

Buborék interakciók vizsgálata a szonokémiában

Investigation of bubble interactions in sonochemistry

NAGY Dániel¹, HEGEDŰS Ferenc¹

¹Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Gépészmérnöki Kar,
Hidrodinamikai Rendszerek Tanszék
H-1111, Budapest, Műegyetem rkp. 3. Tel.: +361-463-1646.
E-mail: dnagy@hds.bme.hu, fhegedus@hds.bme.hu Web: <https://www.hds.bme.hu>

Abstract

A better understanding of bubble interactions contributes to the optimisation of sonochemical reactors. Bubbles expanding under acoustic excitation can coalesce if they are close enough. Bubbles that are far apart are characterised by non-spherical bubble expansion, which destabilises the bubble shape and leads to bubble breakage or bubble jetting. All the above phenomena reduce the yield of sonochemical reactors, the aim being to determine the distance above which the various undesired bubble interactions can be neglected.

Keywords: sonochemistry, bubble interactions, ALPACA, CFD, numerical simulation

Kivonat

A buborék interakciók pontosabb megismerése hozzájárul a szonokémiai reaktorok optimalizálásához. Az akusztikus gerjesztés hatására kitáguló buborékok összeolvadhatnak, amennyiben elég közel találhatók egymáshoz. Távolabb eső buborékoknál a nem gömb alakú kitágulása a jellemző, amely destabilizálja a buborék alakját és széteséshez vezet. A felsorolt jelenségek mind a szonokémiai reaktorok kihazatalát csökkentik, a cél azon távolság meghatározása amely felett a különböző nem kívánt buborék interakciók már elhanyagolhatók.

Kulcsszavak: szonokémia, buborék interakciók, ALPACA, CFD, numerikus szimuláció

1. BEVEZETÉS

A szonokémia lényege kémiai folyamatok kihazatalának a növelése ultrahangos gerjesztéssel. Az akusztikus gerjesztés hatására a buborékok periodikusan kitágulnak majd összeomlanak. A buborékösszeomlás során a térfogat gyors csökkenése a nyomás és a hőmérséklet jelentős megemelkedéséhez vezet, a hőmérséklet elérheti a több ezer Kelvint, amely kémiai reakciókat indíthat be a buborékban [1]. Ilyen típusú jelenségek numerikus áramlástani szimulációja számos speciális igénnyel jár. Egyrészt többfázisú szimulációra van szükség, hiszen a buborék gáz halmazállapotú, a buborékot pedig folyadék veszi körül. Legegyszerűbb esetben a buborékban ideális gáz (pl. levegő) található, a folyadék pedig víz. Másrészt az összenyomható modellezés is szükséges, az akusztikus tér szimulációja és a gyors buborékösszeomlások miatt. Harmadrészt a szimulációban nagyok a méretbeli különbségek, hiszen a buborékok mérete néhány mikrométer és a szonokémiai reaktor pedig több centiméter. A buborék interakciók numerikus szimulációja az ALPACA többfázisú áramlásmegoldó szoftverrel kerül megvalósításra [2,3], amely lehetővé teszi a folyadékok összenyomható modellezését és a korszerű multiresolution alapú hálózás segítségével a nagy méretbeli különbségek áthidalhatók. A cél két buborék szimulációja és a buborékok közötti távolság hatásának a vizsgálata a különböző buborék interakciókra. Fontos azon határ meghatározása is, ami felett két buborék egymásra hatása már elhanyagolható, hiszen ez szükséges szonokémiai reaktorok optimális tervezéséhez is.

2. MODELL

A szimulációk során egy tengelyszimmetrikus elrendezés kerül alkalmazásra. A szimmetriatengely a nyugati oldalon kerül előírásra, a többi peremen zéró-gradiens peremfeltétel kerül alkalmazásra minden skalármezőre (nyomás, sűrűség, sebességkomponensek). Az 1. ábrán bal oldalt látható a teljes tartomány geometriája és méretei. A teljes tartomány két részre kerül felbontásra. Az 1-es tartomány tartalmazza a két

buborékokat, amelyek sugara azonosan $R_0 = 40 \mu\text{m}$, a buborék középpontok közti távolság pedig D . Ez alapján bevezethető a dimenziótlán buboréktávolság D^* , amely

