arXiv:2601.04113v1 [physics.flu-dyn] 7 Jan 2026

亮点

应变硬化黏弹性材料中的微气泡表面失稳

Sawyer Remillard、Bachir A. Abeid、Timothy L. Hall、Jonathan R. Sukovich、Jacob Baker、Jin Yang、Jonathan B. Estrada、Mauro RodriguezJr.

- 应变硬化黏弹性材料中运动学一致的气泡表面扰动演化模型
- 黏弹性材料中气泡表面扰动演化的理论模型验证
- 单一实验装置即可实现可调应变率材料表征

应变硬化黏弹性材料中的微气泡表面失稳

Sawyer Remillard[a], *, Bachir A. Abeid[b], Timothy L. Hall[c], JonathanR. Sukovich[c], Jacob Baker[d], Jin Yang[e, f], JonathanB. Estrada[b] 和Mauro Rodriguez Jr.[a], **

[a]布朗大学工程学院，普罗维登斯，*RI 02912*，美国[b]密歇根大学机械工程系，安娜堡，*MI 48109*，美国[c]密歇根大学生物医学工程系，安娜堡，*MI 48109*，美国[d]德克萨斯大学奥斯汀分校生物医学工程系，奥斯汀，*TX 78712*，美国[e]德克萨斯大学奥斯汀分校航空航天工程与工程力学系，奥斯汀，*TX 78712*，美国[f]德克萨斯大学奥斯汀分校德克萨斯材料研究所，奥斯汀，*TX 78712*，美国

文章信息

关键词：惯性空化 材料表征
非球形气泡动力学 应变硬化
黏弹性

摘要

理解流固界面处失稳的动力学，对于聚焦超声治疗工具（如组织碎化术）和微空化流变测量技术的有效性至关重要。超声或聚焦激光产生的非均匀压力场会导致非球形微空化气泡。以往针对黏弹性材料中扰动振幅演化的模型，要么假设纯径向变形，要么流体与固体部分的运动学场不一致。我们推导出一个运动学一致的理论模型，用于描述表面扰动的演化。该模型能够捕捉非球形气泡周围应变硬化黏弹性材料的非线性运动学。我们使用软水凝胶中的激光诱导微空化实验，对模型进行验证，考察了（i）小幅、近似线性的径向振荡和（ii）大幅惯性振荡。对于前者，气泡先达到机械平衡，随后通过超声驱动激发表面扰动。对于后者，微气泡在最大半径处产生微小的气泡表面扰动，并在塌缩过程中逐渐增大。模型预测的主导表面扰动模态随平衡半径线性变化，且与实验结果吻合。同样，模型对扰动振幅演化的预测足以约束流变测量问题，并得到了实验验证。

1. 引言

实验和模拟表明，空化气泡在振荡过程中很少能始终保持完美的球形，在软黏弹性材料中尤其如此 [15, 6, 12, 20, 29,24, 25, 43, 42, 41]。在组织碎化术等软材料空化应用中 [38, 22, 23,39, 3] 以及惯性微空化流变测量（IMR）中 [30, 8,40] ，气泡会形成非球形形态，从而降低应用效果。相比之下，非球形振荡能够提高靶向药物释放的效果[19, 36, 16]。然而，目前仅有三项研究采用了两种模型来模拟这一现象 [43, 9, 24]，且每种模型所依据的假设各不相同，导致研究结论存在分歧。

尽管对黏弹性固体材料中非球形空腔振荡的研究起步较晚，但流体中的相关研究由来已久，可追溯至Plesset[28]。Prosperetti [30] 将黏度和涡量效应纳入考虑。后者导致模型的计算成本高昂，必须直接求解，而不能通过解析线性化来进行稳定性分析。为简化Prosperetti 的模型，Hilgen- feldt 等人 [14]将涡量建模限制在黏性边界层内。该模型与实验数据Versluis 等人 [37]的结果一致。后续模型在扰动级数展开中加入高阶项，以计算体积模态与形状模态振荡之间的能量传递 [13, 33, 35, 34]。Shaw 提出的模型变体 [33]与以下两项实验研究的结果一致。Guédra 等人 [11] 展示了扰动模态与径向动力学之间的耦合，其中采用超声驱动，在较长时间内激发这些非球形模态。在 Cleve 等人 [7], 的研究中，先通过气泡聚并诱发非球形振荡，随后再由超声换能器驱动。然而，这些模型仅适用于牛顿流体；牛顿流体是一种特殊的材料模型，其黏性柯西应力与施加的应变率成正比。

非球形空腔建模已扩展至弹性固体材料。Gaudron 等人 [9]开发了一种非球形气泡振荡模型，并研究了新胡克超弹性材料和线弹性材料模型。Murakami 等人 [24] 对该模型进行了扩展，纳入了涡量和黏度；结果表明，该模型与 Hamaguchi 和 Ando[12] 以及 Saint-Michel 和 Garbin [32]的部分实验数据相符。然而，Murakami 等人 [24] 和Gaudron 等人 [9]的模型在加速度和材料变形方面采用了不一致的运动学场。前者使用了 Plesset [28] 提出的速度势方法；而后者在计算柯西应力散度中的弹性贡献时，假设材料发生纯径向变形。

*通讯作者
**主要通讯作者 ORCID：0000-0002-5469-6168 (S. Remillard)；0009-0009-0859-8434 (B.A. Abeid)；0000-0002-4867-2856 (T.L. Hall)；0000-0002-5650-991X (J.R. Sukovich)；0000-0003-3361-1513 (J. Baker)；0000-0002-5967-980X (J. Yang)；0000-0003-1083-4597 (J.B. Estrada)；0000-0003-0545-0265 (M.R. Jr.)

在同一种材料中使用两种不同的运动学场在物理上并不合理。当剪切模量较大或材料经历较大的伸长比时，这种方法会导致错误的预测。另一方面，Yang 等人 [43] 为呈现应变硬化特性的黏弹性超弹性材料开发了一种非球形模型。他们通过对模型控制方程进行特征值分析，证明模型对失稳增长与衰减的预测与实验结果一致。该模型在整个推导过程中采用一致的运动学场，但只考虑径向运动，忽略了角向变形。迄今为止，考虑黏弹性的非球形模型 [43, 9, 24]尚未使用实验所得的扰动演化数据进行验证。

我们假设，角向变形对于将扰动模态和振幅演化的直接观测结果与理论进行比较是必不可少的，正如经流体验证的模型中所考虑的那样。此外，非球形振荡可用于表征不同应变率范围内的黏弹性材料。对于由超声驱动的系统，材料所经历的应变率可通过调节驱动频率和气泡尺寸来控制。因此，本研究旨在：(i) 建立并验证一种运动学一致的球面扰动模型，将角向变形纳入其中；(ii) 利用扰动动力学为材料表征技术提供约束。所提出的模型见第 2 节。小幅径向振荡的模型简化见第 3 节。该模型与现有模型的比较见第 4 节。数值和实验方法详见第 5 节。比较理论与实验的结果和讨论见第 6 节。最后，我们在第 7 节总结本研究的贡献。

2. 运动学一致的解析模型

2.1. 几何

图 1展示了问题设置，以及从参考构型出发、基于轴对称球谐模态进行均匀网格变换的示例。球形气泡与周围材料处于无应力力学平衡状态，其参考半径为 R_o。气泡表面为

$$\mathscr{R}(t,\theta,\phi) = R(t)\left(1+\sum_{n,m}\epsilon_n(t)Y_n^m\right),$$

其中，R为气泡的平均半径，ϵ_n 为表面扰动的无量纲振幅，t 为时间，而 $Y_n^m = Y_n^m(\theta,\phi)$ 为当前坐标系下模态数为n 、方位阶数为 m 的实球谐函数。为简洁起见，省略了扰动振幅和气泡半径对时间的依赖关系，也省略了模态求和。

参考球坐标系为 $\psi_o = (r_o,\theta_o,\phi_o)$，当前 $\psi = (r,\theta,\phi)$。参考坐标系和当前坐标系中的位置矢量分别为：

$$\mathbf{x}_o = r_o\,\hat{\mathbf{e}}_r(\theta_o,\phi_o), \quad \mathbf{x} = r\,\hat{\mathbf{e}}_r(\theta,\phi), \tag{1}$$

其中，$\hat{\mathbf{e}}_r$ 为径向单位矢量。当前的位置矢量分解为基准径向变形，并叠加一阶小非球形变形：

$$\mathbf{x} = r_s\hat{\mathbf{e}}_r(\theta_o,\phi_o) + \epsilon_n\mathbf{u}_1, \tag{2}$$

其中，r_s 为基准球形变形，$\mathbf{u}_1$ 为非球形表面扰动变形矢量。由于假设非球形运动相对于球形运动较小，即 $\epsilon_n(t) \ll 1$，因此截断 $\mathscr{O}(\epsilon_n^2)$及更高阶项。随后，将从参考坐标到当前坐标的运动映射记为 χ：

$$\psi = \chi\left(\psi_o\right) = \chi_s\left(\psi_o\right) + \epsilon_n\chi_1\left(\psi_o\right),$$

其中，

$$\chi_s\left(\psi_o\right) = \left(r_s(r_o,t),\,\theta_o,\,\phi_o\right),$$
$$\chi_1\left(\psi_o\right) = \left(r_1(\psi_o,t),\,\theta_1(\psi_o,t),\,\phi_1(\psi_o,t)\right).$$

这里，χ_1，r_1，θ_1和 ϕ_1 分别是总坐标、径向、 θ和 ϕ 映射的一阶项。将坐标变形映射代入方程 (1)和(2) 并进行线性化，可得

$$\mathbf{u}_1 = r_1\hat{\mathbf{e}}_r + r_s\theta_1\hat{\mathbf{e}}_\theta + r_s\sin\theta_o\phi_1\hat{\mathbf{e}}_\phi, \tag{3}$$

其中 $\hat{\mathbf{e}}_\theta$ 和 $\hat{\mathbf{e}}_\phi$ 分别是极向和方位向的单位向量。方程 (3)中的单位向量仅是 θ_o和 ϕ_o的函数。由于 $(\theta,\phi) = (\theta_o,\phi_o) + \mathscr{O}(\epsilon_n)$，因此在计算位置向量时，$\mathbf{u}_1$ 的分量在一阶精度下可用任一坐标基表示。

2.2. 运动学

变形梯度张量为

$$\mathbf{F} = \frac{\partial\mathbf{x}}{\partial\mathbf{x}_o} = \begin{bmatrix} \frac{\partial r}{\partial r_o} & \frac{1}{r_o}\frac{\partial r}{\partial\theta_o} & \frac{1}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial r}{\partial\phi_o} \\ r\frac{\partial\theta}{\partial r_o} & \frac{r}{r_o}\frac{\partial\theta}{\partial\theta_o} & \frac{r}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial\theta}{\partial\phi_o} \\ r\sin\theta\frac{\partial\phi}{\partial r_o} & \frac{r\sin\theta}{r_o}\frac{\partial\phi}{\partial\theta_o} & \frac{r\sin\theta}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial\phi}{\partial\phi_o} \end{bmatrix}, \tag{4}$$

并用[31]中的展开坐标映射表示。变形梯度可分解为 ϵ_n 的幂次之和，$\mathbf{F} = \mathbf{F}_s + \epsilon_n\mathbf{F}_1$。当 $\det(\mathbf{F}) = 1$时，材料不可压缩性得到满足。截断 $\mathscr{O}(\epsilon_n^2)$ 及更高阶项后，不可压缩条件变为

$$\det(\mathbf{F}) \approx \det(\mathbf{F}_s) + \epsilon_n\left[\frac{\partial}{\partial\epsilon_n}\det(\mathbf{F})\right]_{\epsilon_n=0} = 1.$$

通过扰动匹配方法，并与 Ogden 和 Sinclair [27]，$\det(\mathbf{F}_s) = 1$ 一致，增量变形不可压缩条件为

$$\left[\frac{\partial}{\partial\epsilon_n}\det(\mathbf{F})\right]_{\epsilon_n=0} = \mathrm{tr}\left(\mathbf{F}_s^{-1}\mathbf{F}_1\right) = \nabla_{\mathbf{x}}\cdot\mathbf{u}_1 = 0. \tag{5}$$

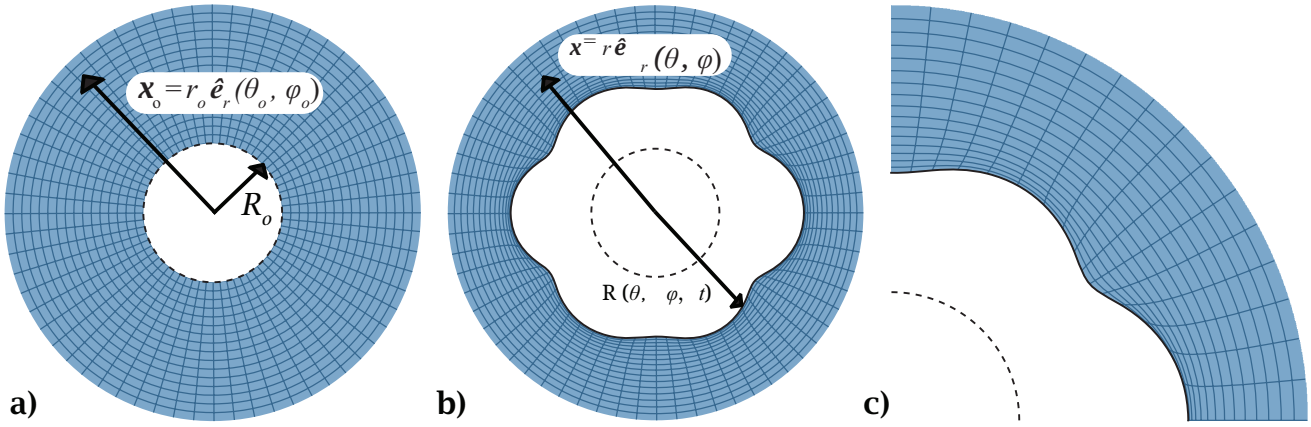

图 1： 在 ϕ恒定的情况下，问题设置的横截面示意图。**a)** 参考构型：气泡处于机械平衡半径，虚线表示其位置。**b)** 一个当前构型示例，其中显示了基础径向增长以及球谐不稳定性的形成。**c)** 放大图，展示了 b) 右上象限的材料网格和气泡变形。

