

Akusztikusan gerjesztett buborékok nemlineáris dinamikája.

The nonlinear dynamics of acoustically excited bubbles.

KALMÁR Péter PhD hallgató¹, HEGEDŰS Ferenc egyetemi docens¹, KLAPCSIK Kálmán adjunktus¹

¹Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Gépészmérnöki Kar, Hidrodinamikai Rendszerek Tanszék
¹H-1111, Budapest, Műegyetem rkp. 3. Tel.: +361-463-1680. Fax: +361-463-3091. E-mail: pkalmar@hds.bme.hu, fhegedus@hds.bme.hu, kklapcsik@hds.bme.hu

Abstract

Under acoustic irradiation, small gas bubbles inside the liquid start to pulsate periodically, known as acoustic cavitation. This process consists of expansion and collapse phases, during which the pressure and temperature can reach 1000 bar and 8000 K, respectively. These conditions favour chemical yield, enabling energy-efficient ammonia and hydrogen production, and the generated shock waves can be applied, for example, in wastewater treatment. However, industrial applications are limited by scaling difficulties and low energy efficiency. Large bubbles are more energy-efficient but may lose the spherical shape due to pressure gradients, reducing chemical yield and shock wave strength. Therefore, large, spherical or closely spherical bubbles are preferred. A validated, parallelizable numerical model is required to determine the corresponding parameters and describe the bubble dynamics. This study aims to estimate the bubble model's validity through measurement comparisons.

Keywords: acoustic cavitation, sonochemistry, bubble dynamics

Kivonat

Akusztikus besugárzás hatására a folyadékban lévő kis gázbuborékok periodikus pulzálásba kezdenek, amit akusztikus kavitációnak nevezünk. Ez a folyamat tágulási és összeomlási fázisokra osztható, az utóbbi során a nyomás és hőmérséklet akár 1000 bar és 8000 K is elérheti. Ezen körülmények kedveznek a kémiai kihozatalnak, lehetővé téve az energiahatékony ammónia- és hidrogéntermelést, valamint a keletkező lökeshullámok alkalmazhatóságát, például szennyvíztisztításban. Azonban az ipari alkalmazás a skálázási nehézségekkel és alacsony energiahatékonyág miatt ritka. Energiahatékonyág szempontjából a nagy méretű buborékok kedvezőek, melyek a nyomásgradiens hatására elveszíthetik gömbalakjukat, ami csökkenti a kémiai kihozatalt és a lökeshullámok erejét. Ezért a nagy, gömb vagy közel gömbi alakú buborékok alkalmazása előnyösebb. A megfelelő paraméterek meghatározásához és a buborékok dinamikájának leírásához validált, párhuzamosan futtatható numerikus modell szükséges. A tanulmány célja a buborékmodell érvényességi tartományának meghatározása mérésekkel való összehasonlítással.

Kulcsszavak: akusztikus kavitáció, szonokémia, buborék dinamika

1. BEVEZETÉS

A periodikus akusztikus besugárzás hatására a folyadékban található mikron méretű gázbuborékok (ún. kavitációs magok) pulzálni kezdenek, ezt nevezzük akusztikus kavitációnak. Ez a mozgás két fázisra, expanzióra és összeroppanásra bontható [1]. Az összeroppanás egy masszív kompresszióként értelmezhető, mely során az alkalmazott paraméterek függvényében a nyomás elérheti akár az 1000 bar-t, a hőmérséklet pedig a 8000 K-t [2]. A lehetséges alkalmazások széleskörűek, például környezetbarát ammónia- [3] és hidrogéngyártás [4] a buborékok belsejében (a magas hőmérséklet és nyomás felhasználásával), nanorészecskék gyártása [5] vagy akár az összeroppanás során kialakuló lökeshullám felhasználása a szennyvíz tisztításában [6]. Az ipari méretű alkalmazások azonban ritkák, az alacsony energiahatékonyág, illetve a nem megoldott skálázási nehézségek okán.

