径よりかなり小さいことになる。

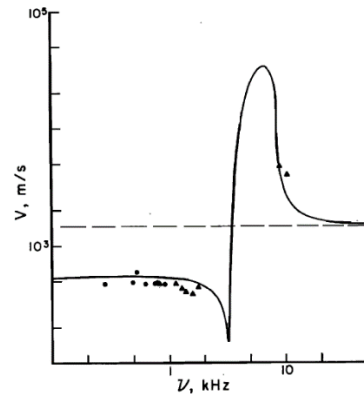


図 8.8. 気泡半径 $R_0=0.994$ mm, $\beta=0.000377$ のときの音速分散計算値と実験値の比較。点線は水中音速値。文献[4]より引用。

おわりに

以上、3 回にわたって超音波の基礎を解説してきた。著者としてわかりやすく書いたつもりでも、読者の学問的バックグラウンドは異なるので理解できないことも多かったかもしれない。しかし、何がわからなかったかを覚えておいて後になって勉強が進んだときに、あのときの問題はこういうことだったのか、と納得することが大事だと思う。このことは超音波に限らず学問全般についても言えるであろう。本解説が皆さんの研究の役に立てば幸いである。

コラム3 ソノルミネセンス

著者は、ソノケミストリーの分野で主にソノルミネセンスの研究を行ってきた。本解説文ではこのテーマについて触れていないが、過去の研究の一端をここで書かせていただきたい。多数気泡のソノルミネセンス (Multi-Bubble SL) は 1930 年代にすでに知られていたが、単一気泡によるシングルバブルソノルミネセンス (Single-Bubble SL) を Gaitan らが学会で報告したのは 1989 年である。SBSL をきっかけにして音響キャビテーション研究は急速に進むことになる。単一気泡は長時間静止させることができるので、発光スペクトルや気泡径の観測などが容易であり、そのことが研究を大いに促進させた。SBSL は室内で薄暗くすれば誰でも眼で見える。私も初めて見たときは、音から光が生まれることにおどろいた。“Star in a jar” と言われたこともあり、多くの人に感動を与えたことも「自分もやってみよう」という動機付けになったと想像される。また、核融合が起きた(?), という報告はインパクトが大きかった。一方、MBSL は非常に暗くて暗室でも眼を慣らさないとなかなか見えない。当時は写真に撮ることも困難であった。我々の研究室で 2007,8 年頃に水からの MBSL の写真が初めて撮れたときは感動した。そのころ一眼レフカメラの ISO 感度が急に上がってきていて、毎年のようにカメラを買い換えていた。水だけでなく Li, Na, K などのアルカリ金属塩水溶液で試すと炎色反応の色が見えてとても興味深い[7]。学生たちが撮影したいろいろな発光写真を、ある学生が黒い T シャツにプリントしてくれたのでその写真を上図に示しておこう。

「百聞は一見にしかず」ということわざがある。何度も聞いて分からなくても一度見れば分かる、というような意味である。ソノルミネセンスはそういう点でキャビテーション研究の先導役として大きな意味があった。もっともなぜ光のかと考えると、見ただけではもちろん分からず、より興味を誘うところが面白いのである。ソノルミネセンスの発光機構については、プラズマ中の制動放射*が関与していることは確からしいが、現在でも未解明な部分が多く残っているままである。

*制動放射：原子から電離した電子が減速しながら電磁波を放射すること。独語で Bremsstrahlung (Brake radiation) という。



T シャツにプリントされた種々の溶液からのソノルミネセンス写真

8章の参考文献

- [1] 崔, 榎本, 原田, 興津編著 「音響バブルとソノケミストリー」 3章 コロナ社(2012).
- [2] 崔博坤 “超音波洗浄とソノルミネセンス“ 日本物理学会誌, **70**, 932 (2015).
- [3] A. B. Wood, *A textbook of sound*, Macmillan (1955)
- [4] K. W. Commander and A. Prosperetti, *J. Acoust. Soc. Am.* **85**, 732 (1989).
- [5] F. R. Young, *Cavitation*, Chap.3, Imperial College Press, (1999).
- [6] P. R. Birkin *et al.*, *J. Phys. Chem. A* **107**, 306 (2003).
- [7] P.-K. Choi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56**, 07JA01 (2017).

最後に, 全般にわたる基本的な参考文献を挙げておく。

- [1] 超音波便覧編集委員会編「超音波便覧」丸善 (1999).
- [2] 渡辺好章編「超音波」コロナ社 (2022).
- [3] P. D. Edmonds ed. *Ultrasonics: Methods of Experimental Physics*, Vol.19, Academic Press (1981).
- [4] H. Kuttruff, *Ultrasonics: Fundamentals and Applications*, Elsevier, (1991)
- [5] J. D. N. Cheeke, *Fundamentals and Applications of Ultrasonic Waves*, CRC press (2002).
- [6] [超音波用語事典 | 超音波シンポジウム USE2022 \(use-jp.org\)](http://use-jp.org) (Web 上で無料公開)
音響キャビテーションについては
- [7] F. R. Young, *Cavitation*, Imperial College Press (1999).
- [8] W. Lauterborn and T. Kurz: “Physics of bubble oscillations” *Rep. Prog. Phys.* **73**, 106501 (2010).
- [9] F. R. Young: *Sonoluminescence*, CRC Press (2005).
- [10] M. P. Brenner, S. Hilgenfeldt and D. Lohse: “Single-bubble sonoluminescence”, *Rev. Mod. Phys.* **74**, 425 (2002).
- [11] K. Yasui, *Acoustic Cavitation and Bubble Dynamics*, Springer (2018).
- [12] 崔, 榎本, 原田, 興津編著 「音響バブルとソノケミストリー」 コロナ社(2012).