纯球形情形的基态变形众所周知，为 [8, 10, 43]。基态变形的不可压缩关系为

$$r_s = \left(r_o^3 + R^3 - R_o^3\right)^{1/3}. \tag{6}$$

方程 (5)可求解得到与 ϵ_n成比例的映射。我们考虑以下位移试探形式：

$$\mathbf{u}_1 = \nabla_{\mathbf{x}}\left[f(r)Y_n^m\right], \tag{7}$$

其中 $f(r)$ 是空间径向坐标的函数。为简便起见，不考虑由界面扰动、黏度和弹性所导致的扰动位移场的旋转部分。

代入方程（7），对扰动位移场取空间散度并进行线性化，再利用球谐函数的特征方程，不可压缩条件可简化为一个常微分方程

$$r^2 f'' + 2rf' - n(n+1)f = 0. \tag{8}$$

上述方程对应的衰减解为 $f = C_1 r^{-n-1}$，其中 C_1 通过气泡表面上的径向位移边界条件求得：

$$r(r_o = R_o, \theta_o, \phi_o, t) = R(1 + \epsilon_n Y_n^m) \rightarrow f'|_{r=R} Y_n^m = RY_n^m,$$

其中 $C_1 = -R^{n+3}/(n+1)$。随后，通过下式计算相应的速度和加速度：

$$\mathbf{v} = \dot{r}\,\hat{\mathbf{e}}_r + r\dot{\theta}\,\hat{\mathbf{e}}_\theta + r\sin\theta\dot{\phi}\,\hat{\mathbf{e}}_\phi, \tag{9a}$$

$$\begin{aligned}\boldsymbol{a} = &\left(\ddot{r} - r\dot{\theta}^2 - r\dot{\phi}^2\sin^2\theta\right)\hat{\mathbf{e}}_r \\ &+ \left(r\ddot{\theta} + 2\dot{r}\dot{\theta} - r\dot{\phi}^2\sin\theta\cos\theta\right)\hat{\mathbf{e}}_\theta \\ &+ \left(r\ddot{\phi}\sin\theta + 2\dot{r}\dot{\phi}\sin\theta + 2r\dot{\theta}\dot{\phi}\cos\theta\right)\hat{\mathbf{e}}_\phi,\end{aligned} \tag{9b}$$

其中，点运算符表示在参考坐标固定时的时间导数，单位向量相对于当前坐标基底。坐标变形映射、线性化逆坐标变形映射，以及欧拉速度和加速度列于 [31] 中。

2.3. 动量平衡

动量平衡方程为

$$\rho\boldsymbol{a} = \nabla_{\mathbf{x}} \cdot \boldsymbol{\sigma}, \tag{10}$$

其中 ρ 是材料密度，$\boldsymbol{\sigma}$ 是柯西应力张量。考虑二次 Kelvin-Voigt（qKV）本构模型 [18, 40],

$$\boldsymbol{\sigma} = G\left(1 + \alpha(I_B - 3)\right)\mathbf{B} + 2\mu\mathbf{D} - \mathcal{P}\mathbf{I}, \tag{11}$$

其中，G 为剪切模量，α 为应变硬化参数，μ 为黏度，$\mathbf{I}$ 为单位张量。I_B 为 $\mathbf{B}$的第一不变量，该不变量是相对于扰动幅值线性化得到的，即

$$\begin{aligned}I_B = &\frac{2r^6 + \varrho^2}{r^4\varrho^{2/3}} + \frac{2\epsilon_n R^{n+3}}{r^{n+7}\varrho^{5/3}}\left(R^3 - R_o^3\right)\left(2r^3 - R^3 + R_o^3\right) \\ &\times\left((n+2)r^3 + n(R_o^3 - R^3)\right)Y_n^m,\end{aligned} \tag{12}$$

其中，$\varrho = \left(r^3 - R^3 + R_o^3\right)^{1/3}$。$\mathbf{B} = \mathbf{F}\mathbf{F}^{\mathsf{T}}$ 为左 Cauchy-Green 变形张量，而非偏量，因此 $\mathcal{P}$ 为类压力量，并与静水压力有关。$\mathbf{D}$ 为应变率张量，即

$$\mathbf{D} = \frac{1}{2}\left(\nabla_{\mathbf{x}}\mathbf{v} + (\nabla_{\mathbf{x}}\mathbf{v})^{\mathsf{T}}\right).$$

所使用的 $\mathbf{B}$ 和 $\mathbf{D}$ 张量的分量在方程（11）中列出于 [31]。此外，

$$\mathcal{P} = \mathcal{P}_s + \epsilon_n\mathcal{P}_1 Y_n^m,$$

其中，$\mathcal{P}_s$ 和 $\mathcal{P}_1$ 分别为基态压力和表面扰动的贡献。

2.4. 边界条件

该系统的两个边界条件是：(i) 气泡壁处的牵引力，以及 (ii) 远场中的无应力条件。

与周围流体相比，气体或蒸气的惯性和黏度可以忽略不计 [5, 24]。线性化后，牵引力的径向法向分量和远场边界条件为

$$\sigma_{rr}|_{r=R(1+\epsilon_n Y_n^m)} = -p_\mathrm{b} + \frac{2\gamma}{R} + \frac{(n+2)(n-1)\gamma}{R}\epsilon_n Y_n^m, \quad (13a)$$

$$\sigma_{rr}\big|_{r\to\infty} = -p_\infty, \quad (13b)$$

分别，其中 γ 是两相之间的表面张力， p_b 是气泡内部压力， p_∞ 是远场压力。与[10, 24, 43], 类似，我们的试探形式缺少足够的自由度来施加切向应力连续性条件。

2.5. 运动方程

对方程（10）的径向分量积分，应用球面正交性（乘以 $\sin(\theta)Y_0^0$ 并对 θ 和 ϕ积分），再应用两个应力边界条件，可得 Rayleigh-Plesset方程：

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho_\mathrm{m}}\left(p_\mathrm{b} - p_\infty - \frac{2\gamma}{R} + S\right). \quad (14)$$

qKV模型的应力积分为

$$S = \frac{(3\alpha-1)G}{2}\left[5 - \lambda^{-4} - 4\lambda^{-1}\right] + 2\alpha G\left[\frac{27}{40} + \frac{1}{8}\lambda^{-8} + \frac{1}{5}\lambda^{-5} + \lambda^{-2} - 2\lambda\right] - \frac{4\mu\dot{R}}{R}, \quad (15)$$

其中 λ 是材料在气泡壁 $\lambda = R/R_o$处的球面伸长比。将方程（10）乘以$\sin(\theta)Y_n^m$并应用正交性，可得：

$$\ddot{\epsilon}_n + \eta\dot{\epsilon}_n + \xi\epsilon_n = 0, \quad (16)$$

当前模型以及 Yang 等人 [43] 和 Murakami 等人 [24] 的未考虑旋转修正的模型，其系数 η 和 ξ 见[31]。由于忽略了 $\mathcal{O}(\epsilon_n^2)$ 及更高阶项，各模态彼此解耦，仅取决于径向运动。这里，我们仅考虑 Murakami 等人 [24] 和 Prosperetti [30] 的无旋模型。

3. 线性化稳定性分析

在实验中，预测超声驱动下表面扰动增长的初始条件颇具挑战，因为它往往始于量级为 $\mathcal{O}(10^{-3})$ [24] 的种子。超声驱动终止后，扰动振幅会衰减至平衡态。衰减过程的初始条件较为简单，因为扰动振幅将具有有限振幅。考虑超声驱动引起的小幅径向振荡，气泡半径演化可近似为 $R(t) = R_o(1+\Delta\lambda(t))$，其中 $\Delta\lambda(t) = \lambda(t) - 1 = \mathcal{O}(\epsilon_n)$。气泡周围的压力为 $p_\infty = p_\mathrm{atm} + \mathscr{A}\cos(2\pi f t)$，其中 $\mathscr{A}$ 是驱动振幅， f 是频率。

线性化方程 (16) 关于小幅径向振荡，系数为

$$\eta_\mathrm{l} = \frac{2(n+2)(n+1)\mu}{\rho R_o^2}, \quad (17a)$$

$$\xi_\mathrm{l} = \omega_n^2 = \frac{2(n+2)(n+1)}{\rho R_o^2}\left(G + \frac{(n-1)\gamma}{2R_o}\right), \quad (17b)$$

其中，下标 l 表示线性化量， ω_n 为表面扰动模态的固有频率。

对于给定的材料性质、超声驱动和气泡平衡半径，预测最不稳定（主导）模态时满足参数共振条件 $2\omega_n/\omega_0 = 1$，其中 $\omega_0 = 2\pi f$ 为角向驱动频率。这一 1:2 共振条件源自 Mathieu 方程理论 [21]，并已通过非球形气泡实验得到验证 [37]。

给定初始有限振幅 $\epsilon_{n,\,0} = \epsilon_n(t=0)$ 和 $\dot{\epsilon}_n(t=0) = 0$, 线性化径向运动的扰动方程存在一个解析解：

$$\epsilon_n(t) = \epsilon_{n,0}\exp\left(-\frac{t\eta_\mathrm{l}}{2}\right)\left[\cosh\left(\frac{t\delta_\mathrm{l}}{2}\right) + \frac{\eta_\mathrm{l}}{\delta_\mathrm{l}}\sinh\left(\frac{t\delta_\mathrm{l}}{2}\right)\right], \quad (18)$$

where $\delta_\mathrm{l} = \sqrt{\eta_\mathrm{l}^2 - 4\xi_\mathrm{l}}$.

4. 解析模型比较

表 1 列出了[30], [24], [43], 的模型与本文模型之间的差异。当剪切模量为零时，Murakami 等人的模型 [24] 与 Prosperetti 的模型[30]等价。然而，Yang 等人的模型[43]和本文模型在剪切模量为零时并不会以这种方式简化。只有在线性化径向振荡且剪切模量为零的极限下，当前模型与 Prosperetti 的模型 [30]才等价，这可以通过涡量来解释。本文的扰动位移场是无旋的，但这并不能保证速度场或加速度场无旋。对方程（9a）中描述的速度取欧拉旋度，得到：

$$\nabla_\mathbf{x}\times\mathbf{v} = 6\epsilon_n\frac{n+2}{n+1}\frac{R^{5+n}\dot{R}}{r^{6+n}}\left(\frac{1}{\sin\theta}\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi}\hat{\mathbf{e}}_\theta - \frac{\partial Y_n^m}{\partial\theta}\hat{\mathbf{e}}_\phi\right). \quad (19)$$

如果径向运动是线性的或静态的，就不会产生涡量，因此无旋模型假设成立 [30]。然而，正如 [31], 所示，这一涡量残差会导致一个我们无法直接施加的涡量方程。Yang 等人 [43] 和 Murakami 等人 [24] 的模型都存在这一持续问题，导致动量平衡的 θ 和 ϕ分量遭到违反。要满足三个动量平衡方程，位移场的试探形式需要更多自由度。然而，

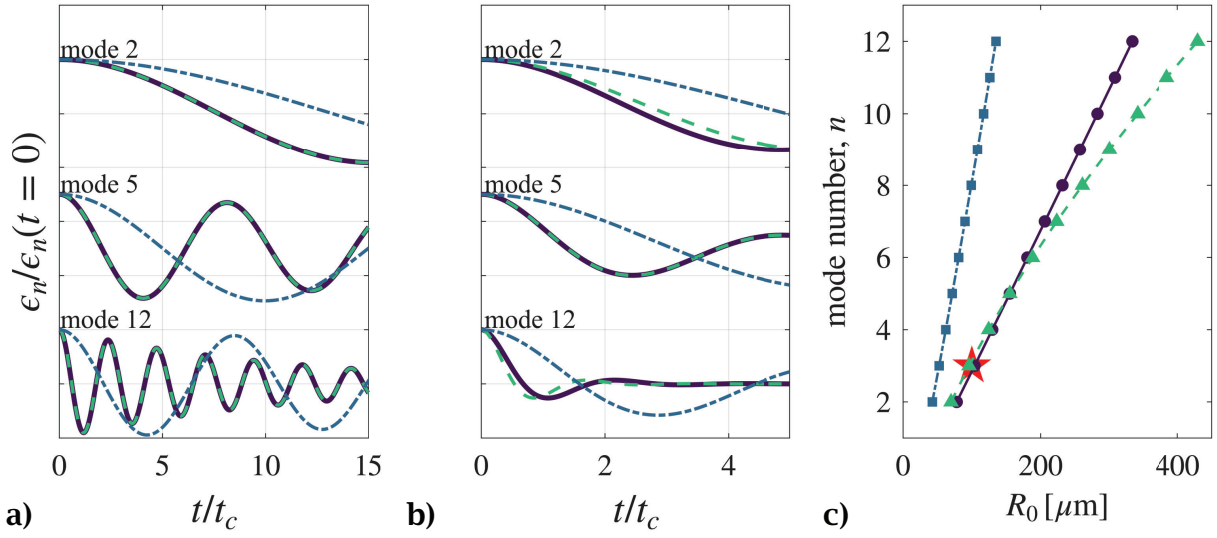

图2： 线性径向运动下的扰动演化：**a**）流体**b**）黏弹性固体，以及**c**）最不稳定模态预测。绿色虚线：Murakami 等人 [24]；浅蓝色点划线：Yang 等人 [43]；深蓝色实线：当前理论。

Prosperetti [30] 指出，对于黏性流体，梯度型试探形式的贡献是影响扰动幅值演化的主要因素。

在线性径向运动且零剪切模量的条件下，来自 Prosperetti [30]，、Murakami 等人 [24]，和本研究的系数 ξ_1 与 η_1 一致（见 [31]）。比较 Yang 等人 [43]，、Murakami 等人 [25]，的ξ_1 和 η_1，以及方程（17b）和方程（17a）可知，当运动学场一致时，μ 和G 的系数等价。当运动学场一致时，平衡半径的首阶幂次 R_o 与模态数的首阶幂次 n 在 ξ_1 中的倒数相匹配，因此最不稳定模态随 R_o线性变化。为展示各模型之间的等价性，我们考察水中的一个 200 μm 气泡（$\mu = 1\,\mathrm{mPa\cdot s}$ 和$\gamma = 72\,\mathrm{mN/m}$），并令其作静态径向运动。我们将模态 2、5 和 12 初始化为非平衡态，初始振幅为 0.1。图2 a）显示，当前模型与 Prosperetti [30]，的模型在此处 $t_c = R_{\max}\sqrt{\rho/p_\infty}$完全一致。Yang 等人[43] 的模型与当前模型之间的差异，源于角运动导致扰动模态固有频率中缺少因子 $\sqrt{n+1}$。纳入角运动后，由不可压缩条件得到的位移场解会使更多材料应变局限于气泡表面，从而解释了频率的升高。

采用相同的初始条件，我们模拟了软材料，其材料性质根据 Hamaguchi 和 Ando [12]进行标定，$G = 1.7\ \mathrm{kPa}$，$\mu = 14.1\ \mathrm{mPa\cdot s}$，并且 $\gamma = 40\,\mathrm{mN/m}$。结果如图2 b)所示。模型 [24] 在低模态数时低估振荡频率，在高模态数时则高估振荡频率。当前模型与 Murakami 等人提出的模型之间的频率差异[24] 可由 ξ_1 相对于平衡半径的标度关系解释，且

