

Akusztikusan gerjesztett buborékok felületi stabilitásának és felbomlásának vizsgálata

Investigation of the acoustically excited bubbles shapes deformation and fragmentation.

KALMÁR Péter¹, MSc hallgató, HEGEDŰS Ferenc¹, egyetemi docens, KLAPCSIK Kálmán¹, adjunktus

¹Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Gépészmérnöki Kar,
Hidrodinamikai Rendszerek Tanszék

H-1111, Budapest, Műegyetem rkp. 3. Tel.: +361-463-1680. Fax: +361-463-3091.
E-mail: peter.kalmar01@gmail.com, fhegedus@hds.bme.hu, kklapcsik@hds.bme.hu

Abstract

In the case of sonochemistry, the acoustically excited bubbles start to pulsate periodically, which can be divided into an expansion and a contraction phase. During the contraction, the pressure and the temperature can reach 1000 bar and 8000 K, respectively. These extreme conditions can increase the chemical yields significantly therefore the chemical industry sees enormous potential in the technology. However, the industrial-scaled application is rare due to the scaling difficulties and the nonlinear dynamics. The present study aims to develop an efficient GPU-compatible numerical method to describe the nonlinear bubble shape deformation and fragmentation.

Keywords: acoustic cavitation, sonochemistry, bubble shape deformation

Kivonat

A szonokémiai alkalmazások során az akusztikusan gerjesztett buborékok periodikus pulzálásba kezdenek, ezen pulzálás egy tágulási, illetve egy kontrakciós fázisra osztható. A kontrakció során a buborékok belsejében a nyomás elérheti az 1000 bar-t míg a hőmérséklet a 8000 K-t, ezen szélsőséges körülmények jelentősen megnövelhetik a kémiai kihozatalt emiatt a vegyipar jelentős potenciált lát a technológiában. A szonokémia ipari méretű alkalmazása azonban nem jellemző a skálázási nehézségek, illetve a nemlineáris dinamika miatt. Jelen kutatás célja a buborékok felületi lengéseinek, illetve a buborékfelbomlás nemlineáris dinamikájának modellezése hatékony GPU kompatibilis módszerrel.

Kulcsszavak: akusztikus kavitáció, szonokémia, buborékok felületi deformációja

1. Bevezetés

Ultrahangos besugárzással periodikusan változó nyomástér hozható létre a gerjesztésnek kitett folyadékban, melynek hatására a folyadékban lévő mikron méretű oldott gázbuborékok (nukleusz) periodikus pulzálásba kezdenek. Ezen oszcilláció két fő részre egy tágulási, illetve egy összeroppanási fázisra osztható. Az utóbbi során a gerjesztési paraméterek, illetve a kezdeti buborékméret függvényében a nyomás, illetve a hőmérséklet elérheti az 1000 bar-t és a 8000 K-t [1]. Ebben a magas nyomás és hőmérséklet tartományban bizonyos anyagok reakcióképessége jelentősen megnövekedhet, melynek következtében lehetővé válhat az energiahatékony ammónia gyártás. Ezen kívül víz és O₂ molekulák disszociációja során H₂ molekulák, OH-gyökök vagy akár oxigén, illetve hidrogén atomok hozhatóak létre [2] akusztikus kavitációval. A technológia ipari méretű megvalósítása azonban nem jellemző a nemlineáris dinamika, illetve a megoldatlan skálázási nehézségek okán [3].

A skálázási nehézségek vizsgálata során elkerülhetetlen a több ezer buborékból álló úgynevezett buborék klaszter numerikus modellezése a kiterjedt paramétertérben. Ezen klaszter belsejében a buborékok interakcióba lépnek egymással, vonzzák, illetve taszítják a környezetükben lévőket. A kellő közelségbe érő buborékok összeolvadnak, míg a megnövekedett felületi stabilitásukat elvesztő buborékok felbomlanak. A buborék klaszterben az összeolvadó és felbomló buborékok között dinamikus egyensúly alakul ki, amelyet a

szimulációk során is biztosítani kell. Az összeolvadás numerikusan könnyedén modellezhető, azonban a buborékfal mentén kialakuló felületi lengések eszkalálódásának eredményeképpen bekövetkező buborék felbomlás leírásához csatolt nemlineáris implicit differenciálegyenletrendszer szükséges. Jelen dolgozat célja egy olyan matematikai módszer fejlesztése, ami segítségével a buborékok felületi lengései numerikusan hatékonyan leírhatóvá, illetve, az esetleges buborékfelbomlások detektálhatóvá válnak.

