

插入式超声化学反应器的设计与仿真研究

李文¹,林立慧¹,汪楷健¹,罗学科^{1,2}

(1. 北方工业大学 机械与材料工程学院,北京 100144;2. 北京印刷学院 机械系,北京 102600)

摘要: 超声辅助水样消解技术实现了水质多参数检测的快速性、准确性,而声化学反应器在超声消解中起到了关键性作用。从理论方面分析了影响超声波在声化学反应器中能量传播的主要因素是反应器结构和几何尺寸;采用 ANSYS 软件仿真,设计了一种变幅杆插入式声化学反应器。通过 MATLAB 软件进行声场仿真分析,与槽式相比,插入式具有降低能量损耗,提高传播效率的优势。设计实验证明,基于插入式化学反应器的超声辅助快速检测方法测得标准邻苯二甲酸氢钾(KHP)溶液的化学需氧量(COD)值同国标法测得的 COD 值非常接近,准确度在 $-9.2\% \sim 4.4\%$,且测量重复性好,周期较短。该方法更有利于水质在线检测技术。

关键词: 超声检测;变幅杆;声化学反应器;COD检测;声场仿真

中图分类号: X1 **文献标识码:** A

Design and Simulation Study on Inserted Ultrasonic Chemical Reactor

LI Wen¹, LIN Lihui¹, WANG Kaijian¹, LUO Xueke^{1,2}

(1. North China University of Technology College of Mechanical and Material Engineering, Beijing 100144, China;

2. Beijing Institute of Graphic Communication Department of Mechanics, Beijing 102600, China)

Abstract: The rapidity and accuracy of water quality multi parameter detection had been realized by using the water sample digestion technology with the help of ultrasonic. The acoustic chemical reactor has played a key role in the ultrasonic digestion. The main factors that influence the energy propagation of ultrasonic wave are structure and geometry of the reactor from the theoretical analysis. A kind of reactor with inserting a solid horn is designed by using ANSYS software. The sound field simulation analysis of the proposed inserted chemical reactor has been carried out by using MATLAB software. The results show that the inserted chemical reactor has the advantages of reducing energy loss and improving propagation efficiency compared with the tank chemical reactor. The experimental results show that the chemical oxygen demand(COD) of standard potassium acid phthalate(KHP) solution that measured with rapid detection method based on the insertion type chemical reactor are very close to those measured with the national standard method. The inserted chemical reactor has an accuracy of $-9.2\% \sim 4.4\%$, better measurement repeatability and shorter cycle. It is more suitable for water quality online detection.

Key words: ultrasonic detection; solid horn; ultrasonic chemical reactor; COD detection; simulation of ultrasonic field

0 引言

在线水质检测技术是加强水资源污染防治和监控的必要手段,当前我国湖泊、江河流域的水质总体上呈恶化趋势,监测任务繁重。电化学法、分光光度法等水质检测方法已成熟,但如水质化学需氧量、总磷、总氮等检测参数在检测时需先在高温、高压下进行水样的消解处理,检测过程繁琐,周期长。超声波辅助快速检测是近年发展起来的一项新的水处理技

术。该项技术具有环境要求低,周期短,效率高,无二次污染等优点^[1]。超声波辅助快速检测法的关键是在声化学反应器中利用功率超声作用加速相关化学反应,快速完成传统检测前期的水样消解处理。目前,水质检测常用的声化学反应器主要有清洗槽式、变幅杆插入式、杯式等^[2]。本文结合仿真分析法对其中一种插入式声化学反应器进行了研究和设计,并通过实验进行了合理的验证。

收稿日期:2016-09-23

基金项目:科研基地建设-科技创新平台基金资助项目(PXM2013_014212_000121)