表1线性化气泡表面扰动模型的比较。

分析	角向运动	有限弹性	运动学一致性
Prosperetti [30]	✓	✘	✓
Murakami 等人[24]	混合	✓	✘
Yang 等人 [43]	✘	✓	✓
本研究	✓	✓	✓

模态数。图2 c)展示了 Murakami 等人预测的模态数与平衡半径之间的非线性标度关系。[24]。对于 $f = 28\,\mathrm{kHz}$ 和 $R_o \approx 100\mu\mathrm{m}$，观测到的最不稳定模态为 3，这是 [12] 所观察到的。我们发现，Murakami 等人的 [24] 模型和当前模型都正确预测第三模态为最不稳定模态。随着平衡半径增大、模态数随之增加，Murakami 等人提出的 ξ_1 模型 [24] 与当前模型之间的差异逐渐增大。

5. 方法

5.1. 实验

图3 展示了实验装置，与我们此前发表的研究一致 [2]。该装置适用于两项实验：（i）激光诱导惯性空化（LIC）后施加超声，以及（ii）LIC伴随大振幅径向振荡。在后一项实验中，未使用超声换能器。图像使用基于边缘检测的 MATLAB（MathWorks，美国马萨诸塞州）处理程序进行处理。单个 4 ns 用户可调频率的倍频调Q 532 nm Nd:YAG 激光器（Continuum Minilite II，美国加利福尼亚州圣何塞）发出的光束被对准并射入 10X/0.25 NA 高功率微光斑聚焦物镜（LMH-10X-532；Thorlabs，美国新泽西州纽顿）。激光束

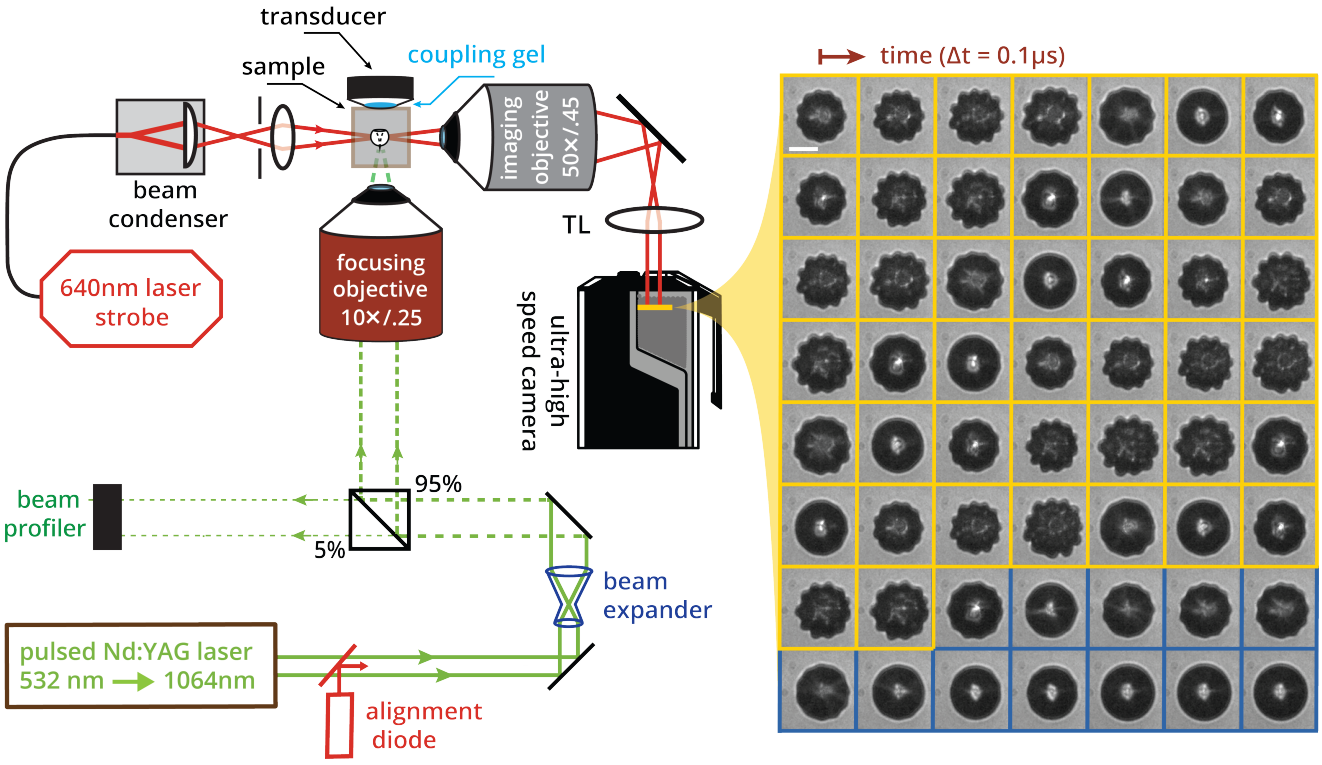

图3： 实验装置（简化绘制）利用高能激光产生微空化，通过自制的直径为10 mm的换能器激发表面振荡，并以每秒 10^7 帧的速度记录 1 ms 空化后的动力学过程。以玉米色勾边的帧显示驱动超声开启的时段，而以蓝色勾边的帧显示超声未开启的时段。比例尺：20 μm。

通过三面宽带介质镜（BB1-E02；Thorlabs）和三面短通二向色镜进行导引。为便于对准，将一面二向色镜（DMSP605；Thorlabs）与准直连续波激光二极管（CPS635R；Thorlabs）对准脉冲光束，以提供可见的指引。在到达聚焦物镜前，使用 2X 固定倍率扩束器（GBE02-A；Thorlabs）扩展准直光束，使其与物镜的后孔径匹配，并降低光学损伤风险。第二面二向色镜（HBSY052；Thorlabs）滤除红外波长，并将不需要的光谱成分导向光束收集器（LB2；Thorlabs）。

对于超声驱动实验， 1 ms 空化诱发后，通过安装在XY平移台上的直径为 10 mm 的圆柱形声换能器实现小幅径向振荡。超声驱动以 750 kHz 和 720 kPa的参数施加一个包含50个周期的正弦波，激发先前产生的气泡表面振荡。采用超高速成像相机（HPV-X2；岛津，日本京都）以每秒 10^7 f帧的速度捕捉气泡振荡过程。

这些LIC实验中的非球形气泡属于Yang 等人此前发表数据构成的更大数据集的一部分。[40]有关实验装置差异和凝胶制备的更多细节见 [40, 31]。

5.2. 数据处理

采用谱插值方法，从沿气泡表面的数据点中提取扰动振幅 [31]。在 MATLAB 中，将全局搜索方法（`bayesopt`）与局部搜索方法（`lsqcurvefit`）混合使用，以根据有关材料性质的实验数据 μ， G 以及 α 对当前模型进行优化。对于较小的径向振荡，应变硬化参数 α 不会对动力学产生影响，因此在优化中将其省略。对于明胶凝胶和聚丙烯酰胺，表面张力分别设为 32 mN/m [17] 和 56 mN/m [43]。

6. 结果与讨论

6.1. 小振幅径向振荡

图4 展示了：a）数据和模型预测，b）和 c）提取的参数，以及 d）最不稳定模态随平衡半径的变化，针对 10%明胶凝胶。5%明胶凝胶的结果见 [31]。每次实验中黏度和弹性的标定值列于 [31]。根据 方程（18） 标定得到的剪切模量平均值分别为 $\underline{G}_{5\%} = 2.61$ kPa 和 $\underline{G}_{10\%} = 7.81$ kPa，对应于5% 和 10% 明胶凝胶。图5 汇总了若干选定研究中不同明胶凝胶组成的剪切模量。本研究标定的剪切模量平均值及其随组成的变化规律与

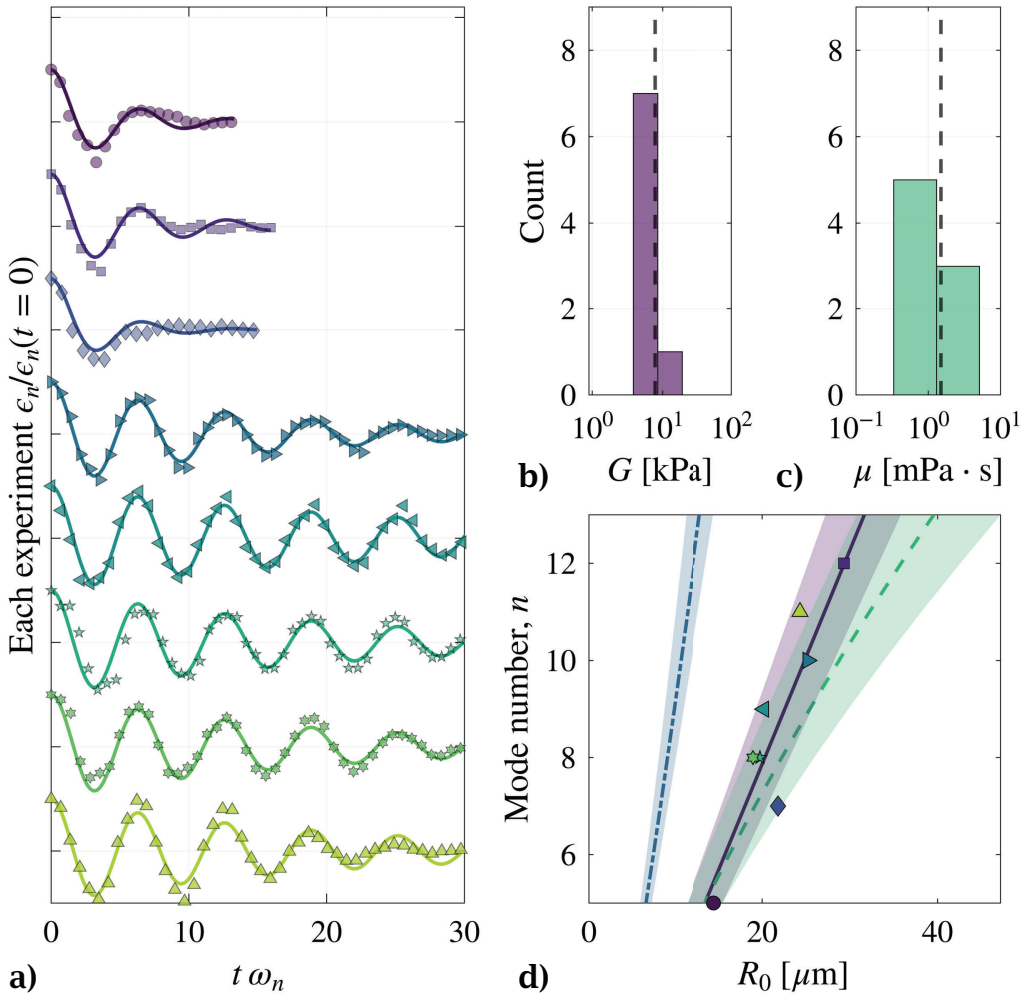

图4：a）最不稳定模态的归一化振幅随时间的演变，适用于 10% 明胶；实验数据（符号）和模型预测（线条），不同颜色对应不同实验。**b**）和**c**）标定的剪切模量和黏度的直方图。所有标定值见 [31] 。**d**）最不稳定模态随平衡半径的变化。符号和紫色阴影区域/线条分别表示本文的实验数据和当前理论；绿色表示 Murakami 等人 [24] 的模型；钢蓝色表示 Yang 等人 [43] 的模型。平均预测值周围的阴影区域是根据标定剪切模量分布的标准差得到的。

文献中先前测得的数值一致。本研究中的两种明胶凝胶，其标定黏度均接近水的黏度，$\mu_{5\%} = 1.6$ mPa · s 并且 $\mu_{10\%} = 1.5$ mPa · s比文献中的数值低一个数量级 [31]。

除了 [1], 文献中的实验均在低（近似准静态）应变率下进行。Abeid 等人 [1]的研究表明，使用 IMR 时，明胶凝胶在承受高应变率时会变得更硬。然而，由于材料在微空化流变测量过程中呈现一系列应变率，这些实验得出的材料性质实际上是应变和应变率的平均值。对于当前的实验，可以使用文中给出的应变率张量精确计算应变率 [31]。在 图4中

$$\dot{R} \approx 0 \quad ,$$

我们假设扰动呈轴对称。在这些假设下，最大应变率张量分量

对于时间和空间 (r, θ, ϕ) 为，

$$\max_{\psi, \dot{R}\approx 0} [\mathbf{D}] = \left| D_{11}|_{r=\mathscr{R}(\theta=0,\phi)} \right| = (n+2)\sqrt{\frac{2n+1}{4\pi}}\dot{\epsilon}_n.$$

随后，我们计算时间平均最大应变率，

$$\frac{\overline{D}_{\max}}{(n+2)}\sqrt{\frac{4\pi}{2n+1}} = \int_{t_i}^{t_f} \dot{\epsilon}_n dt = \frac{\epsilon_n(t=0)}{\Delta t},$$

其中 Δt 表示假设$\epsilon_n(\Delta t) \approx 0$时的实验时间窗口。我们针对每次实验计算该值，发现 5% 和 10% 明胶凝胶的平均值分别为 $0.17 \pm 0.1 \times 10^6$ 和 $0.19 \pm 0.07 \times 10^6\ \mathrm{s}^{-1}$ 。与文献相比，我们标定的黏度值存在差异，这可能是由于这些实验持续处于高应变率下，说明明胶的黏度可能依赖于应变率。

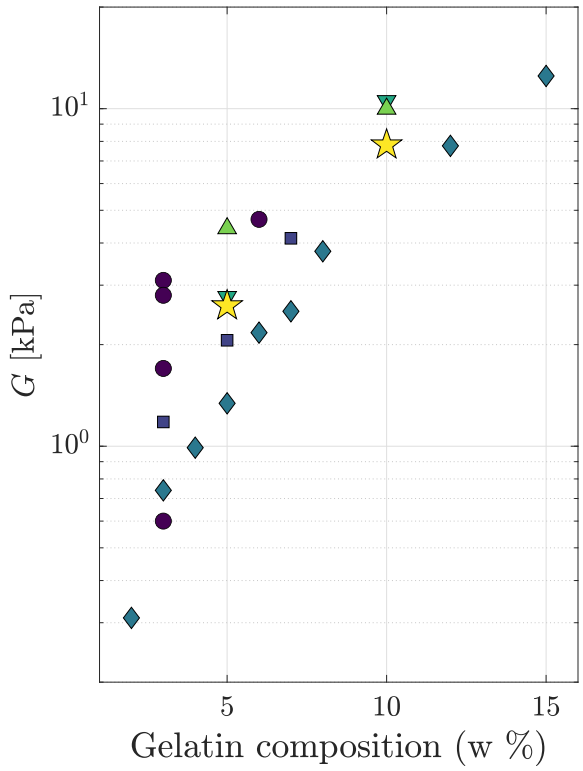

图5： 文献中明胶凝胶剪切模量随组成的变化，并与本研究进行比较。紫色圆圈：Hamaguchi 和 Ando [12]；深蓝色方块：Yoon 等人 [44]；钢蓝色菱形：Bot 等人 [4]；深绿色倒三角：Abeid 等人 [1] 准静态；浅绿色正三角：Abeid 等人 [1] 高应变率；黄色星形：本研究。

