

УДК 534.222

ШНУРОВИДНАЯ КОАГУЛЯЦИЯ ЧАСТИЦ ИЗ ВОДНО-ГЕТЕРОГЕННЫХ СИСТЕМ В ПОЛЕ АКУСТИЧЕСКОГО РЕЗОНАТОРА

© 2006 г. С. Н. Антонов, В. В. Шемет, Ю. С. Купец

Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники РАН
141190 Московская область, Фрязино, пл. Введенского 1

E-mail: olga-ant@yandex.ru

Поступила в редакцию 08.08.05 г.

Изучается коагуляция частиц из водно-гетерогенных систем в поле ультразвукового конфокального резонатора. Обнаружено, что на частотах нескольких мегагерц при подводимой к резонатору мощности звука около 1 Вт вблизи оси резонатора формируются устойчивые во времени длинные шнуры, состоящие из материала гетерогенной системы. Шнуры образованы тонкими дисками коагулированного материала с расстояниями между ними, строго равными половине длины волны звука. Определены особенности подобной коагуляции в зависимости от природы взвеси – металлические и диэлектрические частицы, коллоидные растворы, масляные эмульсии. Установлено, что коагуляция в стоячей акустической волне происходит значительно быстрее, чем в естественных условиях (под действием гравитации). Обсуждается возможность использования данного эффекта для очистки жидкости от примесей и выделение частиц особо малого размера без применения фильтрующих носителей.

PACS: 62.60.+v, 62.65.+k, 43.25.-x, 43.35.Ty, 43.35.Zc

В работе [1] впервые была обнаружена коагуляция взвешенных в воде кварцевых и корундовых частиц микронных размеров в устойчивые тонкие длинные шнуры в звуковом поле акустического резонатора, состоящего из сферического пьезопреобразователя и плоского отражающего зеркала. Шнуры формировались вблизи оси резонатора и состояли из тонких дисков – “чешуек”, образованных коагулированными частицами. Диски располагались перпендикулярно оси шнура и отстояли друг от друга на расстояние 0.5 длины волны звука, их диаметр был соизмерим с длиной волны звука, а длина шнуров составляла сотни длин волн. Такая коагуляция получила в [1] следующее, в основном качественное, объяснение (обзор литературы по данному вопросу также просим смотреть в [1]). В стоячей акустической волне, образованной резонатором, возникают плоскости, перпендикулярные оси резонатора, с пучностями скорости движения молекул воды. Эти плоскости отстоят одна от другой на дистанции, равной половине длины волны звука и имеют поперечные размеры, соизмеримые с размером излучателя и зеркала. При включении звукового поля более тяжелые, чем вода, частицы, первоначально равномерно распределенные по кювете, стягиваются к плоскостям пучностей скорости движения воды (в области минимального давления). Затем эти частицы стягиваются в шнур, расположенный вблизи оси резонатора, где плотность звуковой энергии максимальна. Важно, что в стоячей акустической волне суммарная радиа-

ционная сила (среднее акустическое давление) близка к нулю и частицы не сносятся потоками воды. Кроме этого, по-видимому, возникает и обратная связь (особый тип самофокусировки звука) – возмущение акустического поля образовавшимися “чешуйками” более плотных, чем вода, что дополнительно способствует росту “чешуек” и стабилизации положения шнура в резонаторе. Отметим, однако, что последнее предположение не получило пока однозначного экспериментального подтверждения.

Существенно, что к моменту выполнения данного этапа исследований разработать количественное описание наблюдаемым эффектам (создать адекватную теорию) не удалось. Таким образом, дальнейшие более глубокие экспериментальные исследования коагуляции частиц из различных по составу водно-гетерогенных систем в поле акустического резонатора представляются актуальными как в плане создания базы для разработки теоретической модели, так и для поиска областей практического приложения.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Схема экспериментальной установки, модернизированной относительно [1], представлена на рис. 1. Здесь в прозрачной кварцевой кювете 1 с горизонтальными внутренними размерами 100×30 и высотой 50 мм закреплялись плоский пьезопреобразователь 2 с диаметром 8 мм и на рас-

