

Sonolumineszenz

Diplomarbeit

von

Andreas Blum

Arbeitsgruppe von Prof. Helm
Fakultät für Physik
Albert-Ludwig Universität Freiburg

Oktober 30, 1996

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|--|-----------|
| 1 | Einleitung | 7 |
| 2 | Kavitation | 9 |
| 2.1 | Einführung | 9 |
| 2.1.1 | Allgemeine Definition | 9 |
| 2.1.2 | Motivation, Kavitation zu untersuchen | 10 |
| 2.2 | Grundlagen | 11 |
| 2.2.1 | Akustische Kavitationstypen | 11 |
| 2.2.2 | Kavitationskeime | 13 |
| 2.2.3 | Kavitationsschwelle | 15 |
| 2.3 | Theoretische Blasendynamik | 17 |
| 2.3.1 | Dynamik eines einzelnen Hohlraumes | 17 |
| 2.3.2 | Dynamik eines Hohlraumes bei kleiner Schallamplitude | 19 |
| 2.3.3 | Radiale Bewegung bei großen Schallamplituden | 22 |
| 3 | Geschichtliches zur Sonolumineszenz | 27 |
| 4 | Experimenteller Aufbau | 31 |
| 4.1 | Technische Realisierung | 31 |
| 4.1.1 | Elektronik zur Erzeugung von Schallwellen | 31 |
| 4.1.2 | Erzeugung einer leuchtenden Blase | 33 |
| 4.1.3 | Blasendynamik | 35 |
| 4.1.4 | Präparation des Wassers | 39 |
| 4.1.5 | Resonanzabstimmung | 41 |
| 4.1.6 | Stabilitätsverhalten | 41 |
| 4.1.7 | Eigenschaften der Piezos | 43 |
| 4.1.8 | Druckmessung | 50 |
| 4.1.9 | Schwebezelle | 53 |

| | | |
|----------|--|-----------|
| 4.2 | Spektrale Verteilung der Lichtemission | 57 |
| 4.2.1 | Technischer Aufbau | 57 |
| 4.2.2 | Monochromator und Optik | 58 |
| 4.2.3 | Auflösungsvermögen des Monochromators | 60 |
| 4.2.4 | Photomultiplier (PTM) | 62 |
| 4.2.5 | Photonenzähler und computergesteuerte Aufnahme . . | 65 |
| 5 | Ergebnisse | 67 |
| 5.1 | Eichung des Monochromators | 67 |
| 5.1.1 | Spektrale Eichung | 67 |
| 5.1.2 | Kalibrierung der Transmission | 68 |
| 5.2 | Spektrum der Sonolumineszenz | 72 |
| 5.3 | Auswertung | 74 |
| 6 | Zusammenfassung und Ausblicke | 81 |
| | Danksagung | 89 |

Das Hauptziel in der Philosophie und Wissenschaft sollte die Suche nach Wahrheit sein. Rechtfertigung ist kein Ziel. Brillanz und Scharfsinn an sich sind öde. Wir sollten versuchen, die dringenden Probleme zu sehen oder zu entdecken, und sie durch Aufstellung wahrer Theorien zu lösen; jedenfalls sollten wir versuchen Theorien aufzustellen, die der Wahrheit ein Stückchen näherkommen, als die unserer Vorgänger.

Die Methode der Wissenschaft ist die Methode der kühnen Vermutung und der erfinderischen und ernsthaften Versuche, sie zu widerlegen.

Karl R. Popper, Objektive Erkenntnis

Kapitel 1

Einleitung

Aufgabe der vorliegenden Diplomarbeit war es, eine Apparatur aufzubauen, mit der es möglich ist, Sonolumineszenz in einer Flüssigkeit zu beobachten. Des weiteren sollte das Spektrum der Lichtemission aufgenommen werden.

Unter Sonolumineszenz versteht man *die Lichtemission von kavitierenden Hohlräumen in einer Flüssigkeit*. Kavitation ist *die Bildung und der Zerfall von Hohlräumen in einer Flüssigkeit*. Sonolumineszenz ist also eine Erscheinung, die in Folge von Kavitation auftritt.

Im Allgemeinen kann man zur Kavitation die Bildung von Blasen in Sektgläsern und in kochenden Flüssigkeiten oder die Erosion an Schiffsschrauben durch Hohlraumbildung zählen.

Solche Hohlräume sind teils mit dem Dampf der Flüssigkeit und teils mit den in ihr gelösten Gasen gefüllt. Man spricht deshalb auch von Kavitationsblasen oder einfach von Blasen.

Erste Hinweise auf die Lichtemission von Kavitationshohlräumen finden sich 1933 bei Marinesco et. al. [38] und 1934 bei Frenzel und Schultes [19], wobei Kavitation schon viele Jahre vorher bekannt war.

Es vergingen seit Marinescos Arbeit jedoch noch 45 Jahre, ehe man in der Lage war, detaillierte Untersuchungen an einer einzelnen Blase anzustellen (Kapitel 4). Sie wird im Druckbauch einer stehenden Ultraschallwelle "gefangen" und zu stabiler nichtlinearer, radialer Oszillation angeregt.

Dabei entstehen ungewöhnlich hohe Drucke und Temperaturen. Von manchen Autoren werden diese Bedingungen für die Lichtemission verantwortlich gemacht. Allerdings ist dieser Mechanismus noch lange nicht erschöpfend geklärt.

Ein weiteres interessantes Phänomen ist das Licht selbst, das nicht kon-

tinuierlich erzeugt wird, sondern in einem kurzen Blitz erscheint. Der Blitz repetiert im Kavitationszyklus, der durch die Frequenz des Ultraschallfeldes vorgegeben ist. Die obere Grenze der Blitzdauer, die experimentell gemessen werden konnte, liegt derzeit bei 50 ps.

Als Beispiele für aktuelle Fragestellungen der Sonolumineszenz werden hier angeführt:

- Eine genaue Bestimmung der Pulslänge scheitert am Auflösungsvermögen der momentan zur Verfügung stehenden Geräte.
- Es ist nicht geklärt, warum ein Edelgas in der Flüssigkeit vorhanden sein muß, damit die Lichtemission stattfinden kann.
- Die Strahlungsintensität in Abhängigkeit von der Temperatur der Flüssigkeit und von der antreibenden Frequenz kann noch nicht erklärt werden.
- Es wird versucht, die Ursache der Sonolumineszenz (SL) über das emittierte Spektrum zu ermitteln.

Ziel dieser Diplomarbeit ist es, die Strahlungsintensität und die spektrale Verteilung einer sonolumineszierenden Blase zu ermitteln. Dazu müssen zuerst die apparativen Mittel geschaffen werden, um eine stabil oszillierende Blase zu erzeugen.

Die vorliegende Diplomarbeit behandelt im zweiten Kapitel das Phänomen der Kavitation. Eine mathematische Beschreibung der radialen Blasendynamik, die auf Keller und Miksis [31] zurückgeht, wird vorgestellt. Sie dient als theoretische Grundlage vieler Arbeiten über SL.

In Kapitel 3 werden die gängigen Erklärungsmodelle für die SL seit ihrer Entdeckung bis zum heutigen Forschungsstand vorgestellt.

In Kapitel 4 wird der Versuchsaufbau und die damit ausgeführten Experimente beschrieben. Im ersten Teil wird ausführlich die einzelnen Teile des Experimentes vorgestellt, die es ermöglichen, Lichtemission zu beobachten. Im weiteren Verlauf wurde der Versuchsaufbau modifiziert, um das Emissionsspektrum der SL aufzunehmen und eine Abschätzung der bei der Kavitation emittierten Lichtintensität geben zu können.

Kapitel 5 stellt die Meßergebnisse vor, die unter den gegebenen Bedingungen erzielt wurden. Im 6. Kapitel wird eine Zusammenfassung und ein Ausblick auf die Zukunft gegeben.

Kapitel 2

Kavitation

In diesem Kapitel wird ausführlich die Physik der Kavitation beschrieben. So werden zum Beispiel die Kriterien für eine stabile Blase theoretisch ermittelt. Die mathematische Beschreibung der Blasendynamik zeigt sich als Beispiel eines typisch chaotischen Systems.

2.1 Einführung

2.1.1 Allgemeine Definition

Kavitation ist eine typische Erscheinung, wenn Flüssigkeiten starken Ultraschallfeldern ausgesetzt werden (Amplitude ≥ 1 atm). Aus diesem Grund spielt sie bei verschiedenen Anwendungen von Ultraschall eine gewisse Rolle. Doch ist sie nicht nur in Ultraschallfeldern anzutreffen, sondern tritt immer dann in Erscheinung, wenn in Flüssigkeitsströmungen Unterdrucke auftreten, die vom Betrag her größer sind als der Dampfdruck der Flüssigkeit. Solche Bedingungen in einer Flüssigkeit werden durch das Bernoullische Gesetz beschrieben.

Das Bernoullische Gesetz $p + 1/2 \cdot \rho v^2 = p_0 = \text{const}$ besagt, daß in einer idealen Flüssigkeit die Summe aus statischem Druck p und dem Staudruck $1/2 \cdot \rho v^2$ gleich dem konstanten Druck p_0 in der ruhenden Flüssigkeit ist. ρ ist die Dichte der Flüssigkeit und v ist die Geschwindigkeit entlang einer Strömungslinie. Überschreitet v einen kritischen Wert $v_k = \sqrt{2p_0/\rho}$, wird der statische Druck p null oder negativ. In diesem Fall können sich Kavitationsblasen in der Flüssigkeit bilden. In Wasser beträgt die kritische Geschwin-

digkeit $v_k = 14$ m/s.