最后，我们将不同模型预测的最不稳定模态与图 4 d）中所示的弹性标定值进行比较。我们使用均值和 ±标准差(G) 求解参数失稳条件，进而得到各模型的预测区域。正如预期，实验数据恰好落在本文理论预测的区域内。此外，线性实验数据表明，与 Murakami 等人的模型相比，实验结果与本文模型更加吻合。 [24]。

6.2. 大振幅径向振荡

本研究考察了四次实验试验，其中气泡表面在最大半径处呈现小幅扰动[31]。 图6a展示了一组径向和表面扰动模态的实验数据及标定模型预测。标定模型优化和测试数据中的模态分别见帧 b-f 和 g-h。塌缩前，标定模型与实验数据吻合。

在塌缩点附近，扰动预测与实验数据出现偏差。这有三种解释。首先，尽管扰动振幅极小，但其系数 η 和 ξ 在塌缩附近会变大，因为它们取决于 $\dot{R}$ 和 $\ddot{R}$。这会导致塌缩附近的 $\dot{\epsilon}_n$ 和 $\ddot{\epsilon}_n$ 变大。高阶模型能够捕捉不同扰动模态之间的相互作用项；当其时间导数的幅值较大时，这些相互作用项十分重要 [35]。其次，由于相机的分辨率恒定，随着气泡变小，用于构建气泡表面的数据会变得稀疏。第三，通过成像，我们只能获取非球形气泡表面的二维投影，并假设扰动位于该平面内。最大半径附近面外扰动的变异性较低（由 $\dot{R}$的较小取值可知），这或许可以解释实验早期为何吻合：此时径向运动近似为相对于最大半径的线性偏差。

在反演表征过程中引入非球形扰动，可进一步完善校准后的材料属性值。当前标定的材料参数为 $\alpha = 0.083 \pm 0.048$ 和 $\mu = 0.15 \pm 0.073$ Pa s，见[31]，其中列出了各数据集对应的校准后材料属性。平均黏度与此前的标定值 20% 相差不到 $\mu = 0.186 \pm 0.194$ Pa s；此前的标定值来自 Yang 等人 [40]。另一方面，平均应变硬化参数与此前的标定值 80% 相差超过 $\alpha = 0.48 \pm 0.14$。这种差异是由于 Yang 等人的研究仅针对首次塌缩进行了校准 [40]。

7. 结论

我们提出了一种模型，用于描述应变硬化黏弹性材料中气泡表面失稳的演化。在剪切模量为零的线性径向振荡状态下，我们的模型与[30]的无旋模型一致。我们将模型与两组实验进行比较：一组是在 5%和 10% 明胶溶液中由超声驱动产生的小幅径向振荡，另一组是在聚丙烯酰胺中由 LIC 产生的大幅径向振荡。实验数据表明，在黏弹性材料中，最不稳定模态与平衡半径呈线性关系，而这一关系只有现有理论能够预测。LIC 气泡实验显示，在最大半径处出现了微小的表面扰动，并且这些扰动在塌缩阶段持续增长。尽管实验仅能从二维视角观测气泡，且扰动采用线性方式建模，但实验数据与模型结果吻合。我们针对不同材料和动力学状态验证了模型，涵盖从小幅径向振荡到存在非球形扰动的大幅惯性塌缩。本研究采用的建模方法只需考虑不同的柯西应力张量，便可轻松应用于其他材料模型。此外，对于大幅径向振荡的情况，本文所述理论的单次模拟在本地运行约需 1 分钟（Dell Alienware x15 R2，配备英特尔 CORE-i9）。相比之下，该问题的完整三维数值模拟在 48 个 CPU 核心上运行可能超过 48 小时（莱布尼茨超级计算中心的 GCS Supercomputer SuperMUC-NG）[26]。未来的研究将通过调节驱动频率和气泡尺寸，探究利用非球形超声驱动气泡在不同应变率范围内进行表征。

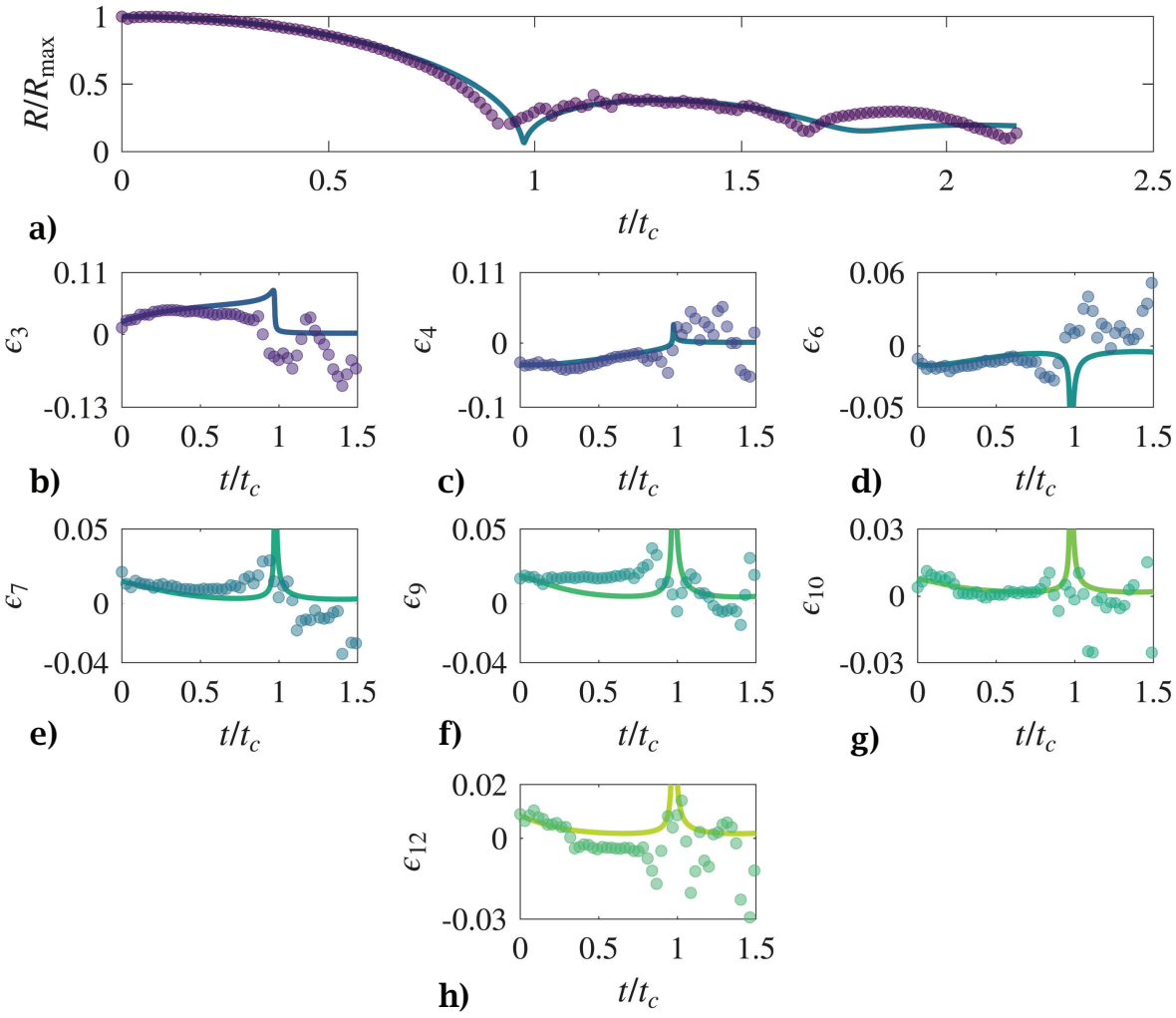

图6： 非球形激光诱导气泡**a)**平均半径随时间的变化，**b-h)**第三、第四、第六、第七、第九、第十和第十二模态的振幅随时间的变化。圆圈：实验数据；曲线：标定模型预测。

8. 致谢

MRJ 感谢美国国防部通过 DEPSCoR计划提供支持，资助编号为 FA9550- 23-1-0485（项目经理 Timothy Bentley博士）。JBE、MRJ 和 JY 衷心感谢美国国家科学基金会（NSF）分别通过 2232426、2232427和2232428号资助提供支持。资助机构未参与研究设计、数据收集、分析和解释、报告撰写，也未参与决定是否提交本文发表。文中表达的意见、研究结果、结论或建议均属于作者观点，并不一定反映资助机构的立场。

CRediT 作者贡献声明

Sawyer Remillard: 概念构思、数据整理、正式分析、调查、方法学、软件、验证、撰写——初稿准备、撰写——审阅与编辑。**Bachir A. Abeid:** 数据整理、调查、方法学、撰写——审阅与编辑。**TimothyL. Hall:** 方法学、资源、撰写——审阅与编辑。**Jonathan R. Sukovich:** 概念构思、方法学、资源、撰写——审阅与编辑。**Jacob Baker:**撰写——初稿准备、撰写——审阅与编辑。**Jin Yang:** 概念构思、数据整理、经费获取、撰写——审阅与编辑。**JonathanB.Estrada:** 概念构思、经费获取、调查、方法学、资源、监督、撰写——审阅与编辑。**Mauro Rodriguez Jr.:** 概念构思、经费获取、调查、方法学、项目管理、资源、监督、撰写——初稿、撰写——审阅与编辑。

参考文献

[1] Abeid, B.A., Fabiilli, M.L., Aliabouzar, M., Estrada, J.B.,2024a. 软材料中光诱导液滴空化超高速动力学的实验与数值研究。《生物医学材料力学行为》160, 106776。

[2] Abeid, B.A., Fabiilli, M.L., Estrada, J.B., Aliabouzar, M., 2024b. 软生物材料中声学液滴汽化的超高速动力学：黏弹性、频率和体相沸点的影响。Ultrason. Sonochem.，106754–1–11。[3] Bailey, M.R., Khokhlova, V.A., Sapozhnikov, O.A., Kargl, S.G., Crum, L.A., 2003. 超声治疗效应的物理机制（综述）。Acoustical Physics 49, 369–388。[4] Bot, A., van Amerongen, I.A., Groot, R.D., Hoekstra, N.L., Agterof, W.G., 1996. 明胶凝胶的大变形流变学。Polymer Gels and Networks 4, 189–227。[5] Brennen, C.E., 1995. 空化与气泡动力学。Oxford University Press。[6] Brujan, E.A., Vogel, A., 2006. 组织仿体中纳秒光学击穿产生的应力波发射与空化气泡动力学。《流体力学杂志》558, 281–308。[7] Cleve, S., Guédra, M., Inserra, C., Mauger, C., Blanc-Benon, P., 2018. 高振幅声场中由气泡聚并触发的可控轴对称性表面模态。Phys. Rev. E 98, 033115–1–8。[8] Estrada, J.B., Barajas, C., Henann, D.L., Johnsen, E., Franck, C., 2018. 通过惯性空化表征软材料的高应变率特性。Journal of the Mechanics and Physics of Solids 112, 291–317。[9] Gaudron, R., Murakami, K., Johnsen, E., 2020. 由线性和非线性弹性介质包围的气腔的形状稳定性。J. Mech. Phys. Solids 143, 104047。[10] Gaudron, R., Warnez, M.T., Johnsen, E., 2015. 具有非线性弹性的黏弹性介质中的气泡动力学。J. Fluid Mech. 766, 54 75–。[11] Guédra, M., Cleve, S., Mauger, C., Blanc-Benon, P., Inserra, C., 2017. 失稳阈值以上非球形微气泡振荡的动力学。Phys. Rev. E 96, 063104–1–8。[12] Hamaguchi, F., Ando, K., 2015. 超声辐照下黏弹性材料中气泡的线性振荡。《流体物理学》27, 113103–1–17。[13] Harkin, A.A., Kaper, T.J., Nadim, A., 2013. 非球形气泡的形状模态与体积模态之间的能量传递。《流体物理学》25, 062101–1–11。[14] Hilgenfeldt, S., Lohse, D., Brenner, M.P., 1996. 声致发光气泡的相图。《流体物理学》8, 2808–2826。[15] Johnsen, E., Colonius, T., 2009. 非球形气泡塌缩的数值模拟。《流体力学杂志》629, 231–262。[16] Kheirolomoom, A., Dayton, P.A., Lum, A.F., Little, E., Paoli, E.E., Zheng, H., Ferrara, K.W., 2007. 与脂质体偶联的声学活性微气泡：一种拟议药物递送载体的表征。《控释杂志》118, 275–284。[17] Kikuchi, H., Keiji Sakai, K.S., Kenshiro Takagi, K.T., 1991. 明胶凝胶上的表面张力波。Japanese Journal of Applied Physics 30, L1668–1–3。[18] Knowles, J.K., 1977. 一类不可压缩弹性固体中裂纹尖端附近的有限反平面剪切场。International Journal of Fracture 13, 611–639。[19] Lajoinie, G., Luan, Y., Gelderblom, E., Dollet, B., Mastik, F., Dewitte, H., Lentacker, I., de Jong, N., Versluis, M., 2018. 非球形振荡驱动靶向微气泡的超声介导释放。Communications Physics 1, 1–9。[20] Lauterborn, W., Bolle, H., 1975. 固体边界附近空化气泡塌缩的实验研究。《流体力学杂志》72, 391–399。[21] Liu, Y., Sugiyama, K., Takagi, S., Matsumoto, Y., 2012. 超声压力波诱发的包膜气泡表面失稳。《流体力学杂志》691, 315–340。[22] Mancia, L., Vlaisavljevich, E., Xu, Z., Johnsen, E., 2017. 预测组织对治疗性超声机械空化损伤的易感性。Ultrasound Med. Biol. 43, 1421–1440。[23] Maxwell, A.D., Cain, C.A., Duryea, A.P., Yuan, L., Gurm, H.S., Xu, Z., 2009. 使用脉冲超声空化治疗进行无创溶栓——组织碎化术。Ultrasound in Medicine & Biology 35, 1982–1994。[24] Murakami, K., Gaudron, R., Johnsen, E., 2020. 软固体中气泡的形状稳定性。《超声与声化学》67, 105170–1–12。[25] Murakami, K., Yamakawa, Y., Zhao, J., Johnsen, E., Ando, K., 2021. 明胶凝胶中球形气泡的超声诱导非线性振荡。《流体力学杂志》924, A38–1–17。[26] Nagy, D., Adami, S., Hegedűs, F., 2025. 使用 alpaca 可压缩多相流求解器对球形和非球形气泡动力学进行直接数值模拟。《国际多相流杂志》191, 105287–1–24。[27] Ogden, R.W., Sinclair, G., 1984. 《非线性弹性变形》。E. Horwood, Halsted Press。[28] Plesset, M.S., 1954. 球对称流体流动的稳定性。《应用物理学杂志》25, 96–98。[29] Plesset, M.S., Prosperetti, A., 1977. 《气泡动力学与空化》。Annu. Rev. Fluid Mech. 9, 145–185。[30] Prosperetti, A., 1977. 黏性效应对受扰球形流动的影响。Q. Appl. Math. 34, 339–352。[31] Remillard, S., Abeid, B.A., Hall, T.L., Sukovich, J.R., Baker, J., Yang, J., Estrada, J.B., Rodriguez Jr., M., 2026. 补充信息。《极端力学快报》。[32] Saint-Michel, B., Garbin, V., 2020. 屈服应力流体中的声学气泡动力学。《软物质》16, 10405–10418。[33] Shaw, S.J., 2006. 轴对称变形下气泡的平移与振荡。《流体物理学》18, 072104–1–15。[34] Shaw, S.J., 2025年a. 时变压力场双频驱动下气泡的形状变形。《流体物理学》37, 022128 1 11– –。[35] Shaw, S.J., 2025年b. 声学驱动气体微泡的形状畸变。《国际多相流杂志》184, 105074–1–9。[36] Tinkov, S., Winter, G., Coester, C., Bekeredjian, R., 2010. 用于靶向肿瘤治疗的新型阿霉素负载磷脂微泡：第一部分——制剂开发与体外表征。《控释杂志》143, 143–150。[37] Versluis, M., Goertz, D.E., Palanchon, P., Heitman, I.L., van der Meer, S.M., Dollet, B., de Jong, N., Lohse, D., 2010. 通过超声参数驱动激发的微泡形状振荡。Phys. Rev. E 82, 026321–1–6。[38] Vlaisavljevich, E., Lin, K.W.K.W., Warnez, M.T., Singh, R., Mancia, L., Putnam, A.J., Johnsen, E., Cain, C., Xu, Z., 2015. 组织刚度、超声频率和压力对组织碎化术诱导空化气泡行为的影响。Phys. Med. Biol. 60, 2271–2292。[39] Xu, Z., Raghavan, M., Hall, T.L., Chang, C.w., Mycek, M.A., Fowlkes, J.B., Cain, C.A., 2007. 脉冲超声空化治疗（组织碎化术）所产生气泡云的高速成像。《IEEE超声学、铁电学与频率控制汇刊》54, 2091–2101。[40] Yang, J., Cramer, H.C., Franck, C., 2020. 从剧烈坍塌的空化气泡中提取非线性黏弹性材料性质。《极端力学快报》39, 100839–1–6。[41] Yang, J., Cramer III, H.C., Bremer, E.C., Buyukozturk, S., Yin, Y., Franck, C., 2022. 通过惯性微空化对琼脂糖水凝胶及其固有动态失稳进行力学表征，涉及弹道至超高应变率。《极端力学快报》51, 101572–1–8。[42] Yang, J., Cramer III, H.C., Franck, C., 2021年a. 惯性微空化过程中软黏弹性材料中的动态褶皱应变局域化与失稳，载于：《材料的动态行为》，第1卷：2020年实验与应用力学年度会议论文集，Springer，第45–49页。[43] Yang, J., Tzoumaka, A., Murakami, K., Johnsen, E., Henann, D.L., Franck, C., 2021年b. 预测黏弹性软物质中惯性空化气泡的复杂非球形失稳形态。Phys. Rev. E 104, 045108–1–9。[44] Yoon, S., Aglyamov, S.R., Karpiouk, A.B., Kim, S., Emelianov, S.Y., 2011. 黏弹性介质力学性质的估算