Az energiahatékonyág szempontjából a nagy méretű buborékok kedvezőek [7], melyek azonban hajlamosak elveszíteni a gömbi alakjukat (a felületi feszültség nem képes fenntartani az alakot), ami deformálódott, nem gömbi lengést eredményez [8]. A deformált buborékok összeroppanása során a kompresszióknak nincs jól definiált fókusza, ami alacsonyabb hőmérséklet- és nyomásúcsúshoz, és végső soron alacsonyabb kémiai

hozamhoz, valamint gyengébb lökéshullámhoz vezet. Ezért célszerű a nagy méretű szférikus vagy enyhén aszférikus buborékok alkalmazása. Ezen buborékok dinamikájának hatékony leírása tehát kiemelkedően fontos az akusztikus kavitáción alapuló technológiák optimalizálásához.

A szakirodalomban található úgynevezett alacsony rendű vagy perturbációs modellek ígéretesek a szimulációk idő- és pontosság szempontjából, de alkalmazhatóságuk korlátozott a kis deformációval rendelkező buborékok dinamikájának leírására (ami az ipari alkalmazások és ezért jelen cikk szempontjából releváns terület). Az egyik legáltalánosabb ilyen modell a Shaw által levezetett általános másodrendű implicit nemlineáris differenciálegyenlet-rendszer [9, 10], ami a térbeli diszkretizáció és ezáltal a parciális differenciálegyenlet-rendszerek elkerülése érdekében modális dekompozíciót alkalmaz Legendre-polinomok segítségével. Ezen publikáció célja a Shaw által kifejlesztett perturbációs modell validitási határának becslése mérésekkel való összehasonlítás segítségével valamint a szerzők által fejlesztett GPU alapú paraméter söprésre alkalmas kód tesztelése. A szakirodalomban kevés mérés található tekintettel a buborékok kis méretére ($10 - 100 \mu m$) és az oszcilláció nagy sebességére. A szimulációs eredmények Cleve mérési tanumányával [13] kerülnek összevetésre a szerzők előző munkája nyomán [14], majd a buborék torzultságának jellemző számai kerülnek bemutatásra.

2. MATEMATIKAI MODELL ÉS MEGOLDÁSI STRATÉGIA

Ez a fejezet a nem gömb buborékok oszcillációjának matematikai leírására összpontosít, tengely szimmetriát és enyhe deformációt feltételezve. A bonyolult buborékalak, r_s , Legendre-polinomok segítségével módusokra bontható, így elkerülhetővé válik a térbeli diszkretizáció, amely parciális differenciálegyenletekhez vezetne. A dekompozíció gömbi koordináta-rendszerben $r(\theta, t)$ a következőképpen írható fel:

$$r_s(\theta, t) = R(t) + \sum_{n=2}^{\infty} \varepsilon a_n(t) P_n(\mu), \quad (1)$$

ahol $R(t)$ a gömbi buborék sugara (nulladik vagy térfogat módus) az idő függvényében, $a_n(t)$ az n -edik módushoz azaz az n -edik Legendre-polinomhoz $P_n(\mu)$ tartozó módus amplitúdó, valamint $\mu = \cos(\theta)$. Az enyhe felületi deformációt az ε kis paraméter jelöli. Megjegyzendő, hogy az első módus, amely a translációs mozgás, elhanyagolásra kerül a számítási igény csökkentése érdekében. Tehát a komplex buborék alak előállítható a megfelelő Legendre polinomok és a hozzájuk tartozó amplitúdók szorzatainak összegeként. Az amplitúdók a mozgási és potenciális energia segítségével felírt Lagrange-függvényből előállíthatóak.

