

# 点聚焦超声辐照下液体中的声场和声化学场分布

徐 峥<sup>1</sup>, 陈 皓<sup>1</sup>, 程 茜<sup>1</sup>, 周红生<sup>2</sup>, 钱梦騷<sup>1</sup>

(1. 同济大学物理科学与工程学院, 上海 200092; 2. 中国科学院声学研究所东海研究站, 上海 200032)

**摘要:** 通过数值模拟和实验分别研究了点聚焦超声换能器在液体中直接辐照和间接辐照时产生的声场和声化学场分布。研究表明, 在直接辐照时, 数值模拟得到的液体中声压较大位置与声化学反应场位置相一致: 在聚焦超声焦点处及液体表面附近。当使用间接辐照时, 焦点处声压减小, 在试管底与超声换能器之间形成驻波。为了增加间接辐照时容器内的声压, 实验使用底端贴有薄膜的双通试管, 通过计算机模拟和实验证明在该情况下, 容器内声压, 特别是容器焦点处声压和声化学反应场有所增强。

**关键字:** 点聚焦; 声场成像; 声化学场; 间接辐照

中图分类号: O426

文献标识码: A

文章编号: 1000-3630(2014)-03-0218-04

DOI 编码: 10.3969/j.issn1000-3630.2014.03.007

## Imaging and numerical simulation of sound field in liquid induced by point-focusing ultrasound transducer

XU Zheng<sup>1</sup>, CHEN Hao<sup>1</sup>, CHENG Qian<sup>1</sup>, ZHOU Hong-sheng<sup>2</sup>, QIAN Meng-lu<sup>1</sup>

(1. Tongji University, School of Physics, Shanghai, 200092, China;

2. Shanghai Acoustics Laboratory, Institute of Acoustics, China Academy of Sciences, Shanghai 200032, China)

**Abstract:** In this work, numerical simulation and experimental studies are carried out to investigate the distribution of ultrasonic and sonochemical fields in a liquid induced by the direct or indirect irradiation of a point-focusing ultrasound transducer. Results indicate that the sonochemical reaction fields are consistent with the high amplitude acoustical fields by direct irradiation. High amplitude acoustical fields are observed at the focused point and near the liquid surface. The amplitude of acoustical field is decreased at the focused point when indirect irradiation is used. Standing waves are formed between the bottom glass of tube and the transducer. To enhance the pressure amplitude at the focused point, a film is pasted on the bottom of a double-passing tube. In this case, simulation and experiment results indicate that the acoustical pressure in the tube is increased.

**Key words:** point-focusing; sound field imaging; sonochemical reaction field; indirect irradiation

## 0 引言

声化学过程有许多工业应用, 如: 化学合成、雾化、萃取、纳米技术、治疗等<sup>[1-4]</sup>。声化学过程的产生主要依赖空化效应——液体中的气核在超声波的激励下产生、振荡并最后内爆。在内爆时, 泡内产生高温、高压和冲击波, 这为化学反应提供了极其特殊的环境。其他超声效应如: 声流、机械搅拌等也可以增加对化学反应十分重要的液体混合速度以及溶液中的对流和传输<sup>[1]</sup>。但是, 声化学反

应效率的低下阻碍了其进一步的工业化应用。

为了增加声化学反应的效率, 许多研究者提出了新的声化学反应器结构。Ashokkumar 等研究了声化学反应器内的微泡分布, 认为声化学反应效率的低下是由反应场不均匀造成的<sup>[5]</sup>。因此, Kumar 等、Yasuda 等均提出使用多个换能器辐照可以使容器内的化学反应场更均匀<sup>[2,6]</sup>。为了进一步设计高效的声化学反应器, 理解反应器内的声场或声化学场分布极其重要。但是, 测量容器内声压的主要方法是使用水听器, 水听器一般逐点测量, 实时性较差。并且水听器是侵入测量方法, 在不破坏声场和流场的情况下得到声压场分布几乎不可能。而分析方法如量热法只能得到超声与液体相互作用的积分信息<sup>[7]</sup>。因此用数值模拟方法得到与实际相符的声场成为了许多研究者的目标, 根据计算结果可以对反应器进行改进。但由于一些声化学现象至今还不清楚, 这阻碍了声场模拟在声化学上的发展, 许多研

收稿日期: 2013-11-28; 修回日期: 2014-03-08

基金项目: 国家自然科学基金(11274342, 10804085, 11174223)、同济大学重点建设项目(139143)、中央高校基本科研业务费专项资金(1370219175)、上海市自然基金(11ZR1446100)资助项目。