利用激光诱导微气泡，并通过声辐射力对其进行探测。《美国
声学学会期刊》130, 2241–2248。

1. 运动学一致的解析模型

线性化变形梯度张量为

$$\boldsymbol{F}=\frac{\partial \boldsymbol{x}}{\partial \boldsymbol{x}_o}=\begin{bmatrix} \frac{\partial r}{\partial r_o} & \frac{1}{r_o}\frac{\partial r}{\partial \theta_o} & \frac{1}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial r}{\partial \phi_o} \\ r\frac{\partial \theta}{\partial r_o} & \frac{r}{r_o}\frac{\partial \theta}{\partial \theta_o} & \frac{r}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial \theta}{\partial \phi_o} \\ r\sin\theta\frac{\partial \phi}{\partial r_o} & \frac{r\sin\theta}{r_o}\frac{\partial \phi}{\partial \theta_o} & \frac{r\sin\theta}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial \phi}{\partial \phi_o} \end{bmatrix}= \begin{bmatrix} \frac{\partial(r_s+\epsilon_n r_1)}{\partial r_o} & \frac{\epsilon_n}{r_o}\frac{\partial r_1}{\partial \theta_o} & \frac{\epsilon_n}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial r_1}{\partial \phi_o} \\ \epsilon_n r_s\frac{\partial \theta_1}{\partial r_o} & \frac{r_s}{r_o}+\epsilon_n\left(\frac{r_1}{r_o}+\frac{r_s}{r_o}\frac{\partial \theta_1}{\partial \theta_o}\right) & \epsilon_n\frac{r_s}{r_o\sin\theta_o}\frac{\partial \theta_1}{\partial \phi_o} \\ \epsilon_n r_s\sin\theta_o\frac{\partial \phi_1}{\partial r_o} & \epsilon_n\sin\theta_o\frac{r_s}{r_o}\frac{\partial \phi_1}{\partial \theta_o} & \frac{r_s}{r_o}+\epsilon_n\left(\frac{r_1}{r_o}+\frac{r_s}{r_o}\left(\theta_1\cot\theta_o+\frac{\partial \phi_1}{\partial \phi_o}\right)\right) \end{bmatrix}. \tag{1}$$

线性化变形映射及其逆映射为

$$r(\psi_o,t)=r_s+\epsilon_n\frac{R^{n+3}}{r_s^{n+2}}Y_n^m(\theta_o,\phi_o), \tag{2a}$$

$$\theta(\psi_o,t)=\theta_o-\epsilon_n\frac{R^{n+3}}{(n+1)r_s^{n+3}}\frac{\partial}{\partial \theta_o}Y_n^m(\theta_o,\phi_o), \tag{2b}$$

$$\phi(\psi_o,t)=\phi_o-\epsilon_n\frac{R^{n+3}}{(n+1)r_s^{n+3}}\frac{1}{\sin^2\theta_o}\frac{\partial}{\partial \phi_o}Y_n^m(\theta_o,\phi_o). \tag{2c}$$

$$r_o(\psi,t)=\varrho-\epsilon_n\frac{R^{n+3}}{r^n\varrho^2}Y_n^m, \tag{3a}$$

$$\theta_o(\psi,t)=\theta+\epsilon_n\frac{R^{n+3}}{(n+1)r^{n+3}}\frac{\partial}{\partial \theta}Y_n^m, \tag{3b}$$

$$\phi_o(\psi,t)=\phi+\epsilon_n\frac{R^{n+3}}{(n+1)r^{n+3}}\frac{1}{\sin^2\theta}\frac{\partial}{\partial \phi}Y_n^m, \tag{3c}$$

分别为，其中 $\varrho=\left(r^3-R^3+R_o^3\right)^{1/3}$。线性化欧拉速度和加速度为

$$v_r=\frac{R^2\dot{R}}{r^2}+\frac{R^{n+2}}{r^{n+5}}\left(\epsilon_n\dot{R}\left((n+3)r^3-nR^3\right)+r^3R\dot{\epsilon}_n\right)Y_n^m, \tag{4a}$$

$$v_\theta=-\frac{R^{n+2}}{(n+1)r^{n+5}}\left(\epsilon_n\dot{R}(n+3)\left(r^3-R^3\right)+r^3R\dot{\epsilon}_n\right)\frac{\partial Y_n^m}{\partial \theta}, \tag{4b}$$

$$v_\phi=\frac{R^{n+2}}{\sin\theta(n+1)r^{n+5}}\left(\epsilon_n\dot{R}(n+3)\left(r^3-R^3\right)+r^3R\dot{\epsilon}_n\right)\frac{\partial Y_n^m}{\partial \phi}, \tag{4c}$$

$$\begin{aligned} a_r=&\frac{2R\dot{R}^2+R^2\ddot{R}}{r^2}-\frac{2R^4\dot{R}^2}{r^5}+\frac{R^{n+1}}{r^{n+8}}\Big[r^3R\left(\epsilon_n\left((n+3)r^3-nR^3\right)\ddot{R}+r^3R\ddot{\epsilon}_n\right)\\ &+2r^3R\dot{R}\dot{\epsilon}_n\Big((n+3)r^3-(n+2)R^3\Big)+\epsilon_n\dot{R}^2\left((n+2)(n+3)r^6-2(n(n+6)+6)r^3R^3+n(n+7)R^6\right)\Big]Y_n^m, \end{aligned} \tag{5a}$$

$$a_\theta = -\frac{R^{n+1}}{(n+1)r^{n+8}}\Bigg(\epsilon_n(n+3)\left(r^3-R^3\right)\left(\left((n+2)r^3-(n+4)R^3\right)\dot{R}^2+r^3R\ddot{R}\right) + r^3R\left(2\left((n+3)r^3-(n+2)R^3\right)\dot{R}\dot{\epsilon}_n+r^3R\ddot{\epsilon}_n\right)\Bigg)\frac{\partial Y_n^m}{\partial\theta}, \tag{5b}$$

$$a_\phi = -\frac{R^{n+1}}{\sin\theta(n+1)r^{n+8}}\Bigg(\epsilon_n(n+3)\left(r^3-R^3\right)\left(\left((n+2)r^3-(n+4)R^3\right)\dot{R}^2+r^3R\ddot{R}\right) + r^3R\left(2\left((n+3)r^3-(n+2)R^3\right)\dot{R}\dot{\epsilon}_n+r^3R\ddot{\epsilon}_n\right)\Bigg)\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi}. \tag{5c}$$

1.1. 动量平衡的线性化量

给定线性化变形时，左柯西-格林变形张量为

$$\boldsymbol{B} = \begin{bmatrix} B_{11} & B_{12} & B_{13} \\ B_{12} & B_{22} & B_{23} \\ B_{13} & B_{23} & B_{33} \end{bmatrix}, \tag{6}$$

其中

$$B_{11} = \frac{\varrho^4}{r^4} - 2\epsilon_n\varrho\,\frac{R^{n+3}\left((n+2)r^3+n(R_o^3-R^3)\right)}{r^{n+7}}\,Y_n^m, \tag{7a}$$

$$B_{12} = \epsilon_n\,\frac{R^{n+3}}{r^{n+7}}\left(\frac{(n+3)\,\varrho^4}{n+1}+\frac{r^6}{\varrho^2}\right)\frac{\partial Y_n^m}{\partial\theta}, \tag{7b}$$

$$B_{13} = \epsilon_n\,\frac{R^{n+3}}{r^{n+7}}\left(\frac{(n+3)\,\varrho^4}{n+1}+\frac{r^6}{\varrho^2}\right)\csc\theta\,\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi}, \tag{7c}$$

$$B_{22} = \frac{r^2}{\varrho^2} + 2\epsilon_n\,\frac{R^{n+3}}{r^{n+1}}\left(\frac{r^3}{\varrho^5}\,Y_n^m - \frac{1}{(n+1)\,\varrho^2}\,\frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta^2}\right), \tag{7d}$$

$$B_{23} = \frac{2\epsilon_n\,R^{n+3}}{(n+1)\,r^{n+1}\,\varrho^2}\,\csc\theta\left(\cot\theta\,\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi} - \frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta\partial\phi}\right), \tag{7e}$$

$$B_{33} = \frac{r^2}{\varrho^2} + 2\epsilon_n\,\frac{R^{n+3}}{r^{n+1}}\left(\frac{(n+1)r^3+n(R_o^3-R^3)}{\varrho^5}\,Y_n^m + \frac{1}{(n+1)\,\varrho^2}\,\frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta^2}\right). \tag{7f}$$

利用欧拉速度，计算其空间梯度，并将其与转置矩阵取平均，即可得到应变率张量，

$$\boldsymbol{D} = \begin{bmatrix} D_{11} & D_{12} & D_{13} \\ D_{12} & D_{22} & D_{23} \\ D_{13} & D_{23} & D_{33} \end{bmatrix}, \tag{8}$$

其中

$$D_{11} = -\frac{2R^2\dot{R}}{r^3} - \frac{R^{n+2}}{r^{n+6}}\left(\left((n+2)(n+3)r^3-n(n+5)R^3\right)\,\epsilon_n\dot{R}+(n+2)r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right)\,Y_n^m, \tag{9a}$$

$$D_{12} = \frac{R^{n+2}}{2(n+1)r^{n+6}}\left(\left((n+2)(n+3)r^3 - (n(n+5)+9)R^3\right)\epsilon_n\dot{R} + (n+2)r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right)\frac{\partial Y_n^m}{\partial\theta}, \tag{9b}$$

$$D_{13} = \frac{R^{n+2}}{2(n+1)r^{n+6}}\left(\left((n+2)(n+3)r^3 - (n(n+5)+9)R^3\right)\epsilon_n\dot{R} + (n+2)r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right)\csc\theta\,\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi}, \tag{9c}$$

$$D_{22} = \frac{R^2\dot{R}}{r^3} + \frac{R^{n+2}}{r^{n+6}}\left[\left((n+3)r^3 - nR^3\right)\epsilon_n\dot{R} + r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right]Y_n^m - \frac{1}{n+1}\left((n+3)\epsilon_n(r^3-R^3)\dot{R} + r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right)\frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta^2}, \tag{9d}$$

$$D_{23} = \frac{R^{n+2}}{(n+1)\,r^{n+6}}\csc\theta\left((n+3)\epsilon_n(r^3-R^3)\dot{R} + r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right)\left(\cot\theta\,\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi} - \frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta\partial\phi}\right), \tag{9e}$$

$$\begin{aligned} D_{33} = {} & \frac{R^2\dot{R}}{r^3} + \frac{R^{n+2}}{r^{n+6}}\left(\epsilon_n\dot{R}\left((n+1)(n+3)r^3 - n(n+4)R^3\right) + (n+1)r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right)Y_n^m \\ & + \frac{1}{n+1}\left((n+3)\epsilon_n(r^3-R^3)\dot{R} + r^3R\,\dot{\epsilon}_n\right)\frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta^2}. \end{aligned} \tag{9f}$$