作者简介:李文(1975-),男,北京人,副教授,博士,主要从事水质监测技术的研究。E-mail:lw@ncut.edu.cn。

1 声化学反应器结构设计与计算

1.1 理论模型

水质检测的典型化学实验一般发生在溶液中的液体实验,因此,应用超声化学检测水质的过程是超声化学在液相反应中的典型应用。在这一系列反应中,声化学产额直接关系到超声检测水质的效果。作为水质检测反应的能量输入形式,选定超声辐照系统的类型与超声化学产额相关。

插入式声化学反应器直接把变幅杆浸入反应溶液,超声经由其发射端面辐射到试样中。这种声化学反应器主要优势:

1) 直接把超声能量作用于反应液体,避免了由其他介质传播造成的界面能量损耗,可获得较高的超声功率密度。

2) 通过调节换能器的电功率可便于改变变幅杆的发射端面质点的振动幅度或声强,能为反应溶液提供较大的功率密度变化范围,以调节出最佳效果。

3) 便于更换超声变幅杆。

1.2 变幅杆设计理论

声化学反应器主要由变幅杆、换能器等组成。在超声辅助检测中变幅杆幅值需要几十、甚至上百微米,而换能器一般输出十几微米,远远达不到要求。变幅杆可以在不同功率下放大振幅以满足要求,起到合理匹配阻抗的作用,使超声能量更有效地带动负载。因此,设计合理的变幅杆是应用声化学反应器的重要环节。

功率超声应用的变幅杆有简单型变幅杆和复合型变幅杆。其中,简单型变幅杆有指数型、悬链线型、圆锥型和阶梯型变幅杆^[3],如图1所示。在以超声辅助检测方法为基础的超声化学系统的设计中选用简单型变幅杆即可满足要求。

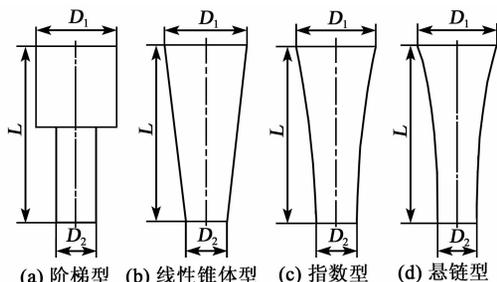


图1 几种常见形式的声变幅杆

材料选择声学损耗低,疲劳强度高,耐化学反

应,且易于机械加工的惰性金属钛合金。其材料性能参数^[4]如表1所示。

表1 材料性能参数

材料	密度 $\rho/$ ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	弹性模量 E/GPa	声速 $c/$ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	泊松比
BT20	4 510	110	5 000	0.33

为了获得较大的振幅,应使变幅杆的固有频率和外激振动频率相等,达到共振状态,为此,变幅杆的杆长设计要等于超声波的半波长或其整数倍。超声波波长 $\lambda = c/f$,已知钛合金内部声速 $c_t = 5\,000 \text{ m/s}$,选取频率 $f = 20 \text{ kHz}$,则 $\lambda = 25 \text{ cm}$ 。变幅杆的长度(L)应取半波长的整数倍,即 $L = n\lambda/2 (n = 1, 2, 3, \dots)$ 。这里 $n = 1$,则 $L = 12.5 \text{ cm}$ 。因为超声辅助快速检测所应用的变幅杆的负载为液体,变化小,且不需要外加压力,所以对变幅杆的输入特性及弯曲刚度要求不高。

对于工作频率相同,材料相同,大小端直径不同的不同类型变幅杆,其放大系数 M_p 排列顺序为:阶梯型>悬链型>指数型>锥体型,其形状因数 φ 的排序为:锥体型>指数型>悬链型>阶梯型。阶梯型变幅杆的放大倍数显著,但其在实际应用中常发生“过振动”的现象;锥体型变幅杆放大系数小;悬链型变幅杆加工较难^[3]。故综合考虑选择指数型变幅杆作为超声系统的变幅杆类型(见图2),坐标原点 $x = 0$ 处的横截面积为 S_1 , $x = l$ 处的横截面积为 S_2 ,作用在变幅杆输入端($x = 0$)和输出端($x = l$)的力和振动速度分别为 F_1, ζ_1 及 F_2, ζ_2 。其内部布置形式如图3所示。

