

УДК 534.29

## КАВИТАЦИЯ В ВОДНЫХ РАСТВОРАХ УГЛЕКИСЛОГО ГАЗА

А.В. Котухов, Н.А. Жарко, В.С. Минчук, Н.В. Дежкунов

*Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники, Минск*

## CAVITATION IN AQUEOUS SOLUTIONS OF CARBON DIOXIDE

A.V. Kotukhov, N.A. Zharko, V.S. Minchuk, N.V. Dezhkunov

*Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics, Minsk*

Исследовалась активность кавитации в водных растворах углекислого газа. В ряде режимов оценивалась скорость эрозии и записывались спектры кавитационного шума. Установлено, что в пересыщенном растворе активность кавитации близка к нулевой. По мере дегазации активность кавитации растет, стремясь к уровню активности в дистиллированной воде. Сделан вывод, что на первой стадии дегазации при пульсациях пузырьков не генерируются интенсивные ударные волны и кавитация не может оказывать интенсивного разрушающего воздействия на твердые поверхности и биологические ткани. На второй стадии концентрация интенсивно захлопывающихся пузырьков существенно увеличивается.

**Ключевые слова:** кавитация, раствор углекислого газа, активность кавитации, захлопывание пузырьков.

The activity of cavitation in water solutions of carbon dioxide was investigated. In a number of regimes erosion rate was estimated. It is shown that in oversaturated solution of carbon dioxide the activity of cavitation is close to zero. In process of degassing the activity of cavitation grows and tends to the activity level in the distilled water. It is drawn that at the first stage of degassing intensive shock waves are not generated by bubbles pulsation and cavitation in this mode cannot make the intensive destroying impact on firm surfaces and on biological fabric. At the second stage concentration of intensively collapsing bubbles significantly increases.

**Keywords:** cavitation, water solutions of carbon dioxide, cavitation activity, bubbles collapses.

### Введение

В настоящее время ультразвук широко применяется для интенсификации физико-химических процессов в жидкостях. При этом ключевую роль как правило играет кавитация – явление образования пульсаций и захлопывания микропузырьков газа в жидкости под действием переменного давления [1]. При захлопывании кавитационными полостями генерируются ударные волны и микроструи жидкости, а парогазовая смесь внутри пузырька разогревается до нескольких тысяч градусов [2]–[4]. Этими факторами и определяется активность кавитации, т. е. интенсивность ее воздействия на различные процессы и объекты в жидкости. Активность кавитации зависит от множества факторов, среди которых газосодержание жидкости, т. е. концентрация газа является одним из наиболее важных.

Растворенные газы могут влиять на активность кавитации различным образом. Газ с меньшим коэффициентом теплопроводности будет обеспечивать при прочих равных условиях более высокую температуру внутри пузырьков за счет уменьшения теплопередачи из пузырька в жидкость [5]. Наличие в жидкости газа с более высокой растворимостью снижает порог кавитации и повышает концентрацию пузырьков в кавитационной области [1], [3], [5]. Это должно приводить к повышению активности кавитации. Однако при слишком большой концентрации вследствие взаимодействий пузырьков друг с

другом за счет сил Бьеркнесса и ударных волн они могут распадаться на осколки на ранней стадии захлопывания. В результате эффективность преобразования энергии, запасенной пузырьком в фазе разрежения, будет уменьшаться, что может приводить к снижению активности кавитации [6]–[8]. Кроме того, при большой концентрации пузырьков важным фактором становится быстрое поглощение энергии ультразвука в кавитационной области и экранирование внутреннего объема кавитационной области внешними пузырьками [2], [8], что также может снижать активность кавитации. При большой концентрации газа в жидкости давление парогазовой смеси внутри пузырьков также будет значительным, что должно приводить к демпфированию процесса захлопывания, снижению температур, достигаемых в пузырьке, и интенсивности ударных волн, генерируемых в кавитационной области.