Wir rufen uns noch einmal die in der Einleitung gegebene Definition in Erinnerung und werden sie in diesem Abschnitt weiter ausführen: *Kavitation ist die Bildung von Hohlräumen in einer Flüssigkeit*. Unter “Bildung” versteht man einerseits die Neubildung oder das Wachsen von bereits vorhandenen mikroskopischen Hohlräumen. Diese Hohlräume oder Blasen haben im Allgemeinen eine beschränkte Lebensdauer und nur unter ganz speziellen Bedingungen, die auch für diese Arbeit relevant sind (Kapitel 4), bleiben sie bis zu Stunden erhalten.

Nach der Entstehungsphase einer Blase führt sie auf Grund von Druckunterschieden ihres Innen- und Außenraumes eine radiale Oszillation aus, die mitunter recht dramatisch verlaufen kann. Dabei können Oberflächenwellen auf der Blasenoberfläche entstehen [10], die zur Fragmentation der Blase führen oder auch zum völligen Verschwinden der Blase. Ist zusätzlich eine akustische Welle vorhanden, kann die Oszillation stabilisiert werden. Man nennt diese Art der Erzeugung von Kavitation: *Akustische Kavitation*.

Mit Schall läßt sich Kavitation in einer gut definierten Weise herstellen, obwohl auch hier die Kavitationsprozesse einen stark nichtlinearen Charakter haben. Akustische Kavitation zählt daher zu den typischen Beispielen eines physikalischen Chaos.

Entsprechend der Zielsetzung dieser Arbeit beschränken wir uns im weiteren Verlauf auf die akustische Kavitation.

2.1.2 Motivation, Kavitation zu untersuchen

Kavitation ist eine alltägliche Erscheinung und ist gleichermaßen unerwünscht wie auch für gewisse Anwendungen erwünscht. Sie kann Schädigungen an Werkstoffen hervorrufen, die Strömungen von Flüssigkeit ausgesetzt sind. Auch bei Ultraschallbehandlungen in der Medizin ist sie nicht erwünscht, da in starken Ultraschallfeldern die Kavitationsblasen lebendes Gewebe zerstören können. Ein Verständnis des Mechanismus der Kavitation kann zur Minimierung dieser Schäden beitragen.

Andererseits sind in Ultraschallbädern die kavitierenden Blasen mit dafür verantwortlich, daß verschmutzte Teile gereinigt werden. Kavitation kann auch dazu benutzt werden, Flüssigkeiten auf Verunreinigungen und auf den Gehalt, der in ihr gelösten Gase, zu untersuchen, indem man die Rate und den Typ der Kavitation mißt. Der Schwellenwert der Druckamplitude, bei der Kavitation einsetzt, ist ein Maß für den Grad der Verunreinigung der

Flüssigkeit. Experimentell beobachtete Kavitationsschwellen in Wasser (siehe 2.2.2.) sind deutlich kleiner als die abgeschätzte Zerreifestigkeit von ca. 1000 bar fr die ideale Flssigkeit [52] [53].

Die akustische Kavitation ist ein Vorgang, bei der relativ geringe Energiedichten und kleine Teilchenbewegungen der Schallwelle in einen schnellen Kollaps der Blase resultiert, so da der nicht kondensierbare Gasgehalt der Blase adiabatisch komprimiert wird, und dabei Drucke von mehreren tausend Atmosphren und Temperaturen von mehreren tausend Kelvin erreicht werden. Kavitation kann somit als Energiekonzentration in einer Flssigkeit angesehen werden.

Das Studium der akustischen Kavitation berschneidet sich mit viele andere Gebiete der Physik, wie berhitzungs-, Siede- oder bersttigungsphnomene. Wenn man ber Kavitation spricht, so versteht man darunter auch das Sieden von Flssigkeiten, das Sprudeln in einem Bierglas, Erosion an Schiffsschrauben und auch Dekompressionskrankheiten.

2.2 Grundlagen

2.2.1 Akustische Kavitationstypen

Flynn [15] hat in den siebziger Jahren versucht etwas Ordnung in die Vielfalt der Kavitationsphnomene zu bringen. So unterscheidet er zwei Grundtypen von Hohlrumen: 1.) einen stabiler Hohlraum, manchmal auch als weiche Kavitation bezeichnet, der viele Male durch seinen Gleichgewichtsradius oszilliert, und 2.) einen "transient" bzw. flchtiger Hohlraum oder harte Kavitation, der in wenigen Zyklen viel grere Schwankungen um seinen Gleichgewichtsradius durchlebt und von einem starken Kollaps whrend jedem Zyklus begleitet wird. Die radiale Geschwindigkeit der Oberflche kann dabei die Schallgeschwindigkeit in der Flssigkeit berschreiten. Ein dabei typisches auftretendes Merkmal ist ein unangenehmes Gerusch.

Stabile Hohlrume sind gewhnlich Gasblasen, die durch relativ niedrige Schalldruckamplituden (≤ 1 atm) zu erzwungenen Schwingungen ange-regt werden. Die radiale Oszillation, die die Blase ausfhrt, ist annhernd sinusfrmig und hat die gleiche Frequenz wie die antreibende Schallwelle.

Flchtige Hohlrume werden meist durch groe Schalldruckamplituden erzeugt. In ihrem Inneren befindet sich zumeist Dampf der Flssigkeit und nur wenig der in der Flssigkeit gelsten Gase.

Der Dampfdruck p_D einer Flüssigkeit bei der Temperatur T läßt sich als Boltzmannverteilung darstellen:

$$p_D = n_{Fl} k T e^{-W/kT}$$

W ist die Verdampfungsenergie der Flüssigkeit, und n_{Fl} ist die Zahl der Flüssigkeitsteilchen, wobei der Entropieunterschied zwischen flüssiger und dampfförmiger Phase mit eingerechnet ist. $k = 1.381 \cdot 10^{-23}$ J/K ist die Boltzmannkonstante.

Der Dampfdruck hängt also nur von der Temperatur ab, nicht aber von dem zur Verfügung stehenden Volumen. Wird eine Blase komprimiert, hat das die sofortige Kondensation des Dampfes zur Folge. Das in der Flüssigkeit gelöste und das in der Blase vorhandene Gas (normalerweise Luft) wird nur durch Diffusion über die Grenzfläche Flüssigkeit–Blase transportiert. Der Vorgang ist jedoch im Vergleich zur Blasenoszillation so langsam, daß der Gasgehalt in der Blase während eines Zyklus als konstant angesehen werden kann. Aus diesem Grund ist die radiale Oszillation eines flüchtigen Hohlraumes in der Unterdruckphase viel extremer als bei einer Gasblase, bei der das Gas die Kompression der Blase dämpft.

Im Folgendem wird die Dynamik eines flüchtigen Hohlraumes betrachtet, da die in dieser Arbeit ausgeführten Experimenten fast ausschließlich diesen Typ der Kavitation behandeln. Der Entstehungsprozeß der Blase wird vorerst zurückgestellt. Man beginnt die Betrachtung der Dynamik bei der Unterdruckphase der akustischen Welle. Auf Grund des Unterdruckes expandiert die Blase, bis sie ihre maximale Größe erreicht hat. In Folge der Trägheit der radialen Bewegung ist das Auftreten dieses Maximums gegenüber des maximalen Unterdruckes der Schallamplitude zeitlich verzögert. Hat die Blase ihren maximalen Radius erreicht, beginnt die Kontraktion zunächst langsam, wird aber zunehmend schneller, bis sie in einem oft recht gewaltsamen Kollaps endet. Dabei kann die Blase zerstört werden oder verschwindet schon nach wenigen Zyklen. Die Umstände, unter denen die Blase trotz Kollaps über viele millionen Zyklen oszillieren kann, ist Gegenstand des 4. Kapitels.

Die Einteilung in stabile und flüchtige Kavitation ist natürlich keine sehr strenge Einteilung, denn es gibt verschiedene Übergangsformen. Beispielsweise verhalten sich einige Blasen zuerst wie stabile Hohlräume und zeigen dann, nach dem sie gewachsen sind, Merkmale der flüchtigen Kavitation.

2.2.2 Kavitationskeime

Bei den bisherigen Betrachtungen wurde immer davon ausgegangen, daß die Hohlräume oder Blasen, die sich unter dem Einfluß eines äußeren Schallfeldes verändern, bereits in der Flüssigkeit vorhanden waren. In diesem Abschnitt wird diskutiert, wie eine kavitierende Blase in einer Flüssigkeit entstehen kann.

Im Unterschied zu Gasen, existieren Anziehungs- und Kohäsionskräfte zwischen den Molekülen einer Flüssigkeit, die stark genug sind, um diese zusammenzuhalten. Bei homogenen Flüssigkeiten ohne Verunreinigung sind die Anziehungskräfte überall gleich stark, und es bedarf je nach Flüssigkeit hoher Zugkräfte, damit sich Hohlräume in ihr bilden können [32]. Die Zugkraft, bei der die Flüssigkeit aufreißt, bezeichnet man als Kavitationsschwelle und wird im nächsten Abschnitt untersucht.

Abschätzungen für reines Wasser führen zu Schwellenwerten in der Größenordnung von 1000 bar. Jedoch liegen die experimentellen Werte für reines Wasser nur bei etwa 300 bar, während sich für normales Leitungswasser die Kavitationsschwelle auf wenige bar reduziert.