$$D^* = \frac{D}{R_0}. \quad (1)$$

A definíció alapján $D^* = 2$ jelentése az, hogy a buborékfalak érintik egymást, $D^* < 2$ esetén a buborékok összeolvadt állapotban vannak, amellyel ez a munka nem foglalkozik. A szimulációk során $D^* > 2$ kerül beállításra minden esetben. Az 1-es tartományban a kezdeti nyomás $p_0 = 1 \text{ bar}$, a kezdeti sűrűség $\rho_0 = 1000 \text{ kg/m}^3$ és a kezdeti sebességek egyaránt nullák. A buborékok kezdetben egyensúlyi helyzetben vannak, tehát a nyomásuk a légköri nyomásból és a felületi feszültségből adódó nyomásból származik

$$p_{b0} = p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} = 103\,640 \text{ Pa}, \quad (2)$$

ahol $\sigma = 0.0728 \text{ N/m}$ a felületi feszültség együttható. A 2-es tartományban egy haladóhullám kerül inicializálásra, amely észak felé halad és amely negatív nyomású része éri el először a buborékokat. Ez lehetővé teszi, hogy a buborék először kitégyedjen, majd a pozitív nyomású rész során összeomoljon. A haladóhullám kezdeti feltételekkel a következő módon írható elő [4],

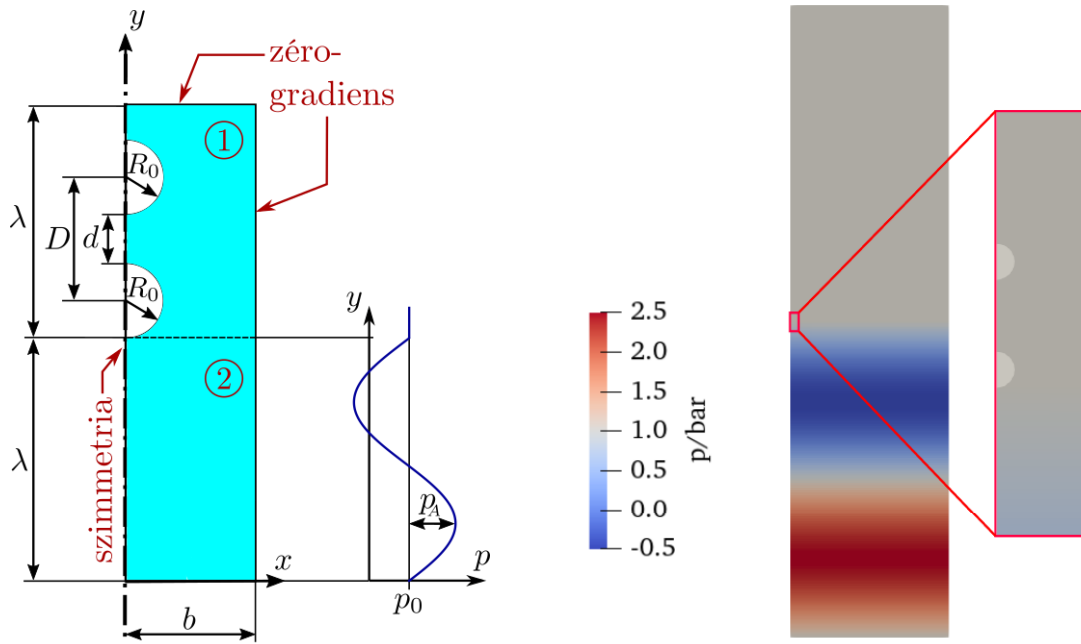
$$p_h(y) = p_0 + p_A \sin(ky), \quad (3)$$