Ezen cikkben alkalmazott modell Shaw [9, 10] munkáján alapul, ahol a módus amplitúdókat egy n -dimenziós, másodrendű nemlineáris implicit differenciálegyenlet-rendszer írja le. Az egyenletrendszerben található nemlineáris tagok lehetővé teszik a módusok közötti kölcsönhatást, így implicitté téve az egyenletrendszert. A nulladik azaz térfogati módus:

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{c_L}\right) R \ddot{R} + \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c_L}\right) \frac{3}{2} \dot{R}^2 = G + \frac{1}{c_L} (\dot{R}G + R\dot{G}) + \varepsilon^2 (g_0 + g_{0v}), \quad (2)$$

ahol c_L a folyadék hangsebességét jelöli, és

$$G(t) = \frac{p_{B_0}}{\rho_L} \left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\gamma} + \frac{p_v}{\rho_L} - \frac{1}{\rho_L} (p_0 + p_A \sin(\omega t)) - \frac{4\mu_L \dot{R}}{\rho_L R} - \frac{2\sigma}{\rho_L R}. \quad (3)$$

Ahol p_{B_0} a buborék belső egyensúlyi nyomása, ρ_L a folyadék sűrűsége, R_0 a kezdeti buboréksugár, és γ az adiabatikus kitevő. A dinamikai viszkozitás μ_L , míg σ a felületi feszültség. Az akusztikus gerjesztés az ω szögsebességgel és a p_A nyomásamplitúdóval jellemezhető, a környezeti nyomást p_0 , míg a gőznyomást p_v jelöli. A másodrendű tagok amik a módusok közötti interakciót lehetővé teszik ε^2 szorzóval kerültek jelölésre (ez a jelölés a Lagrange függvény felírásánál a sorba fejtés rendjére utal). Ezek a tagok felbonthatóak egy "inviscid" részre, g_0 , amely a $\dot{R}$ és $\ddot{a}_n$ függvénye, és egy csillapító részre, g_v . Ezen tagok megtalálhatóak Kalmár [11] munkájában. Megjegyzendő, hogy a másodrendű tagok nélkül a 2 egyenlet a Keller–Miksis egyenletre redukálódik, amely a tökéletesen gömb alakú buborék oszcillációt írja le. A felületi módusokat az alábbi egyenletrendszer (n darab egyenlet) írja le

$$\begin{aligned} \varepsilon \left\{ R \ddot{a}_n + 3 \dot{R} \dot{a}_n + \left[(n^2 - 1)(n + 2) \frac{\sigma}{\rho_L R^2} - (n - 1) \ddot{R} \right] a_n \right. \\ \left. + \frac{2\mu_L}{\rho_L} \left[(n - 1)(n + 2) \frac{\dot{R}}{R^2} a_n + (n + 2)(2n + 1) \frac{\dot{a}_n}{R} \right] \right\} \\ = \varepsilon^2 (g_n + g_{nv}). \end{aligned} \quad (4)$$

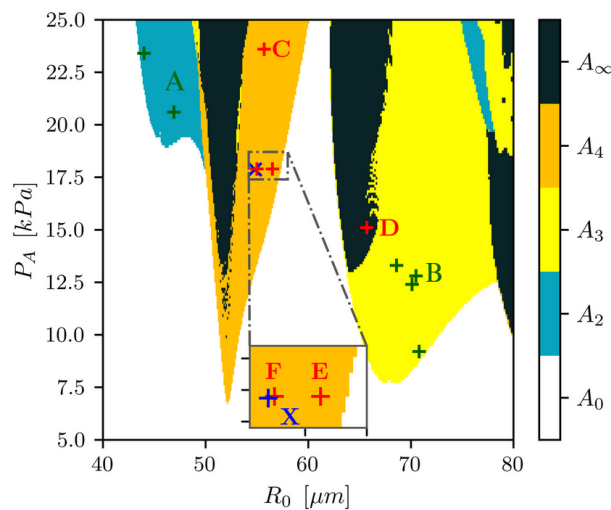
A bal oldal megegyezik a Plesset [12] által lineáris alakstabilitás vizsgálatára levezetett egyenletrendszerrel. Hasonlóan a nulladik módushoz, a másodrendű tagok felelősek a módusok közötti kölcsönhatásért, amelyek inviscid és csillapító tagokra bontható. Ezen tagok részletesen ismertetésre kerültek Kalmár [11] munkájában.