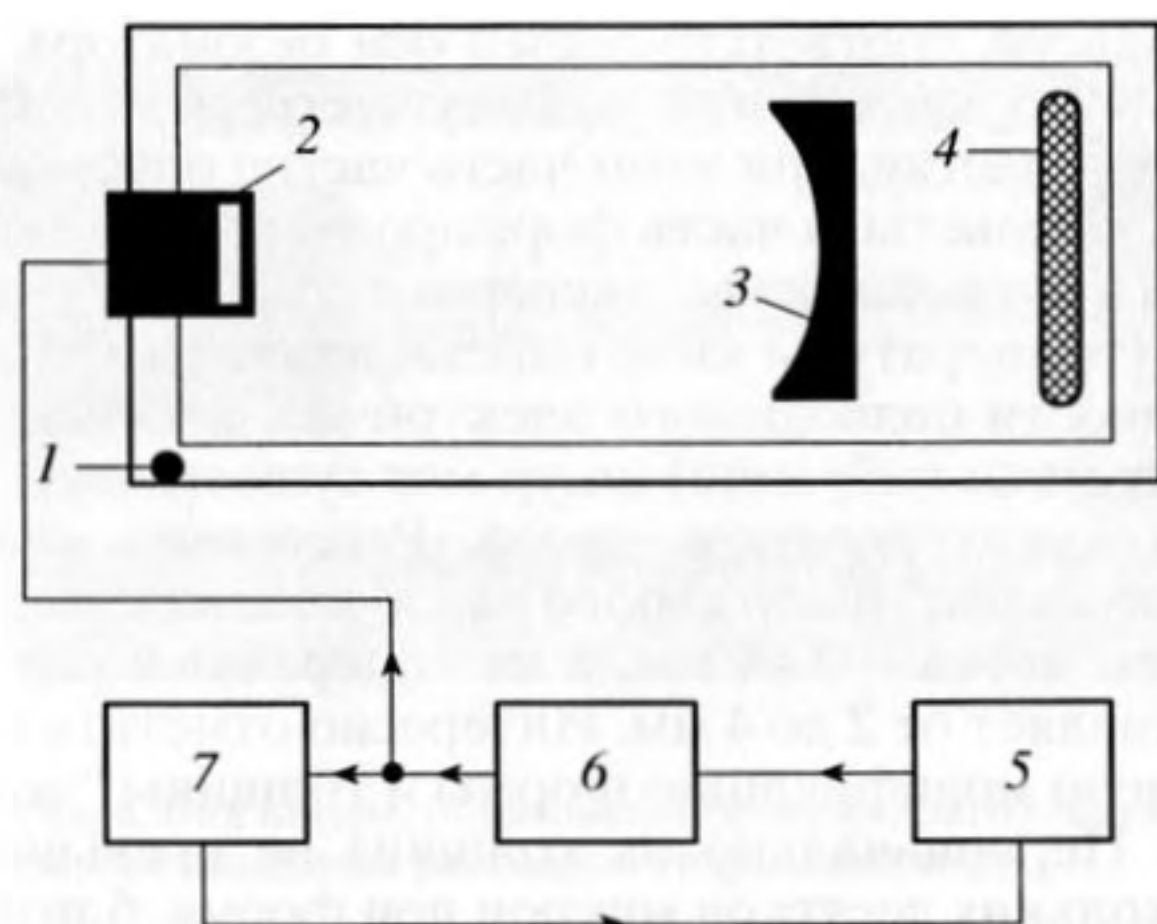


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

стоянии 50 мм сферическое кварцевое зеркало 3 с радиусом кривизны 100 мм и диаметром 30 мм. У стенки кюветы, противоположной преобразователю, размещался пластмассовый поглотитель звука 4. Пьезопреобразователь на центральной частоте (первой гармонике) 1.7 МГц был изготовлен из ниобата лития. Добротность такого резонатора была равна 6, максимальная величина подводимой к пьезопреобразователю электрической мощности составляла 4 Вт. Электрический сигнал формировался задающим генератором 5 и через устройство согласования электрических импедансов подводился к пьезопреобразователю. Детектор 7 формировал сигнал для фазовой автоподстройки частоты генератора.

Остановимся на принципиальных особенностях экспериментальной установки. Первое – геометрия акустического резонатора была выбрана таким образом, чтобы его характеристики были близки к условиям конфокальности [2]:

$$\pi\omega^2/\lambda = \sqrt{d(R-d)},$$

где ω – радиус пьезопреобразователя, λ – длина волны звука, d – расстояние между пьезопреобразователем и зеркалом, R – радиус кривизны зеркала. Конфокальный резонатор характеризуется тем, что в нем возбуждается собственная мода, или иными словами, встречные волны имеют одинаковые интенсивности, а также пространственную и угловую конфигурацию. В некотором приближении (без учета эффектов ближнего поля преобразователя, конечной добротности и точности юстировки резонатора) макроструктура распределения интенсивности звука описывается гауссовой функцией с максимумом вдоль геометрической оси резонатора. В нашем случае важно то, что радиационное давление звука, действующее на взвешенные частицы во встречных направлениях (от преобразователя и зеркала) вдоль оси резонатора, будет в значительной сте-