$$u_h(y) = 0, \quad (4)$$

$$v_h(y) = \frac{p_A}{c\rho_0} \sin(ky), \quad (5)$$

$$\rho_h(y) = \rho_0 + \frac{p_A}{c^2} \sin(ky), \quad (6)$$

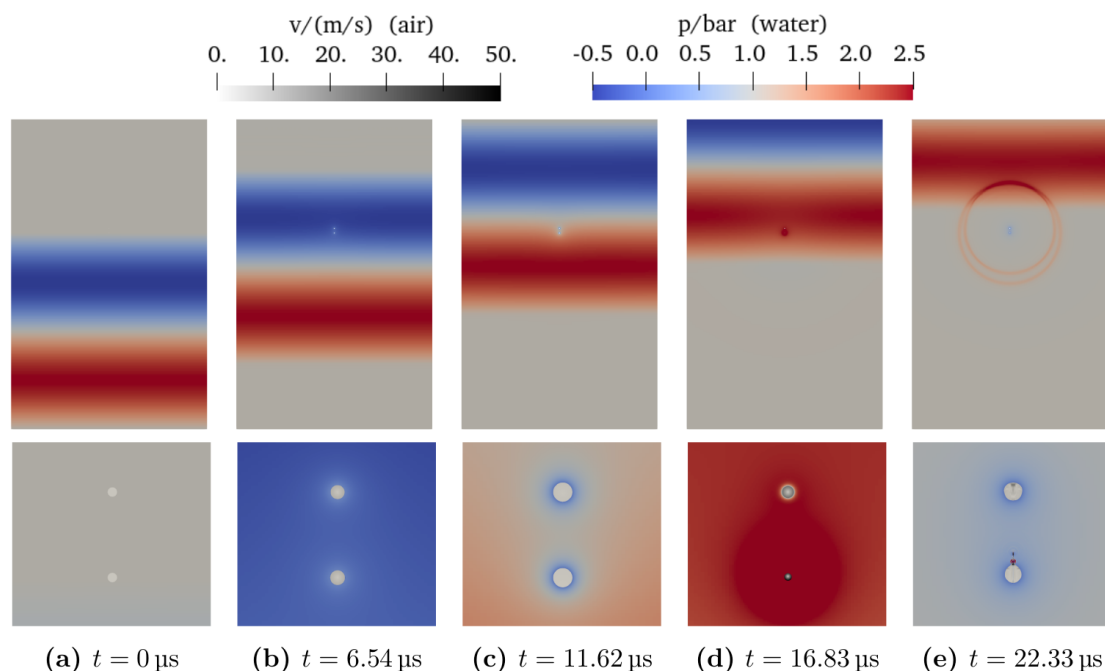
ahol $k = 2\pi/\lambda$ a hullámszám, $\lambda = c/f$ a hullámhossz, $c = 1496 \text{ m/s}$, a hangsebesség vízben, f az akusztikus gerjesztés frekvenciája és $p_A = 1.5 \text{ bar}$ a gerjesztés nyomásamplitúdója.



1. ábra. Bal: A peremfeltételek, a geometriai méretek, a buborékokat tartalmazó 1-es tartomány és a 2-es tartomány ahol a nyomáeloszlás a megadott $p(y)$ grafikon szerint kerül előírásra. Jobb: A nyomás a szimuláció kezdetén és a buborékok helye felnagyítva. A színezés arányos a megadott színskálával.

3. EREDMÉNYEK

Több szimuláció került futtatásra különböző D^* buboréktávolságok és f gerjesztési frekvenciák mellett. Egy tipikus szimuláció eredményei a 2. ábrán láthatók, megfigyelhető, ahogyan a hullám északi irányba halad. A buborékok a negatív nyomású rész során kitágulnak, majd a pozitív nyomás során összeomlanak ahogyan az alsó sor mutatja. Az összeomlás során a kavitáló buborék egy nagy amplitúdójú nyomáshullámot bocsát ki, ahogyan $t = 22.33 \mu\text{s}$ -nál látható.

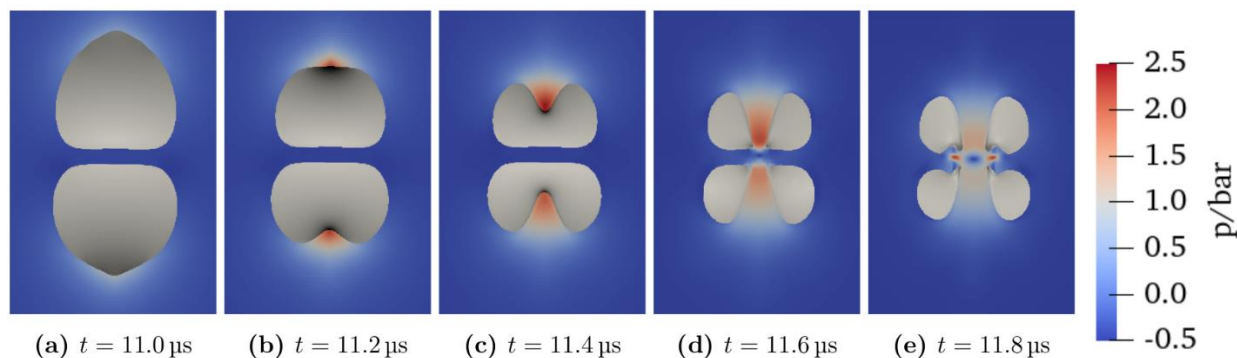


2. ábra. Az északi irányba haladó hullám (felső ábrák) és a buborékok felnagyvítva (alsó ábrák). A szimuláció során $D^* = 10$ és $f = 50 \text{ kHz}$. A tartomány színezése a fent látható színskálával arányos a folyadékban és a buborékban.