2. Matematikai modell

Matematikai modellként a szakirodalomban található egyik legpontosabb, a Shaw által levezetett [4-6] viszkozitást, illetve összenyomhatóságot figyelembe vevő csatolt nemlineáris implicit differenciálegyenletrendszer került alkalmazásra. A modell a komplex torzult buborék alakot tengely szimmetria feltételezése mellett Legendre polinomok segítségével modulusokra bontja fel. A nulladik modulus maga a gömbi buborékalak, melynek amplitúdójának (R) időbeli változását az (1) egyenlet írja le. Az első modulus a translációs mozgás, amely jelen esetben elhanyagolásra került a jelentős számítási igénye okán, minden további modulus egy bizonyos eltérést engedélyez a szabályos gömbi alaktól, aminek mértékét annak amplitúdója határozza meg, melyet a jelöl és a (2) egyenlet jellemez. Az egyenletrendszer a következő formában írható fel n modulus alkalmazása esetén (az egyes tagok argumentumában az implicitiséget okozó második időszerinti deriváltak kiemelésre kerültek):

$$h_1 \ddot{R} = f_{KM} + f_{KM}^{exp} + f_{KM}^{imp}(\dot{R}, \ddot{a}_j) \quad (1)$$

$$h_2 \ddot{a}_n = f_L^{exp} + f_L^{imp}(\dot{R}) + f_{NL}^{exp} + f_{NL}^{imp}(\dot{R}, \ddot{a}_j) \quad (2)$$

ahol:

$$h_1 = \left(1 - \frac{\dot{R}}{c_L}\right) R \quad \text{és} \quad h_2 = R, \quad (3)$$

$$f_{KM} = G + \frac{1}{c_L} (\dot{R}G + R\dot{G}) - \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c_L}\right) \frac{3}{2} \dot{R}^2 \quad (4)$$

A 4-es egyenlet nem más, mint maga a Keller—Miksis egyenlet \ddot{R} -ra kifejezve, ami a szabályos gömbi buborékalakot írja le [4]. A Shaw által publikált egyenletrendszer implicit és explicit, valamint lineáris és nemlineáris tagok segítségével átalakításra, és a harmadrendű tagok elhanyagolásra kerültek a számítási kapacitásigény csökkentése érdekében. A következőkben ezek a tagok (látsd 1-2 egyenletrendszer) kerülnek bemutatásra, melyek belsejében található (ezen cikkben nem definiált) kifejezések megtalálhatóak az eredeti levezetésekben [4-6]. Ezen tagok a számítási igény minimalizálása és a nemlinearitások egyértelmű elkülönítése okán kerültek definiálásra, önmagukban fizikai jelentőségük nincsen ezért pusztán a reprodukálhatóság érdekében megjegyzések nélkül kerülnek felsorolásra:

$$f_{KM}^{exp} = \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)(n+1)} \left[\left(n + \frac{3}{2}\right) \dot{a}_n^2 - (n-3) \left(\frac{\dot{R}^2 a_n^2}{2R^2} + \frac{2\dot{R} a_n \dot{a}_n}{R} \right) \right] + \quad (5)$$

$$+ \left[\frac{p_{\infty}}{\rho_L} - \frac{p_{B_0}}{\rho_L} (1 - 3\gamma) \left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\gamma} \right] \sum_{n=2}^{\infty} \frac{a_n^2}{(2n+1)R^2} +$$

$$+ \frac{\mu_L}{\rho_L} \sum_{n=2}^{\infty} \frac{2}{(2n+1)(n+1)} \left[(n^2 + 5n + 2) \frac{a_n \dot{a}_n}{\dot{R}^2} - \frac{4n^2 \dot{R}}{R^3} a_n^2 \right],$$

$$f_{KM}^{imp} = \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)(n+1)} \left[(n+3) a_n \ddot{a}_n - (n-3) \frac{\ddot{R} a_n^2}{R} \right], \quad (6)$$

$$\begin{aligned} f_L^{exp} = & -3\dot{R}\dot{a}_n - \left[(n^2 - 1)(n + 2) \frac{\sigma}{\rho_L R^2} \right] a_n - \\ & - \frac{2\mu_L}{\rho_L} \left[(n - 1)(n + 2) \frac{\dot{R}}{R^2} a_n + (n + 2)(2n + 1) \frac{\dot{a}_n}{R} \right], \end{aligned} \quad (7)$$