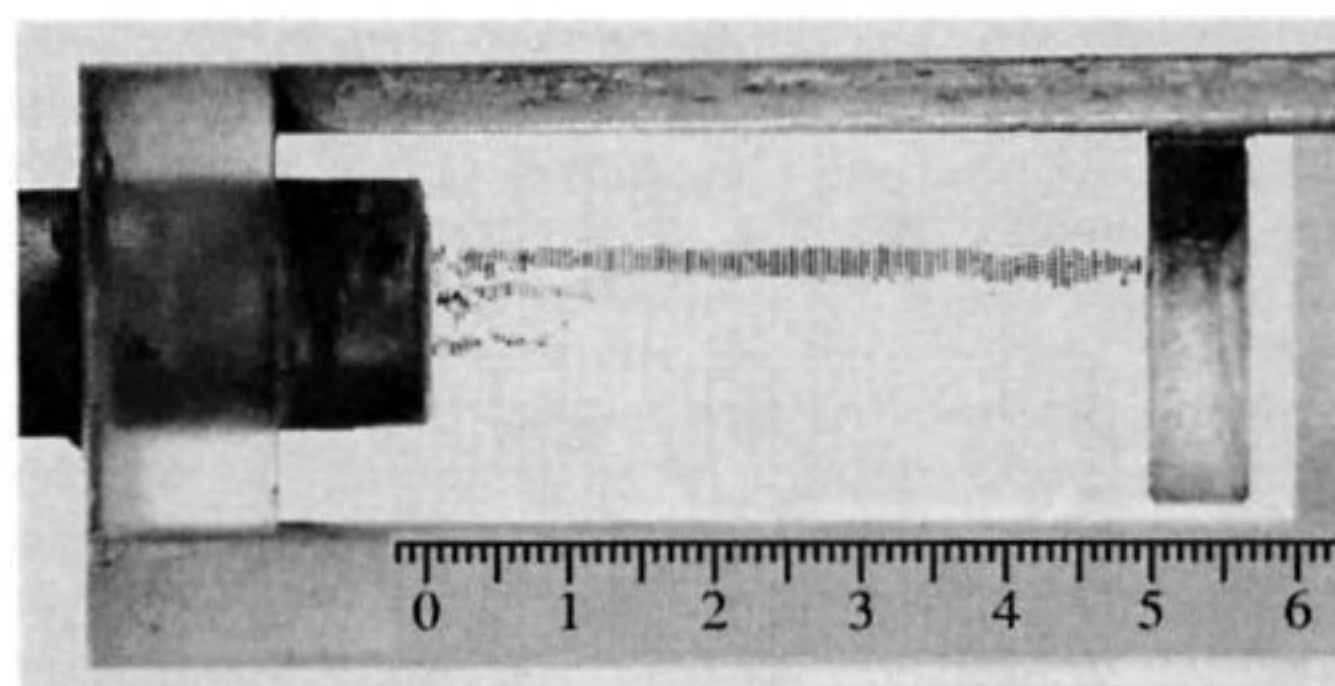


Рис. 2. Вид шнура, образованного взвесью никелевого порошка со средними размерами 1.5–0.5 мкм. Большие деления линейки – см.

пени скомпенсировано, что ослабляет потоки жидкости и, как следствие, “сдувание” частиц этими потоками. Вторая особенность экспериментальной установки – использование системы фазовой автоподстройки для поддержания постоянства интенсивности стоячей акустической волны в резонаторе. Стабилизация фазы сигнала на преобразователе позволяет сохранять условие резонанса при изменении скорости звука в воде, вызванном непостоянством ее температуры при длительном эксперименте, а также при изменении фазовой скорости, вызванной образованием шнура из частиц в полости резонатора.

Эксперименты проводились с различными типами водно-гетерогенных систем: взвеси микронных и субмикронных металлических и диэлектрических частиц, коллоидных смесей, масляных эмульсий, основой являлась дистиллированная вода. Результаты экспериментов фиксировались фото и видео-аппаратурой с последующей цифровой обработкой. Кроме того, при проведении фотометрических исследований экспериментальная кювета помещалась в фотометрическую установку.

ВЗВЕСИ ТВЕРДЫХ ТЯЖЕЛЫХ ЧАСТИЦ

Рисунок 2 показывает типичную картину образования стабильного шнура из взвеси мелких частиц, в данном случае металлического никеля, со средними размерами частиц около 1.5–0.5 мкм и начальной концентрацией порядка 3 мг/см³ на частоте звука 1.7 МГц (длина волны звука в воде 0.88 мм) при подводимой к пьезопреобразователю мощности 1 Вт. Отметим, что все последующие эксперименты проводились при этой же частоте и мощности звука, если иные условия не оговариваются особо. Съемка проводилась с боковой стороны кюветы, в правой части расположен пьезопреобразователь, в левой сферическое зеркало, правая стенка кюветы не показана.