A következőkben egy részletes tanulmány készült, ahol D^* változtatásra került 2 és 77 között és $f = 100 \text{ kHz}$, $R_0 = 40 \mu\text{m}$. A szimulációk kvalitatív eredményeit a 4. ábra foglalja össze. Az ábrán kék görbe mutatja a maximális buborékösszeomlást, ez a következő módon definiálható az első kitágulás-összeomlás szakaszra,

$$\Delta R_{\max} = \max_t R(t) - \min_t R(t), \quad (7)$$

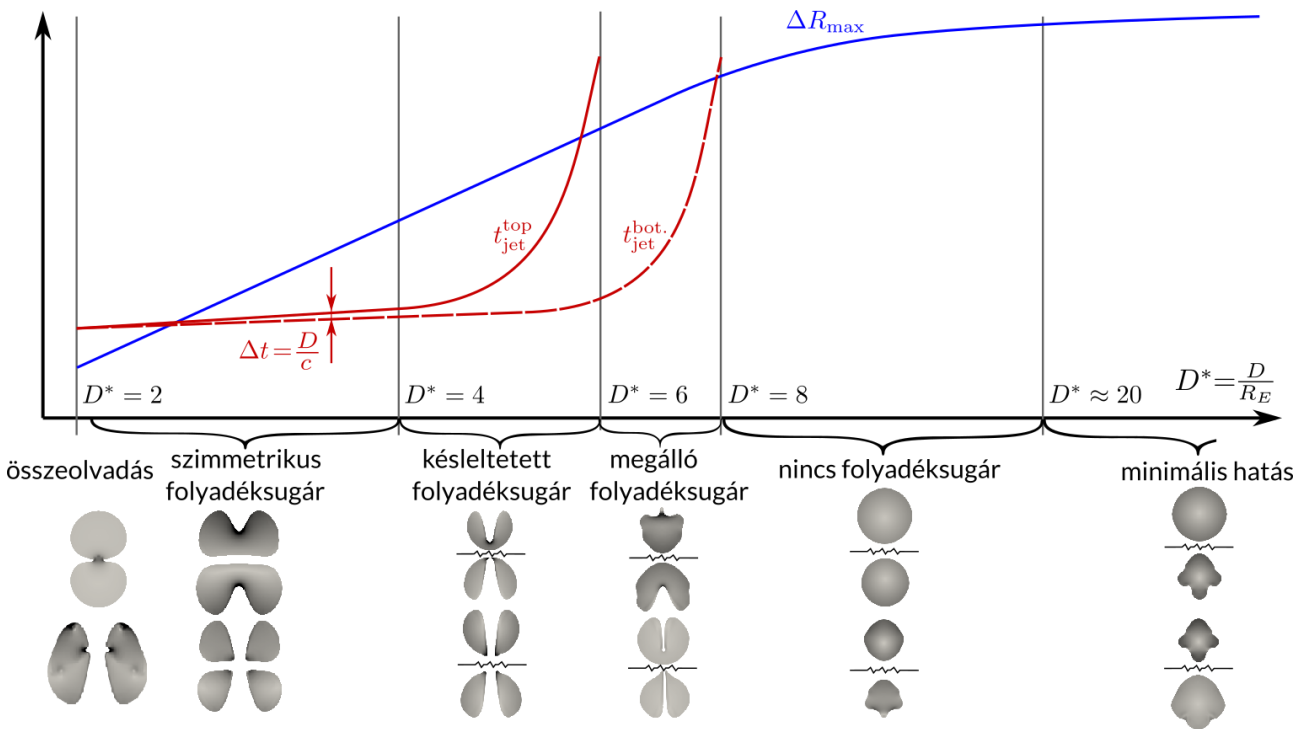
azaz ΔR_{\max} a teljesen kitágult (maximum méretű) és a legkisebbre összeomlott (minimum méretű) buboréksugár közti különbséget adja meg. Az eredmények alapján, a buborékok közti távolság növelésével a maximális buborékösszeomlás konvergál $\Delta R_{\max} = 44 \mu\text{m}$ -hez.