В работе [9] приведены результаты, не согласующиеся с [5]–[7], а именно: показано, что активность кавитации увеличивается при увеличении концентрации газа в воде. Такой же вывод сделан и авторами [10], [11], исходя из результатов скоростной фоторегистрации кавитационной области. Таким образом, представленные в литературе результаты исследований влияния газосодержания жидкости на активность ультразвуковой кавитации являются противоречивыми.

Углекислый газ обладает высокой степенью растворимости в воде и поэтому обеспечивает

возможность варьирования газосодержания в широком диапазоне. При постановке задачи данного исследования авторы исходили из предположения, что под действием ультразвука в пересыщенном растворе углекислого газа его концентрация будет меняться за счет ультразвуковой дегазации. Отметим, что экспериментальных исследований с растворами углекислого газа в ходе ультразвуковой обработки раствора до сих пор не проводилось.

### 1 Установка и методика исследований

Используемая в данной работе звукохимическая ячейка выполнена в виде цилиндрической емкости из нержавеющей стали. Внутренний диаметр емкости – 78 мм, высота – 100 мм. Пьезокерамический излучатель диаметром 50 мм с резонансной частотой 34,6 кГц приклеен к днищу емкости эпоксидным клеем.

Для измерений активности кавитации использовался кавитометр ИСА-3М (БГУИР, г. Минск) [12]. Физический принцип работы этого прибора основан на спектральном анализе кавитационного шума (КШ), т. е. акустического сигнала, генерируемого кавитационной областью. Датчик прибора представляет собой цилиндрический волновод диаметром 3 мм, на одном торце которого установлен пьезоэлемент. По волноводу акустический сигнал из кавитационной области передается на пьезоэлемент, где преобразуется в электрический. Диаметр приемного элемента гидрофона 3 мм, высота – 1 мм. Кавитометр позволяет измерять (в относительных единицах) полную активность кавитации и вклад захлопывающихся пузырьков, т. е. активность нестационарной кавитации.

Прибор оснащен программой, которая позволяет регистрировать изменение во времени полного выходного сигнала датчика и активности кавитации и одновременно отображать это изменение в виде графика на мониторе компьютера.

На рисунке 1.1, а) представлены результаты измерений, характеризующие распределение полного звукового давления (зависимость 1) и активности кавитации (зависимость 2), полученные при перемещении датчика вдоль оси рабочей емкости по направлению от границы раздела жидкость-газ к излучателю. Здесь  $L$  – расстояние от торца датчика до излучателя. Измерения выполнялись в отстоявшейся в течение двух суток водопроводной воде при температуре  $23 \pm 1^\circ\text{C}$  и уровне жидкости над излучателем 80 мм.

Видно, что в местах, соответствующих максимумам активности кавитации (по показаниям прибора) наблюдается и максимум полного выходного сигнала. Расстояние между соседними максимальными и минимальными значениями равно примерно  $\lambda/4$ , где  $\lambda$  – длина звуковой волны ( $\sim 41$  мм). Наличие максимумов и минимумов связано, очевидно, с наличием стоячей

компоненты звукового поля, образующейся при сложении падающей на границу раздела жидкость-газ и отраженной от этой границы волн.