作者简介: 徐峥(1984—), 男, 江苏苏州人, 讲师, 研究方向为超声及超声效应。

通讯作者: 钱梦騷, E-mail: mlqian@tongji.edu.cn。

研究者们在这一方面做了许多工作：Servant 等利用有限元求解得到二维反应器中的声压分布<sup>[8]</sup>。Klima 等在模拟过程中通过改变换能器位置优化了声化学反应器<sup>[9]</sup>。Yasui 等研究了声场边界对声压分布的影响<sup>[10]</sup>。但是将模拟与实验相结合分析换能器产生声场的研究仍不多见。

另外，当对化学物质进行分解或合成时，溶液可能会与换能器表面或容器壁产生化学反应。因此，一些研究者提出利用超声间接辐照来对试样进行声化学处理<sup>[11,12]</sup>。然而，由于间接辐照反应效率较低，导致目前这方面的研究仍然十分少<sup>[11]</sup>。

在本论文中，我们将建立点聚焦超声换能器直接和间接辐照的数值模拟计算模型，通过与实验结果的对比得到点聚焦超声换能器在液体中间接辐照时的声场和声化学场。并且，研究对间接辐照的实验容器进行优化，得到更优的结果。为间接辐照声化学反应计算及实际优化奠定基础。

## 1 数值模拟

### 1.1 模型

计算反应器中的声压分布使用亥姆赫兹方程：

$$\nabla \left( -\frac{1}{\rho_c} \nabla p \right) - \frac{\omega^2}{\rho_c c_c^2} p = 0 \quad (1)$$

其中， $p$  为声压。角频率  $\omega$  定义为  $\omega = 2\pi f$ ，这里  $f$  是超声频率。

为了在方程中加入衰减，定义液体的复数  $\rho_c$  和复数  $c_c$  分别为

$$\rho_c = \frac{Z_c k_c}{\omega}, \quad c_c = \frac{\omega}{k_c} \quad (2)$$

其中，复数波数  $k_c$  和声阻抗率  $Z_c$  分别写为

$$k_c = \frac{\omega}{c_s} - i\alpha, \quad Z_c = \rho_0 c_s \quad (3)$$

这里： $\alpha (=0.005 \text{ m}^{-1})$  是液体的吸收系数； $c_s$  和  $\rho_0$  分别是液体的声速和密度。

图 1 为计算模型示意图。由于计算单元必须小于  $1/10$  的超声波长(当超声换能器工作频率为 311 kHz 时，计算单元最大边长为 0.48 mm)，如果采用三维模型，由于模型单元数过多而导致计算无法在现有计算机上进行，所以模拟采用二维轴对称模型。实验容器尺寸为 110 mm×110 mm×183 mm，侧面为玻璃(杨氏模量为  $7.4 \times 10^{10} \text{ Pa}$ ，泊松比为 0.3，密度为  $2200 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )，壁厚为 2 mm。因为荧光剂溶液的密度和声速均十分接近于水，所以溶液的密度和声速均设置为水(密度为  $1000 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ，声速为  $1481 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ )。

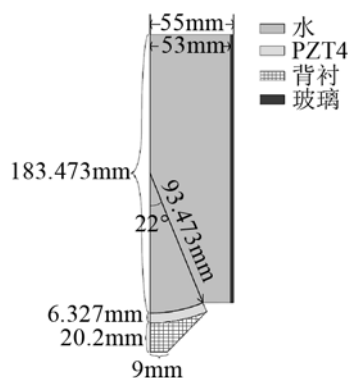


图 1 计算模型示意图

Fig.1 The scheme of modeling

超声换能器是 PZT4 材料，所加电压为 100 V，背衬为合金，经过实验测量得到其密度为  $8500 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ，杨氏模量为  $1.9 \times 10^5 \text{ Pa}$ ，泊松比为 0.22。超声换能器焦距为 93.5 mm，张角为  $22^\circ$ ，工作频率为 311 kHz。

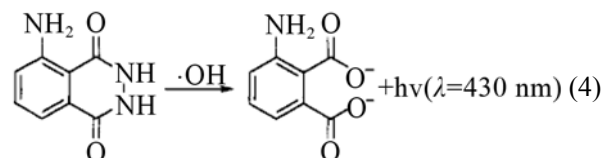
### 2.2 实验方法

实验用溶液为鲁米诺试剂(0.56 mMol)溶于氢氧化钠(25 mMol, 2 L)溶液中，照片用相机对声化学反应场曝光(30 s)拍摄。

## 3 结果与讨论

### 3.1 直接辐照

荧光反应主要是由于鲁米诺溶液与氢氧根之间的相互作用，反应方程式为<sup>[2]</sup>：



在超声辐照作用下， $\text{H}_2\text{O}$  分子在空化效应作用下分解为  $\cdot\text{OH}$  和  $\cdot\text{H}$ ， $\cdot\text{OH}$  和鲁米诺发生反应后放出 430 nm 波长的荧光。因此，利用照相机拍摄到的荧光位置对应于超声辐照后空化反应产生的区域。由于大部分的声化学反应都依赖于  $\cdot\text{OH}$  的产生，所以可以利用荧光反应来描述声化学反应场的大小和强弱。