$$f_L^{imp} = (n - 1)\ddot{R}a_n, \quad (8)$$

$$\begin{aligned} f_{NL}^{exp} = & \sum_{i=2}^{\infty} \sum_{j=2}^{\infty} \frac{(2n + 1)(n + 1)}{4} \left[\frac{\dot{R}^2}{R^2} a_i a_j M_{a_{nij}} + \frac{\dot{R}}{R} \dot{a}_j a_i M_{b_{nij}} + \dot{a}_i \dot{a}_j M_{d_{nij}} \right] + \\ & + \sum_{i=2}^{\infty} \sum_{j=2}^{\infty} a_i a_j I_{a_{nij}} \frac{(2n + 1)(n + 1)}{2R^2} \left[\frac{p_{\infty}}{\rho_L} - \frac{p_{B_0}}{\rho_L} \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} \right] + \\ & + \frac{\mu_L}{\rho_L} \sum_{i=2}^{\infty} \sum_{j=2}^{\infty} \frac{1}{4} (2n + 1)(n + 1) \left[\frac{\dot{a}_j a_i}{R^2} (Q_{b_{nij}} + Q_{b_{jin}}) + \frac{\dot{R}}{R^3} a_i a_j Q_{c_{jin}} \right], \end{aligned} \quad (9)$$

$$f_{NL}^{imp} = \sum_{i=2}^{\infty} \sum_{j=2}^{\infty} \frac{(2n + 1)(n + 1)}{4} \left[\frac{\ddot{R}}{R} a_i a_j G_{d_{nij}} + a_i \ddot{a}_j M_{c_{nij}} \right] \quad (10)$$

Az előzőekben bemutatott egyenletrendszer numerikus integrál sémákkal (például adaptív Runge—Kutta—Cash—Karp metódus) megoldható amennyiben az implicit természet egy hatékony matematikai módszerrel kezelhetővé válik. A lineáris, illetve a direkt iterációs technikák alkalmazása esetén (például LU faktorizáció vagy Krylov módszerek) a mátrix műveletek és ezen mátrixok tárolása elkerülhetetlen, ami a GPU felhasználás határfokát jelentősen lecsökkentené a korlátozott memória sávszélesség miatt. Ezért a szerzők egy hatékony, gyorsan konvergáló, robusztus fix pont iterációs technika kifejlesztése mellett döntöttek, ami nem igényel mátrix tárolást, valamint alkalmazása során csak az implicit részek újra számolása válik szükségessé. Az következőkben a sztenderd, illetve az optimalizált fix pont iterációs technikák kerülnek bemutatásra, ahol a felső index az iterációs eljárások sorrendjét hivatott bemutatni. A sztenderd iteráció a következőképpen definiálható:

$$\ddot{R}^{(0)} = \frac{1}{h_1} [f_{KM}], \quad (11)$$

$$\ddot{a}_n^{(0)} = \frac{1}{h_2} [f_L^{exp} + f_L^{imp}(\ddot{R}^{(0)})], \quad (12)$$

$$\ddot{R}^{(n+1)} = \frac{1}{h_1} [f_{KM} + f_{KM}^{exp} + f_{KM}^{exp}(\ddot{R}^{(n)}, \ddot{a}_n^{(n)})], \quad (13)$$

$$\ddot{a}_n^{(n+1)} = \frac{1}{h_2} [f_L^{exp} + f_L^{imp}(\ddot{R}^{(n)}) + f_{NL}^{exp} + f_{NL}^{imp}(\ddot{R}^{(n)}, \ddot{a}_n^{(n)})]. \quad (14)$$

Érdemes kiemelni, hogy az iteráció során az explicit tagok numerikus értéként vannak kezelve tehát csak az implicit tagok kerülne újra számolásra, amikhez konstansként hozzáadódnak az előzőleg kiszámolt explicit tagok, ezzel is csökkentve a számítási igényt. Az optimális iterációs technika a következőképpen írható fel:

$$\ddot{\mathbf{R}}^{(0)} = \frac{1}{h_1} [f_{KM}], \quad (15)$$

$$\ddot{\mathbf{a}}_n^{(0)} = \frac{1}{h_2} [f_L^{exp} + f_L^{imp}(\ddot{\mathbf{R}}^{(0)})], \quad (16)$$

$$\ddot{\mathbf{a}}_n^{(n+\frac{1}{2})} = \frac{1}{h_2} [f_L^{exp} + f_L^{imp}(\ddot{\mathbf{R}}^{(n)})], \quad (17)$$

$$\ddot{\mathbf{R}}^{(n+1)} = \frac{1}{h_1} [f_{KM} + f_{KM}^{exp} + f_{KM}^{imp}(\ddot{\mathbf{R}}^{(n)}, \ddot{\mathbf{a}}_n^{(n+\frac{1}{2})})], \quad (18)$$