为计算材料在实验过程中承受的应变率，我们对气泡壁处的应变率张量进行评估，

$$\boldsymbol{D}|_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)} = \begin{bmatrix} D_{11} & D_{12} & D_{13} \\ D_{12} & D_{22} & D_{23} \\ D_{13} & D_{23} & D_{33} \end{bmatrix}_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)}, \tag{10}$$

其中

$$D_{11}|_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)} = -\frac{2\dot{R}}{R} - (n+2)\dot{\epsilon}_n Y_n^m, \tag{11a}$$

$$D_{12}|_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)} = \frac{-3\epsilon_n\dot{R} + (n+2)R\dot{\epsilon}_n}{(n+1)R}\frac{\partial Y_n^m}{\partial\theta}, \tag{11b}$$

$$D_{13}|_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)} = \frac{-3\epsilon_n\dot{R} + (n+2)R\dot{\epsilon}_n}{(n+1)R}\frac{1}{\sin\theta}\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi}, \tag{11c}$$

$$D_{22}|_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)} = \frac{\dot{R}}{R} + \dot{\epsilon}_n\left(Y_n^m - \frac{1}{n+1}\frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta^2}\right), \tag{11d}$$

$$D_{23}|_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)} = \frac{\dot{\epsilon}_n}{(n+1)}\frac{1}{\sin\theta}\left(\cot\theta\frac{\partial Y_n^m}{\partial\phi} - \frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\phi\,\partial\theta}\right), \tag{11e}$$

$$D_{33}|_{r=\mathscr{R}(\theta,\phi)} = \frac{\dot{R}}{R} + \frac{\dot{\epsilon}_n}{(n+1)}\left((n+1)^2\,Y_n^m - \frac{\partial^2 Y_n^m}{\partial\theta^2}\right), \tag{11f}$$

1.2. 扰动演化方程的系数

阻尼　　g 系数和非线性扰动演化方程的自然频率平方 a　　re

$$\eta = \frac{4\,(5+2n)}{(4+n)}\frac{\dot{R}}{R} + \frac{2(n+1)(n+2)}{\rho R^2}\mu, \tag{12}$$

$$\xi = 6\frac{n+2}{n+4}\frac{\dot{R}^2}{R^2} - \frac{n^2-n-8}{n+4}\frac{\ddot{R}}{R} + \frac{n(n+1)(7n+20)\dot{R}}{(n+6)\rho R^3}\mu + \frac{(n+1)(n-1)(n+2)\gamma}{\rho R^3} + \xi_{\mathrm{nH}}G + \xi_\alpha \alpha G, \tag{13}$$

其中

$$\begin{aligned}\xi_{\mathrm{nH}} = \frac{n+1}{\lambda^{11}(n+6)(n+9)(n+12)\,\rho\, R_o^2}\Bigg[&2\lambda^5\left(n^3+27n^2+234n+648\right)\left(-\lambda^6+2\lambda^3+n+1\right)\\ &+\lambda^3(\lambda^3-1)(n+13)\Big(108\lambda^6+(3\lambda^3-1)n^3+(2\lambda^6+35\lambda^3-9)n^2+2(15\lambda^6+43\lambda^3-7)n\Big)\\ &\times {}_2F_1\left[-\tfrac{1}{3},\tfrac{n}{3}+4;\tfrac{n}{3}+5;1-\tfrac{1}{\lambda^3}\right]+(\lambda^3-1)\Big(-108\lambda^9+(\lambda^3-1)^2n^4+(16\lambda^6-37\lambda^3+19)n^3\\ &+(-30\lambda^9+54\lambda^6-266\lambda^3+140)n+(-2\lambda^9+69\lambda^6-199\lambda^3+104)+n^2\Big)\,{}_2F_1\left[\tfrac{2}{3},\tfrac{n}{3}+4;\tfrac{n}{3}+5;1-\tfrac{1}{\lambda^3}\right]\Bigg],\end{aligned} \tag{14}$$

and

$$\begin{aligned}\xi_\alpha = \frac{n+1}{\lambda^{10}\rho R_o}\Bigg[&2\left(2\lambda^6-3\lambda^4+2\lambda^3+3\right)\left(\lambda^3-1\right)^2+2\left(\lambda^6-3\lambda^4+2\right)\left(2\lambda^3+n\right)+\frac{\lambda^2}{(n+6)(n+9)(n+12)}\left(\frac{1}{\lambda^3}-1\right)\\ &\times\Bigg[3\left(-2\lambda^9(n+6)(n+9)+\lambda^6n(n+1)(n+6)(n+9)-\lambda^3n(n+2)(n+7)(2n+19)+n(n+2)(n+7)(n+10)\right)\\ &\times {}_2F_1\left[\frac{2}{3},\frac{n}{3}+4;\frac{n}{3}+5;1-\frac{1}{\lambda^3}\right]-\lambda^3\Bigg(3(n+13)\left(-2\lambda^6(n+6)(n+9)-\lambda^3n(n(3n+35)+86)+n(n+2)(n+7)\right)\\ &\times {}_2F_1\left[-\frac{1}{3},\frac{n}{3}+4;\frac{n}{3}+5;1-\frac{1}{\lambda^3}\right]+(n+14)\Big(4\lambda^9(n+6)(n+9)+2\lambda^6(n+1)(n+2)(n+6)(n+9)\\ &-\lambda^3(n(n(n(4n+59)+229)+120)-324)+n(n(n(2n+33)+175)+318)\Big)\,{}_2F_1\left[-\frac{2}{3},\frac{n}{3}+4;\frac{n}{3}+5;1-\frac{1}{\lambda^3}\right]\Bigg)\\ &+2\Big(4\lambda^{12}(n+6)(n+9)+2\lambda^9(n+1)(n+2)(n+6)(n+9)+\lambda^6(n+1)(n+6)(n+9)(n(n+6)+6)\\ &-\lambda^3n(n(n(2n(n+25)+427)+1411)+1398)+n(n+2)(n+11)(n(n+13)+39)\Big)\,{}_2F_1\left[\frac{1}{3},\frac{n}{3}+4;\frac{n}{3}+5;1-\frac{1}{\lambda^3}\right]\Bigg]\Bigg],\end{aligned} \tag{15}$$

其中，${}_2F_1\left[\cdot\right]$ 是高斯超几何函数。

1.3. Yang 等人的扰动演化方程系数

Yang 等人 [7] 和 Murakami 等人 [5] 的工作均采用有量纲扰动振幅进行表述。为保持一致性，我们考虑有量纲振幅 $a_n = \epsilon_n R$。Yang 等人[7] 模型的系数为

$$\eta = 5\frac{\dot{R}}{R} + 4\frac{\mu}{\rho R^2} + \frac{n(n+1)\mu}{3\rho R^2}, \tag{16}$$

$$\begin{aligned}\xi = 2\frac{\ddot{R}}{R} + 3\frac{\dot{R}^2}{R^2} + \frac{n(n+1)\dot{R}\mu}{\rho R^3} + \frac{(n+2)(n-1)\gamma}{\rho R^3} + \frac{G}{\rho R_o^2}\left(\frac{n(n+1)}{\lambda^2+\lambda+1}+\frac{2(1+\lambda^3)}{\lambda^6}\right) + \frac{G\alpha(\lambda-1)^2}{5\rho R_o^2(\lambda^2+\lambda+1)\lambda^{10}}\\ \times\Big[10(n(n+1)+2)\lambda^9+6(n(n+1)+10)\lambda^8+3(n(n+1)+30)\lambda^7+(n(n+1)+110)\lambda^6+120\lambda^5+120\lambda^4\\ +100\lambda^3+60\lambda^2+30\lambda+10\Big].\end{aligned} \tag{17}$$

线性化后，

$$\eta_1 = \frac{(n(n+1)+12)\,\mu}{3\rho R_o^2}, \qquad \xi_1 = \omega_n^2 = \frac{(n(n+1)+12)\,G}{3\rho R_o^2} + \frac{(n+2)(n-1)\gamma}{\rho R_o^3}. \tag{18}$$

1.4. 扰动演化方程的系数，Murakami 等人

Murakami 等人所开展的工作 [5] 不包括应变硬化分析。然而，用于计算柯西应力张量的变形映射与 Yang 等人所使用的变形映射相一致。 [7]我们将这些项纳入 Murakami 等人建立的理论中[5] 以得到以下系数：

$$\eta = 5\frac{\dot{R}}{R} + 2\frac{(n+1)(n+2)\mu}{\rho R^2} \tag{19}$$

$$\begin{aligned}\xi = {} & (2-n)\frac{\ddot{R}}{R} + 3\frac{\dot{R}^2}{R} + 6\frac{n(n+1)\dot{R}\mu}{\rho R^3} + \frac{(n+2)(n+1)(n-1)\gamma}{\rho R^3} + \frac{G(n+1)}{\rho R_o^2}\left(\frac{n(n+1)}{\lambda^2+\lambda+1} + \frac{2(1+\lambda^3)}{\lambda^6}\right) \\ & + \frac{G\alpha(n+1)(\lambda-1)^2}{5\rho R_o^2(\lambda^2+\lambda+1)\lambda^{10}}\Big[10(n(n+1)+2)\lambda^9 + 6(n(n+1)+10)\lambda^8 + 3(n(n+1)+30)\lambda^7 + (n(n+1)+110)\lambda^6 \\ & + 120\lambda^5 + 120\lambda^4 + 100\lambda^3 + 60\lambda^2 + 30\lambda + 10\Big],\end{aligned} \tag{20}$$

线性化后，

$$\eta_1 = \frac{2(n+2)(n+1)\mu}{\rho R_o^2}, \qquad \xi_1 = \omega_n^2 = \frac{(n+1)\,(n(n+1)+12)\,G}{3\rho R_o^2} + \frac{(n+2)(n+1)(n-1)\gamma}{\rho R_o^3}. \tag{21}$$

1.5. 涡量方程

对动量平衡取旋度后， θ 和 ϕ 分量中存在非零项。将每个方程投影到各自的球谐基上，可得到一个代表涡量方程的单一方程：

$$\begin{aligned}& 3\rho\frac{R^{n+4}}{r^{n+9}}\left(\epsilon_n\left(\dot{R}^2\left((n+5)r^3-(n+7)R^3\right)+r^3R\ddot{R}\right)+r^3R\dot{R}\dot{\epsilon}_n\right) = \frac{R^{n+3}}{\varrho^7 r^{n+13}} \\ & \times\Bigg(\zeta G\Big(\alpha\Big(\zeta\left(4n^2+n-177\right)r^9 - \zeta^4(n-6)(n+11)+15(n+3)r^{12} - 8\zeta^2(n(n+3)-36)r^6 \\ & + \zeta^3(n(5n+21)-222)r^3\Big) - (3\alpha-1)\varrho^2r^4\Big(3\zeta^2(n+7)+5(n+3)r^6-\zeta(7n+37)r^3\Big)\Big) + 30\mu(n+3)\varrho^7r^5R^2\dot{R}\Bigg)\end{aligned} \tag{22}$$

其中， $\zeta = R_o^3\left(\lambda^3-1\right)$。

2. 非球形激光诱导惯性空化装置

在 Yang 等人[6]所述的激光诱导惯性空化（LIC）实验中，捕获了非球形气泡。实验使用平衡剪切模量为 2.77 kPa 的聚丙烯酰胺水凝胶。将40%丙烯酰胺溶液和2%双丙烯酰胺溶液（Bio-Rad，赫拉克勒斯，加利福尼亚州）混合，使丙烯酰胺/双丙烯酰胺的最终浓度达到8.0%/0.08%（v/v），再用0.5%过硫酸铵（APS）和1.25% N,N,N’,N’-四甲基乙二胺（TEMED）（赛默飞世尔科技，美国）进行交联。使用可调节的1–25 mJ Q开关 532 nm Nd:YAG激光器（Continuum Minilite II，米尔皮塔斯，加利福尼亚州）发出的 6 ns 脉冲，在这些聚丙烯酰胺水凝胶中生成单个微空化气泡。激光脉冲经扩束后，从 Nikon Ti:Eclipse显微镜（Nikon Instruments，长岛，纽约州）后方射入，并填满 Nikon Plan Fluor 20X/0.5 NA 物镜的后孔径。使用二向色镜（Semrock，罗切斯特，纽约州），使532 nm扩束激光光束通过并到达成像物镜，同时将 SI-LUX640 激光照明系统（Specialized Imaging，皮特斯通，英国）发出的较长 640 nm 照明光反射至 Kirana5M高速相机（Specialized Imaging，皮特斯通，英国）。在激光照射样品前，将相机的 500 ns 曝光时间与 SI-LUX 照明系统的 250 ns 照明脉冲宽度同步，以每秒 2×10^6 帧的速度记录空化气泡。空化气泡始终在距底面600 μm处生成，且与边缘和其他气泡至少相隔 1 mm。