Es muß also in realen Flüssigkeiten Stellen geben, an denen die Kohäsionskräfte reduziert sind und die als Keime für die Entstehung einer Blase dienen können. Die eine Möglichkeit wäre nun, daß bereits gasgefüllte Blasen vorhanden sind. Doch erfahren sie eine Auftriebskraft in der Flüssigkeit, die sie aufsteigen lassen.

Je kleiner eine Blase ist, desto größer ist ihre Beweglichkeit in der Flüssigkeit und sie können sich längere Zeit in der Schwebe halten. Jedoch setzt sich der Druck p_i in der Blase mit dem Radius R_0 aus dem äußeren statischen Druck p_0 und dem Beitrag der Oberflächenspannung σ zusammen.

$$p_i = p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \quad (2.1)$$

Da dieser Druck größer ist als der äußere statische Druck p_0 , diffundiert Gas aus der Blase in die Flüssigkeit. Je kleiner nun die Blase wird, um so stärker wirkt sich der zweite Term der Gleichung 2.1 aus, und die Blase schrumpft mit abnehmender Größe immer schneller, bis sie schließlich ganz verschwindet. Diese Möglichkeit zur Erzeugung einer Kavitationsblase kommt also nicht in Frage.

Bei der Betrachtung einer siedenden Flüssigkeit oder eines Glas Sektes beobachtet man, daß die aufsteigenden Blasen immer an der selben Stelle der

Gefäßwand entstehen. Das ist darauf zurückzuführen, daß an diesen Stellen die Grenzflächen nicht vollständig benetzt sind.

Es liegt also nahe, auch für Kavitation solche nicht benetzten Stellen anzunehmen, die als Kavitationskeime dienen können. Solche Grenzflächen sind nicht auf die Gefäßwände beschränkt, sondern es kommen auch feste Verunreinigungen der Flüssigkeit in Betracht.

Abbildung 2.1 stellt eine solche Grenzfläche mit einer Ritze dar, die mit Gas gefüllt ist. Anders als bei kugelförmigen Grenzflächen kann die Oberfläche einer solchen Gasblase so gekrümmt sein, daß die Oberflächenspannung keinen zusätzlichen Beitrag zum Binnendruck p_i liefert. Der Betrag der Diffusi-

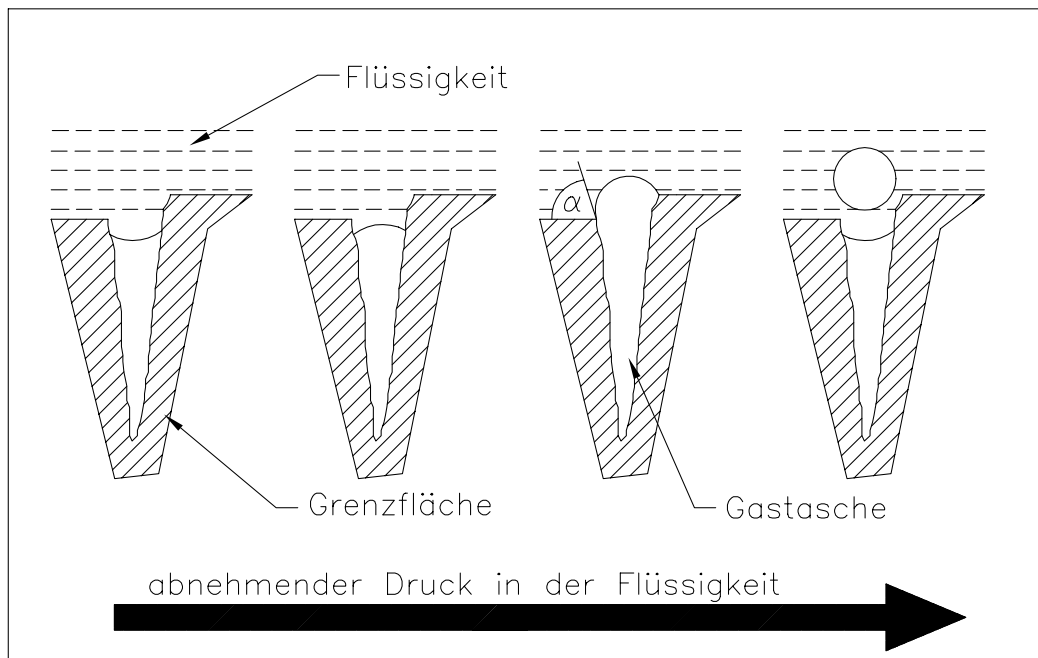


Abbildung 2.1: Darstellung einer Grenzfläche mit einem gasgefüllten Spalt und die Entstehung einer Blase

on durch die Grenzfläche von Blase und Flüssigkeit ist in beiden Richtungen gleich groß und die Gastasche ist somit stabilisiert.

Bei Schwankungen des Flüssigkeitsdrucks ändert sich die Krümmung der Oberfläche einer solchen Gastasche, wobei Unterdruck die Krümmung nach außen verschiebt. Überschreitet der Winkel zwischen der Blase und der Spal-

tenwand einen bestimmten Wert, so reißt ein Teil der Gastasche ab und bildet einen Hohlraum in der Flüssigkeit.

Für diese Hypothese spricht, daß sich die Kavitationsschwelle erhöht, wenn man die Flüssigkeit vorher einem statischen Druck ausgesetzt hat, der die Gastaschen in den Spalten verkleinert [32].

In einer Gasblase, die auf diese Weise in die Flüssigkeit gelangt ist, wirkt derselbe Binnendruck, wie er oben beschrieben worden ist. Die Blase müsste je nach Größe entweder nach oben steigen, oder auf Grund des größeren Binnendruckes verschwinden. Unter welchen Bedingungen man trotzdem von Kavitation spricht, ist Gegenstand des nächsten Abschnittes.

2.2.3 Kavitationsschwelle

Eine akustische Welle kann in der oben beschriebenen Weise während ihrer Unterdruckphase aus einem Kavitationskeim eine frei schwebende Blase erzeugen. Je nach Grad der Verunreinigung existiert eine akustische Schwelle, bei der freie Blasen beobachtet werden.

Hat sie sich nun von der Grenzfläche gelöst, beginnt sie in Folge der akustischen Anregung um ihren Gleichgewichtsradius zu schwingen. Bei kleinen Schalldruckamplituden führt sie annähernd sinusförmige Schwingungen um den Gleichgewichtsradius aus, den sie in Abwesenheit des Schallfeldes hat (2.3.2). Die radiale Oszillation wird mit zunehmendem Schalldruck stärker und nimmt einen stark nichtlinearen Charakter an, der ein Zeichen für das Vorhandensein von Kavitation ist. Man fragt sich nun, bei welchem akustischen Unterdruck p_a Kavitation einsetzt. Ein Kriterium dieser Schwelle ist beispielsweise der maximale Radius während eines Zyklus.

Bei jeder theoretischen oder experimentellen Bestimmung der Kavitationsschwelle benötigt man ein Kriterium für das Vorliegen von Kavitation. In der Literatur wird oft das Einsetzen der "gleichgerichteten" Diffusion (2.3.2) bei einer bestimmten Schalldruckamplitude als Kriterium verwendet. Bei Kavitationsversuchen orientiert man sich eher am Auftreten von nichtlinearen oder subharmonischen Phänomenen im Spektrum der Blasen-schwingung, die allgemein auch als Kriterium für harte Kavitation gelten.

Für die im folgenden vorgestellte theoretische Bestimmung der Kavitationsschwelle verwendete Blake das Auftreten sichtbarer Blasen in einer Flüssigkeit. Nach Blake [6] ist der Druck in der Blase ohne äußere Einwirkung $p_i = p_0 + 2\sigma/R_0$. Wenn die Blase nun ihre Größe auf Grund eines äußeren Druckes ändert, werden die mechanischen Gleichgewichtsbedingungen

folgendermaßen beschrieben:

$$\left(p_0 + \frac{2\sigma}{R_0}\right) \left(\frac{R_0}{R}\right)^3 = p_0 - p_a + \frac{2\sigma}{R} \quad (2.2)$$

Der Term auf der linken Seite spiegelt den Gasdruck in der Blase wider, wenn die Ausdehnung isotherm erfolgt. Auf der rechten Seite ist p_a der Betrag der akustischen Unterdruckamplitude, die die Blase auf den Radius R verändert.