图 2(a)为点聚焦超声换能器产生声化学反应场的实验结果，图 2(b)为声场模拟结果。在模拟结果中，声压的大小由颜色表示，其幅值可参阅右侧的颜色条。从实验和模拟结果中均可以发现聚焦超声换能器在液体中的最大声压出现在焦斑位置，模拟得其最大幅值为  $1.65 \times 10^6 \text{ Pa}$ 。除了焦斑以外，还可以发现液体表面也有声压较大的声化学反应场。同时，在模拟中也发现液体表面下方为声压较大的

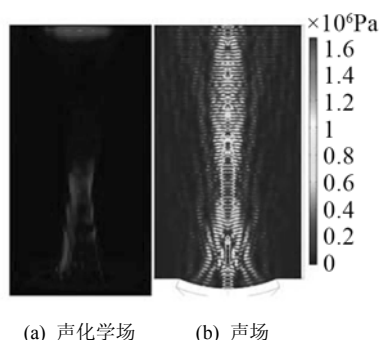


图 2 聚焦换能器的声化学场和声场

Fig. 2 The sonochemical reaction field and sound field induced by a point-focusing transducer

场, 这可能是因为水面和声波相互作用造成的。除此之外, 从模拟和实验结果中均可以观察到液体内的驻波, 这是因为超声在液体表面和换能器之间多次反射形成的。通过图 2(a)和 2(b)的比较可以发现数值模拟结果与声化学场实验结果较为符合。

### 3.2 间接辐照

为研究间接辐照时容器内的声化学场分布, 试管被插在液体上方, 试管内倒入同样浓度的鲁米诺溶液, 使点聚焦超声换能器焦点位于试管内。试管壁厚度为 1 mm, 试管底厚为 2 mm, 材料为玻璃。图 3(a)和 3(b)分别是间接辐照时声化学场的实验和声场的模拟结果。从图 3(a)和 3(b)中均可以发现焦点处的声化学反应场和声压场相对直接辐照有很明显的减小与减弱。这与其他组的研究相一致<sup>[12]</sup>。这可能是由于液体与容器底部玻璃阻抗不匹配造成: 声波在试管底与换能器间来回反射形成了强驻波场, 反射叠加的驻波场内最大声压幅值达到  $2.39 \times 10^6$  Pa。但对于间接辐照下的声化学反应是不利的, 辐照时, 希望更多的能量能够透入到试管内部, 使容器内的溶液发生声化学反应。

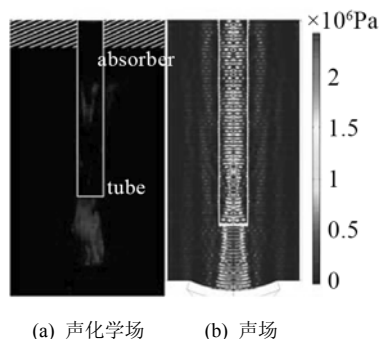


图 3 聚焦换能器在间接辐照时底端为玻璃时的声化学场和声场  
Fig.3 The sonochemical reaction field and sound field induced by indirect irradiation of a point-focusing transducer

为了增大间接辐照时试管内的声压场分布, Kobayashi 等通过改变换能器和试管之间的距离得

到了使试管内反应最强的位置<sup>[11]</sup>。对于频率为 311 kHz 的声波, 在一个波长之内改变其位置比较困难。因此, 本研究通过改变试管底部的声阻抗率来减少声波的反射。实验将试管底部由玻璃改为薄膜, 薄膜厚度为  $1.27 \times 10^{-4}$  m。密度为  $0.9 \times 10^3$  kg/m<sup>3</sup>, 杨氏模量为  $2 \times 10^8$  Pa, 泊松比为 0.3。图 4(a)和 4(b)分别为使用薄膜后试管内的声化学场和声场的模拟结果。可以发现, 试管底部与换能器之间的驻波场与图 3 的结果相比减小了很多。而且, 试管内部声压幅值与反应场都有了很大的增强: 聚焦超声换能器焦点处声压达到  $1.90 \times 10^6$  Pa。这可能是由于薄膜的厚度较小且其阻抗相对玻璃与水匹配较好, 使超声在薄膜表面更少发生反射。因此, 试管内部声压有了明显的增加, 实验中也发现反应区域有了明显的增大与增强。