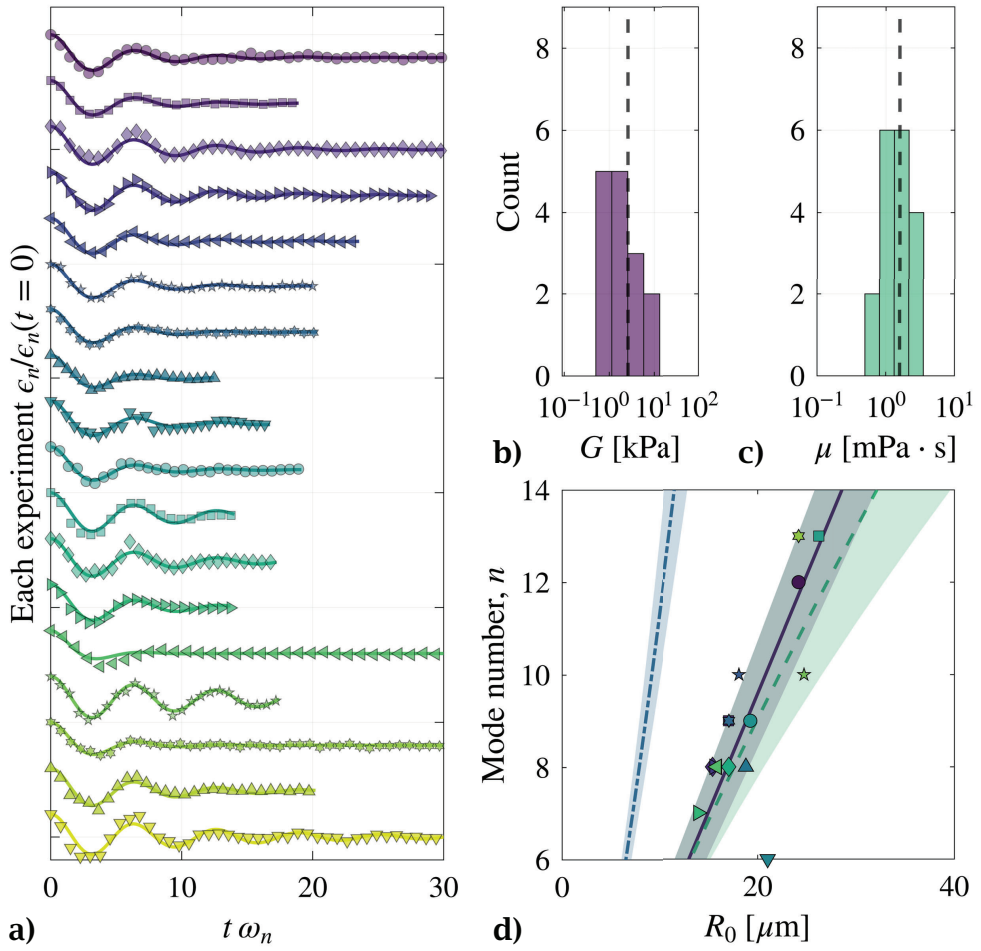

图 1： **a)**对于 5% 明胶，最不稳定模态的归一化振幅演化，实验数据（符号）和模型预测（线条），不同颜色对应不同实验。**b)** 和**c)** 校准后的剪切模量和黏度的直方图。**d)** 最不稳定模态随平衡半径的变化。符号以及紫色阴影区域/线条分别表示当前实验数据和当前理论；绿色：Murakami 等人 [5] 模型；钢蓝色：Yang 等人 [7] 模型。均值预测周围的阴影区域通过使用所提取剪切模量分布的标准差获得。

3. 数据处理

对气泡表面数据点进行傅里叶变换，以提取扰动振幅。对于超声驱动实验，我们假设气泡表面轴对称；相比之下，在非球形 LIC 实验中，我们观察到非轴对称失稳的形成 [7]。傅里叶基与球谐基不同。我们求解每一帧中与该变换对应的线性问题。在非轴对称情况下，由于我们假设成像时 θ的值保持恒定，因此两种基之间相差一个常数因子$(-1)^{|m|}\sqrt{2}\sqrt{\frac{2n+1}{4\pi}\frac{(l-|m|)!}{(l+|m|)!}}P_n^m(0)$。

我们将主导模态定义为随时间变化的扰动幅值均方根偏差最大的模态，

$$\mathrm{RMSD}_n = \sqrt{\frac{1}{t_f - t_i}\int_{t_i}^{t_f}\left(\epsilon_n - \bar{\epsilon}_n\right)^2 dt}. \tag{23}$$

对主导模态的扰动数据进行裁剪，使初始条件与扰动幅值的峰值重合。如果 $|\epsilon_n(t=0)| < 0.01$，则拒绝相应信号；信号的持续时间必须少于一个振荡周期，同时也会排除近似为零的模态。对信号进行时间上的傅里叶变换后，如果其主导振荡频率与驱动频率一半的偏差超过 33% （即参数共振条件），则拒绝该信号。

对非球形 LIC 数据应用少量 Savitzky-Golay 滤波器平滑处理，以保留信号并减少噪声。我们纳入扰动数据，直至塌缩发生前，因为此后扰动中的非线性效应会变得

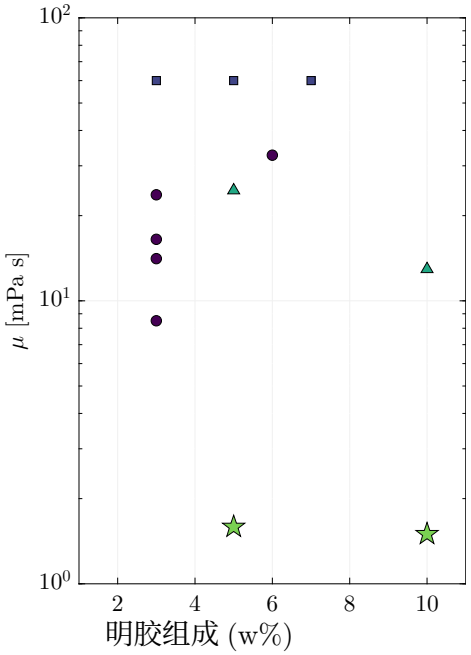

图2： 文献中剪切模量随明胶凝胶组成的变化，并与本研究结果进行比较。紫色圆圈：Hamaguchi 和 Ando [3]；蓝色方块：Yoon 等人 [8]；绿色上三角：Abeid 等人 [1] 高应变率；绿色星形：本研究。

占主导地位。针对扰动幅值 $\|\epsilon_n\|/K^c > 10^{-3}$设定最小范数准则，其中 K^c 是从气泡膨胀达到最大值的时刻到塌陷时间之间捕获的帧数，而 $\|\cdot\|$ 是欧几里得范数。

3.1. 反演表征

在 MATLAB 中，采用全局搜索方法（`bayesopt`）与局部搜索方法（`lsqcurvefit`）相结合，对当前模型进行优化，使其符合有关材料性质的实验数据 μ，G，和 α。对于大幅径向振荡，G 是空化实验中聚丙烯酰胺凝胶的准静态值 $G_\infty = 2.77\,\mathrm{kPa}$，因此在优化中将其省略。使用 `bayesopt` 快速搜索整个参数空间。将表现最佳的点用于 `lsqcurvefit`，进行精细优化。损失函数值最低的参数组即为给定实验的标定参数。

超声驱动实验中包含微小的径向振荡。因此，我们在拟合过程中使用扰动衰减的解析解。η_1 仅取决于黏度 μ，而 ξ_1 取决于 G 和 γ。针对表面张力进行优化，会使给定实验中存在多个解，且对应的 n 和 R_o也不同：增加 G 并降低γ （或反之）会得到相同的 ξ_1值。因此，表面张力是预先设定而非优化的量。对于通过超声驱动分析的明胶凝胶，表面张力设为 $32\,\mathrm{mN/m}$ [4]。对于通过 LIC 分析的聚丙烯酰胺凝胶，我们采用 $56\,\mathrm{mN/m}$的 [7] 值。我们在三个数量级范围内扫描刚度和黏度，其上下限分别为 $[0.1, 100]$ kPa 和 $[0.1, 100]$ mPa s。超声驱动数据的损失函数设为实验获得的主导模态扰动幅度随时间变化曲线与模型预测值之间的均方根误差。提取用于拟合数据集的最优参数后，我们计算了预测数据与实验数据之间的 R^2 值。对于 $R^2 < 0.75$的数据集，我们予以剔除。

求解完整的耦合系统，以校准非球形LIC实验数据。按照[2]中的描述，使用Keller-Miksis方程求解径向动力学，并结合热传输和质量传输方程。与惯性效应和本构效应相比，压缩效应、热效应和质量传输效应都较小，因此它们会在扰动动力学中产生 $\mathcal{O}(\epsilon_n^2)$ 。通过最小化损失函数，优化参数 α 和 μ 方程（24），并分别施加约束 $[10^{-3}, 10]$ 和 $[10^{-3}, 1]$ Pa s。

优化问题将每个时刻的各模态扰动幅度作为目标。我们分别用各自的欧几里得范数对径向数据和各模态的扰动幅度数据进行归一化。为避免多目标优化，我们构造了一个标量损失函数：径向误差乘以所考虑的模态数后，再与扰动误差相加。

表 1超声驱动实验中各实验数据集对应的校准后材料属性汇总。

实验编号	凝胶（重量百分比）	弹性，G [千帕]	黏度，μ [帕·秒]
1	5	2.53	1.48
2	5	0.77	1.45
3	5	0.77	0.91
4	5	0.99	0.88
5	5	3.14	1.52
6	5	0.50	1.42
7	5	0.97	1.64
8	5	2.86	2.38
9	5	12.86	3.48
10	5	2.22	1.92
11	5	3.74	1.05
12	5	1.86	1.07
13	5	1.26	1.24
14	5	0.50	2.68
15	5	1.19	0.50
16	5	9.64	3.41
17	5	0.62	1.01
18	5	0.50	0.58
1	10	7.82	2.44
2	10	8.36	1.96
3	10	18.41	5.04
4	10	8.16	0.80
5	10	4.48	0.33
6	10	5.72	0.48
7	10	5.65	0.51
8	10	3.89	0.44

表 2非球形 LIC 实验中各实验数据集对应的校准后的材料属性汇总。

实验编号	应变硬化弹性，α [-/-]	黏度，μ [毫帕·秒]
1	0.040	91.1
2	0.056	181.2
3	0.147	89.9
4（主文稿）	0.090	240.1

标量误差函数为

$$\mathcal{E} = \left(\sum_{k}^{K} \left[\frac{N}{\|R^{\exp}\|} \left(R^{\exp}(t_k) - R^{\sim}(t_k) \right) \right]^2 + \sum_{n}^{N} \sum_{k}^{K^e} \left[\frac{1}{\|\epsilon_n^{\exp}\|} \left(\epsilon_n^{\exp}(t_k) - \epsilon_n^{\sim}(t_k) \right) \right]^2 \right)^{1/2}, \tag{24}$$

其中，上标 exp 和 sim 分别表示实验数据和模拟值。N 是实验中考虑的模态总数，k a 表示对实验中各时间帧求和，K 是实验中的总帧数。损失函数通过 MATLAB 中的 *bayesopt* 和 *lsqcurvefit* 实现。

将优化过程应用于 LIC 实验数据所得的结果如图3、图4和图5所示。第一、第二和第三次实验中，分别有模态 (3, 4, 7, 9, 10, 12, 13)、(3, 4, 6, 7) 和 (2) 通过预筛选标准，并纳入优化。我们观察到，未纳入优化的附加模态，其动力学也具有一致性。在 图4 和 图5中，我们还分别绘制了第二次和第三次实验的模态 (9) 和 (3)。第一次实验中展示的模态均已纳入优化。如表3所示，使用这些新增模态（未纳入优化过程）计算损失函数时，标量值有所降低。这表明模型校准成功。

4. 反演表征一致性检查

我们在类似于超声强制数据集的合成数据上测试了逆向表征方法。数据采用剪切模量 $G = 4\,\mathrm{kPa}$ 和黏度 $\mu = 1\,\mathrm{mPa\,s}$ 生成。我们在

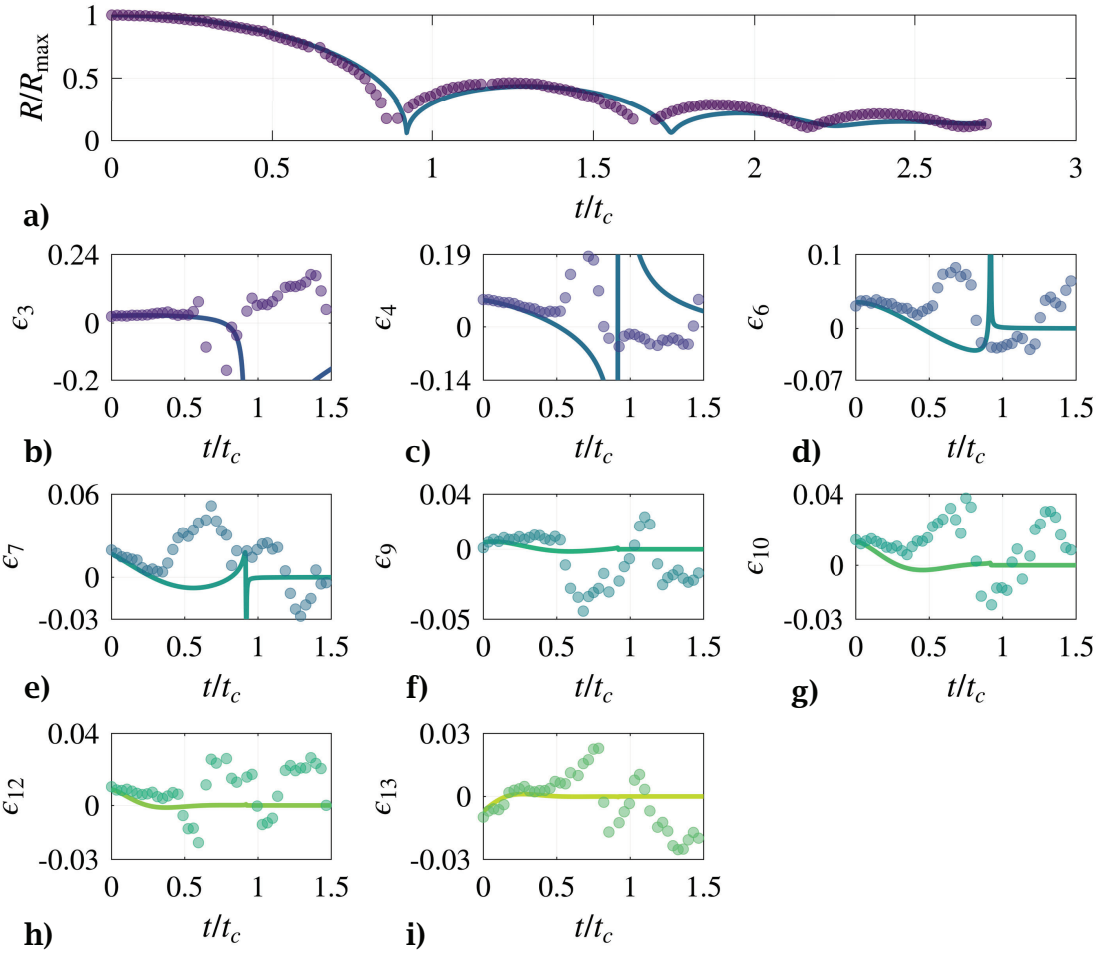

图3： 实验1。非球形激光诱导气泡**a**）平均半径随时间的演化；**b-i**）第三、第四、第六、第七、第九、第十、第十二和第十三模态扰动幅度随时间的变化。圆圈：实验数据；曲线：校准模型预测。

实验	$\mathcal{E}$ 来自优化	$\mathcal{E}$ 包含附加模态
1	0.275	-
2	0.160	0.151
3	0.5041	0.402
4（主文稿）	0.167	0.156

表3模型校准至LIC实验数据的损失函数值汇总。数值分别报告了优化过程中的结果，以及纳入附加模态时的结果。

每个时间步的扰动幅值、振荡频率，以及根据给定模态数的参数共振条件计算出的平衡半径中加入了高斯噪声。结果见 图6。从数据集中提取的参数均值为 $G = 4.37\,\mathrm{kPa}$ 和 $\mu = 1.04\,\mathrm{mPa\,s}$。