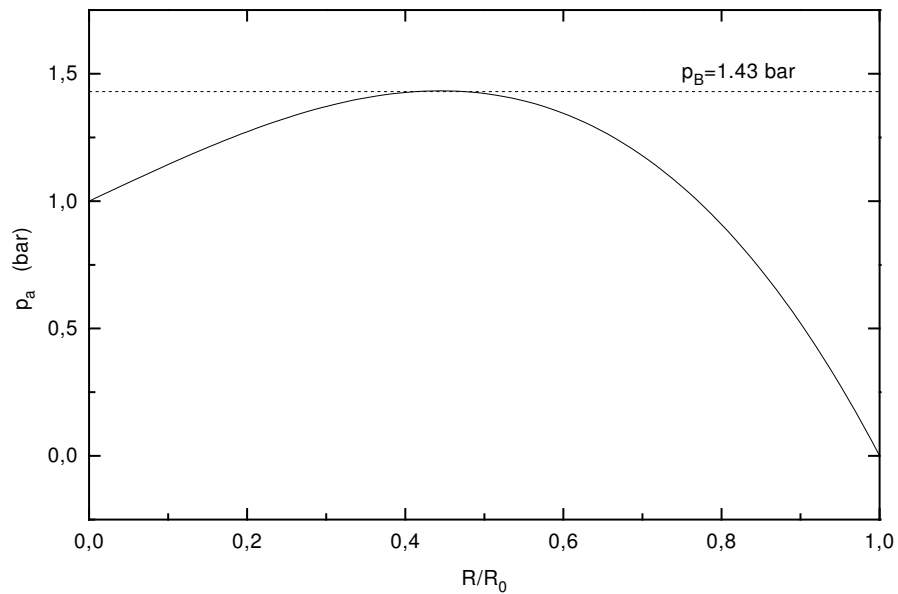


Abbildung 2.2: Zusammenhang zwischen Druckamplitude der akustischen Welle und dem Verhältniss aus zeitlich veränderlichen Blasengröße $R(t)$ mit dem Radius $R_0 = 1 \mu m$ bei einem statischen Druck $p_0 = 1$ bar ohne äußere Einwirkung in Wasser

In Abbildung 2.2 ist eine graphische Darstellung der Gleichung 2.2 gegeben, bei der das Verhältniss von R_0/R gegen p_a aufgetragen ist. Der äußeren Druck beträgt $p_0 = 1$ bar und der Gleichgewichtsradius der Blase wird mit

$R_0 = 1 \mu m$ angenommen. Verfolgt man nun die Kurve von rechts nach links, so kann sich bei kleinen Drucken p_a immer ein Gleichgewicht zwischen dem Schalldruck und dem Radius R der Blase einstellen. Die Kurve erreicht ein Maximum bei einer Schalldruckamplitude, dessen Wert p_b als Blake'sche Kavitationsschwelle bekannt ist. Bei Druckamplituden größer als p_b kann sich das Gleichgewicht zwischen Druck und Radius nicht mehr einstellen. Die Blase wächst ungehindert an und steigt schließlich zur Oberfläche auf. Der Wert von p_b ergibt sich durch Nullsetzen des Differentialquotient $\partial(p_0 - p_a)/\partial R$ zu:

$$p_b = p_0 + \frac{4\sigma}{3\sqrt{3}R_0} \left(1 - \frac{p_0 R_0}{2\sigma}\right)^{-1/2} \quad (2.3)$$

Für das oben angeführte Beispiel in Wasser ($\sigma = 0.073 N/m$) beträgt $p_b = 1.43$ bar. Jedoch ist das nur eine grobe Abschätzung der Kavitationsschwelle, da weder die Massenträgheit noch die Zähigkeit der Flüssigkeit berücksichtigt worden ist. Insbesondere ist die erstere für die Frage von Wichtigkeit, ob aus einem oben beschriebenen Kavitationskeim eine Blase entstehen kann oder nicht.

2.3 Theoretische Blasendynamik

2.3.1 Dynamik eines einzelnen Hohlraumes

In einer auf Noltingk und Neppiras [43] zurückgehende theoretischen Betrachtung eines einzelnen Hohlraumes wird die Flüssigkeit als inkompressibel vorausgesetzt. Nach Gleichung 2.1 wirkt in der Blase der Binnendruck $p_i = p_0 + 2\sigma/R_0$. Es wird weiterhin angenommen, daß sie weder durch andere Blasen noch durch Grenzflächen beeinflußt wird. Legt man ein zusätzliches äußeres Schallfeld an, so wirkt ein allseitiger Druck

$$p_g = p + 2\sigma/R \quad (2.4)$$

auf die Blasenwand, wobei der externe Druck p sich aus dem konstanten hydrostatischen Druck p_0 und einem sinusförmigen Schalldruck $\hat{p} \exp(i\omega t)$ zusammensetzt. Die Druckverhältnisse auf die Blase sind in Abbildung 2.3 zu sehen.

Bei Zunahme der Druckamplitude in der Überdruckphase einer Schallwelle wird die Blase zusammengedrückt. In der Unterdruckphase gilt das Gegenteil. Die Dichte des in der Blase vorhandenen Gases steigt bei der Kompression

an, wobei man annimmt, daß der Gasdruck innerhalb des Hohlraums überall gleich groß ist. Der Dampf in der Blase kondensiert dagegen sofort, da sein Partialdruck nur von der Temperatur und nicht vom Volumen abhängt. Deshalb wird der Dampfdruck unter den gegebenen Voraussetzungen als konstant angesehen.

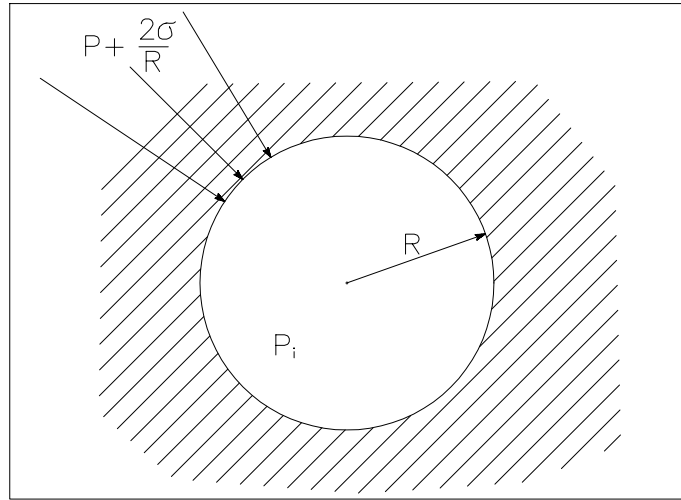


Abbildung 2.3: Darstellung der Druckverhältnisse auf eine Blase in einer Flüssigkeit

Man betrachtet nun eine Blase mit dem Gleichgewichtsradius R_0 . Gleichgewicht bedeutet, daß auf die Blase nur p_0 wirkt. Eine zusätzliche Schallwelle mit $p_s = \hat{p} \exp(i\omega t)$ ruft eine Änderung der Blasengröße hervor. Die Bewegung der Blasenwand mit der radialen Geschwindigkeit $\dot{R} = dR/dt$ hat eine Strömung der Flüssigkeit in der unmittelbaren äußeren Umgebung der Blase zur Folge. Die kinetische Energie der gesamten bewegten Masse mit der Dichte ρ ist gegeben durch $E_{kin} = 2\pi \rho R^3 \dot{R}^2$. Sie kann mit der algebraischen Summe der durch die Oberflächenspannung, den Gasdruck und den Druck der Flüssigkeit im Unendlichen aufgebrauchten Arbeiten gleichgesetzt werden, vorausgesetzt die Änderungen des Gases vollzieht sich isotherm:

$$E_{kin} = \int_R^\infty \left\{ 4\pi R^2 \left[\hat{p} e^{i\omega t} - p_0 + \left(p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \frac{R_0^3}{R^3} \right] - 8\pi R\sigma \right\} dR = 2\pi \rho R^3 \dot{R}^2 \quad (2.5)$$

Wird diese Gleichung nach R differenziert, erhält man die Bewegungsgleichung eines Hohlraumes:

$$2R \left[\hat{p} e^{i\omega t} - p_0 + \left(p_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \frac{R_0^3}{R^3} \right] = 4\sigma + 3\rho R \dot{R}^2 + 2\rho R^2 \ddot{R} \quad (2.6)$$

Geht man davon aus, daß in der Blase fast ausschließlich Dampf vorhanden ist, so ist der Gasdruck nahezu null und der Druck des Hohlraum p_i befindet sich immer im Gleichgewicht mit dem äußeren Druck p_g . So kann man $R = R_0$ setzen, wenn $\hat{p} \exp(i\omega t) = (p_0 + 2\sigma/R_0)$ gilt. Ersetzt man $2\sigma/R_0$ durch $p_i - p_0$, reduziert sich die Bewegungsgleichung auf:

$$\rho \left(R \ddot{R} + \frac{3}{2} \dot{R}^2 \right) + p + \frac{2\sigma}{R} - p_i = 0. \quad (2.7)$$

Diese Differentialgleichung ist in der Literatur als Noltingk–Neppiras–Gleichung [43] bekannt. Soll in ihr auch die Zähigkeit der Flüssigkeit berücksichtigt werden, ist zusätzlich auf der linken Seite der Term $4\eta \dot{R}/R$ hinzuzufügen, wobei η die Viskosität der Flüssigkeit beschreibt.

Im Allgemeinen ist die Geschwindigkeit der Blasenwand so groß, daß die bei der Kompression in der Blase entstehende Wärme kaum abgeführt wird. Kavitationsprozesse sind nahezu adiabatische Prozesse und der innere Druck bei einem beliebigen Radius kann als

$$p_i = p_{i0} \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\kappa} \quad (2.8)$$

geschrieben werden, wobei p_{i0} der Druck bei einem Blasenradius R_0 ist und κ der adiabatische Exponent.

Im nächsten Abschnitt werden wir einen Grenzfall behandeln, der uns einige Aufschlüsse über das Verhalten einer Kavitationsblase in einem Schallfeld gibt.