Az differenciálegyenlet-rendszer (2) - (4) numerikus megoldási stratégiája két fő részre osztható. Egy kezdeti értékproblémára valamint egy algebrai problémára. Az akusztikus kavitáció modellezése során a kezdeti érték problémák megoldására a Runge-Kutta-Cash-Karp (RKCK) módszert használja a szakirodalom, ami egy negyedrendű módszer ötödrendű hiba becsléssel. A módszer előnye az adaptív időlépés mely segítségével egy előre definiált hiba garantálható. Az RKCK belsejében minden egyes függvényhívásnál egy nemlineáris egyenletrendszer megoldása szükséges (implicit természet következtében). Ezen algebrai probléma kézenfekvő megoldása az LU dekompozíció lenne azonban ez a GPU alkalmazásoknál (videókártya) kerülendő hiszen memória sávszélesség limitációhoz vezet, amely jelentősen csökkentené a számítási teljesítményt. Ezért a következőkben a GPU alapú paraméter söprésekhez a szerzők által előzőekben kifejlesztett és tesztelt fix pont iteráció kerül alkalmazásra [11].

3. MÉRÉSEK ÉS SZIMULÁCIÓS EREDMÉNYEK ÖSSZEHAONLÍTÁSA

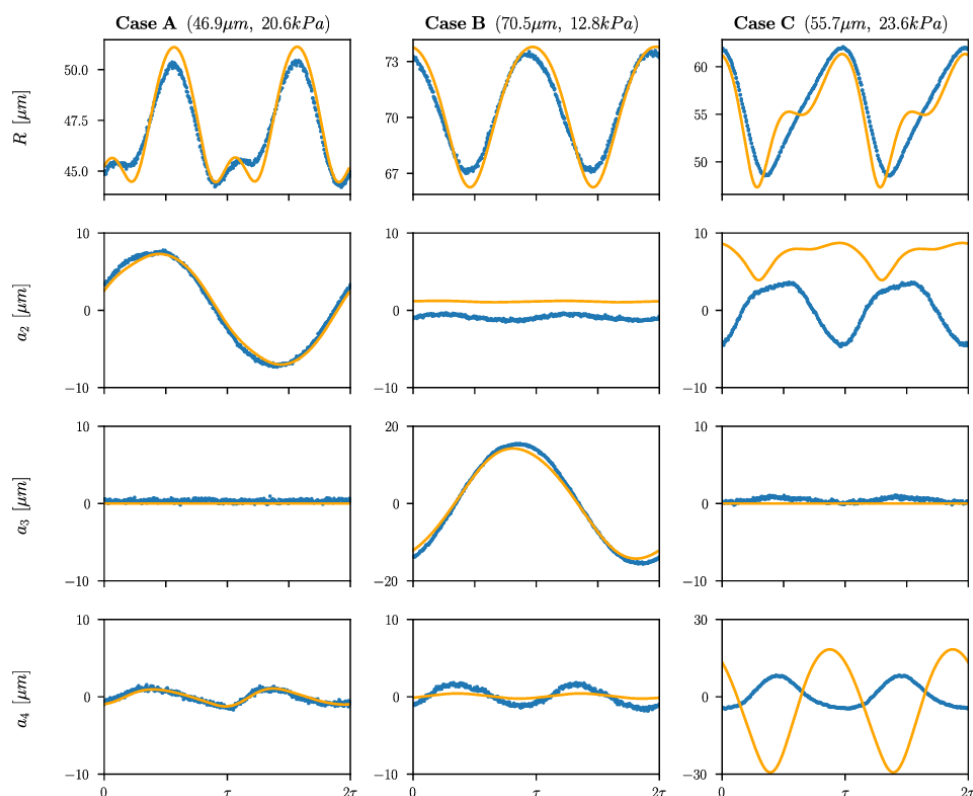
A mérések során [13] a fő paraméterek, azaz a kezdeti buborék sugár $40 - 80 \mu m$ között, és a nyomás amplitúdó $5 - 25 kPa$ között változott, míg gerjesztési frekvencia $f = 31.25 kHz$ konstans maradt. A mérések során kis méretű buborékokat hoztak létre nagy intenzitású lézeres besugárással melyek a Bjerknes erők hatására az antinodban egyesültek, ezért a kezdeti buboréksugarat $\pm 3 \mu m$ bizonytalanság terheli. A nyomás amplitúdó közvetlen mérésére nem volt lehetőség ezért egy lineáris kapcsolat került alkalmazásra a transzdúcer feszültsége és az antinodban kialakult nyomás amplitúdó között melynek bizonytalansága bizonyos esetekben elérheti a $\pm 5 kPa$ -t. Ezen bizonytalanságok igen jelentősek azonban a rendkívül nehéz mérési körülmények miatt jelenleg ez a tanulmány biztosítja a legjobb mérési eredményeket a szakirodalomban.