同样地，我们通过求解完整的耦合系统，生成了类似于LIC实验的噪声数据。我们生成了10个数据集，并像实验中一样改变最大半径和最大拉伸比（数据未显示）。我们将准静态剪切模量设为 $G = 2\,\mathrm{kPa}$、$\alpha = 2$ 和 $\mu = 50\,\mathrm{mPa\,s}$。图7显示了校准后的材料属性的直方图计数。校准参数的均值被准确确定，并且 $\alpha = 2.0$ 和 $\mu = 50.11\,\mathrm{mPa\,s}$。

参考文献

[1] Abeid, B.A., Fabiilli, M.L., Al iabouzar, M., Estrada, J.B., 2024年。光学诱导液滴空化超高速动力学的实验与数值研究，发表于 y 软材料。《生物医学材料力学行为》160，106776。

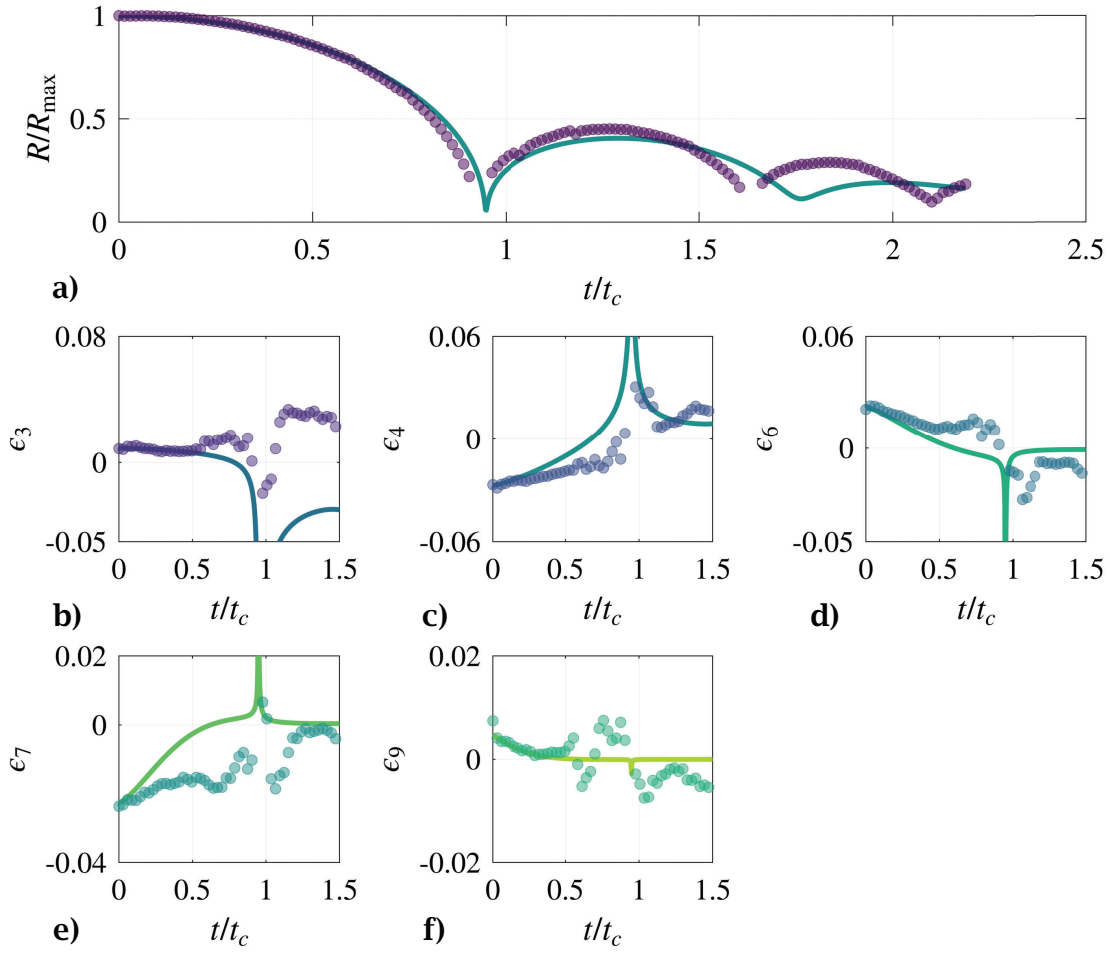

图4： 实验2。非球形激光诱导气泡**a**）平均半径随时间的演化，**b-f**）第三、第四、第六、第七和第九模态扰动幅度随时间的变化。圆圈：实验数据；曲线：标定模型预测。

[2] Estrada, J.B., Barajas, C., Henann, D.L., Johnsen, E., Franck, C., 2018. 惯性空化作用下软材料的高应变率表征。《固体力学与物理学杂志》112，291–317。[3] Hamaguchi, F., Ando, K., 2015年. 超声辐照下黏弹性材料中气泡的线性振荡。《流体物理学》27，113103– 1–17。[4] Kikuchi, H., Keiji Sakai, K.S., Kenshiro Takagi, K.T., 1991. 明胶凝胶中的表面张力波。《日本应用物理学杂志》30，L1668–1–3。[5] Murakami, K., Gaudron, R., Johnsen, E., 2020年. 软固体中气泡的形状稳定性。《超声与声化学》67，105170–1–12。[6] Yang, J., Cramer, H.C., Franck, C., 2020年. 从剧烈坍塌的空化气泡中提取非线性黏弹性材料性质。《极端力学快报》39，100839–1–6。[7] Yang, J., Tzoumaka, A., Murakami, K., Johnsen, E., Henann, D.L., Franck, C., 2021年. 预测黏弹性软物质中惯性空化气泡复杂非球形失稳形态。《物理评论E》104，045108–1–9。[8] Yoon, S., Aglyamov, S.R., Karpiouk, A.B., Kim, S., Emelianov, S.Y., 2011年. 利用声辐射力探测激光诱导微气泡估算黏弹性介质的力学性质。美国声学学会期刊130，2241–2248。

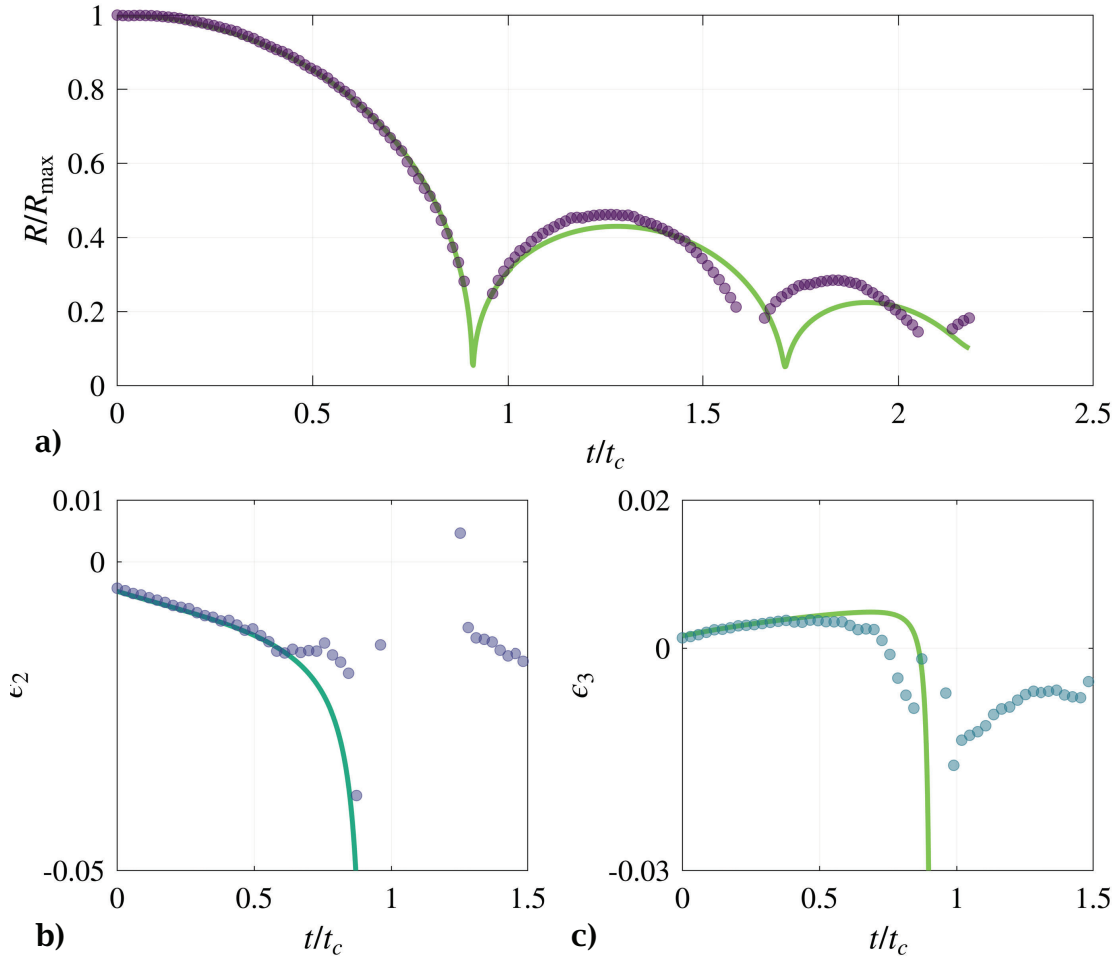

图5： 实验3。非球形激光诱导气泡**a**）平均半径随时间的演变，**b-c**）第三和第四模态扰动幅度随时间的变化。圆圈：实验数据；曲线：标定模型预测。

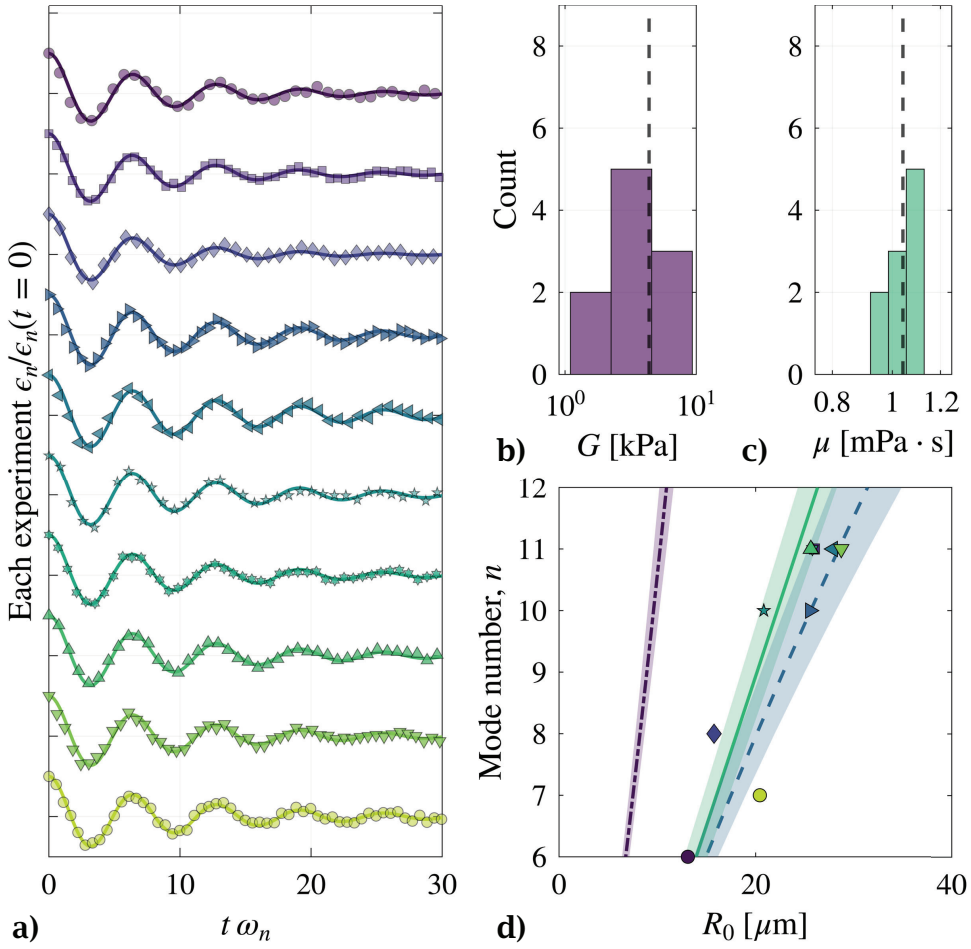

图6：a）合成数据（符号）与模型预测（线条）中最不稳定模态的归一化振幅演变，不同颜色对应不同实验。**b**）和**c**）标定剪切模量和黏度的直方图。**d**）最不稳定模态随平衡半径的变化。绿色符号和阴影区域/线条分别表示本文的合成数据和当前理论；钢蓝色表示 Murakami 等人 [5] 的模型；紫色表示 Yang 等人 [7] 的模型。均值预测周围的阴影区域根据提取的剪切模量分布的标准差计算得出。

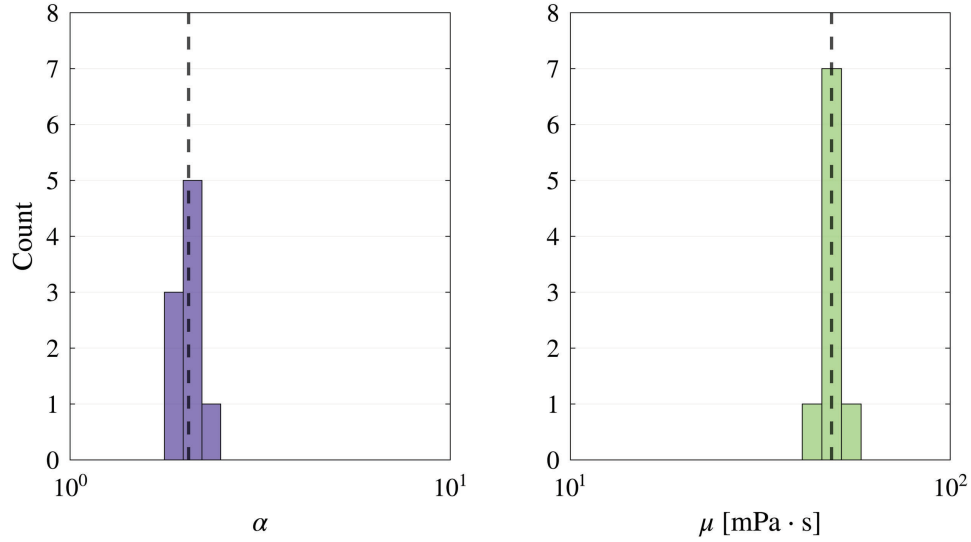

图7：合成数据集的标定参数材料属性直方图。