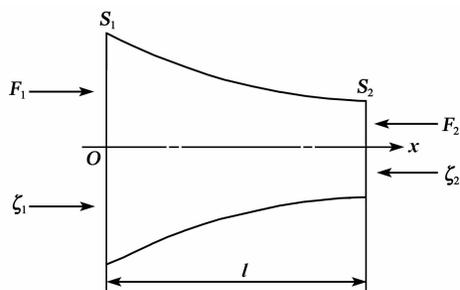


图2 指数型变幅杆

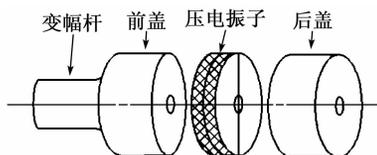


图3 变幅杆内部结构

超声波在变幅杆的传播类似于简谐运动,该运

动下的变截面杆纵振动的波动方程为

$$\frac{\partial^2 \xi}{\partial \chi^2} + \frac{1}{S} \cdot \frac{\partial S}{\partial \chi} \cdot \frac{\partial \xi}{\partial \chi} + k^2 \xi = 0 \quad (1)$$

式中: χ 为沿杆长度质点坐标值; $S=S(\chi)$ 为杆的横截面积函数; $\xi=\xi(\chi)$ 为质点位移函数; $k^2 = \frac{\omega^2}{c^2}$, k 为圆波数, ω 为圆频率, $c = (E/\rho)^{\frac{1}{2}}$ 为纵波在杆中的传播速度。

图 2 中,取指数型变幅杆的横截面为圆截面,则有其圆截面的面积函数关系^[5-6]为

$$S = S_1 e^{-2\beta x} \quad (2)$$

式中 β 为形状系数,则有

$$\beta = \frac{1}{l} \ln(S_1/S_2)^{\frac{1}{2}} = \frac{1}{l} \ln(R_1/R_2) = \frac{1}{l} \ln N \quad (3)$$

式中 $N = \sqrt{S_1/S_2} = R_1/R_2$ 为面积系数。

由式(1)的解和边界条件 $\frac{\partial \xi}{\partial \chi} \Big|_{x=0} = \frac{\partial \xi}{\partial \chi} \Big|_{x=l} = 0$, 可得 $[1 + (\beta/k')^2] \cdot \sin k'l = 0$, 即得频率方程 $\sin k'l = 0, l = n \frac{\lambda'}{2}$, 其中, $k' = (k^2 - \beta^2)^{\frac{1}{2}}$ 。

已知在指数型变幅杆中纵波的传播速度 c' 为

$$c' = c / \left[1 - \left(\frac{\beta c}{\omega} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$

只有 $\left(\frac{\beta c}{\omega} \right)^2 < 1$ 时,声波才能在指数型杆中传播,即要求工作频率 $f > \frac{\beta c}{2\pi}$ 。采用指数型变幅杆的公式来设计变幅杆,才能保证振动的可靠传播。

1.3 变幅杆参数计算

变幅杆输入端 $D_1=30$ mm,变幅杆输出端 $D_2=16$ mm,则 $N = \frac{D_1}{D_2} = 1.875$ 。

谐振长度 l ^[5]:

$$l = n \frac{c}{2f} \left[1 + \left(\frac{\ln N}{n\pi} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} = n \frac{\lambda}{2} \left[1 + \left(\frac{\ln N}{n\pi} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (5)$$

由式(5)可得, $l = \frac{5.0 \times 10^6}{2 \times 2 \times 10^4} \times [1 + (0.629/3.14)^2]^{\frac{1}{2}} \approx 127(\text{mm})$; 由式(3)可得, $\beta = \frac{1}{l} \ln N = 4.95 \times 10^{-3}$ 。经计算,满足不等式 $f > 1.5 \frac{\beta c}{2\pi} = 5.91 \times 10^3, M_p = N = 1.875$ 。