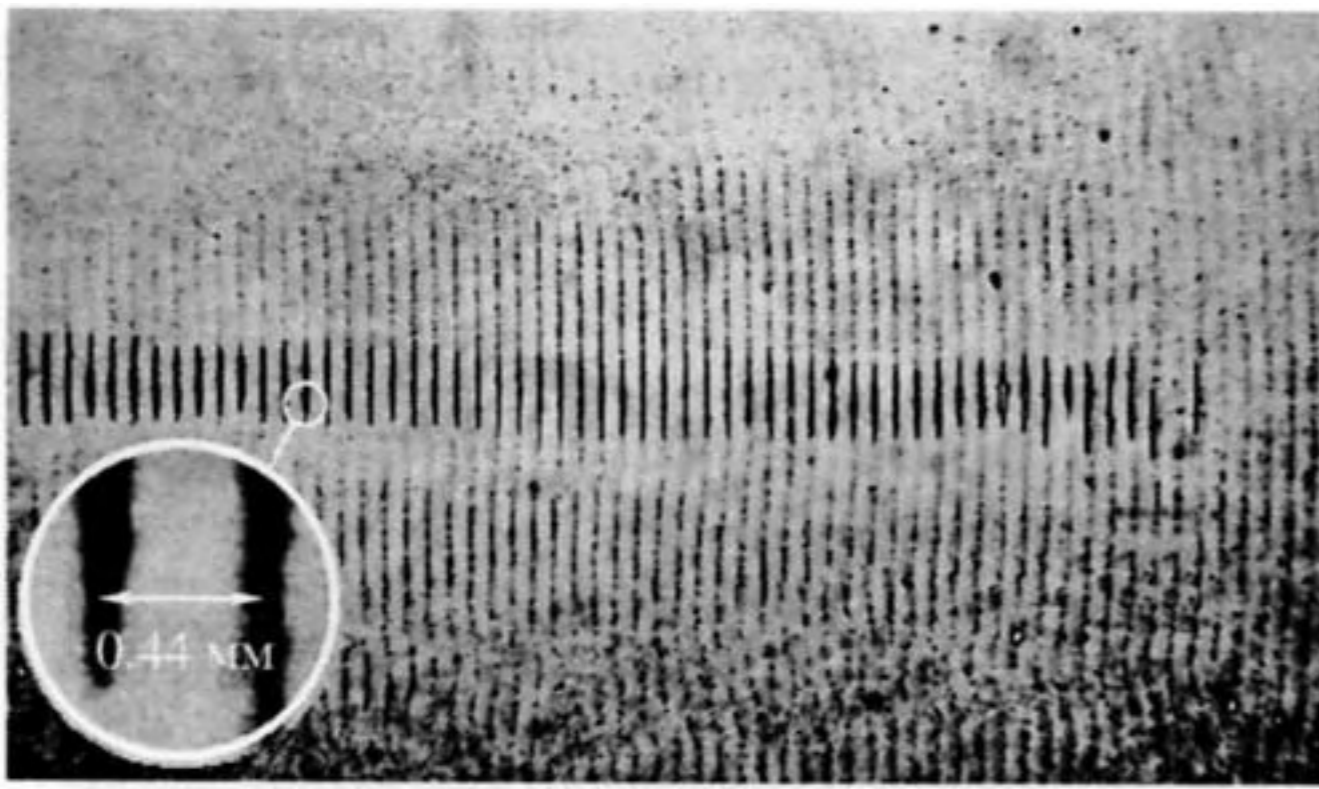


Рис. 3. Центральная часть кюветы спустя 3 с после перемешивания смеси никелевого порошка и включения звука.

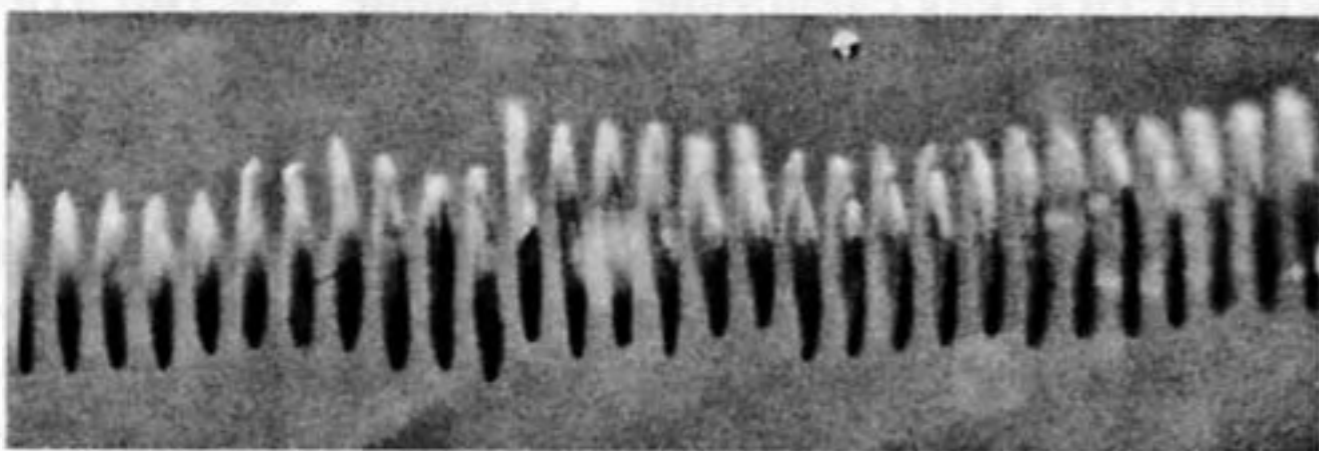


Рис. 4. Участок "висящего" в акустическом поле шнура, вид сверху кюветы.



Рис. 5. Дно кюветы, вид сверху кюветы. Большие деления линейки – см.

Смесь перемешивалась, и включался ультразвук. Примерно через 10 с формировался основной шнур (от пьезопреобразователя до зеркала) и несколько коротких шнуров вблизи пластины пьезопреобразователя. Рис. 3 показывает центральную часть кюветы спустя 3 с после перемешивания смеси и включения звука. Видно, что частицы с одной стороны собрались по силовым линиям объема резонатора (длинные вертикальные полосы), с другой, уже начали формировать шнур

в области, соответствующей оси резонатора. За время порядка 1 мин вода существенно очищалась от частиц, при этом часть частиц опускалась на дно кюветы, а часть формировала "тело" шнура. При постоянстве экспериментальных режимов (температуры кюветы, стабилизации фазы и мощности подводимого электрического сигнала, отсутствии вибраций) шнур мог существовать до нескольких десятков часов. Расстояние между "чешуйками" было строго равно половине длины волны звука – 0.44 мм, а их поперечный размер составляет от 2 до 4 мм. Интересно отметить временную модификацию формы и толщины "чешуек". Первоначально их толщина не превышала нескольких десятков микрон при форме, близкой к диску с резко изрезанными краями. По прошествии нескольких часов форма приближалась к правильному (круглому) диску, толщина увеличивалась до 50–100 мкм. Рисунок 4 показывает изображение участка "висящего" в акустическом поле шнура, снятого сверху кюветы, под некоторым углом к перпендикуляру на ось резонатора для визуализации объемности частиц. Данный шнур формировался в течение 3 ч. Рис. 5 показывает дно кюветы (снятое сверху через воду) после 10-часового непрерывного эксперимента после выключения звукового поля. Видно, что дно кюветы покрыто частицами никеля, выпавшими равномерным слоем из всего объема кюветы, и виден трек, параллельный оси резонатора, образованный осевшими из шнура "чешуйками".

