

## OPTIMIZACIÓN DE SONORREACTORES PARA LA DEGRADACIÓN DE CONTAMINANTES EN AGUA POTABLE

<sup>1</sup>Francés J., <sup>1</sup>Hervás García M. A., <sup>1</sup>Heredia Avalos S., <sup>2</sup>González García J., <sup>3</sup>Alba J., <sup>1</sup>Ramis J.

<sup>1</sup>Departament de Física, Enginyeria de Sistemes i Teoria del Senyal Universitat d'Alacant, Apartat 99, E-03080, Alacant, Spain

<sup>2</sup>Departament de Química Física, Universitat d'Alacant, Apartat 99, E-03080, Alacant, Spain

<sup>3</sup>Instituto para la Gestión Integrada de las Zonas Costeras.Escuela Politécnica Superior de Gandía- Universidad Politécnica de Valencia.Carretera Nazaret-Oliva S/N. Grao de Gandia 46730 (Valencia)

{ [jfmonllor@ua.es](mailto:jfmonllor@ua.es), [sheredia@ua.es](mailto:sheredia@ua.es), [jose.gonzalez@ua.es](mailto:jose.gonzalez@ua.es), [jesalba@fis.upv.es](mailto:jesalba@fis.upv.es), [jramis@ua.es](mailto:jramis@ua.es) }

### Resumen

Se presentan los resultados obtenidos hasta la fecha en el diseño y construcción de un sonorreactor para la utilización de ultrasonidos en la mejora de la eficiencia de reacciones químicas en la depuración de aguas residuales. Para ello es preciso construir y caracterizar transductores emisores de ultrasonidos. Hemos optado por transductores tipo sándwich constituidos por dos cerámicas piezoeléctricas confinadas entre dos piezas metálicas, pues son los más usados actualmente.

En este trabajo, se presenta el proceso seguido para caracterizar las cerámicas piezoeléctricas, determinando las frecuencias de resonancia asociadas a algunos de sus modos de vibración y la curva de admitancia en función de la frecuencia de trabajo. Posteriormente, hemos propuesto varias configuraciones posibles para el transductor, variando la naturaleza y dimensiones de las piezas metálicas que constituyen la parte radiante y el backing, con el fin de maximizar la energía sonora que radia el transductor al medio y modificar su frecuencia de resonancia.

**Palabras-clave:** ultrasonidos, transductor, sonorreactor, sonoquímica, depuración.

### Abstract

We show the results that we have obtained to date in the design and building of a sonochemical reactor, in order to use ultrasounds to increase the efficiency of chemical reactions in the purification of sewage. For this purpose, it is necessary to build and characterize ultrasonic transducers. We have chosen sandwich transducers constituted by two piezoelectric ceramics between two metallic pieces because they are the most used transducers.

In this work, we show the process used to characterize a piezoelectric ceramic, obtaining the resonance frequencies associated to some of its vibration modes and its admittance curve as a function of the frequency. We have proposed several possible configurations for the transducer, changing the nature and dimensions of the metallic pieces that constitute the radiating head and the backing, in order to increase the sonic energy that the transducer radiates to the medium and to modify its resonance frequency.

**Keywords:** ultrasound, transducer, sonoreactor, sonochemistry, purification.

## 1 Introducción

El creciente interés sobre la contaminación de agua con compuestos orgánicos ha estimulado las actividades de investigación hacia el desarrollo de tratamientos para eliminar o limpiar estos contaminantes. Muchos de estos avances están relacionados con la tecnología ultrasónica.

Los ultrasonidos son una forma eficaz para la transmisión de energía a un medio de reacción como el que nos podemos encontrar en el interior de un reactor químico, mucho más eficiente que las que se usan normalmente (temperatura y luz). Esta energía transmitida puede ser utilizada de diferente forma dando lugar a un amplio abanico de aplicaciones de los ultrasonidos en ingeniería química. Los ultrasonidos proporcionan una excelente forma de modificar la velocidad de reacciones químicas.