3. ábra. A buborékokon áthaladó szimmetrikus folyadéksugár és az utána létrejövő tórusz alakú buborékok. A folyadék színezése a jobb oldali színskálával arányos.

Amennyiben a buborékok közel helyezkednek el egymáshoz, azok a kitágulás során összeolvadnak. Ez a jelenség csak $D^* \leq 2.025$ esetén volt megfigyelhető. Ha a buboréktávolság nagyobb ($2.025 < D^* < 4$) akkor megfigyelhető a buborékfelületek ellaposodása a kitágulása során és a buborékon keresztülhaladó folyadéksugár. Ebben az esetben a folyadéksugár szimmetrikus, azaz a felső és az alsó buborékba is ugyanakkora sebességű folyadéksugár hatol be, és a folyadéksugarak szinte ugyanakkor szakítják szét a buborékot a tengely mentén, ahogyan a 3. ábrán látható. A minimális késleltetés a hang véges terjedési sebességével magyarázható, tehát a felső buborék mindig $\Delta t = D/c$ idővel később szakad szét, ahol D a buborékközéppontok közti távolság és c a hangsebesség. A „szétszakadt” buborék valójában tórusz alakú, hiszen az y -tengely a szimmetriatengely. Ugyanilyen buborékon áthaladó folyadéksugár és tórusz alak jelenik meg fal mellett összeomló buborékok esetén is [5].

A buborék közti távolság további növelése csökkenti a buborékon áthaladó folyadéksugár sebességét, és $D^* > 4$ esetén a felső buborékon lényegesen később hatol keresztül a folyadéksugár. Ennek az oka, hogy a felső buborék körül a nyomásgradiens kisebb a buborékösszomlás során a szimulációkban, a magyarázat erre, hogy a buborékok lényegesen torzítják az akusztikus teret. A 4. ábrán a folytonos piros vonal mutatja kvalitatívan, hogy mikor szakad szét a felső buborék a folyadéksugár miatt (t_{jet}^{top}), $D^* > 4$ esetén a szétszakadás időpontja gyorsan nő. Az alsó buborék szétszakadását a szaggatott piros vonal mutatja, megfigyelhető, hogy itt a gyors növekedés $D^* > 6$ -nál kezdődik. A 4. ábrán látható, hogy a felső buborékon belül a folyadéksugár megáll $6 < D^* < 8$ között.

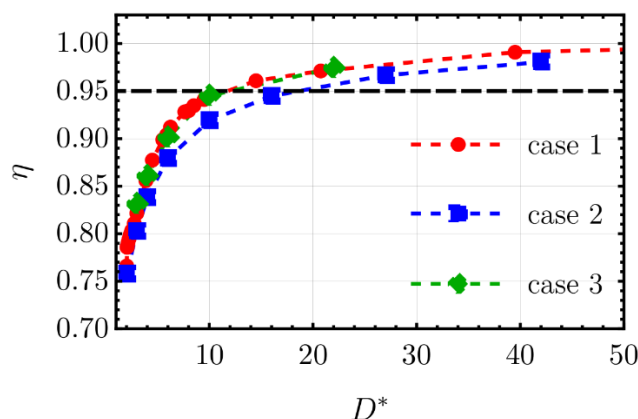


4. ábra. A tanulmány kvalitatív eredményei, ahol ΔR_{max} a maximális buboréksugár különbség az első kitágulás-összeomlás periódus során, $t_{jet}^{top/bot}$ a felső és az alsó buborékot szétszakító folyadéksugár befejezésének az időpontja. A grafikon alatt a különböző megfigyelt jelenségek láthatók két időpillanatban.

Ha a buborékok közti távolság elég nagy, akkor a folyadéksugár már nem jelenik meg, de a buborékok egymásra hatása még jelentős. A szimulációk eredményei alapján $D^* > 20$ esetén ΔR_{max} eléri a maximum értékének a 95%-át, tehát ez a távolság már elég nagy ahhoz, hogy a buborékok egymásra hatása elhanyagolható legyen. A szimulációk megismétlésre kerültek $f = 50$ kHz frekvencián, azonos paraméterek mellett, illetve a buboréksugár $R_0 = 80 \mu\text{m}$ -re növelésével is. Az eredmények összehasonlíthatók a maximális buborékösszeomlás alapján bevezetett relatív hatékonyság segítségével, a következő módon