位移节点为

$$x_0 = \frac{1}{\pi} \operatorname{arccot} \frac{\ln N}{\pi} = \frac{133}{3.14} \operatorname{arccot} \left(\frac{0.629}{3.141} \right) = 58.2(\text{mm}) \quad (6)$$

本文采用 $f=20$ kHz 的变幅杆,通过以上理论计算确定的变幅杆参数如表 2 所示。

表 2 变幅杆参数

频率 f/kHz	大端直径 D_1/mm	小端直径 D_2/mm	谐振长度 l/mm	x_0/mm
20	30	16	127	58.2

根据表 2 中的参量可得变幅杆外形的加工尺寸(见图 4),其直径的轴向尺寸 D ^[7] 变化为

$$D = D_1 e^{-\beta x} \quad (7)$$

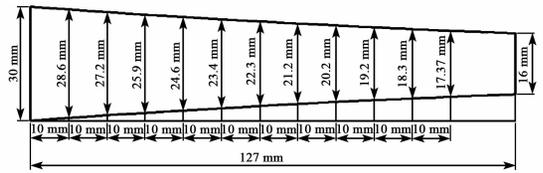
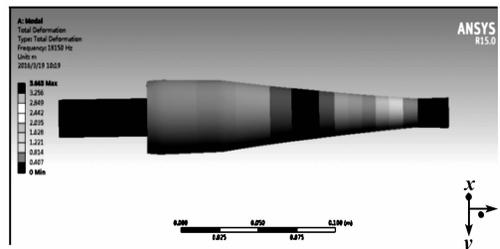


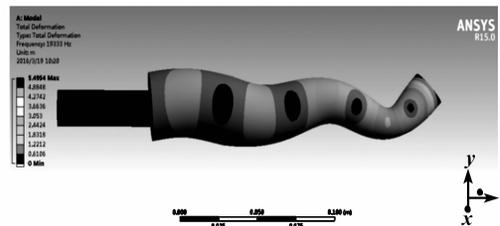
图 4 指数型变幅杆加工尺寸

1.4 模态分析

利用 ANSYS Workbench15.0 有限元软件对变幅杆进行模态分析^[6,8]。根据上文的变幅杆尺寸,利用 Solidworks 对其进行三维造型,导入 ANSYS 中划分网格,定义材料。在软件设置中选择频率区间为 18 000~22 000 Hz,选择变幅杆在自由状态下进行模态计算。有限元分析结果为变幅杆在此频率范围内的纵向振动的固有频率为 18 150 Hz,横向振动的固有频率为 19 333 Hz。其 ANSYS 模态分析位移云图,如图 5 所示。



(a) 纵向振动变形云图



(b) 横向振动变形云图

图 5 变幅杆模态分析变形云图

可见超声变幅杆的谐振长度等参数选取适宜,基本能满足上文对用于水质检测的基于超声辅助检测原理的水样声化学反应器的参数要求。最终确定变幅杆的基本结构如图6所示。

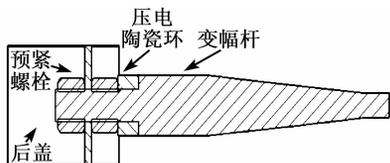


图6 变幅杆装配体

2 超声场仿真

本文利用 Matlab 的 k-space 伪谱法和快速傅里叶变换(FFT)法设计用于时域声场、超声场的可视化模拟^[9]对超声化学反应器的声场特性进行仿真。

2.1 两种反应器的仿真对比分析

以俯视视角研究槽式反应器及杆入式反应器的声学特性。在模拟声场区域距声源 40 mm 环形布置 32 个等距“传感器”,时间步长为 100 μs。分别对上述两种情况进行仿真,如图7(a)、(b)所示。在距声源 $x=40$ mm 的圆筒状纵深垂直布置 10 个“传感器”,进行反应器型深方向超声场时域仿真,时间步长 100 μs,其余参数同上,得到的声场纵断面剖视图如图7(c)、(d)所示。