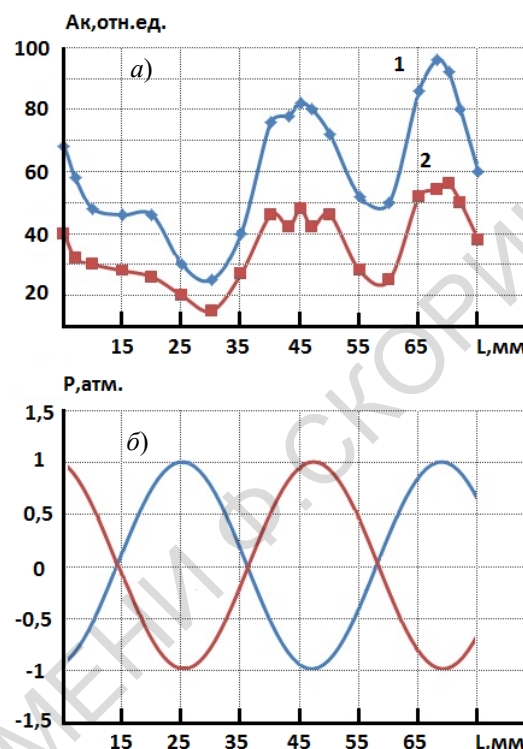


Рисунок 1.1 – Распределение полного выходного сигнала гидрофона и активности кавитации вдоль оси излучателя в дистиллированной воде а) измеренное распределение полного выходного сигнала гидрофона (1) и активности кавитации (2) вдоль оси излучателя; б) теоретическое распределение давления в поле идеальной стоячей волны для использованной частоты. Уровень жидкости в рабочей емкости над излучателем – 80 мм,  $L$  – расстояние от датчика до излучателя, 1 – полный выходной сигнал, 2 – активность кавитации, температура жидкости =  $22 \pm 1,5^\circ\text{C}$

В экспериментах по исследованию влияния дегазации на кавитацию датчик размещался на оси излучателя таким образом, что его приемный элемент находился на расстоянии 70 мм от излучателя, т. е. в точке первого максимума стоячей компоненты ультразвукового поля.

Использовались два варианта процедуры воздействия ультразвуком на пересыщенный раствор углекислого газа. По первому варианту емкость заполняли жидкостью в течение 30 секунд, выдерживали еще 30 с без ультразвука, затем включали ультразвук и кавитометр и регистрировали показания с использованием описанной выше программы обработки данных в течение 1 минуты. Затем ультразвук отключали на 10 минут, после чего процедуру повторяли. Записывался полный выходной сигнал гидрофона  $H$  и активность кавитации  $A$ .

По второму варианту ультразвук и цифровой кавитометр включали сразу же после заполнения рабочей емкости жидкостью. Обработка происходила в течение 1 мин. Затем генератор и цифровой кавитометр отключали, подключали аналоговый кавитометр и снова включали ультразвук на 2 минуты, и в течение этого времени регистрировали величину выходного сигнала в различных частотных диапазонах. После этого генератор отключали на 10 минут. После 10-минутного перерыва цикл повторяли. Таким образом, при такой методике перед каждым 10-минутным перерывом происходило дополнительное воздействие ультразвуком в течение двух минут. Как оказалось, последний режим обработки по сравнению с непрерывным озвучиванием обеспечивает более интенсивную дегазацию при одинаковом полном времени ультразвукового воздействия на раствор.

## 2 Результаты и их обсуждение

На рисунке 2.1 представлены результаты одновременной регистрации полного выходного сигнала гидрофона и сигнала высокочастотной составляющей кавитационного шума при непрерывном озвучивании, т. е. по первому варианту использовавшейся методики, а на рисунке 2.2 – по второму варианту. Зависимости на рисунках 2.2 и 2.3 получены путем «сшивания» отдельных 1-минутных зависимостей. Места соединений зависимостей выделены штриховыми линиями.

Отметим, во-первых, что для условий данного эксперимента наблюдается хорошая корреляция активности кавитации и полного выходного сигнала гидрофона, а именно: с ростом интенсивности полного сигнала растет и активность кавитации.

При включении ультразвука начинается интенсивная дегазация с выделением большого количества визуально регистрируемых пузырьков с размерами до нескольких миллиметров, активность кавитации при этом медленно увеличивается. В течение 10–15 секунд после включения ультразвука, активность кавитации быстро увеличивается, затем рост ее замедляется. Под действием ультразвука идет интенсивная дегазация с выделением большого количества визуально регистрируемых пузырьков с размерами до нескольких миллиметров. Пузырьки меньшего размера удерживаются в поле стоячей волны и постепенно увеличиваются в размерах за счет выпрямленной диффузии газа в пузырек. Затем рост замедляется и практически прекращается. А к 90-й секунде озвучивания наблюдается даже некоторое уменьшение активности кавитации, вероятно, вследствие скопления больших пузырей в узлах звукового давления и усиления, вследствие этого, поглощения ультразвука и эффекта экранирования.