Es un hecho conocido que un haz ultrasónico incidente es capaz de acelerar (catalizar) ciertas reacciones químicas, o desencadenar reacciones que estarían ausentes en ausencia dicho haz. El estudio de los procesos acústicos que afectan a la eficiencia de ciertas reacciones químicas ha dado lugar a una disciplina denominada sonoquímica [1]. El origen de este comportamiento se encuentra en el fenómeno de la cavitación [2]: las burbujas presentes en la reacción se comportan como pequeños resonadores forzados por el campo acústico externo, oscilando en el tiempo. Cerca de la resonancia, las burbujas experimentan, en cada ciclo, una lenta expansión seguida de un rápido y catastrófico colapso. La violencia del colapso es tal, que los gases en el interior de las burbujas alcanzan temperaturas de 5000 K y presiones de 10.000 atm. Este intenso calentamiento local es el responsable del inicio de las reacciones químicas en el gas interior [3,4].

En el líquido se producen reacciones químicas a causa de estas condiciones extremas: las altas temperaturas y presiones generadas, proveen la energía de activación requerida para la fragmentación de las moléculas (rotura de enlaces) generando especies más pequeñas o radicales, los cuales pueden a su vez causar reacciones secundarias. Así pues, los ultrasonidos son una fuente de radicales, especialmente  $\text{OH}^\cdot$ , oxidante muy fuerte y no específico, el cual se escapa de la burbuja y reacciona rápidamente con los compuestos en disolución.

Una de las principales aplicaciones de este fenómeno está relacionada con la degradación de especies orgánicas en una muestra de agua contaminada [5,6]. Así es, las ondas ultrasónicas pueden convertir substratos orgánicos de interés medioambiental (contaminantes) a compuestos inorgánicos inocuos (dióxido de carbono, agua) o a compuestos mucho menos peligrosos que los originales.

A medida que desciende la potencia de los ultrasonidos, disminuye la capacidad de generación de radicales. A partir de ese momento, los efectos observados son básicamente de naturaleza física. En efecto, los ultrasonidos pueden generar de forma local movimientos de convección que favorecen los fenómenos de transferencia de masa. Estos fenómenos son de especial relevancia en los reactores químicos heterogéneos, en los que la velocidad de reacción aparente es función del flujo de masa hacia, desde o a través de las diferentes interfases presentes en el reactor. En definitiva, un incremento en la tasa de transferencia de masa implica una mayor velocidad de transformación y por tanto, un menor volumen de reactor químico con todas las ventajas que ello lleva asociado.

El objetivo final de este trabajo es desarrollar un sonorreactor, cuyo esquema se muestra en la figura 1, para la utilización de ultrasonidos en la mejora de la eficiencia de reacciones químicas en la depuración de aguas residuales.

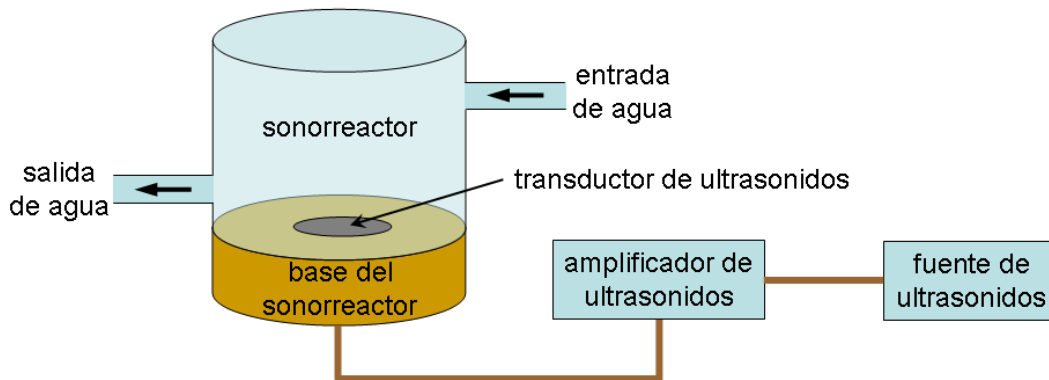


Figura 1 – Esquema general de la configuración que se va a llevar a cabo en este trabajo.