С этой же смесью проводились эксперименты при изменении частоты ультразвука и мощности. На частоте 6 МГц (третья гармоника преобразователя) при той же мощности ультразвука также наблюдалось образование шнуров. Расстояние между "чешуйками" уменьшилось пропорционально частоте звука. От мощности ультразвука наблюдалась следующая зависимость: меньше некоторого порогового значения шнуры вообще не образовывались (0.4–0.5 Вт), при увеличении мощности (более 1.5 Вт) возникало несколько шнуров в количестве, пропорциональном мощности.

Картина образования шнуров была схожей и при использовании других твердых тяжелых частиц микронных и субмикронных размеров: металлических (железо, серебро, золото) и диэлектрических (корунд, алмаз, кварц, окись железа).

КОЛЛОИДНЫЕ РАСТВОРЫ

Определенная особенность наблюдалась при экспериментах с коллоидными растворами, которые характеризуются как малыми размерами частиц, так и их малой плотностью. Рис. 6 показывает образованный шнур при использовании свежеприготовленного коллоидного раствора гидроокиси меди в начальной концентрации 50 мкг/см³, полученный по реакции:

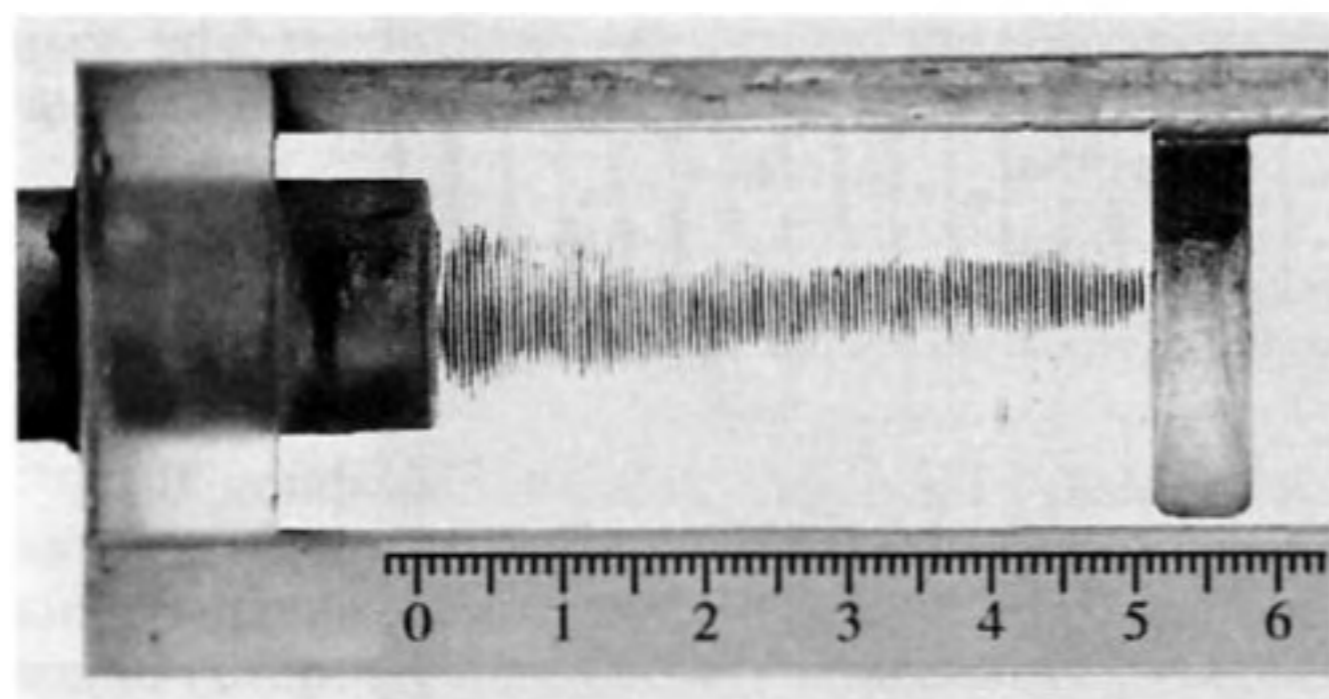
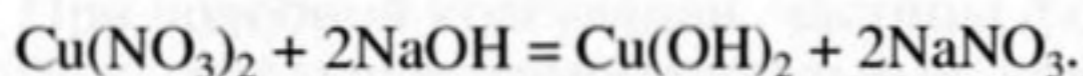


Рис. 6. Вид шнура, образованного свежеприготовленным коллоидным раствором гидрооксида меди.