На первом этапе дегазации отмечены синхронные квазипериодические скачки выходных сигналов кавитометра. Эта закономерность, вероятно, связана с образованием кластеров кавитационных полостей, которые периодически всплывают на поверхность жидкости. При этом в момент всплытия происходит удаление избытка пузырьков из ультразвукового поля, в результате поглощение ультразвука в кавитационной области на короткое время уменьшается. Уменьшается и демпфирующее действие больших пузырей, что и приводит к соответствующим всплескам активности кавитации. Затем начинается новый цикл роста пузырьков и формирования кластеров, активность кавитации несколько снижается и так далее.

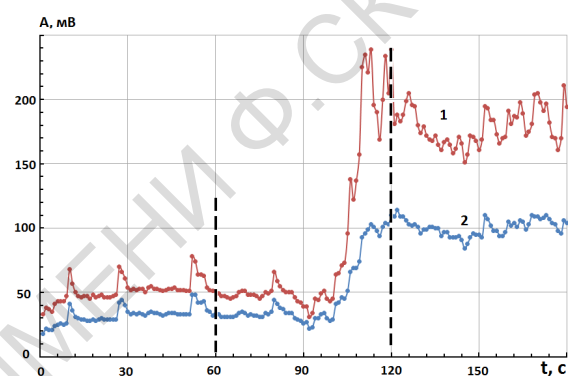


Рисунок 2.1 – Динамика изменения во времени полного выходного сигнала датчика и активности кавитации в ходе дегазации пересыщенного раствора углекислого газа

1 – полный выходной сигнал; 2 – активность кавитации, температура жидкости =  $22 \pm 1,5^\circ \text{C}$ .  
Дегазация – по первому варианту

После достижения некоторой степени дегазации (на рисунке 2.1 – примерно на 100-й секунде) наблюдается быстрый, часто скачкообразный рост активности кавитации. Можно предполагать, что в этот момент происходит качественное изменение состояния кавитационной области, связанное, вероятно, со взаимодействием пузырьков. Далее происходит незначительное уменьшение и затем медленный рост активности кавитации.

Низкий уровень активности кавитации и полного выходного сигнала в начале эксперимента обусловлены наличием в жидкости большого количества пузырей с размерами, во много раз превышающими резонансные размеры. В такой жидкости не может быть достигнуто растягивающих напряжений, способных вызвать пульсации и захлопывание зародышей кавитации с размерами порядка резонансного или меньше (примерно – 0,05 мм для условий данного эксперимента). По мере дегазации концентрация больших пузырей, сильно ослабляющих прочность жидкости, уменьшается. Поэтому отрицательное

давление в фазе разрежения звуковой волны постепенно увеличивается, активируются пузырьки все меньшего размера и активность кавитации увеличивается.

На рисунке 2.2 представлены аналогичные зависимости, полученные по второму варианту методики, т. е. с дополнительным озвучиванием в течение 2 минут и 10-минутными перерывами после каждого этапа озвучивания. Результирующие графики, как и на рисунке 2.1, получены путем «сшивания» отдельных зависимостей.