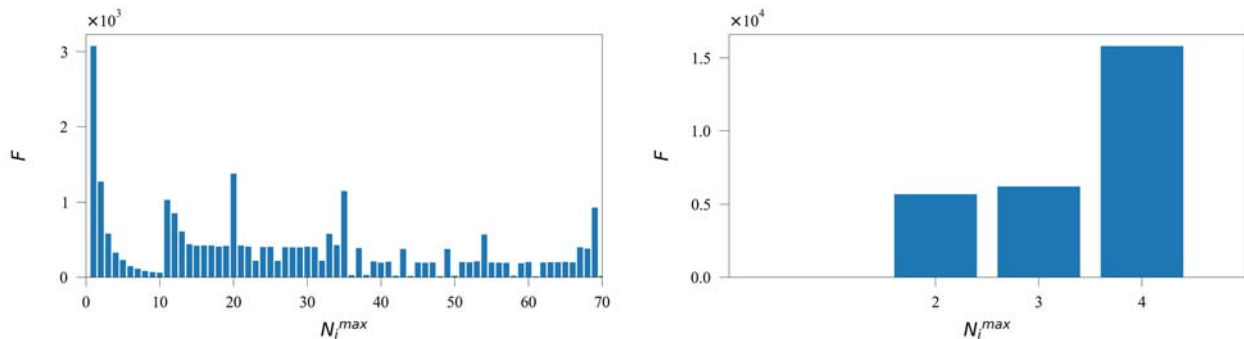
$$\ddot{\mathbf{a}}_n^{(n+\frac{1}{2})} = \frac{1}{h_2} [f_L^{exp} + f_L^{imp}(\ddot{\mathbf{R}}^{(n+1)})], \quad (19)$$

$$\ddot{\mathbf{a}}_n^{(n+1)} = \frac{1}{h_2} \left[f_L^{exp} + f_L^{imp}(\ddot{\mathbf{R}}^{(n+1)}) + f_{NL}^{exp} + f_{NL}^{imp}(\ddot{\mathbf{R}}^{(n+1)}, \ddot{\mathbf{a}}_n^{(n+\frac{1}{2})}) \right]. \quad (20)$$

A sztenderd iterációhoz képest megjelentek „felező” iterációs lépések, melyek eredményei megjelennek az aktuális buborék sugár, illetve modus amplitúdók második deriváltjainak számításaiban (18,20 – egyenletek). Ezen kívül megfigyelhető, hogy az $\ddot{\mathbf{a}}_n^{(n+1)}$ számítása során az előző iterációs lépésben kiszámolt buborék sugár gyorsulás $\ddot{\mathbf{R}}^{(n)}$ helyett az aktuális iterációban számolt érték $\ddot{\mathbf{R}}^{(n+1)}$ kerül behelyettesítésre. Ezek a módosítások stabilabb viselkedést és jelentősen gyorsabb konvergenciát biztosítanak ahogyan az látható a következő fejezetben.

3. Eredmények

Az iterációs eljárások karakterisztikájának vizsgálata S. Cleve [7] 6-os, illetve 7-es ábráin szemléltetett mérései alapján történik, ahol a kezdeti buboréksugarak $R_e = 70,5 \mu\text{m}$ illetve $R_e = 55,7 \mu\text{m}$, az alkalmazott nyomásamplitúdók $p_a = 12,8 \text{ kPa}$ valamint $p_a = 23,6 \text{ kPa}$. Ezeket a méréseket a továbbiakban A, illetve B méréseknek nevezzük. A gerjesztési frekvencia mindkét esetben $f = 31,25 \text{ kHz}$. Az alábbi ábrán az A mérés során észlelt maximális iterációs (minden egyes Runge—Kutta idelepésben 6 függvénymeghívás van, ami hat darab iterációs számot eredményez) számok N_{max} előfordulása (azaz frekvenciája F) látható az egyes iterációs technikák esetén.



4. ábra – Bal oldalon a maximális iteráció szám eloszlás látható a sztenderd fixpont iteráció esetén míg jobb oldalon az optimális fixpont iteráció esetén $R_e = 70,5 \mu\text{m}$, $p_a = 12,8 \text{ kPa}$.