Без воздействия звука данная система является весьма устойчивой во времени – начальный осадок (визуально заметный на дне кюветы) выпадал не ранее чем через 1 ч, а полное оседание занимало время около суток. В начальной стадии гетерогенная система состояла из наноразмерных частиц, процесс коагуляции которых заключался в образовании крупных агрегатов (мицелл). Обнаруженные отличия (от предыдущих экспериментов) в формировании шнура заключались в следующем. Поперечные размеры “чешуек” возросли до 8–10 мм, их толщина составляла 150–200 мкм и значительно увеличилось как начальное время формирования шнура до 3–5 мин, так и время основной очистки кюветы до 10–20 мин.

МАСЛЯНЫЕ ЭМУЛЬСИИ

Следующим этапом экспериментов явилось изучение поведения масляной эмульсии веретенного масла в поле акустического резонатора. Эмульсия была приготовлена следующим образом: 1 см³ раствора веретенного масла в изопропиловом спирте (концентрация 17 мг/см³) приливался к 100 см³ дистиллированной воды. Образовывалась устойчивая (более суток) эмульсия масла в воде с концентрацией 170 мкг/см³, которая и была использована в экспериментах. Включение ультразвукового поля приводило за время

порядка 5 мин к образованию масляных пузырьков, периодически расположенных вблизи оси акустического резонатора. Рис. 7 показывает центральную часть кюветы. Видно, что пузырьки с размерами от 0.1 до 0.3 мм в основном располагаются по горизонтали на расстоянии 0.44 мм друг от друга, что строго равно половине длины волны звука. Отметим, что шнур, образованный из масляных пузырьков, гораздо менее стабилен во времени, чем шнур из твердых тяжелых частиц, а также то, что местоположение пузырьков по вертикали имеет значительный разброс. Пузырьки совершают движение по вертикали на ±(3–5) мм, и по прошествии 15–20 мин пузырьки всплывают на поверхность кюветы с образованием масляных пятен. Понятно, что масляные пузырьки должны собираться не в пучностях скорости стоячей звуковой волны, где собираются более тяжелые, чем вода, частицы, а в узлах, так как они легче воды. Для подтверждения этого факта был проведен эксперимент, в котором в смесь из микронного никелевого порошка добавлялась данная масляная эмульсия. Фотография этой ситуации, приведенная на рис. 8, показывает центральную часть кюветы. Видно, что масляные пузырьки сформировались строго между “чешуйками” коагулированного никеля. Это однозначно связано с тем, что более легкие, чем вода, частицы собираются не в пучностях, а в узлах скорости стоячей волны. Кроме того, видно, что положение пузырьков более выровнено по вертикали. Этот факт указывает на то, что сформировавшиеся из тяжелых частиц “чешуйки” демпфируют потоки воды внутри шнура.

ДИНАМИКА КОАГУЛЯЦИИ КОЛЛОИДНОГО ЗОЛОТА

Известный способ измерения скорости коагуляции гетерогенных систем заключается в измерении оптической плотности (прозрачности) раствора во времени – фотометрическая методика. Экспериментальная кювета размещалась в фотометрическую установку, с помощью которой измерялась динамика коагуляции без и под воздействием ультразвука.

Для изучения динамики коагуляции под действием ультразвука использовалось коллоидное



Рис. 7. Центральная часть кюветы с масляной эмульсией. Деления масштабной шкалы – мм.

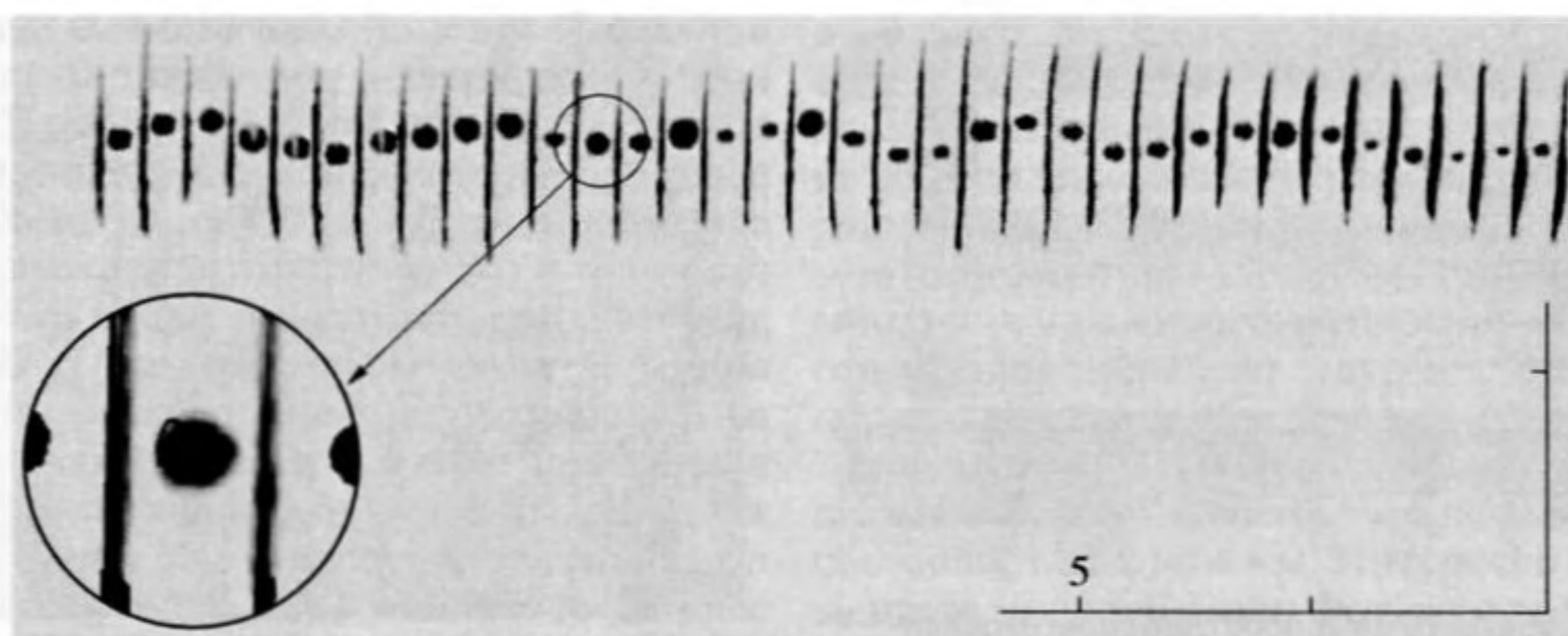
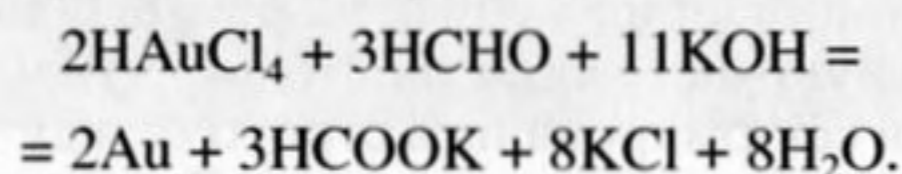