Por tanto, en una primera instancia, -y objetivo principal de este trabajo- se trata de diseñar el transductor, ya que, además servirá para llevar a cabo experiencias sobre ensayos no destructivos. Para ello es preciso caracterizar las cerámicas piezoeléctricas que lo constituyen. Hemos optado por transductores tipo sándwich, los cuales están constituidos por dos cerámicas piezoeléctricas confinadas entre dos piezas metálicas, pues son los más usados actualmente [7-11].

Este trabajo se ha organizado según se detalla a continuación. En la sección 2 se presenta el modelo analítico que describe el comportamiento de un transductor tipo sándwich. Los resultados experimentales correspondientes a la caracterización de las cerámicas piezoeléctricas del transductor se describen en la sección 3. Además, en esta sección se proponen varias configuraciones posibles para el transductor tipo sándwich, variando la naturaleza y dimensiones de las piezas metálicas que constituyen la parte radiante y el backing. Por último, las conclusiones de este trabajo se muestran en sección 4.

## 2 Modelo del transductor

Un transductor tipo sándwich está formado por una o varias cerámicas piezoeléctricas confinadas entre dos piezas metálicas. Las cerámicas piezoeléctricas constituyen la fuente de vibración del transductor y suelen tener forma de anillo, la pieza metálica trasera se denomina backing y la pieza metálica delantera es la parte radiante, encargada de transmitir las vibraciones al medio de trabajo. En la figura 2 se muestra un esquema general de un transductor tipo sándwich. Usar este tipo de transductores, en lugar de emplear sólo cerámicas piezoeléctricas presenta ciertas ventajas. Así es, cuando la potencia es elevada, las cerámicas se calientan, reduciendo la eficiencia de conversión electromecánica; sin embargo, cuando se usan en un transductor tipo sándwich las piezas metálicas ayudan a disipar el calor. Además, en los transductores tipo sándwich las piezas metálicas y las cerámicas piezoeléctricas se suelen acoplar mediante un tornillo central que somete al conjunto a una presión determinada. Ésta presión proporciona estabilidad mecánica al transductor, evitando que las frágiles cerámicas se rompan. Por último, escogiendo convenientemente las dimensiones y naturaleza de las piezas metálicas que constituyen el transductor se puede optimizar su rendimiento y variar su frecuencia de resonancia.

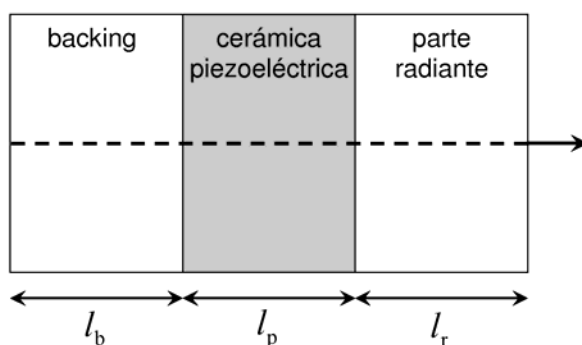


Figura 2 – Esquema general de un transductor tipo sándwich.  $l_i$  es la dimensión del medio  $i$ .