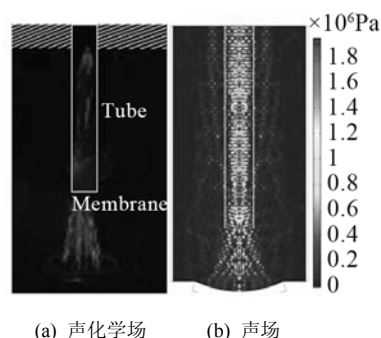


图 4 聚焦换能器在间接辐照时底端为薄膜时的声场和声化学反应场  
Fig.4 The sonochemical reaction field and sound field induced by indirect irradiation of a point-focusing transducer (A membrane is used)

根据图 2 与图 3、图 4 的比较可以发现, 直接辐照相对间接辐照焦点较大, 反应区域相对集中, 间接辐照在使用薄膜材料后焦点处声强有所增大。在焦点上方出现了另外一处声压较大的区域, 这可能是由于水面和试管壁的反射造成的。从实验结果看, 间接辐照产生的声化学反应强度低于直接辐照, 这是由于容器底部材料与溶液阻抗不匹配造成的, 选择与溶液阻抗接近的材料可以增加声波的透射率。在以后的工作中, 我们也考虑使用可提高透射率的周期结构作为容器底面<sup>[13]</sup>。

## 4 结 论

本文利用点聚焦超声换能器对间接辐照产生的声化学场和声场进行了实验研究和数值模拟。结果表明, 利用数值模拟来求解声化学场的反应域是可行的。间接辐照时, 玻璃的强反射不利于容器内的声化学反应。使用薄膜可增强间接辐照时的反应

效率。

利用间接辐照对声化学反应进行处理现在还有许多不明点。本研究利用点聚焦超声换能器对液体间接辐照的声化学反应的反应域和声场进行了可视化和模拟，在以后的工作里，我们还将考虑超声的一些非线性效应如：流场和温度场等对于间接辐照声场的影响。

### 参 考 文 献

- [1] Adewuyi Y. Sonochemistry: environmental science and engineering applications[J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2001, **40**(22): 4681-4715.
- [2] Yasuda K, Torii T, Yasui K, et al. Enhancement of sonochemical reaction of terephthalate ion by superposition of ultrasonic fields of various frequencies[J]. *Ultrason. Sonochem.*, 2003, **10**(6): 699-704.
- [3] XU Z, Yasuda K, Koda S. Numerical simulation of liquid velocity distribution in a sonochemical reactor[J]. *Ultrason. Sonochem.*, 2013, **20**(1), 452-459.
- [4] Hatanaka S, Mitome H, Yasui K, et al. Multibubble sonoluminescence enhancement by fluid flow[J]. *Ultrasonics*, 2006, **44**(suppl.): 435-438.
- [5] Ashokkumar M, Lee J, Iida Y, et al. Spatial distribution of acoustic cavitation bubbles at different ultrasound frequencies[J]. *Chem. Phys. Chem.*, 2010, **11**(8): 1680-1684.
- [6] Kumar A, Gogate P, Pandit A. Mapping the efficacy of new designs for large scale sonochemical reactors[J]. *Ultrason. Sonochem.*, 2007, **14**(5): 538-544.
- [7] Jamshidi R, Pohl B, Peuker U, et al. Numerical investigation of sonochemical reactors considering the effect of inhomogeneous bubble clouds on ultrasonic wave propagation[J]. *Chem. Eng. J.*, 2012, **189**(1): 364-375.
- [8] Servant G, Laborde J, Hita A, et al. Spatio-temporal dynamics of cavitation bubble clouds in a low frequency reactor: comparison between theoretical and experimental results[J]. *Ultrason. Sonochem.*, 2001, **8**(3): 163-174.
- [9] Klima J, Ferrer A, Garcia J, et al. Optimization of 20 kHz sono-reactor on the basis of numerical simulation of local ultrasonic intensity and qualitative comparison with experimental results[J]. *Ultrason. Sonochem.*, 2007, **14**(1): 19-28.
- [10] Yasui K, Kozuka T, Tuziuti T, et al. Fem calculation of an acoustic field in a sonochemical reactor[J]. *Ultrason. Sonochem.*, 2007, **14**(5): 605-614.
- [11] Kobayashi D, Matsumoto H, Kuroda C. Improvement of indirect ultrasonic irradiation method for intensification of emulsion polymerization process[J]. *Chem. Eng. J.*, 2008, **135**(1): 43-48.
- [12] Kimura T, Sakamoto T, Leveque J, et al. Standardization of ultrasonic power for sonochemical reaction[J]. *Ultrason. Sonochem.*, 1996, **3**(3): S157-S161.
- [13] HE Z, JIA H, QIU C, et al. Acoustic transmission enhancement through a periodically structured stiff plate without any opening[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **105**(7): 074301-1-4.