Рис. 8. Центральная часть кюветы с масляной эмульсией и никелевым порошком. Деления масштабной шкалы – мм.

золото – монодисперсная наноразмерная система, характеризующаяся чрезвычайно высокой временной устойчивостью (десятки и сотни часов). Монодисперсный золь золота приготавливался в экспериментальной кювете, непосредственно перед экспериментом по реакции:



Первоначально образуется так называемая зародышевая коллоидная система, частицы которой наноразмерны, а далее в этом золе создается слабое пересыщение, при котором уже не происходит образование зародышей, а только их рост [3]. Окраска золя (от красной до синей) определяется дисперсностью частиц – большие размеры соответствуют синему цвету. В экспериментах использовался синий золь золота с размерами

частиц порядка 400 нм и концентрацией золота 40 мкг/см³. Окраска золя и ее оптическая плотность развивались практически сразу же после смешения исходных растворов. Золь был устойчивым в течение нескольких часов. Полное осветление раствора (без воздействия ультразвука) происходило примерно через сутки, причем частички золота собирались в комочки малой плотности, которые вновь не диспергировались. В акустическом резонаторе коллоидное золото формировало шнур, внешне аналогичный описанным выше. Отличие заключалось в том, что практически весь материал коллоида формировал “тело” шнура, без оседания частиц на дно кюветы. Причина этого заключается в том, что естественная, под действием гравитации коагуляция золота была во много раз медленнее, чем коагуляция под действием ультразвука, что представлено на рис. 9. Здесь I/I_0 – оптическое пропускание, за 100% принято пропускание кюветы с дистиллированной водой, C – концентрация некоагулированного золота в объеме раствора, за 100% принята начальная концентрация, t – время. Видно, что под действием ультразвука примерно за 30 мин около половины состава золя коагулировало в шнур, в то время как в естественном состоянии за то же время коагуляция практически незаметна.

Таким образом, на примере коллоидного золота – необычайно стойкой во времени системы, видно, что акустическое поле резонатора в значительной степени ускоряет процесс коагуляции, что может быть использовано для быстрой очистки жидкостей от примесей. Кроме того, очевидно, что, выключая звук на любой стадии, можно управлять процессом коагуляции, например, для поддержания заданного уровня концентрации частиц в растворе. Концентрация частиц в правильные диски, по-видимому, может быть использована для управляемой сепарации частиц. Однако, очевидно, реальное использование дан-