2.3.2 Dynamik eines Hohlraumes bei kleiner Schallamplitude

Es wird die gleiche Situation wie in Abschnitt 2.2.2 betrachtet, mit dem Unterschied, daß jetzt ein Schallfeldes mit der Druckamplitude $\hat{p} < 0.5$ bar vorhanden ist. Ein Hohlraum mit dem Gleichgewichtsradius R_0 führt um diesen kleine Oszillationen aus. Der zeitlich veränderliche Radius wird durch

$R(t) = R_0 + R_\sim(t)$ bestimmt und es gelte $R_0 \gg R_\sim(t)$. Man ersetzt in Gleichung 2.8 p_{i0} durch p_0 und entwickelt auf Grund dieser Bedingung die Gleichung nach Taylor bis zur zweiten Ordnung. Man erhält folgenden Ausdruck für den inneren Druck:

$$p_i = p_0 \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\kappa} \approx p_0 \left(1 - 3\kappa \frac{R_\sim}{R_0} \right) \quad (2.9)$$

Diesen Ausdruck wird in Gleichung 2.7 eingesetzt, und $R\ddot{R}$ durch $R_0\ddot{R}$ ersetzt. Der quadratische Term in \dot{R} kann auf Grund der kleinen Schwingungsamplitude vernachlässigt werden. Wenn zusätzlich der Einfluß der Oberflächenspannung in Gleichung 2.7 vernachlässigt wird, erhält man folgende Gleichung:

$$\ddot{R}_\sim + \frac{3\kappa p_0}{\rho R_0^2} R_\sim = -\frac{\hat{p}}{\rho R_0} e^{i\omega t} \quad (2.10)$$

Sie hat die Gestalt einer linearen Schwingungsgleichung. Die Blase verhält sich also wie ein lineares Resonanzsystem unter der Einwirkung einer äußeren Kraft. Unter den gesetzten Annahmen berechnet sich ihre Resonanzfrequenz zu:

$$\omega_0 = \frac{1}{R_0} \sqrt{\frac{3\kappa p_0}{\rho}} \quad (2.11)$$

Diese Formel zur Berechnung der Resonanzfrequenz einer Blase ist von Minneart [42] entwickelt worden. Bei einem Druck von $p_0 = 1 \text{ atm}$ und einer Dichte des Wasser von 1000 kg/m^3 , ergibt sich für die Resonanzfrequenz

$$f_0 R_0 = 3.23 \text{ mm} \cdot \text{kHz}$$

wobei $\kappa = 1.4$ der Adiabatenkoeffizient der Luft ist.

Eine Blase mit dem Radius $R_0 = 20 \text{ }\mu\text{m}$ hat demnach eine Resonanzfrequenz von $f_0 = 161.5 \text{ kHz}$. Dieser Radius entspricht in etwa dem, die eine Blase bei den Experimenten dieser Arbeit hat.

Aus Gleichung 2.9 läßt sich die Federkonstante ableiten, indem man sie mit der Oberfläche der Blase, deren Radius R_0 beträgt, multipliziert und mit $F = -DR$ gleichsetzt.

$$D = 12\pi\kappa p_0 R_0 \quad (2.12)$$

Für die stationäre Lösung der Gleichung 2.10 ergibt sich:

$$R(t) = R_0 - \frac{\hat{p}}{\rho R_0(\omega_0^2 - \omega^2)} e^{i\omega t} \quad (2.13)$$

Wie erwartet führt die Blase harmonische Radialschwingungen aus. Liegt die Frequenz der Schallwelle unterhalb der Resonanzfrequenz einer Blase, so wird sie bei Überdruck komprimiert, während sie bei Unterdruck expandiert.

Auf Grund der Oberflächenspannung einer Blase, auf die in Abwesenheit einer äußeren Kraft nur der hydrostatische Druck wirkt, diffundiert ständig Gas in die Flüssigkeit. Im Schallfeld wird dieser Vorgang modifiziert. In der Überdruckphase wird zusätzlich Gas aus der Blase in der Flüssigkeit gelöst, während in der Unterdruckphase eine Diffusion in die entgegengesetzte Richtung stattfindet. Da aber mit zunehmenden Radius die Oberfläche der Blase quadratisch ansteigt, steht in der Überdruckphase mehr Fläche für die Diffusion zur Verfügung, als in der Unterdruckphase. Folglich verlangsamt dieser als "gleichgerichtete Diffusion" bezeichnete Vorgang die eigentliche Diffusion.

Erhöht man die Schalldruckamplitude, wird auch die Oszillation stärker und verlangsamt die Diffusion immer stärker, bis bei einer bestimmte Größe der Schalldruckamplitude die gleichgerichtete Diffusion die eigentliche Diffusion kompensiert. Oberhalb dieser Amplitude wird die Blase ständig weiter wachsen (Abb. 2.4). Ein größerer Blasenradius bedeutet gleichzeitig eine Erniedrigung der Resonanzfrequenz. Damit steigt die Schwingungsamplitude der Blase an, so daß die Voraussetzung einer linearen Blasenschwingung nicht mehr gegeben ist. Es treten in diesem Bereich oft Oberflächenwellen auf der Blase auf, die zu ihrer Zerstörung führen können [10].

Es existiert noch ein zweiter Effekt, der das Blasenwachstum nach Überschreiten der Resonanzfrequenz unterbindet. In einer realistischen Situation liegt ein Gradient des Schalldruckes p_a vor. Man kann zeigen, daß auf Grund dieses Gradienten eine veränderliche Kraft

$$\vec{F} = -V \cdot \text{grad}p \quad (2.14)$$

auf die Blase mit dem Volumen V wirkt. Der zeitliche Mittelwert dieser Kraft ist von null verschieden, weil das Volumen mit der dritten Potenz des Blasenradius anwächst.

Liegt nun die Schallfrequenz unterhalb der Resonanzfrequenz der Blase, ist die Änderung des Blasenvolumens und des Wechseldruckes gegensinnig. Das bewirkt eine Kraft in Richtung zunehmender Wechselschalldrucke. In einer stehenden Schallwelle, die wir im Experiment erzeugen, wandert die Blase in den Druckbauch.

Wird die Resonanzfrequenz durch das Wachsen der Blase kleiner als die Schallfrequenz, treibt die Kraft F sie zu abnehmenden Wechselschalldrucken,

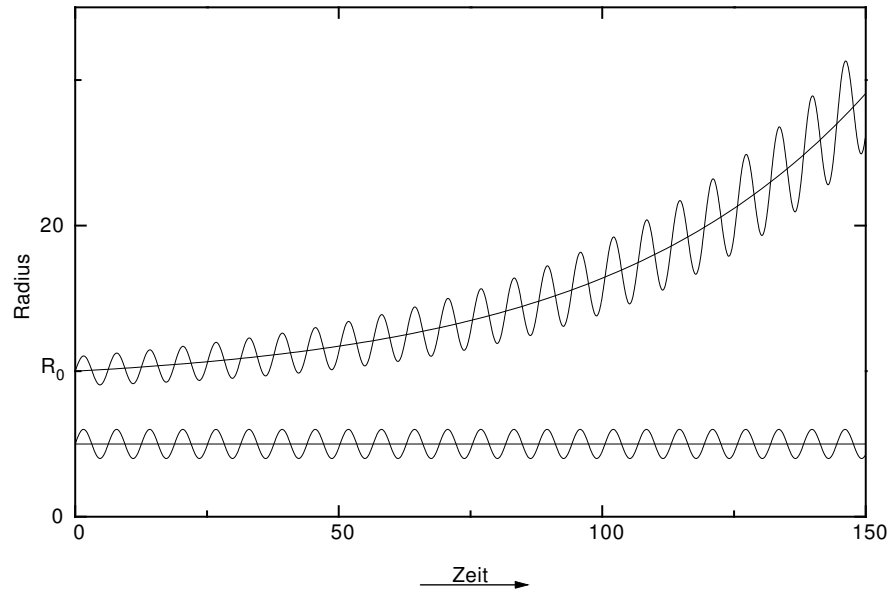


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Blasenschwingung unterhalb der Blasenresonanzfrequenz. Unten: Schalldruckverlauf. Oben: Blasenradius als Funktion der Zeit.

und sie verschwindet aus dem Schallfeld. Die Beschallung gasgelöster Flüssigkeiten führt also auf Grund dieses Vorgangs zu einer Entgasung derselben, wovon gelegentlich Gebrauch gemacht wird.

2.3.3 Radiale Bewegung bei großen Schallamplituden

Von Keller und Miksis [31] wurde eine Bewegungsgleichung für das radiale Verhalten einer Blase bei großen Amplituden entwickelt, in der der Einfluß der Oberflächenspannung σ , der Viskosität η und einer einfallenden Welle berücksichtigt wird. Zusätzlich wird die Annahme einer inkompressiblen Flüssigkeit aufgegeben.