$$\eta(D^*) = \frac{\Delta R_{max}(D^*)}{\max_{D^*} \Delta R_{max}(D^*)}, \quad (8)$$

ahol a nevezőben álló tag a $\Delta R_{max}(D^*)$ maximuma, ami megfelel egyetlen haladóhullamba helyezett, R_0 sugarú buborék maximális összeroppanásának. A buborékösszeomlás relatív hatékonysága a három esetben az 5. ábrán látható a dimenziótlan buboréksugár függvényében. Megfigyelhető, hogy D^* növelésével a hatékonyság 100%-hoz konvergál. A 95%-os hatásfokot minden esetben elérjük $D^* > 20$ esetén. További érdekes megfigyelés, hogy a különböző szimulációk azonos görbére esnek, amennyiben a buboréksugár megegyezik (lásd az 1. és 3. esetet), illetve a 2. esetben sem nagy az eltérés, tehát D^* jó dimenziótlan mérőszámnak mutatkozik.



5. ábra. Az összeomlás relatív hatékonysága (η) a buborékok közötti dimenziótlan távolság D^* függvényében, ahol a piros görbe (1. eset: $R_0 = 40\mu\text{m}$, $f = 100\text{kHz}$), a kék görbe (2. eset: $R_0 = 80\mu\text{m}$, $f = 100\text{kHz}$) és a zöld görbe (3. eset: $R_0 = 40\mu\text{m}$, $f = 50\text{kHz}$) a különböző eseteket mutatják.

4. KONKLÚZIÓ

Két azonos méretű buborék esetén bevezethető a D^* dimenziótlan buboréktávolság. Ennek függvényében több különböző jelenség figyelhető meg, ahogy a 4. ábrán látható volt, kettőhöz közeli értékek esetén a buborékok összeolvadnak, $D^* < 4$ esetén megfigyelhető a buborékok ellaposodása a kitágulás során és a buborékon áthaladó szimmetrikus folyadéksugár. Ezen jelenségek mind ismertek a szakirodalomban [6,7], tehát ezek reprodukálása validálja a szimulációkat. A szakirodalomhoz képest új jelenségek is megfigyelésre kerültek, mint a késleltetett folyadéksugár, ami csak speciális paraméterek mellett létezik, és a két buborék különböző kvalitatív viselkedéséhez vezet (az egyik szétszakad a másik nem). Végül megfigyelésre került, hogy D^* jó mérőszámnak mutatkozik, hiszen ez alapján meghatározható a buborékok összeomlásának a relatív hatásfoka a paramétereiktől függetlenül, viszonylag jó pontossággal. Illetve, $D^* > 20$ esetén a buborékok relatív hatásfoka 95% feletti.

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 FK-142376-es számú pályázat támogatta. A Kulturális és Innovációs és Minisztérium **ÚNKP-23-2-III-BME-50** kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programjának a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alapból finanszírozott szakmai támogatásával készült.

IRODALMI HIVATKOZÁSOK

- [1] Kalmár Cs., Klapcsik K., Hegedűs F., *Relationship between the radial dynamics and the chemical production of a harmonically driven spherical bubble*, Ultrasonics Sonochemistry, Elsevier, 2020, Vol. 64, 104989
- [2] Hoppe N., Adami S., Adams N. A., *A parallel modular computing environment for three-dimensional multiresolution simulations of compressible flows*, Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, Elsevier, 2022, Vol. 391, 114486
- [3] Hoppe N., Winter J.M., Adami S., Adams N. A., *ALPACA - a level-set based sharp-interface multiresolution solver for conservation laws*, Computer Physics Communications, Elsevier, 2022, Vol. 272, 108246
- [4] Nagy D., *Spherical stability analysis of microbubbles with ALPACA program package*, MSc Diplomaterv, Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, 2024
- [5] Koch M., Lechner C., Lauterborn W., Mettin R., *Bubble collapse directly at an object: fast jet and shock wave*, Proceedings of Meetings on Acoustics, Acoustical Society of America, 2022, Vol. 48, Issue 1
- [6] Postema M. és mtsai, *Ultrasound-induced encapsulated microbubble phenomena*, Ultrasound in Medicine & Biology, Elsevier, 2004, Vol. 30, 827-840
- [7] Roselló J.M. és mtsai, *Acoustically induced bubble jets*, Physics of Fluids, AIP Publishing, 2018, Vol. 30, 122004