Para modelizar el comportamiento del transductor tipo sándwich es preciso realizar algunas aproximaciones que simplifican su resolución. En primer lugar, se supone que el transductor está constituido por tres medios pasivos, homogéneos e isotropos: la parte radiante (r), la cerámica piezoeléctrica (p) y el backing (b), ignorando los medios circundantes. Además, si se supone que las ondas que viajan a través de los tres medios son ondas planas, es posible obtener una ecuación que relaciona los parámetros físicos y geométricos de los tres medios y nos permite obtener las dimensiones de cada una de las piezas para que el transductor vibre a una frecuencia determinada. La ecuación de ondas en los tres medios es

$$\frac{\partial^2 \xi_i}{\partial x_i^2} = \frac{\rho_i}{E_i} \frac{\partial^2 \xi_i}{\partial t_i^2}, \quad (1)$$

donde  $\rho_i$  y  $E_i$  son la densidad y el módulo de Young del medio  $i$ , respectivamente;  $\xi_i$  es el desplazamiento de las partículas en el medio  $i$ , siendo  $i = r, p$  y  $b$  según se trate de la parte radiante, la cerámica piezoeléctrica o el backing.

Suponiendo que la presión es nula en los extremos de la parte radiante y del backing, que hay continuidad en el desplazamiento y en las fuerzas en las regiones de contacto entre la cerámica y el backing y la parte radiante, se llega a la ecuación general del transductor tipo sándwich [12]

$$\begin{aligned} & \cos(k_b l_b) \sin(k_p l_p) \cos(k_r l_r) + Z_{rp} \cos(k_b l_b) \sin(k_r l_r) \cos(k_p l_p) + \\ & + Z_{bp} \sin(k_b l_b) \cos(k_p l_p) \cos(k_r l_r) - Z_{bp} Z_{rp} \sin(k_b l_b) \sin(k_r l_r) \sin(k_p l_p) = 0 \end{aligned} \quad (2)$$

donde  $Z_{ij}$  es el cociente de las impedancias acústicas de los medios  $i$  y  $j$ . Para un determinado espesor de la cerámica piezoeléctrica, la ecuación (2) proporciona la relación entre las dimensiones de la parte delantera y el backing para que el transductor vibre con una frecuencia de resonancia dada. El número de posibles soluciones de la ecuación (2) es infinito cuando sólo se fija la dimensión de uno de los medios. Sin embargo, estas soluciones no son equivalentes, sólo son interesantes aquellas que favorecen la emisión de ultrasonidos por la parte delantera. Así, la elección de los materiales que constituyen el transductor es muy importante, pues determinarán la radiación que emite el transductor hacia el medio de trabajo. Para determinar cuál es la solución óptima se define el índice de ganancia como [12]

$$G = \frac{A_r^2}{A_b^2} = \frac{1 + (Z_{bp}^2 - 1) \sin^2(k_b l_b)}{1 + (Z_{rp}^2 - 1) \sin^2(k_r l_r)}, \quad (3)$$

donde  $A_r$  y  $A_b$  representan la amplitud de la oscilación en la parte delantera y en el backing, respectivamente. Escogiendo las soluciones de la ecuación (2) que maximizan el índice de ganancia, definido según la ecuación (3), se llega a las relaciones expresadas en la tabla 1.

Tabla 1 – Espesor de la parte delantera, de la cerámica piezoeléctrica y del backing para obtener un índice de ganancia máximo [12], según la ecuación (3).

	$G_M$	$l_b$	$l_p$	$l_r$
$Z_{bp} > 1, Z_{rp} > 1$ $Z_{bp} \geq Z_{rp}$	$Z_{bp}^2$	$\frac{\lambda_b}{4}$	$\frac{\lambda_p}{4}$	$0, \frac{\lambda_r}{2}$
$Z_{bp} > 1, Z_{rp} = 1$	$Z_{bp}^2$	$\frac{\lambda_b}{4}$	$\tan(2\pi \frac{l_p}{\lambda_p}) \tan(2\pi \frac{l_r}{\lambda_r}) = 1$	
$Z_{bp} > 1, Z_{rp} < 1$	$\frac{Z_{bp}^2}{Z_{rp}^2}$	$\frac{\lambda_b}{4}$	$0, \frac{\lambda_p}{2}$	$\frac{\lambda_r}{4}$
$Z_{bp} = 1, Z_{rp} < 1$	$\frac{1}{Z_{rp}^2}$	$\tan(2\pi \frac{l_b}{\lambda_b}) \tan(2\pi \frac{l_p}{\lambda_p}) = 1$		$\frac{\lambda_r}{4}$
$Z_{bp} < 1, Z_{rp} < 1$ $Z_{bp} \geq Z_{rp}$	$\frac{1}{Z_{rp}^2}$	$0, \frac{\lambda_b}{2}$	$\frac{\lambda_p}{4}$	$\frac{\lambda_r}{4}$