Ezért a mérési tanulmányban fellelhető 10 mérés (melyek módus amplitúdói az idő függvényében adottak) kerülnek összehasonlításra a szimulációs eredményekkel. Majd a jó egyezések alapján becsüljük meg a modell validitási határát. A 1. ábrán a nagy felbontású GPU-val támogatott numerikus paramétersöprés eredményei



1. ábra. Nagy felbontású paraméter vizsgálat a $p_A = 5 - 25 kPa$ és $R_0 = 40 - 80 \mu m$ paramétertérben. A vizualizációban a kék szín a domináns második, a sárga a domináns harmadik, míg a narancssárga a domináns negyedik módust jelöli. A fehér terület a stabil gömbi buborék lengést mutatja, míg a szürke terület a buborékfelbomlást. A mérési - szimulációs eredmények jó egyezését zöld keresztekkel jelöltük, míg a gyenge egyezést pirossal. A kék kereszt egy további mérést jelöl amelyet Cleve a szerzők kérésére biztosított.

láthatóak (500000 párhuzamosan futtatott szimuláció eredménye). A szimulációs - mérési eredmények összehasonlításának helyét kereszt jelöli, ami jó egyezés esetén zöld, rossz egyezés esetén pedig piros. Érdemes megjegyezni, hogy a szürke régióban, ami a feltételezett buborékfelbomlást mutatja és annak közelségében a modell túllépi a validitási határát tehát a szimulációs eredmények ezen területen megkérdőjelezhetők. Mindemellett kijelenthető, hogy a D pont már a modell validitási határa fölött található hiszen benne van a szürke tartományban. A 2. ábrán a mérések és szimulációk összehasonlítása látható az A, B, és C paraméter kombinációk esetén. Jól látható, hogy az első négy módus A és B paraméterek esetén kiváló egyezést mutat, míg C esetén a dinamika nagyban különbözik. A rendelkezésre álló tíz mérésből hat jó egyezést mutat a szimulációs



2. ábra. A mérések (kék) és a szimulációk (narancssárga) összehasonlítása az A, B és C esetekben, az első, második és harmadik oszlopokban, az alábbi kezdeti buborék sugarakkal: $R_0 = 46,9 \mu\text{m}$, $70,5 \mu\text{m}$ és $55,7 \mu\text{m}$, valamint nyomásamplitúdókkal $p_A = 20,6 \text{ kPa}$, $12,8 \text{ kPa}$ és $23,6 \text{ kPa}$. A nulladik, a második, a harmadik és a negyedik módus amplitúdói az idő (két periódus) függvényében az első, második, harmadik és negyedik sorokban találhatóak.