Mit der Bewegungsgleichung soll der Radius $R(t)$ zur Zeit t einer sphärischen Gas- oder Dampfblase bestimmt werden. Es wird angenommen, daß der Druck innerhalb der Blase isotrop ist. Er setzt sich aus dem Dampfdruck

der Flüssigkeit p_d und dem Gasdruck $kR^{-3\kappa}$ zusammen:

$$p_i(R) = p_d + kR^{-3\kappa} \quad (2.15)$$

k ist eine Konstante, die durch die Quantität und den Typ des Gases bestimmt ist. κ ist der adiabatische Exponent des Gases. Der Druck $p_i(R)$ auf die Blasenwand mit der Randbedingung ($r = R$) ist in Folge der Oberflächenspannung und der normalen viskosen Spannung η größer als der von außen auf die Blase wirkend Druck $p(r = R, t)$. Der Binnendruck p_i kann somit durch die Gleichung

$$p_i(R) = p(R, t) + \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\eta}{3} \left(\frac{d^2}{dr^2} U(R, t) - \frac{1}{R} \frac{d}{dr} U(R, t) \right) \quad (2.16)$$

beschrieben werden. Mit $U(r, t)$ wird ein Geschwindigkeitspotential eingeführt, das die symmetrische, radiale Bewegung der Flüssigkeit beschreibt, die auf der Grenzfläche den selben Betrag hat wie die radiale Geschwindigkeit der Blase.

$$\dot{R} = \frac{d}{dr} U(R, t) \quad (2.17)$$

Das Geschwindigkeitspotential U , der Druck p und die Dichte $\varrho(r, t)$ müssen der Erhaltung der Masse, der Navier–Stokes– und der Zustandsgleichung genügen:

$$\dot{\varrho} + \frac{d}{dr} U \cdot \frac{d}{dr} \varrho + \varrho \Delta U = 0 \quad (2.18)$$

$$\varrho \left(\frac{d}{dr} \dot{U} + \frac{d}{dr} U \cdot \frac{d^2}{dr^2} U \right) + \frac{d}{dr} p = \frac{4\eta}{3} \frac{d}{dr} (\Delta U) \quad (2.19)$$

$$p = p(\varrho) \quad (2.20)$$

Um eine Bewegungsgleichung der Blase zu finden, muß man zuerst die Gleichungen 2.18–2.20 lösen. Dividiert man die Navier–Stokes–Gleichung durch ϱ und integrieren sie nach r in den Grenzen von r und ∞ , kann die folgende Gleichung erhalten werden:

$$-\dot{U} - \frac{1}{2} \left(\frac{d}{dr} U \right)^2 + \int_p^{p_\infty} \frac{1}{\varrho} dp - \int_r^\infty \frac{1}{\varrho} \frac{d}{dr} (\Delta U) dr = 0. \quad (2.21)$$

Unter der Voraussetzung von $U = 0$ bei $r = 0$ ist das Ergebnis eine modifizierte Bernoulli Gleichung, wobei p_∞ der konstante Druck im Unendlichen ist.

Der nächste Schritt ist die Differentiation dieser Gleichung nach t . Indem man $\dot{p} = p_\varrho \dot{\varrho} = c^2 \dot{\varrho}$ setzt, erhält man:

$$\ddot{U} + \frac{d}{dr}U + c^2 \frac{\dot{\varrho}}{\varrho} + \frac{4\eta}{3} \int_r^\infty \frac{d}{dt} \left[\frac{1}{\varrho} \frac{d}{dr}(\Delta U) \right] dr = 0, \quad (2.22)$$

wobei c die Schallgeschwindigkeit der Flüssigkeit ist. Durch Einsetzen der Erhaltung der Masse (Gl. 2.18) in Gleichung 2.22, kann $\dot{\varrho}$ eliminiert werden. Nachfolgende Division durch c^2 ergibt:

$$\begin{aligned} \frac{1}{c^2} \ddot{U} - \Delta U &= \frac{1}{c^2} \left(\frac{d}{dr}U \cdot \frac{d}{dr}\dot{U} + \frac{4\eta}{3} \int_r^\infty \frac{d}{dt} \left[\frac{1}{\varrho} \frac{d}{dr}(\Delta U) \right] dr \right) \\ &+ \frac{1}{\varrho} \frac{d}{dr}\varrho \cdot \frac{d}{dr}U \end{aligned} \quad (2.23)$$

Auf Grund der nahezu inkompressiblen Flüssigkeit ist c^2 groß im Vergleich zu den Termen auf der linken Seite, ebenso ist $(d/dr)\varrho$ klein. Deshalb kann die rechte Seite vernachlässigt werden, und die Gleichung vereinfacht sich auf:

$$\frac{\ddot{U}}{c^2} - \Delta U = 0 \quad (2.24)$$

Unter der Annahme einer konstanten Dichte ϱ kann Gleichung 2.21 nach $p(r, t)$ aufgelöst werden:

$$p(r, t) = p_\infty - \varrho \left[\dot{U} + \frac{1}{2} \left(\frac{d}{dr}U \right)^2 \right] + \frac{4\eta}{3} \Delta U \quad (2.25)$$

Die beiden letzten Gleichungen 2.24 und 2.25 sind Vereinfachungen der Erhaltung der Masse (2.18) und der Navier–Stokes–Gleichung (2.19). Im folgenden werden diese Gleichungen verwendet.

Der Ausdruck für $p(r, t)$ wird in 2.16 benutzt und man erhält die Gleichung:

$$\Delta(R) = -\dot{U} - \frac{1}{2} \left(\frac{d}{dr}U \right)^2 + \frac{4\eta}{\varrho R} \frac{d}{dr}U + \frac{2\sigma}{\varrho R} \quad (2.26)$$

$\Delta(R)$ ist die Druckdifferenz dividiert durch die Dichte ϱ mit der Randbedingung $r = R(t)$.

$$\Delta(R) = \frac{1}{\varrho} [p_i(R) - p_\infty] = \frac{1}{\varrho} [kR^{-3\kappa} + p_d - p_\infty] \quad (2.27)$$

Man sucht jetzt eine konkrete Form für das Geschwindigkeitspotential U , indem eine allgemeine Lösung der Gleichung 2.24 mit beliebigen Funktionen f und g angesetzt wird:

$$U(r, t) = \frac{1}{r} f\left(t - \frac{r}{c}\right) + \frac{1}{r} g\left(t - \frac{r}{c}\right) \quad (2.28)$$

Durch Einsetzen von 2.28 in 2.26 und 2.17, kann f eliminiert werden:

$$R\Delta(R) - cR\dot{R} = cU(R, t) - \frac{1}{2}R\dot{R}^2 + \frac{4\eta}{\varrho}\dot{R} + \frac{2\sigma}{\varrho} - 2\dot{g}\left(t + \frac{R}{c}\right) \quad (2.29)$$

Nach Differentiation dieser Gleichung und anschließendem Einsetzen von 2.26, um \dot{R} zu eliminieren, führt dies zur Bewegungsgleichung:

$$\begin{aligned} \ddot{R}\left(\frac{4\eta}{\varrho} - R[\dot{R} - c]\right) &= \frac{1}{2}\dot{R}^3 + \dot{R}\Delta(R) - c\left(\frac{3}{2}\dot{R}^2 + \frac{4\eta}{\varrho}\frac{\dot{R}}{R} + \frac{2\sigma}{\varrho R} - \Delta(R)\right) \\ &+ R\dot{R}\dot{\Delta}(R) + 2\left(1 + \frac{\dot{R}}{c}\right)\ddot{g}\left(t + \frac{R}{c}\right) \end{aligned} \quad (2.30)$$

In dieser Gleichung beschreibt \ddot{g} das äußere Schallfeld. Liegt eine sinusförmige Schallwelle vor, ergibt sich die Beziehung:

$$2\ddot{g} = \frac{c}{\varrho}\hat{p}\sin\omega t \quad (2.31)$$

Setzt man den Ausdruck in die obere Bewegungsgleichung (2.29) ein, kann die Gleichung

$$\begin{aligned} \ddot{R}\left(\frac{4\eta}{\varrho} - R[\dot{R} - c]\right) &= \frac{1}{2}\dot{R}^3 + \dot{R}\Delta(R) - c\left(\frac{3}{2}\dot{R}^2 + \frac{4\eta}{\varrho}\frac{\dot{R}}{R} + \frac{2\sigma}{\varrho R} - \Delta(R)\right) \\ &+ R\dot{R}\dot{\Delta}(R) + \frac{c}{\varrho}\left(1 + \frac{\dot{R}}{c}\right)\hat{p}\sin\omega\left(t + \frac{R}{c}\right) \end{aligned} \quad (2.32)$$

erhalten werden.

Diese Bewegungsgleichung gilt es numerisch zu lösen, da keine analytische Lösung existiert. Ein Beispiel einer solchen numerischen Lösung bei einer Schalldruckamplitude von 1.2 bar und einer Schallfrequenz von 21 kHz ist in Abb. 4.5 zu sehen.

Kapitel 3

Geschichtliches zur Sonolumineszenz

Die Geschichte der SL beginnt im Jahre 1754 mit einer Arbeit von Euler [14], in der er Strömungsverhältnisse in Turbinen untersuchte. Dabei vermutete er die Entstehung von kollabierenden Hohlräumen oder Kavitationsblasen, wenn Unterdrucke in Flüssigkeiten vorhanden sind. Solche Verhältnisse treten bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten auf, wie man sie z. B. in Turbinen beobachten kann.

Lord Rayleigh [51] untersuchte im Jahre 1917 die Erosion an Schiffsschrauben und stieß ebenfalls auf kavitierende Hohlräume, die er als Grund dieser Schädigung ansah. Darüber hinaus formulierte er erstmals eine mathematische Beschreibung einer inkompressiblen Flüssigkeit, in der sich in Gebieten mit Unterdruck plötzlich Hohlräume bilden können. Diese Theorie wurde in der durch Plesset [46] [47] modifizierten Form zur Grundlage der meisten späteren theoretischen Abhandlungen.

Erst in den Jahren 1933 wurde durch Marinesco und Trillat [38] bzw. 1933/34 durch Frenzel und Schultes [19] zum ersten Mal Lumineszenz bei ultraschallbeschickten Flüssigkeiten beobachtet. Die Vorlage dieser Entdeckung durch Frenzel und Schultes diente eine Arbeit von Beuthe [3], der die Bildung von H_2O_2 in Ultraschall ausgesetztem Wasser untersuchte. Die Amplitude des Ultraschalls mußte entsprechend hoch sein, damit sich Hohlräume oder Gasblasen im Wasser bilden, in dem die Gasbestandteile der Luft gelöst waren.