### 3 Resultados y discusión

Tal y como se ha establecido previamente, en el diseño de transductores ultrasónicos se emplean fundamentalmente cerámicas piezoeléctricas. En nuestro caso particular hemos usado cerámicas piezoeléctricas PZT4 de *Morgan Electroceramics* compuestas de titanato circonato de plomo y con forma de anillo (véase la figura 3). Caracterizar estas cerámicas piezoeléctricas supone determinar las curvas de impedancia y de admitancia en función de la frecuencia y, con ello, determinar las frecuencias de resonancia asociadas a cada modo de vibración. Para realizar esta labor hemos empleado un equipo de medida *Audio Precision* conectado a un PC. Las medidas se realizaron entre 0 Hz y 200 kHz.

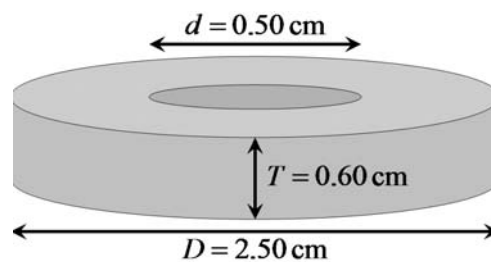


Figura 3 – Geometría de la cerámicas PZT4 empleadas en este trabajo.

En la figura 4 se muestra la admitancia en función de la frecuencia de excitación de la cerámica piezoeléctrica. Se observan dos modos de vibración, uno entorno a los 75 kHz, correspondiente al modo de vibración radial, y otro sobre 190 kHz, asociado al modo de vibración de espesor.