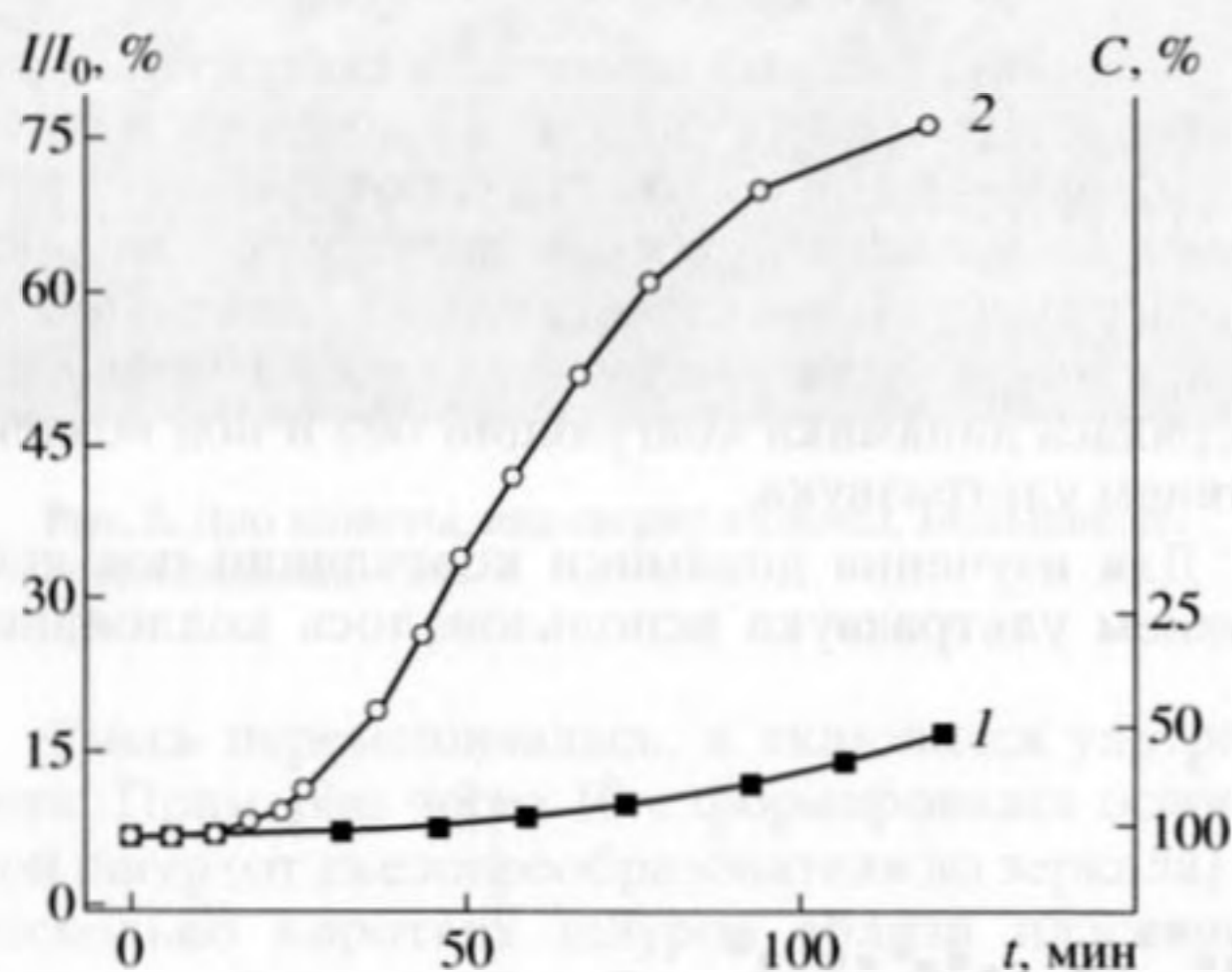


Рис. 9. Зависимость оптического пропускания и концентрации некоагулированного золота от времени. График 1 – коагуляция в естественных условиях (под действием силы тяжести), 2 – в поле акустического резонатора. Длина кюветы по оптическому пути – 30 мм.

ных эффектов требует дальнейшего теоретического и экспериментального изучения.

ВЫВОДЫ

По результатам работы можно сделать следующие выводы.

1. В конфокальном акустическом резонаторе на частотах несколько мегагерц наблюдается шнуровидная коагуляция частиц из различных водно-гетерогенных систем: взвесей твердых металлических и диэлектрических частиц, коллоидных растворов, масляных эмульсий. Коагуляция происходит в большом начальном диапазоне размеров частиц – от микронных до наноразмеров.

2. При подобной коагуляции, частицы формируются в отдельные самостоятельные круглые диски толщиной несколько сотен микрон.

3. Время “акустической” коагуляции основного объема частицы гетерогенной системы значи-

тельно, в несколько десятков раз превышает естественную (под действием силы тяжести) коагуляцию. Этот факт, по-видимому, имеет практическую значимость при разработке методов ускоренной очистки жидкостей от примесей и сепарации этих примесей.

Авторы выражают признательность В.И. Миргородскому за внимание к работе и полезное обсуждение результатов.

Работа поддержана проектом РФФИ 05-02-16378.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Антонов С.Н., Герус А.В. // Акуст. журн. 2004. Т. 50. № 4. С. 448.
2. Kogelnik H., Li T. Laser Beams and Resonators // Proceedings of the IEEE. 1966. V. 54. № 10. P. 1312–1329.
3. Шелудко А. Коллоидная химия. Пер. с болгарского. М.: ИЛ. 1960. 332 с.

Filamentary Coagulation of Particles from Water-Heterogeneous Systems in the Field of an Acoustic Resonator

S. N. Antonov, V. V. Shemet, and Yu. S. Kupets

*Institute of Radio Engineering and Electronics, Fryazino Branch, Russian Academy of Sciences,
pl. Vvedenskogo 1, Fryazino, Moscow oblast, 141190 Russia
e-mail olga-ant@yandex.ru*

Abstract—The coagulation of particles from water-heterogeneous systems in the field of a confocal ultrasonic resonator is studied. It is found that, at frequencies of several megahertz, when acoustic power of about 1 W is applied to the resonator, long stable filaments consisting of the material of the heterogeneous system are formed in the vicinity of the resonator axis. The filaments consist of thin disks formed by coalescent particles spaced at the intervals strictly equal to half of the sound wavelength. The features of this coagulation are determined for suspensions of various nature (metal and dielectric particles, colloidal solutions, and oil emulsions). It is established that the coagulation in a standing acoustic wave occurs faster than under natural conditions (under the influence of gravity). The possibility of using this effect for cleaning liquids from impurities and separating hyperfine particles without employing filter materials is discussed.