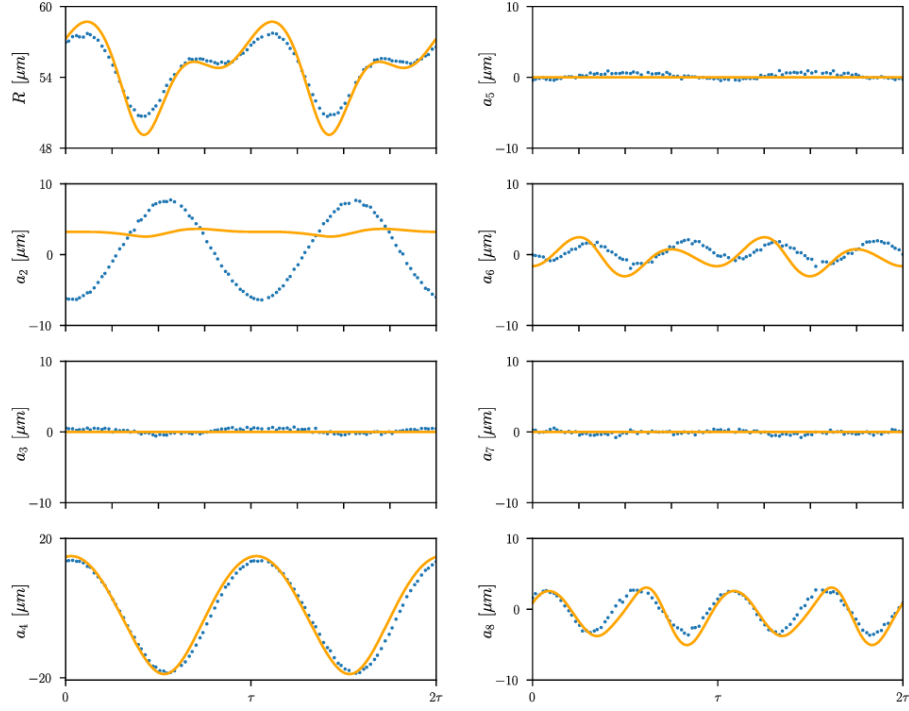
eredményekkel, azaz a domináns illetve a nulladik módusok abszolút maximumainak különbsége a szimulációk illetve a mérések során kisebb min $\pm 15\%$. A fent maradó négy mérés részletei az 1. táblázatban találhatóak, ahol az első két elemet a C és D eseteket az előzőekben tárgyaltuk. A táblázat egyes soraiban megtalálhatóak az adott

Rossz egyezések összefoglalása

1. táblázat

Case	$R_0 [\mu\text{m}]$	$p_A [\text{kPa}]$	Domináns Módus	Különbség	$ A_n _{\text{max}} [\mu\text{m}]$	
					Mér.	Szim.
C	55.7	23.6	4	x3	10	30
D	65.7	15.1	3	felbomlás	5	-
E	56.5	17.9	4	x4.25	4	17
F	55.0	17.9	4	x2.5	8	20
X	54.8	17.8	4	2-es módus	19	19

esethez tartozó paraméter párok (R_a és p_A) majd a domináns módus, és a mért-modellezett domináns módus amplitúdó közötti különbség, ami számszerűen megtekinthető az utolsó két oszlopban. Az E és F esetekben a mérések nyomás amplitúdói megegyeznek, és a kezdeti buborék sugarak közötti különbség $1.5 \mu\text{m}$. A két kísérlet viszonylagos közelsége ellenére a dinamika jelentős eltérést mutat az időjelek tekintetében. A mérések szerint a kisebb buborék domináns módus (4-es módus) amplitúdója kétszer akkora mint a nagyobb buborékhoz tartozó domináns módus amplitúdó, ami komoly aggályokat vet fel a paramétereket illetően. Megjegyzendő, hogy az E és F pontokhoz tartozó szimulációs eredmények közötti különbség 15% , ami reálisnak tekinthető. Azonban ezen a ponton nincs egy olyan domináns négyes móduossal rendelkező mérés sem, amely jó egyezést mutatna a szimulációs eredményekkel ezért felmerül a numerikus modell módus szenzitivitásának kérdése. Ennek a problémakörnek a vizsgálatára a szerzők kapcsolatba léptek a mérési tanulmány készítőjével és további mérést (X eset) kértek a domináns 4-es módus tartományában. Jól látható a 3. ábrán, hogy a meglehetősen nagy módusamplitúdók (azaz jelentősen torzult buborék alak) ellenére az időjelek jó egyezést mutatnak, tehát a módus érzékenység kizárható. A kettes módus során észlelt eltérés a validitási határ elérésének tudható be. Valamint az