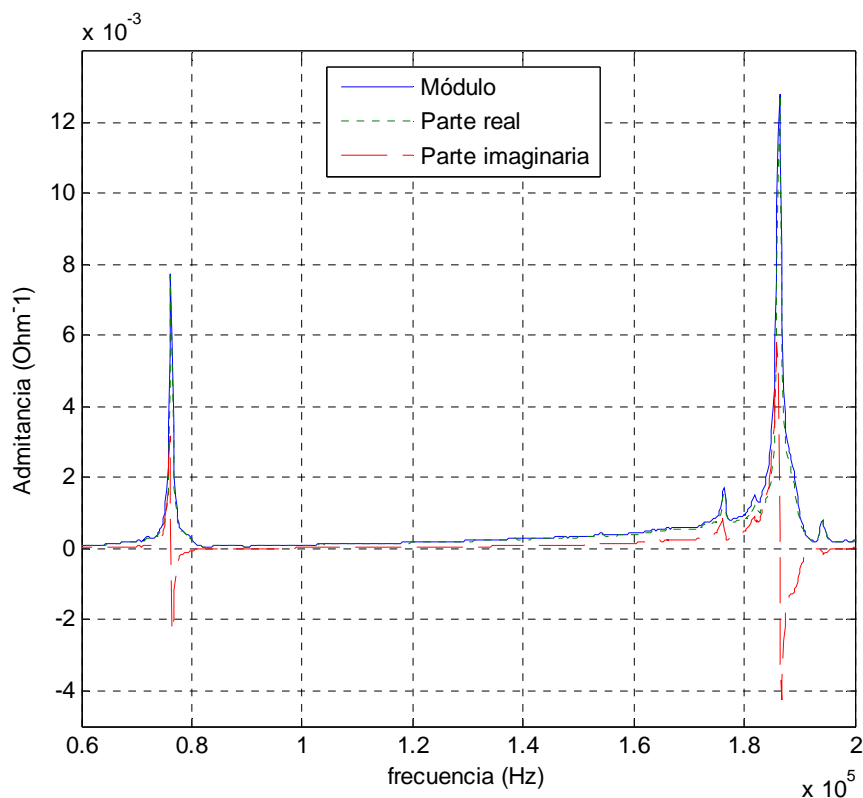


Figura 4 – Admitancia en función de la frecuencia para la cerámica piezoeléctrica PZT4 con forma de anillo. Se muestra el módulo (azul), la parte real (verde) y la parte imaginaria (rojo) de la admitancia.

Para caracterizar la cerámica piezoeléctrica es preciso hallar todos los valores del circuito electromecánico que describe su comportamiento. En este trabajo hemos realizado el análisis para el modo de vibración radial que se observa a unos 75 kHz. En la tabla 2 se muestran los resultados que hemos obtenido.

Tabla 2 – Características electromecánicas de la cerámica piezoeléctrica PZT4.

Característica	Medida
Frecuencias de resonancia y de antirresonancia (Hz)	75051.7 y 81433.8
Frec. cuadrantales (Hz)	75521.8 y 74501.5
$Q_m$	73.51
$C_0$ (pF)	749.63
$C$ (pF)	133.97
$L$ (mH)	33.607
$R$ ( $\Omega$ )	215.45

En base a las expresiones deducidas en la tabla 1 se pueden proponer varias configuraciones posibles para el transductor tipo sándwich, variando la naturaleza y dimensiones de las piezas metálicas que constituyen la parte radiante y el backing. En concreto, hemos realizado un análisis teórico usando dos cerámicas piezoeléctricas y todas las combinaciones posibles con los materiales metálicos aluminio, latón, acero y bronce. En la tabla 3 se muestran los resultados teóricos obtenidos para cada configuración.

Tabla 3 – Posibles combinaciones y características de los transductores tipo sándwich propuestos.

Configuración (b-p-r)	$Z_{bp}$	$Z_{bp}$	$G$	$l_b$ (cm)	$l_p$ (cm)	$l_r$ (cm)	$f_r$ (kHz)
1. Al-PZT4-Al	0.525	0.525	3.62	3.4088	1.2000	1.7044	92.6
2. Bronce-PZT4-Al	1.152	0.525	4.80	0.5956		0.8522	185.2
3. Bronce-PZT4-Bronce	1.152	1.152	1.33	1.1912		2.3824	92.6
4. Bronce-PZT4-Latón	1.152	1.067	1.33	2.7574		1.5573	40.0
5. Latón-PZT4-Al	1.067	0.525	3.62	1.5573		3.9453	40.0
6. Latón-PZT4-Latón	1.067	1.067	1.14	2.7418		1.5573	40.0
7. Acero-PTT4-Al	1.317	0.525	6.28	0.7759		0.8522	185.2
8. Acero-PTT4-Bronce	1.317	1.151	1.73	1.5519		2.3824	92.6
9. Acero-PTT4-Latón	1.317	1.067	1.73	3.5923		1.5573	40.0
10. Acero-PTT4-Acero	1.317	1.317	1.73	1.5519		3.1037	92.6

Dado que sólo estamos interesados en ultrasonidos de baja frecuencia, por debajo de los 100 kHz, y teniendo en cuenta el valor del índice de ganancia, la mejor opción es emplear un backing de latón y la parte radiante de aluminio. Este tipo de configuración tiene la ventaja de que permite modificar la frecuencia de resonancia del transductor sándwich modificando el espesor del backing de latón. Esto se debe a que las impedancias del backing y de la cerámica son aproximadamente iguales, por lo que el backing y la cerámica actúan como si se tratase de un único bloque. Así pues, según la tabla 1, el espesor del backing  $l_b$  para una frecuencia de resonancia  $f_r$  dada viene determinado por la expresión

$$\tan\left(2\pi \frac{l_b}{\lambda_b}\right) \tan\left(2\pi \frac{l_p}{\lambda_p}\right) = 1, \quad (4)$$

es decir,

$$l_b = \frac{c_b}{2\pi f_r} \arctan \left[ \tan^{-1} \left( 2\pi f_r \frac{l_p}{c_p} \right) \right], \quad (5)$$

donde  $c_i$  es la velocidad del sonido en el medio  $i$ .