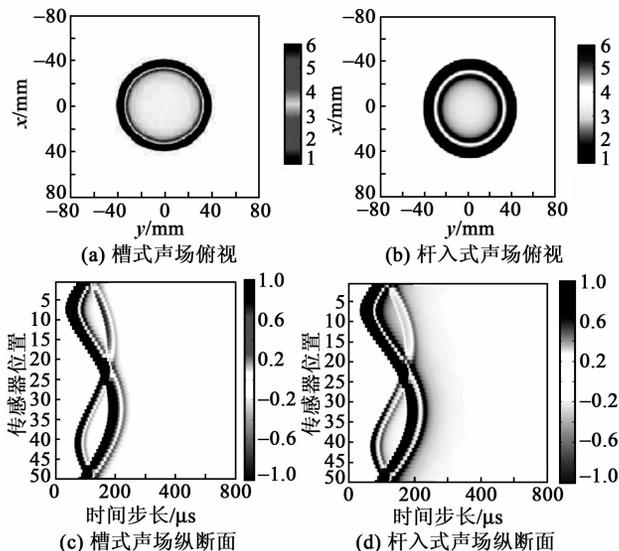


图7 仿真对比图

仿真结果直观地给出超声反应器中声场传播的波形,波形图的颜色深浅显示了声压的强弱,颜色越深,声压越高。从图7可看出,对于同样条件的声源在两种声化学反应器中,杆入式反应器的声化学效

能更大,声能量更集中、强烈。因此,选择杆入式反应器作为超声辅助水质消解反应的方案。

2.2 几何尺寸对消解反应影响的仿真分析

2.2.1 声化学反应器容器大小的影响

通常声化学反应器的尺度关系到反应器内部的声场类型。声化学反应器内部的声场可分为行波场和混响场。当声反应器较小时,声波在反应器内经多次反射或散射形成声波在反应器内经过多次反射或散射反复延续,这种现象形成的声场就是混响场。在设计化学反应器时应使其内部形成混响场,即 $L \leq n\lambda$, 这样能满足声化学反应器内的混响程度。这个理论称为小尺度混响场超声空化原理^[10]。