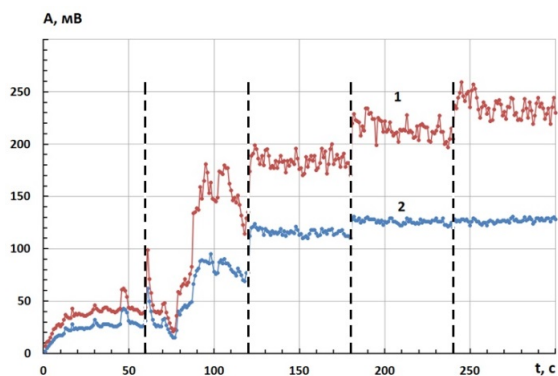


Рисунок 2.2 – Динамика изменения во времени полного выходного сигнала гидрофона и активности кавитации в ходе дегазации пересыщенного раствора углекислого газа по второму варианту обработки:  
1 – полный выходной сигнал; 2 – активность кавитации, температура жидкости =  $22 \pm 1,5^\circ \text{C}$ .  
Дегазация – по второму варианту

В начале эксперимента активность кавитации (зависимость 2) близка к нулевой. Интенсивность полного выходного сигнала гидрофона (зависимость 1) также незначительна. На начальном участке активность кавитации увеличивается медленно и в течение первой минуты выходит на плато с тенденцией к уменьшению. Так же как и в первом случае (рисунок 2.1), имеется участок с быстрым ростом (примерно на 80-й секунде), не связанный с отключением или включением ультразвуковых колебаний.

Отличие результатов данного эксперимента (рисунок 2.2) от результатов, полученных по первому варианту озвучивания (рисунок 2.1) состоит в том, что при включении ультразвука после десятиминутного перерыва регистрируемые величины имеют существенно более высокие значения по сравнению со значениями в момент отключения ультразвука при окончании предыдущего этапа озвучивания. Поэтому результирующие зависимости имеют ступенчатый вид.

Эта особенность обусловлена тем, что в данном случае после каждого 60-ти секундного цикла регистрации исследуемых параметров проводилась дополнительная обработка в течение 1 минуты (во время которой измерялись интенсивности сигналов в различных частотных

диапазонах с использованием аналогового кавитометра ИСА-3М). За это время происходила дополнительная дегазация, общая концентрация пузырьков еще больше уменьшалась. Отключение ультразвука на 10 минут (между циклами) обеспечивало всплытие больших неэффективных полостей. В результате концентрация таких пузырьков в кавитационной области в начале каждого последующего цикла оказывалась существенно меньшей, чем в конце предыдущего, что и обеспечивало повышение активности кавитации, равно как и полного выходного сигнала датчика. Этими же факторами объясняется и более быстрое достижение состояния кавитационной области, при котором происходит упомянутый выше скачок активности кавитации.

На рисунке 2.3 представлена эволюция спектров кавитационного шума по мере дегазации под действием ультразвука. Маркером отмечена основная частота  $f_0 = 34,6$  кГц. Штриховой линией на рисунке 2.3 а) показан нулевой уровень, а на рисунке 2.3 б) – непрерывная составляющая спектра кавитационного шума.

На начальной стадии дегазации (рисунок 2.3, а) интенсивность сигнала на основной частоте ниже интенсивностей более высоких гармоник. Это может быть обусловлено тем, что на начальной стадии дегазации, когда объемная концентрация полостей на пути звуковой волны велика, излучаемая волна сильно поглощается в кавитационной области. Из этого можно сделать вывод, что на первой стадии основным фактором подавления активности кавитации в пересыщенном растворе  $\text{CO}_2$  является поглощение ультразвука в кавитационной области.

По мере уменьшения газосодержания (вследствие дегазации) растет интенсивность сигнала на основной частоте, интенсивность гармоник и интенсивность непрерывной составляющей спектра кавитационного шума.

Интенсивность на частоте ультразвукового поля  $f_0$  при переходе от первой стадии дегазации (рисунок 2.3, а) ко второй (рисунок 2.3, б) растет быстрее чем высокочастотные компоненты  $nf_0$ , где  $n$  – целое число. Если сравнить спектры на рисунках 2.3, а) и 2.3 б), то видно, что интенсивность  $f_0$  увеличилась за все время дегазации примерно на 40 dBm, т. е. более, чем во 100 раз, а интенсивности гармоник от  $3f_0$  до  $7f_0$  примерно на 10...15 dBm.