A standard fix pont iteráció a B mérés esetén divergens, az optimalizált verzió azonban ebben az esetben is alacsony iterációs számok mellett konvergál. A karakterisztikák további vizsgálatához definiálásra került az átlagos iterációs szám N_{av} , ami a következőképpen írható fel:

$$N_{av} = \frac{\sum_{m=1}^{N_{TS}} N_{max}^m}{N_{TS}} \quad (21)$$

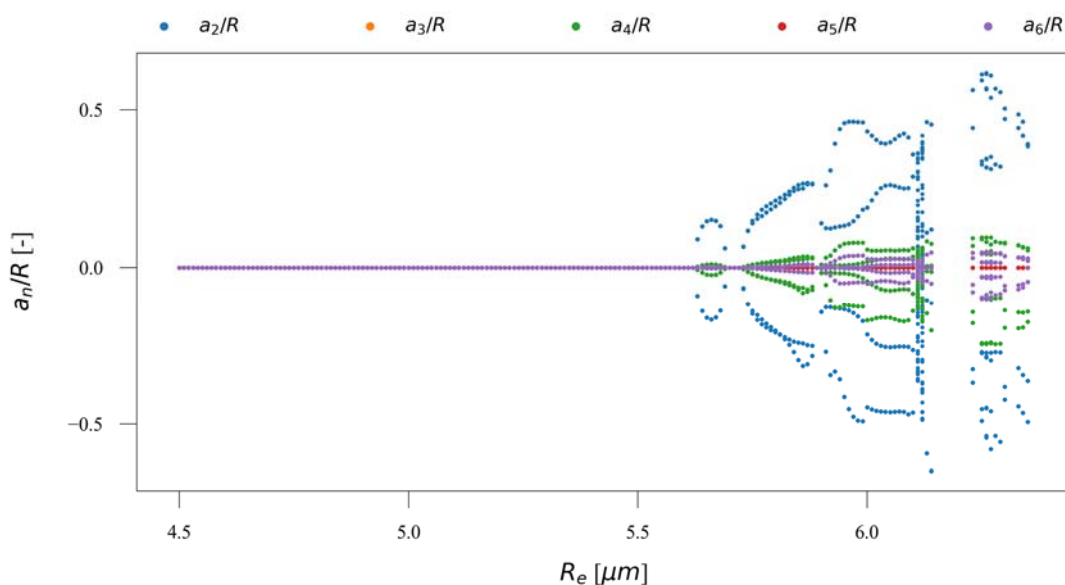
ahol N_{TS} az időlépések számát jelöli. Az átlagos iterációs számok és a hozzájuk tartozó szimulációs idők az egyes esetekben az alábbi táblázatban láthatóak (1. táblázat). A szimulációk egy saját készítésű C++ környezetben implementált adaptív Runge—Kutta—Cash—Karp megoldó segítségével kerültek futtatásra egy Intel(R) Core(TM) i7-10750H CPU-un, mely alap órajele 2,6GHz.

Tehát összességében elmondható, hogy a kifejlesztett iterációs technika jól konvergál és alkalmazható HPC applikációk esetén kis iterációja és alacsony memóriaigénye következtében.

	<i>A mérés</i>		<i>B mérés</i>	
	N_{av} [1]	t_r [s]	N_{av} [1]	t_r [s]
Sztenderd fixpont iteráció	27,2	231,5	-	-
Optimális fixpont iteráció	3,5	51,5	2,8	234,1

3. táblázat Átlagos iterációs számok és szimulációs idők az egyes iterációs technikák esetén (a divergens eseteket [-] jelöli)

A Shaw által kifejlesztett matematikai modell kis perturbációk, illetve kis buboréklengések esetén érvényes. Azonban a szakirodalomban nincsen definiálva konkrét határ ameddig pontos eredményt biztosít a módszer. Ennek ellenére pontosabb buborékfelbomlási határt definiálható ezen modellel, mint a lineáris technikákkal. Yamamoto [8] mérései során kettes domináns modusra jellemző buborékfelbomlást detektál megközelítőleg $R_e = 10 \mu\text{m}$ egyensúlyi buboréksugár esetén, $p_a = 111,5 \text{ kPa}$ nyomásamplitúdó és $f = 25 \text{ kHz}$ gerjesztés mellett. A mérés reprodukálása érdekében a szerzők paraméterseprést végeztek az $R_e = 3 - 7 \mu\text{m}$ tartományban. Az egyes R_e értékekhez tartozó időgörbék utolsó 32 periódusában a periódusonkénti maximum és minimum $\frac{a_n}{R}$ értékek kerültek ábrázolásra az alábbi bifurkációs ábrán. Jól látható, hogy a szimulációk során a méréshez hasonlóan kettes domináns modus tapasztalható, amely folyamatosan növekszik a buborékméret növelésével.