En la figura 5 se muestra el aspecto de un transductor sándwich construido para vibrar a una frecuencia de unos 60 kHz. Posee dos cerámicas PZT4 (cuyas dimensiones se muestran en la figura 3), el backing de latón ( $l_b = 0.64$  cm y  $D = 2.50$  cm) y la parte radiante de aluminio ( $l_r = 2.63$  cm y  $D = 2.5$  cm). El conjunto está unido y sometido a presión mediante un tornillo central.



Figura 5 – Transductor sándwich con una frecuencia de resonancia de unos 60 kHz.

Una vez hecho esto, se ha incorporado este transductor sándwich al sonorreactor mostrado en la figura 6a, mediante una base de teflón como la que se muestra en la figura 6b.

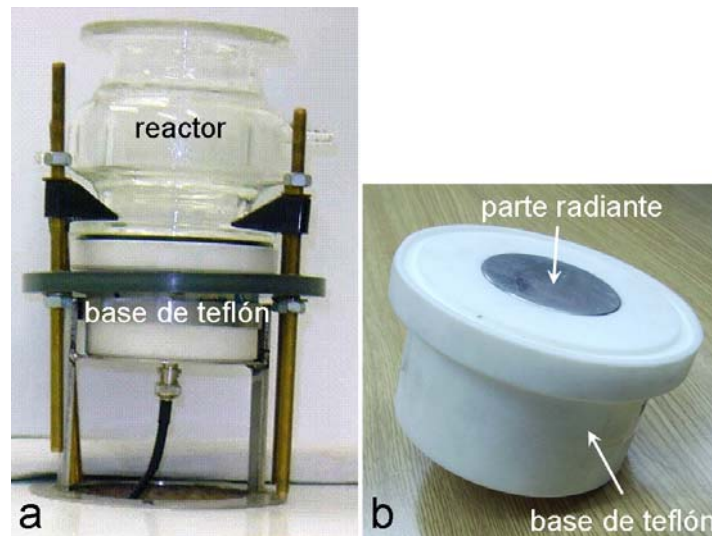


Figura 6 – (a) Aspecto del sonorreactor y (b) base de teflón donde se acopla el transductor tipo sándwich.

Este sonorreactor nos permitirá evaluar la eficiencia de la utilización de ultrasonidos para la mejora de la eficiencia de reacciones químicas para la depuración de aguas residuales. Concretamente, se estudiaría la influencia de la frecuencia y de la potencia del campo de ultrasonidos en la degradación de dos tipos de contaminantes del agua potable: los trihalometanos y los haloacéticos, que son los subproductos generados cuando se aplica cloro como desinfectante para el agua potable. La elección de este tipo de compuestos no se debe sólo a su presencia en el agua potable tratada, si no que también presentan una baja biodegradabilidad y, por lo tanto, también se han detectado en las plantas de depuración, lo que condiciona la reutilización de las aguas residuales tratadas.

## 4 Conclusiones

En este trabajo hemos caracterizado las cerámicas piezoeléctricas PZT4 de *Morgan Electroceramics* con forma de anillo, determinando las frecuencias de resonancia asociadas a algunos de sus modos de vibración y la curva de admitancia en función de la frecuencia de trabajo.