通过 Matlab 对声化学反应器内的小尺度混响场做出仿真,俯视角度如图8所示,断面剖视图如图9所示,小尺度混响场有效声强(深色区域)面积大于行波场。

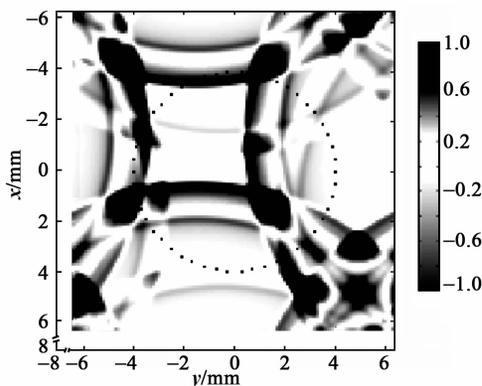


图8 小尺度混响场连续回波声场仿真

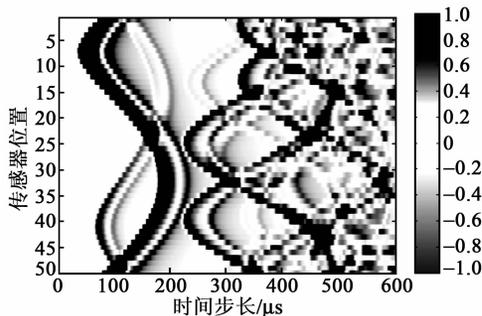


图9 杆入式反应器建立小尺度混响场声场断面剖视图

2.2.2 声化学反应器的底部形状的影响

声化学反应器底部不能出现尖角、凸起状的跃变形变,良好的光滑曲面过渡旋转型容器能最大限度地减少漫反射^[11],如图10所示。

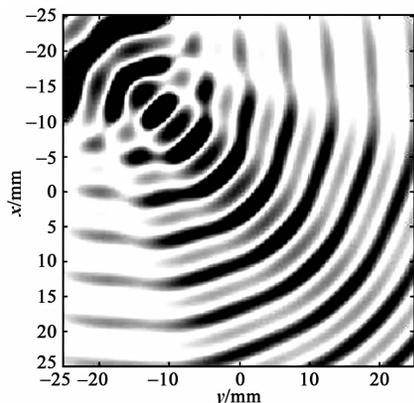


图10 圆底声化学反应器回波情况

由图10可知,圆底声化学反应器回波顺畅,无漫反射、绕射等不利于声化学反应效能的现象。

3 超声辅助水质检测系统性能检测实验

3.1 实验平台的建立

设计的超声振子固定于支架上,超声电源采用北方工业大学机电工程研究所研制的功率/频率可调式超声电源,功率为0~600 W可调,超声变幅杆工作频率为17~20 kHz。按插入式反应器的形式安置超声实验系统,如图11、12所示,在反应器中加入试样及试剂后,反应器中形成直径为 $\varnothing 50$ mm,深为40 mm的液柱。调节超声变幅杆高度,使变幅杆浸入反应溶液,其下端面距离液面下表面15 mm。



图11 超声辅助消解水样的实验体系

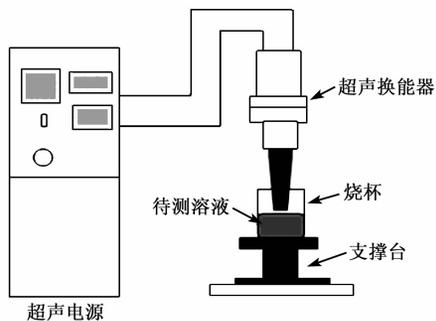


图12 实验体系简图

利用分光光度计,采取每次消解后取水样加入比色皿进行检测方式读出最终的水质化学需氧量(COD)值。

3.2 实验方法的选择

实验参照 HJ/T 354-2007^[12] 采用对比检测的方法,从初期设计因素考虑,应用超声辅助消解时仅对水质 COD 的检测进行验证。配置系列浓度的 COD 标准溶液作为水样检测样机的性能,邻苯二甲酸氢钾作为标准物质配置 COD 标准溶液。

以《水质化学需氧量的测定重铬酸盐法》(GB 11914-89)^[13] 作为对照检测分析的对照实验组,进行对比实验时应保障水样性状的一致性,每次对比实验至少要进行3组水样实验,3次实验中至少有2组数据(相对误差A)符合表3的规定则认为该仪器精度合格。实际水样比对试验A的公式为

$$A = \frac{X_n - B_n}{B_n} \times 100\% \quad (8)$$

式中: X_n 为第 n 次自动检测值; B_n 为第 n 次国标法的检测值。

表3 仪器检测 COD 的考核标准

仪器检测项目	待测水样允许误差限
COD	COD < 30 mg/L 时,绝对误差不超过 ± 5 mg/L 配置 COD 浓度为 20 mg/L 的标准溶液作为待测水样进行考核
	30 mg/L \leq COD < 60 mg/L 时,相对误差不超过 $\pm 30\%$
	60 mg/L \leq COD < 100 mg/L 时,相对误差不超过 $\pm 20\%$
	COD ≥ 100 mg/L 时,相对误差不超过 $\pm 15\%$

当实际水样 COD < 30 mg/L 时,不使用不确定度大的实际水样,而代替以 COD 浓度为 20 mg/L 的配置标准溶液进行性能检测,检测过程至少测定2次。水质控样的绝对误差与标准中位值的误差在 ± 5 mg/L 之间。