5. ábra – Bifurkációs ábra a buborékfelbomlás detektálása érdekében R_e paraméterseprés esetén

Majd $R_e = 6,14 \mu\text{m}$ esetén eléri az $\frac{a_2}{R} = -0,8$. Érdemes megjegyezni, hogy a szakirodalom a buborékfelbomlást $\left|\frac{a_n}{R}\right| = 1,0$ -ra teszi, mely értéket jelentősen megközelíti az utolsó stabil buborék oszcillációt mutató szimulációs eredmény. Érdemes megjegyezni, hogy $R_e = 6,14 \mu\text{m}$ után a használt differenciálegyenlet rendszert nem képes tovább közelíteni a Runge—Kutta módszer, az időlépések nagysága lecsökken nullára, ezen jelenség oka az egyenletrendszer érvényességi tartományának elhagyása.

4. Összefoglalás

A szimulációs eredmények azt mutatják, hogy mind a tesztesetekben (Cleve) mind pedig a paraméterseprés során az optimális fixpont iterációs technika stabil viselkedést mutat és a maximális iterációs szám nem haladja meg az 5-öt, a buborékfelbomlás környezetében is stabilan viselkedik ezért kiválóan alkalmas GPU implementálásra. A buborékfelbomlás környezetében az egyenletrendszer validitása erőteljesen megkérdőjelezhető, a további numerikus vizsgálat a rendszer dinamikája miatt nem lehetséges. Yamamoto mérése alapján azonban elmondható, hogy a modell alkalmas a buborékfelbomlás előrejelzésére, azonban a pontos stabilitási határ meghatározásához más metódus alkalmazása szükséges.

Köszönetnyilvánítás

A bemutatott kutatás a BME-NVA-02 számú projekt részeként az Innovációs és Technológiai Minisztérium Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alapból nyújtott támogatással, a TKP2021 pályázati program finanszírozásában valósult meg. A kutatást a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal NKFIH OTKA FK142376 számú pályázat támogatta.

Irodalmi hivatkozások

- [1] K. Yasui, T. Tuziuti, T. Kozuka, A. Towata, and Y. Iida, "Relationship between the bubble temperature and main oxidant created inside an air bubble under ultrasound," *J. Chem. Phys.*, vol. 127, no. 15, p. 154502, 2007.
- [2] D. F. Rivas, L. Stricker, A. G. Zijlstra, H. J. G. E. Gardeniers, D. Lohse, and A. Prosperetti, "Ultrasound artificially nucleated bubbles and their sonochemical radical production," *Ultrason. Sonochem.*, vol. 20, no. 1, pp. 510–524, 2013.
- [3] R. G. Parag and B. P. Aniruddha, "Sonochemical reactors: scale up aspects," *Ultrason. Sonochem.*, vol. 11, pp. 105–117, 2004.
- [4] S. J. Shaw, "The stability of a bubble in a weakly viscous liquid subject to an acoustic travelling wave," *Phys. Fluids*, vol. 21, no. 2, pp. 1400–1417, 2009.
- [5] S. J. Shaw, "The stability of a bubble in a weakly viscous liquid subject to an acoustic travelling wave," *Phys. Fluids*, vol. 21, no. 2, pp. 1400–1417, 2009.
- [6] S. J. Shaw, "Nonspherical sub-millimeter gas bubble oscillations: Parametric forcing and nonlinear shape mode coupling," *Phys. Fluids*, vol. 29, no. 12, pp. 300–311, 2017.
- [7] S. Cleve, M. Guedra, C. Inserra, and P. Blanc-Benon, "Microstreaming induced by acoustically trapped non-spherically oscillating microbubbles," *J. Fluid Mech.*, vol. 875, pp. 597–621, 2019.
- [8] T. Yamamoto, S. Hatanakab, and S. V. Komarova, "Fragmentation of cavitation bubble in ultrasound field under small pressure amplitude," *Ultrason. Sonochem.*, vol. 58, p. 104684, 2019.