На первом этапе дегазации (рисунок 2.3, а) спектр кавитационного шума характеризуется тем, что непрерывная составляющая пренебрежимо мала по сравнению со спектрами на более поздних стадиях дегазации (рисунок 2.3, в и рисунок 2.3, г). Непрерывная компонента спектра КШ, как известно [13], [14], связана с нестационарной кавитацией, т. е. ее наличие обусловлено захлопыванием кавитационных полостей. Этот результат, таким образом, позволяет сделать



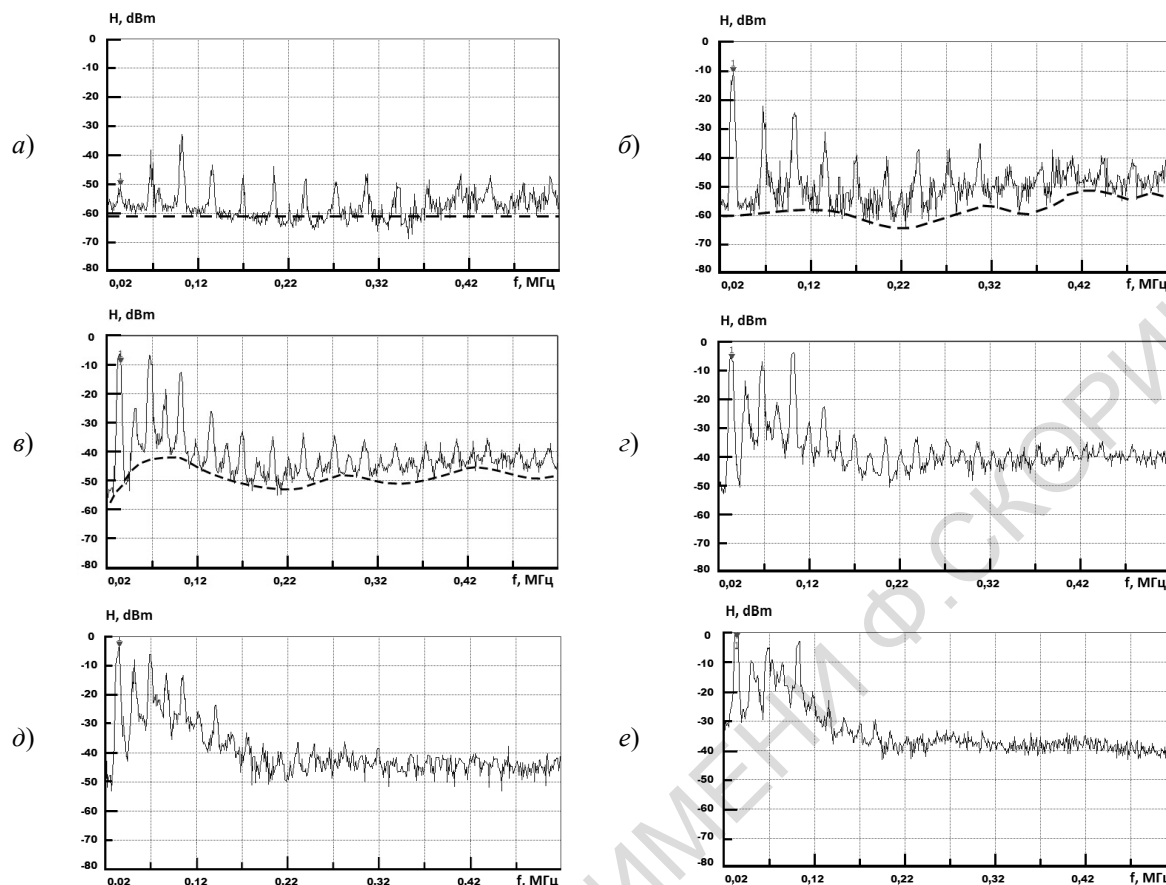


Рисунок 2.3 – Эволюция спектров кавитационного шума в ходе дегазации/

Спектры сняты после дегазации в течение 1 мин (а), 2 мин (б), 3 мин (в), 4,5 мин (г); и спектры водопроводной (д) и дистиллированной воды (е). Температура жидкости –  $21 \pm 2,5^\circ \text{C}$