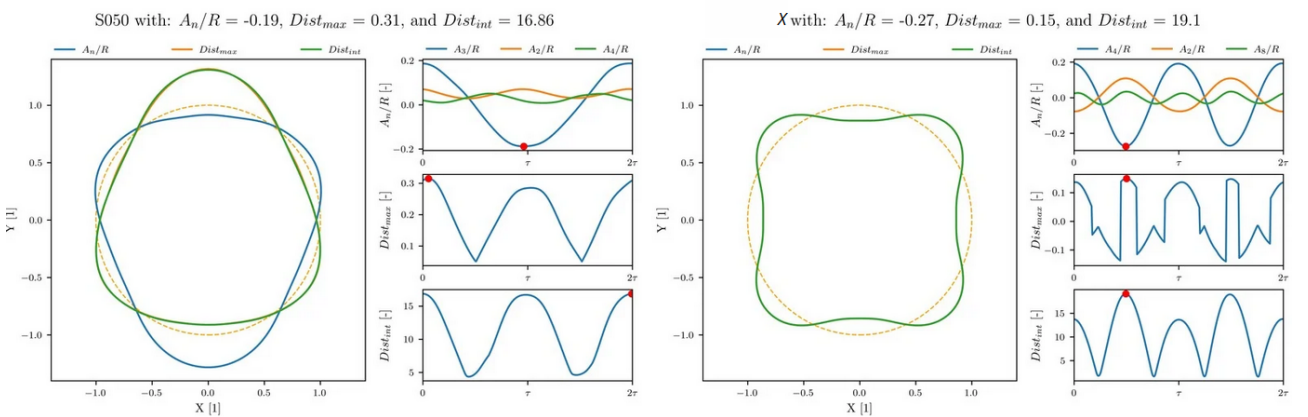


3. ábra. Az X esethez tartozó módus amplitúdók időjeleinek (két periódus) összehasonlítása. A kék pontsorozat a mérési eredményekhez még a folytonos narancssárga vonal a szimulációs eredményekhez tartozik.

X eset segítségével a C eset paraméterei is megkérdőjelezhetőek hiszen hasonló egyensúlyi buborék méret és lényegesen nagyobb nyomásamplitúdó mellett a C eset domináns módus amplitúdójának maximuma fele akkora mint az X eseté.

4. A TORZULT BUBORÉKALAK JELLEMZÉSE

A szakirodalom a buborék torzultságának leírására a domináns módus és a térfogati módus hányadosának abszolút maximumát használja $abs(max(A_n/R))$, ami a szabályos gömbi alaktól való eltérést jellemzi. Ez a



4. ábra. Buborék torzultsági számok S050 szimuláció és X esetén

módszer azonban nem veszi figyelembe az egyes módusok egymásra gyakorolt hatását ezért további torzultsági számok bevezetése szükséges. Tehát hasonlóan az eredeti definícióhoz a torzult gömbi alak előállítható az alábbi formában (ahol az egység sugarú kör a nulladik módus)

$$r_{norm}(\theta, t) = \frac{R(t)}{R(t)} + \sum_{n=2}^{12} \frac{a_n(t)}{R(t)} P_n(\mu) \quad (5)$$

Az így normalizált buborékalak segítségével definiálható $Dist_{max} = \max(abs(r_{norm} - 1))$ ami a legnagyobb abszolút távolságot fejezi ki a torzult és szabályos gömbi alak között, valamint $Dist_{int} = \int_0^{2\pi} abs(r_{norm} - 1)d\theta$, ami a torzult buborék alak és a szabályos gömbi alak közötti területet írja le. A módusok közötti interakciók figyelembe vételének fontosságát a 4. ábra mutatja. Az S050 esetben a harmadik, illetve a második módus felerősíti egymást melynek következtében lényegesen nagyobb eltérés tapasztalható a gömbi alaktól mint azt az A_n/R érték mutatja ahogyan az a $Dist_{max}$ értéken látható. Az S050 eset ellenpéldája az X eset, ahol a negyedik illetve a második módus ellentétes fázisban oszcillál melynek következtében a gömbi alaktól való eltérés csökken.