实验中自行配置的标准物质均与国家标准物质进行过对比,实验中用国标法(GB11914-89)检测 COD 的过程严格按照要求操作。

表4为部分 COD 标准溶液对比测试实验数据。由表可知,采用本文设计的样机实验数据与国标法无显著差异,准确度在 $-9.2\% \sim 4.4\%$,重复性在 $1.8\% \sim 9.7\%$,检测稳定性高;检测周期仅为4 min,远小于国标法的2 h,优于现有的 COD 快速检测法。因此,实验证明样机针对水质 COD 的检测结果数值准确性高,基本符合技术要求,推荐用于 COD 在线检测技术。

表4 部分COD标准溶液对比测试实验数据

样本 COD 浓度		20 mg/L			40 mg/L			70 mg/L		
样本序号		1	2	3	1	2	3	1	2	3
对比测试/(mg/L)	国标	18.2	17.9	21.1	41.2	42.1	38.0	72.6	73.0	72.2
	样机	18.7	18.1	21.7	38.5	38.3	39.6	67.8	68.2	73.1
平均值/(mg/L)	国标	19.1			40.4			72.6		
	样机	19.5			38.8			69.7		
样机准确度/%		2.7	1.1	2.8	-6.5	-9.0	4.2	-6.6	-6.6	1.2
样机重复性/%		9.7			1.8			4.2		
消解时间/min	样机	4			4			4		
	国标	120			120			120		

样本 COD 浓度		100 mg/L			200 mg/L			400 mg/L		
样本序号		1	2	3	1	2	3	1	2	3
对比测试/(mg/L)	国标	92.2	98.6	95.1	213.0	196.2	210.0	387.0	411.4	416.2
	样机	94.0	95.0	90.0	219.6	199.2	219.0	379.5	389.0	422.3
平均值/(mg/L)	国标	95.3			206.4			404.8		
	样机	93.0			212.6			396.9		
样机准确度/%		1.9	-3.6	-5.3	3.1	1.5	4.4	-1.9	-6.2	1.5
样机重复性/%		5.6			5.5			5.7		
检测时间/min	样机	4			4			4		
	国标	120			120			120		

4 结论

1) 深入研究超声变幅杆设计理论,通过计算与ANSYS软件仿真结合的方法,设计了一种指数型变幅杆,适用于水质检测的超声化学反应器。

2) 研究几何尺寸因素对声化学反应器的影响,经MATLAB软件对声场仿真模拟,设计适合于超声变幅杆特性的反应容器,使形成混响场或选择有良好光滑曲面过渡的旋转型容器均可提高化学反应效能。

3) 通过一系列浓度的水质COD参数检测实验,证明该样机的检测结果数值准确性高,系统性能稳定,基本符合技术要求,推荐用于水质快速在线检测技术。

相对于传统的水质水样消解方法,超声化学可以快速将污水中的有机物充分降解,不需要添加化学物质,无二次污染。

参考文献:

[1] 冯若,李化茂.声化学及其应用[M].安徽:安徽科学技术出版社,1992.

[2] 朱昌平,何世传,单鸣雷,等.水处理用声化学反应器研究进展[J].应用声学,2005,24(3):197-200.

ZHU Changping, HE Shichuan, SHAN Minglei, et al. Recent advances in sonochemistry reactor for water treatment[J]. Applied Acoustics, 2005, 24(3): 197-200.

[3] 张可昕.基于有限元的超声复合变幅杆的动力学分析及优化设计[D].北京:北方工业大学,2012.

[4] 刘鸣放.金属材料力学性能手册[M].北京:机械工业出版社,2011.

[5] 汪彦军.超声振动系统的设计与性能参数的计算[D].西安:陕西师范大学,2007.

[6] 万德安,刘春节.超声变幅杆的模态分析[J].机械与电子,2004(4):10-12.

WAN De'an, LIU Chunjie. Modal analysis of ultrasonic amplitude amplifier pole[J]. Machinery & Electronics, 2004(4): 10-12.

[7] 林仲茂.超声变幅杆的原理和设计[M].北京:科学出版社,1987.