вывод, что в пересыщенном растворе углекислого газа не генерируется интенсивных ударных волн, следовательно, кавитация в этом режиме не может оказывать интенсивного разрушающего воздействия на твердые поверхности и биологические ткани. Т. е. в этом случае может реализоваться относительно «мягкое» кавитационное воздействие. Эта особенность обусловлена следующими факторами: 1) наличием большого количества пузырей с размерами больше резонансного, которые в соответствии с [1], [2] пульсируют незначительно меняя свои размеры и не генерируют ударных волн; 2) тем, что эти пузырьки сильно ослабляют прочность жидкости, в результате в фазе разрежения не может быть достигнуто сколько-нибудь значительных растягивающих напряжений, необходимых для приведения в движение пузырьков с размерами порядка резонансного или меньше; 3) при большой концентрации газа в жидкости давление парогазовой смеси внутри пузырьков также будет значительным, что в соответствии с [1], [15] должно приводить к демпфированию процесса захлопывания, снижению температур, достигаемых в пузырьке, и интенсивности ударных волн, генерируемых в кавитационной области.

На втором этапе (рисунок 2.3, б, 2.3, в) рост интенсивности низкочастотных компонент замедляется, а высокочастотная часть, наоборот, растет быстрее. На конечной стадии дегазации (рисунок 2.3, г) спектр КШ раствора углекислого газа приближается к спектру дистиллированной воды (рисунок 2.3, е). Согласно результатам работы [15], пузырьки с размерами меньше резонансного генерируют все более высокочастотные составляющие при уменьшении их размеров. Поэтому можно утверждать, что по мере дегазации раствора углекислого газа в кавитационной области уменьшается концентрация больших кавитационных полостей (больше резонансного размера) и увеличивается концентрация пузырьков с размерами меньше резонансного, эффективно преобразующих энергию ультразвука в другие виды энергии.

Таким образом, по мере дегазации раствора углекислого газа в кавитационной области уменьшается доля больших полостей, неэффективных с точки зрения генерирования ударных волн, и увеличивается доля пузырьков, при захлопывании которых генерируются интенсивные ударные волны и другие кавитационные эффекты. Снижение концентрации газа в жидкости

приводит к соответствующему снижению давления парагазовой смеси внутри пузырьков и уменьшению демпфирующего действия содержимого пузырьков.

### Заключение

Показано, что в пересыщенном растворе углекислого газа активность кавитации близка к нулевой. При включении ультразвука начинается интенсивная дегазация с выделением большого количества визуально регистрируемых пузырьков с размерами до нескольких миллиметров, активность кавитации при этом медленно увеличивается. Отмечены квазипериодические скачки выходного сигнала гидрофона, что связано, вероятно, с образованием кластеров кавитационных полостей, которые периодически всплывают на поверхность жидкости.

Выделены две стадии развития кавитационной области при дегазации пересыщенного раствора углекислого газа: на первой стадии активность кавитации и полный выходной сигнал увеличиваются медленно, переход от первой ко второй стадии характеризуется быстрым, часто скачкообразным, ростом активности кавитации.

Спектры кавитационного шума для первой и второй стадий кавитационной области существенно различаются, что указывает на возможность идентификации стадий по спектру кавитационного шума. Исходя из анализа полученных спектров сделан вывод, что на первой стадии при пульсациях пузырьков не генерируется интенсивных ударных волн и кавитация в этом режиме не может оказывать интенсивного разрушающего воздействия на твердые поверхности и биологические ткани. На второй стадии ситуация изменяется, и концентрация интенсивно захлопывающихся пузырьков существенно увеличивается.