5. ÖSSZEFOGLALÁS

A mérési tanulmányban található [13] tíz plusz egy mérésből hat numerikusan reprodukálható a megadott paraméterek mentén. Az X eset során a modell elérte a validitási határt, D eset során pedig túllépte azt. A C, E, és F esetek során pedig a paramétereket jelentős hiba terheli ezért numerikusan nem reprodukálhatóak. A gömbi alaktól legjobban eltérő, de a hozzá tartozó szimulációval megegyező eset torzultsági számai alapján ($A_n/R = 0,25$, $Dist_{max} = 0,36$, $Dist_{int} = 30,14$) becsülhető a validitási határ. Megjegyzendő, hogy az egyenletrendszer stabilitását valóban a szakirodalomban használt A_n/R érték jellemzi legjobban nem pedig a maximum vagy az átlagos eltérés. A pontos validitási határ megállapításához több mérési pont, valamint egy paraméter identifikációs eljárás szükséges mellyel az egyes mérési jelek összepárosíthatók a hozzájuk tartozó szimulációs eredményekkel.

KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

A Doktoranduszi Kiválósági Ösztöndíj Program (DKÖP) által támogatott projekt a Kulturális és Innovációs Minisztérium Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alapból nyújtott, valamint a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem támogatása alapján valósult meg.

IRODALMI HIVATKOZÁSOK

- [1] Neppiras E. A. *Acoustic cavitation.*, Physics Reports, 1980, 63(3), 159-251.
- [2] Brennen C. E. *Cavitation And Bubble Dynamics*, Oxford University press New York, 1995.
- [3] Foroughi F, Lamb J. J., Burheim O. S., Pollet, G. B. *Sonochemical and Sonoelectrochemical Production of Energy Materials, Catalysis Under Ultrasonic Irradiation*, 2021, 11(2), 284.
- [4] Merouani S., Hamdaoui O., Rezgui Y., Guemini M. *Mechanism of the sonochemical production of hydrogen*, International Journal of Hydrogen Energy, 2015, 44(11), 4056-4064.
- [5] Xu H., Zeiger B. Z., Suslick K. S. *Sonochemical synthesis of nanomaterials*, Chemical Society Reviews, 2013, 42(7), 2555-2567.
- [6] Pang L. Y., Abdullah Z. A., Bhatia, S. *Review on sonochemical methods in the presence of catalysts and chemical additives for treatment of organic pollutants in wastewater*, Ultrasonics Sonochemistry, 2011, 277(1), 1-14.
- [7] Kalmár Cs., Klapcsik K., Hegedűs F. *Relationship between the radial dynamics and the chemical production of a harmonically driven spherical bubble*, Ultrasonics Sonochemistry, 2020, 64, 104989.
- [8] Klapcsik K., Hegedűs F. *Study of non-spherical bubble oscillations under acoustic irradiation in viscous liquid.*, Ultrasonics Sonochemistry, 2019, 54(1), 256-273.
- [9] Shaw J. S. *Translation and oscillation of a bubble under axisymmetric deformation.*, Physics of Fluids, 2006, 18(7), 072104.
- [10] Shaw J. S. *The stability of a bubble in a weakly viscous liquid subject to an acoustic traveling wave.*, Physics of Fluids, 2008, 21(2), 022104
- [11] Kalmár P., Hegedűs F., Nagy D., Sándor L., Klapcsik, K. *Memory-friendly fixed-point iteration method for nonlinear surface mode oscillations of acoustically driven bubbles: from the perspective of high-performance GPU programming.*, Ultrasonics Sonochemistry, 2023, 99, 106546.
- [12] Plesset M. S. *On the stability of fluid flows with spherical symmetry.*, Journal of Applied Physics, 1954, 25, 96-98
- [13] Cleve S., Guédra M., Mauger C., Insera C., Blanc-Benon P. *Microstreaming induced by acoustically trapped, non-spherically oscillating microbubbles*, Journal of Fluid Mechanics, 2019, 875, 597-621
- [14] Kalmár P., Hegedűs F., Klapcsik K. *A comparative study of measurements and numerical simulations of acoustically excited non-spherical bubbles oscillation*, International Journal of MultiphaseFlow, 2024, 179, 104947