Por otra parte, hemos propuesto varias configuraciones posibles para un transductor tipo sándwich, variando la naturaleza y dimensiones de las piezas metálicas que constituyen la parte radiante y el backing, con el fin de maximizar la energía sonora que radia el transductor al medio y



modificar su frecuencia de resonancia. Hemos obtenido que la configuración óptima está constituida por un backing de latón y una parte delantera de aluminio con dos cerámicas piezoeléctricas entre ellas. El conjunto propuesto posee una frecuencia de resonancia de unos 40 kHz, dentro del margen que necesitamos.

Este trabajo se enmarca dentro de un proyecto que pretende desarrollar un sonorreactor para la utilización de ultrasonidos en la mejora de la eficiencia de reacciones químicas en la depuración de aguas residuales. Por tanto, el siguiente paso de la investigación estudiar el efecto de los ultrasonidos en la degradación de compuestos orgánicos derivados de la depuración de aguas residuales con cloro. Adicionalmente, estamos estudiando la posibilidad de usar lavadoras de ultrasonidos comerciales. Estos dispositivos consisten en un recipiente que incorpora numerosos transductores ultrasónicos que trabajan a frecuencias por debajo de los 100 kHz y son capaces de desarrollar una potencia acústica considerable.

### Agradecimientos

Este trabajo se ha realizado gracias al soporte económico de la Conselleria d'Educació de la Generalitat València GVPRE/2008/178 (proyectos precompetitivos de I+D para equipos de investigación) y parcialmente al proyecto coordinado formado por BIA2007-68098-C02-01 y BIA2007-68098-C02-02.

### Referencias

- [1] Crum, L. A.; Mason, T. J.; Reisse, J. L.; Suslick, K. S. (Eds.). *Sonochemistry and Sonoluminescence*, Nato Science Series: C: Vol. 524, Springer, 1999.
- [2] Leighton, T. G. *The acoustic bubble*, Academic Press, 1994.
- [3] Gong, C.; Hart, D. P. Ultrasound induced cavitation and sonochemical yields, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 104, 1998, 2675-2682.
- [4] Colussi, A. J.; Weavers, L. K.; Hoffmann, M. R. Chemical bubble dynamics and quantitative sonochemistry, *J. Phys. Chem. A*, Vol. 102, 1998, 6927-6934.
- [5] Mason, T. J. Sonochemistry: current uses and future prospects in the chemical and processing industries, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, Vol. 357, 1999, 355-369.
- [6] Lifka, J.; Ondruschka, B.; Hofmann, J. The Use of Ultrasound for the Degradation of Pollutants in Water: Aquasonolysis - A Review, *Engineering in Life Sciences*, Vol. 3, 2003, 253-262.
- [7] Chilibon, I. Underwater flexensional piezoceramic sandwich transducer, *Sensors and Actuators A*, Vol. 100, 2002, 287-292.
- [8] Wevers, M.; Lafaut, J.-P.; Baert, L.; Chilibon, I. Low-frequency ultrasonic piezoceramic sandwich transducer, *Sensors and Actuators A*, Vol. 122, 2005, 284-289.
- [9] Wayment, D. G.; Casadonte, D. J., Jr. Design and calibration of a single-transducer variable-frequency sonication system, *Ultrasonics Sonochemistry*, Vol. 9, 2002, 189-195.
- [10] Shuyu, L.; Hua, T. Study on the sandwich piezoelectric ceramic ultrasonic transducer in thickness vibration, *Smart Mater. Struct.*, Vol. 17, 2008, 015034 (9 págs.)

- [11] Chacón, D.; Rodríguez-Corral, G.; Gaete-Garretón, L.; Riera-Franco de Sarabia, E.; Gallego-Juárez, J. A. A procedure for the efficient selection of piezoelectric ceramics constituting high-power ultrasonic transducers, *Ultrasonics*, Vol. 44, 2006, e517-e521.
- [12] Domínguez, R.; Ranz, C. Sandwich transducer, simplified mathematical model (II), *Acustica*, Vol. 29, 1973, 161-167.