Авторы выражают благодарность сотрудникам БГУИР В.А. Колтовичу и А.Ф. Грибу за подготовку оборудования для проведения исследований и помощь при проведении измерений.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Сиротюк, М.Г. Акустическая кавитация / М.Г. Сиротюк. – М.: Наука, 2008. – 271 с.
2. Leighton, T.G. Acoustic Bubble / T.G. Leighton. – Pergamon Press: London, 1995. – P. 650.
3. Маргулис, М.А. Сонолюминесценция / М.А. Маргулис // Успехи физических наук. – 2000. – № 3. – С. 263–284.
4. Didenko, Y T. Molecular Emission during Single Bubble Sonoluminescence / Y.T. Didenko, K. Suslick // Nature. – 2010. – Vol. 407. – P. 877–879.
5. Gireesan, S. Modeling the effect of carbon dioxide gas on cavitation / S. Gireesan, A.B. Pandit //

Ultrasonics Sonochemistry. – 2017. – Vol. 34. – P. 721–728.

6. Sensitivity of free radicals production in acoustically driven bubble to the ultrasonic frequency and nature of dissolved gases / S. Merouani, O. Hamdaoui, Y. Rezugui, M. Guemini // Ultrasonics Sonochemistry. – 2015. – № 22. – P. 41–50.

7. Dezhkunov, N.V. Multibubble sonoluminescence intensity dependence on liquid temperature at different ultrasound intensities / N.V. Dezhkunov // Ultrasonics Sonochemistry. – 2002. – Vol. 9. – P. 103–106.

8. Эволюция кавитационной области в фокусированном ультразвуковом поле / Н.В. Дежкунов, А. Francescutto, F. Calligaris, А.Л. Николаев // Письма в журнал технической физики. – 2014. – Т. 40, №16. – С. 73–79.

9. Gogate, P.R. Intensification of cavitation activity using gases in different types of sonochemical reactors / P.R. Gogate, S. Shaha, L. Csoka // Chem. Eng. J. – 2015. – № 262. – P. 1033–1042.

10. Attached cavitation at a small diameter ultrasonic horn tip / A. Žnidarčič, R. Mettin, C. Cair, M. Dular // Physics of fluids. – 2014. – Vol. 26, № 2. – P. 023304.

11. Dynamics of attached cavitation at an ultrasonic horn tip / R. Mettin, M. Dular, A. Žnidarčič, V.A. Truong // Fortschritte der Akustik / Darmstadt: DAGA. – 2012. – P. 447–448.

12. Laboratory of ultrasonic technologies and equipment [Electronic resource]. – Mode of access: <https://cavitation.bsuir.by/en/>. – Date of access: 02.09.2019.

13. Acoustic emission from cavitating solutions: Implications for the mechanisms of sonochemical reactions / G.J. Price, M. Ashokkumar, M. Hodnett, B. Zequiri, F. Grieser // Journal of Physical Chemistry B. – 2005. – Vol. 109, № 38. – P. 17799–17801.

14. Sonoluminescence and acoustic emission spectra at different stages of cavitation zone development / N.V. Dezhkunov, A. Francescutto, L. Serpe, R. Canaparo, G. Cravotto // Ultrasonics Sonochemistry. – 2018. – Vol. 40. – P. 104–109.

15. Correlation between sonoluminescence, sonochemistry and cavitation noise spectra / N. Segelbarth, O. Eulaerts, J. Reisse, L.A. Crum, T.J. Matula // Journal of Physical Chemistry. – 2002. – Vol. 2 (8–9). – P. 536–538.

Работа выполнена в рамках проекта «Разработать и изготовить ультразвуковой кавитационный комплекс (УЗКК)» подпрограммы «Уникальное научное оборудование» государственной научно-технической программы «Эталонные и научные приборы».

Поступила в редакцию 03.10.19.