Er nahm dabei an, daß durch die heftigen mechanischen Bewegungen an der Grenzfläche Flüssigkeit–Blase sich ähnliche Vorgänge abspielen, wie bei

der Erzeugung der Reibungselektrizität. Prof. Mecke regte deshalb Frenzel und Schultes an, nach Lumineszenzerscheinungen bei ihren Versuchen mit Ultraschall bestrahlten Wasser zu suchen. Es gelang ihnen in der Tat solche Lichterscheinungen auf einer Photoplatte festzuhalten und direkt in einem dunklen Raum mit gut akkomodierten Augen zu beobachten.

Zur gleichen Zeit entwickelte Minneart [42] seine mathematische Formulierung zur Beschreibung der natürlichen Frequenz einer oszillierenden Blase in einer Flüssigkeit (Gleichung 2.11). Er setzte dabei voraus, daß sich die Kompression und Expansion des Gases adiabatisch vollzieht, und führte einen Ausdruck für den Binnendruck ein, der später als “polytropische” Relation bezeichnet wurde, und in vielen theoretischen Arbeiten zur Beschreibung der radialen Blasendynamik verwendet wurde:

$$p = p_i (R_0/R)^{3\gamma} \quad (3.1)$$

p_i bezeichnet den Gasdruck innerhalb der Blase mit dem Radius R_0 , wenn diese sich in Ruhe befindet. Er setzt sich aus dem hydrostatischen Druck der Flüssigkeit und dem durch die Oberflächenspannung σ erzeugten Binnendruck zusammen:

$$p_i = p_0 + 2\sigma/R_0 \quad (3.2)$$

p ist der Gasdruck in der Blase mit dem Radius R während einer Oszillation und mit γ wird der “polytropische” Exponent bezeichnet, der zwischen eins und κ , dem Verhältnis der spezifischen Wärmekapazitäten c_p/c_v liegt.

In dieser Zeit drängte sich natürlich die Frage auf, ob es noch andere Flüssigkeiten gibt, in denen eine kavitierende Blase Lichterscheinungen zeigt. Die Frage ist eindeutig mit ja zu beantworten, denn andere Stoffe, die eine ähnliche Viskosität wie Wasser haben, zeigen ebenfalls Lumineszenz. Chambers [8] [9] gab in seinen Arbeiten von 1936/37 eine Reihe solcher Stoffen mit ihrer relativen Intensität untereinander an. Dabei stellte sich heraus, daß Wasser bei weitem nicht die Flüssigkeit ist, welche die größte Lichtemission zeigt. Er gab allerdings keine Absolutwerte an, sondern verglich sie relativ zueinander, wobei Nitrobenzol oder Glycerol ($CH_2OHCHOHCH_2OH$) eine fast doppelt so hohe relative Intensität als Wasser zeigen.

Chambers führte die Lichtemission auf “Tribolumineszenz” zurück, jedoch waren andere Zeitgenossen nicht der gleichen Meinung. Beispielsweise vertrat Frenkel [18] die Ansicht, daß SL durch “Microdischarge” (mikroskopische elektrische Entladung) entsteht, und Weyl und Marboe [57] machten “mechanochemische Effekte” für die SL verantwortlich.

1947 entdeckten Paounoff et. al. [45], daß bei periodischer Anregung durch eine Schallwelle die Lichtemission nur in den Druckmaxima der Welle zu beobachten ist.

In der Folgezeit entstanden eine Reihe von theoretischen Arbeiten, welche die Blasendynamik mit genaueren Umgebungsvariablen beschreiben. An dieser Stelle sei die umfangreiche theoretische Arbeit aus dem Jahre 1950 von Noltingk und Neppiras [43] erwähnt, die wiederum Giffing und Sette (1955) [22] als Grundlage ihrer Arbeit diente. Sie vermuteten erstmals, daß während des Kollapses einer kavitierenden Blase große Drucke und Temperaturen entstehen, und dadurch möglicherweise chemische Reaktionen auslösen, welche die Lichtemission verursachen könnten. Diese Art der Entstehung des Lichtes hat sich durchgesetzt und war bis vor kurzem allgemein anerkannt.

Im Allgemeinen sind diese Theorien recht kompliziert und analytisch nicht zu lösen. Hickling et.al. [25] präsentierten 1963 eine numerische Berechnung einer frei oszillierenden Blase, in der das thermodynamische Verhalten des Blaseninhaltes durch eine direkte numerische Lösung der Erhaltungsgleichungen von Energie, Impuls und Masse beschrieben wird. Sie zeigten damit den großen Einfluß der thermischen Leitfähigkeit des Gases beim Blasenknall und bestätigten damit die experimentellen Ergebnisse von Prudhomme und Guilmarc [50] aus dem Jahr 1957. Diese frühen Experimente wurden 1988 von Verral und Sehgal [56] wiederholt und führten schließlich auf ähnliche Ergebnisse.

In den siebziger und achtziger Jahren folgte wiederum eine Flut von theoretischen Arbeiten über die Dynamik kavitierender Blasen, die sich im wesentlichen auf frühere Arbeiten beziehen. Jedoch hatten diese Arbeiten eine Reihe neuer experimenteller Ergebnisse zur Verfügung, die sie in die Lage versetzten, genauere mathematische Beschreibungen der thermodynamischen Bedingungen für ihre Formulierungen zu verwenden. Eine sehr ausführliche Arbeit stammt von Flynn [16] [17] aus dem Jahr 1973, während andere Autoren kürzere und übersichtlichere Arbeiten erstellten, wie die von Keller und Miksis (1980) [31] und Prosperetti (1988) [49].

Die eben erwähnten Modelle setzen sich analytisch mit akustischer Kavitation auseinander, lieferten aber keine analytischen Lösungen. Lauterborn [33] [34] veröffentlichte 1976 und 1982 Arbeiten, in denen er numerische Lösungen zur radialen Oszillation einer Kavitationsblase berechnete. In mehreren anderen Arbeiten [35] [36] beschäftigte er sich vor allem mit der chaotischen Natur der Blasendynamik in akustischen Schallfeldern.

Das jüngste Kapitel begann 1988, als es Gaitan und Crum [20] gelang,

durch besondere experimentelle Bedingungen (Kapitel 4) eine einzelne Blase zu reproduzierbarer Kavitation anzuregen. Damit war man in der Lage Experimente unter stabilen Bedingungen zu wiederholen. 1992 folgten die ersten Ergebnisse der Zeitabhängigkeit des Blasenradius von Gaitan et. al. [21]. Sie wurden mit einer auf Mie-Streuung [41] basierenden Lasertechnik gewonnen. Anschließend verglichen sie die Ergebnisse mit den Theorien von Flynn [16], Keller und Miksis [31] und mit Prosperetti et. al. [49] und stellten eine relativ gute Übereinstimmung zwischen ihren Experimenten und den Theorien fest. Es folgten weitere Veröffentlichungen aus dieser Gruppe, wie die von Crum [11] aus dem Jahre 1993, in der er eingehend die spektrale Verteilung der Lichtemission untersuchte.

Bereits ein Jahr früher veröffentlichte Hiller, Putterman und Barber [27] Ergebnisse, die sich im wesentlichen mit denen von Crum decken. Diese Gruppe, zu der auch Löffstedt und Roberts gehören, befaßt sich seit 1991 intensiv mit SL.

Kürzlich wurde durch eine neue Theorie die Diskussion über die Entstehung der Lichtemission wieder neu belebt, als man SL mit dem Casimir Effekt [7] in Verbindung gebracht hat. Die Strahlung soll nun nicht wie bisher angenommen durch chemischen Reaktionen entstehen, sondern durch die schnelle Bewegung der Grenzfläche Wasser-Gas [13]. Allgemein sagt der Casimir Effekt das Auftreten von Photonen voraus, wenn ein Spiegel in Vakuum bewegt wird.

War die Sonolumineszenz bis 1990 schon sehr sonderbar, so wurde sie es jetzt noch mehr, da durch die neueren Experimente noch mehr Rätsel aufgeworfen wurden, als man im Stande ist zu lösen. Somit kann man für die Zukunft noch einigen Überraschungen aus diesen Bereich der Forschung erwarten.

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der Versuchsaufbau beschrieben, mit der eine einzelne Blase zu Emission von Strahlung angeregt werden kann. In den Abschnitten wird detailliert auf die einzelnen Bauelemente und auf die Vorgehensweise der Erzeugung von Sonolumineszenz (SL) eingegangen.

4.1 Technische Realisierung

4.1.1 Elektronik zur Erzeugung von Schallwellen

Als Vorlage zum Aufbau des Experimentes, eine einzelne Blase zu Lichtemission anzuregen, diente eine Beschreibung von Robert Hiller und Bradley Barber [28]. Es stellte sich jedoch bald heraus, daß diese Arbeit wichtige Details im Unklaren läßt, und so den Erfolg erschwert. Nach eigenen Überlegungen entstand schließlich ein Versuchsaufbau, der zum gewünschten Erfolg führte. In Abbildung 4.1 ist der Prototyp, mit dem erstmals SL beobachtet wurde, dargestellt.

Die Sonolumineszenzblase wird in einem 100 ml Glaskolben erzeugt, der mit zweifach destilliertem und entgastem Wasser gefüllt ist. Auf der horizontalen Ebene werden gegenüberliegend zwei piezoelektrische Keramiken mit Epoxidkleber befestigt, die eine stehende Schallwelle im Glaskolben erzeugen. Dazu werden die Piezos mit einer Sinusspannung angesteuert, deren Amplitude ca. 200 V beträgt. Da eine stehende Welle mit einem Druckbauch benötigt wird, um eine Blase in diesem Bauch zu stabilisieren, hängt die Wahl der Frequenz von der Resonanzfrequenz des Glaskolbens ab.

Ein Frequenzgenerator erzeugt eine Sinusschwingung, deren Amplitude über einen Verstärker auf ca. 10 V erhöht wird. Zwei in Reihe geschaltete Spulen bilden mit den Kapazitäten der Piezokristalle einen elektrischen Schwingkreis, wobei die Spulen so dimensioniert sind, daß ein großer Teil der magnetische Feldenergie sich im stark inhomogenen Teil der Außenfelder befindet. Das Verhältnis der Spulenlänge zum Durchmesser ist kleiner als eins. Es werden Luftspulen mit einem Innendurchmesser von 80 mm und einer Länge von 50 mm verwendet.

Die Gesamtinduktivität der beiden in Reihe geschalteten Spulen wird einerseits von der Resonanz der Schwebezelle und andererseits von der Gesamtkapazität der piezoelektrischen Keramiken bestimmt. Die Einzelinduktivitäten

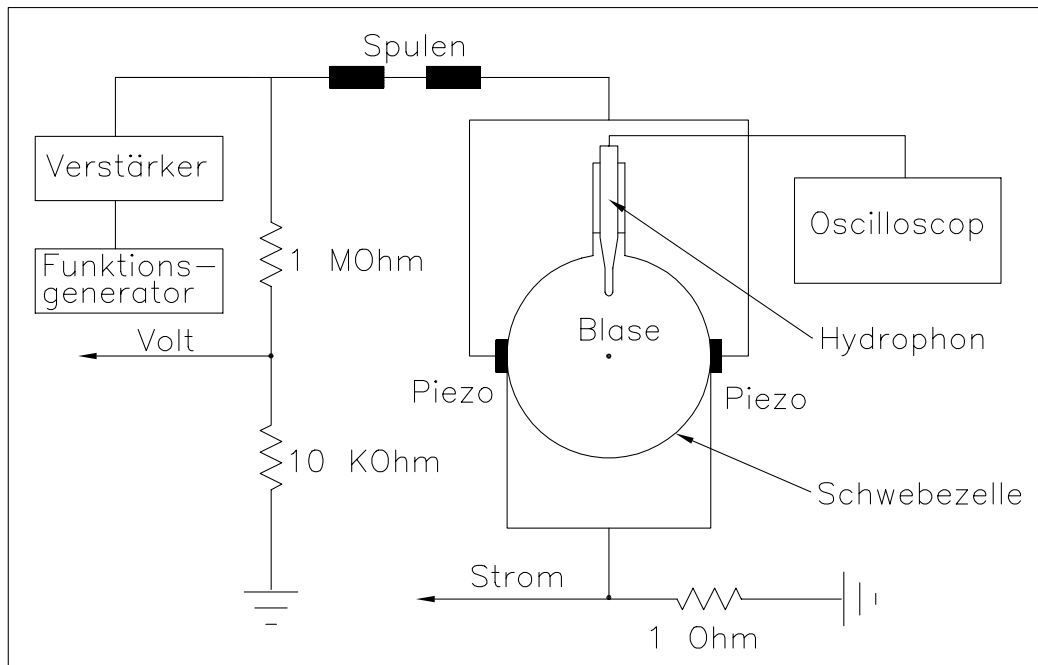


Abbildung 4.1: Versuchsaufbau zur Erzeugung einer leuchtenden Blase

berechnen sich wie die einer langen Spule, zusätzlich eines Faktors k , der das Verhältnis von Spulendurchmesser zur Spulenlänge berücksichtigt und kleiner als eins ist.

Verringert man den Abstand der Spulen, durchdringen sich die Felder mehr. Bei einem Abstand von 20 cm beeinflussen sich die Spulen nur unwesentlich, und die Gesamtinduktivität berechnet sich aus der Summe der

einzelnen Induktivitäten. Ist der Abstand dagegen null, wirken beide Spulen wie eine mit der doppelten Länge und der Faktor k wird zu eins.

$$B = k \cdot \mu_0 \cdot \mu_r \cdot I_{err} \cdot \frac{n}{l} \quad (4.1)$$

Sie haben also eine größere Induktivität, als im anderen Fall und je nach Abstand sind alle Werte zwischen diesen beiden Extremfällen möglich. Somit beeinflusst die Lage der Spulen zueinander die Gesamtinduktivität der beiden, und man hat die Möglichkeit, durch Verschieben die Resonanzfrequenz des elektrischen Schwingkreises auf die Resonanzfrequenz des Kolbens abzustimmen.

Die Spannungsüberhöhung im Schwingkreis verwendet man zur resonanten Erzeugung einer Schallwelle mit Druckamplituden von 1.0 - 1.5 bar, die benötigt werden, um eine Blase zur Lichtemission zu stimulieren.

Diese Technik erwies sich als sehr umständlich, da außer der mühsamen Einstellung auf die Resonanzfrequenz jedesmal, wenn unterschiedliche Piezos oder Gefäße verwendet wurden, neue Spulen dimensioniert werden mußten. Deshalb wurde das Prinzip der Spannungsüberhöhung durch die Resonanzfrequenz eines Schwingkreises aufgegeben. Die Spulen werden aus dem Stromkreis entfernt, und an deren Stelle wird ein Transformator zwischen Verstärker und Piezokristalle eingebaut (Abbildung 4.17). Die an den Piezokristallen benötigten 150 - 300 V, konnten nun durch Regelung des Verstärkungsverhältnisses des Trafos eingestellt werden.

Ein Spannungsteiler (1 M Ω zu 1 K Ω gegen Erde) zwischen Verstärker und Spule, dessen Signal auf ein Oszillograph gegeben wurde, ermöglichten es den Spannungsverlauf an den Piezokristallen zu beobachten. Um den Strom messen zu können, wurde zusätzlich ein 1 Ω Widerstand zwischen Piezos und Erde gelegt. Der Spannungsabfall an diesem Widerstand, der auf dem Oszillograph ebenfalls beobachtet werden konnte, ist nach dem Ohmschen Gesetz ein direktes Maß für den Strom.

4.1.2 Erzeugung einer leuchtenden Blase

Nachdem man den Kolben mit zweifach destilliertem und entgastem Wasser gefüllt hat, injiziert man mit einer Injektionsnadel eine Blasenwolke in die Flüssigkeit. Auf Grund des Druckgradienten (siehe 2.3.2) werden mit dem Auge gut sichtbare Blasen sofort aus dem Druckbauch herausgetrieben. Sind sie dagegen klein genug, wandern sie in die Mitte der Schwebezelle und

vereinigen sich zu einer Blase. Da sich das Volumen der Blase zwangsläufig vergrößert, könnte man nun annehmen, daß diese vereinte Blase wieder zu groß wird, und ebenfalls herausgetrieben werden müßte. Jedoch ist die Diffusion des in der Blase gelösten Gases in Richtung des entgasen Wasser schnell genug, um die vereinte Blase nicht weiter anwachsen zu lassen. Man beachte, daß die Diffusion hier über viele tausend Zyklen betrachtet wird, wobei sie

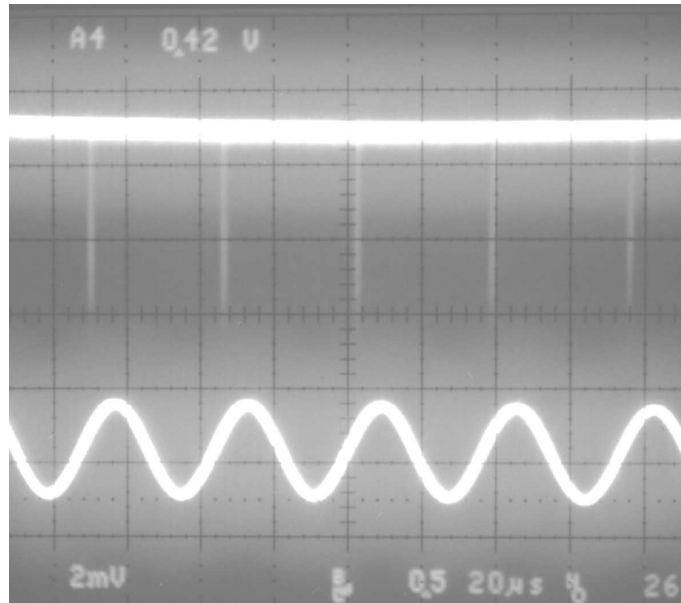


Abbildung 4.2: Aufnahme der Lichtemission mit einem PTM. Die Peaks im oberen Teil ist die Lichtemission der Blase. Im unteren Teil ist die Spannung an den Piezos zu sehen

während eines Zyklus als nahezu konstant angesehen wird. Das ist eine wichtige Voraussetzung für die theoretische Berechnung der radialen Oszillation (2.3).

Die typischen Radien einer stabil eingefangenen Blasen bei Gleichgewicht liegen zwischen 20 und 80 μm [21]. Gleichgewicht bedeutet, daß der Druck innerhalb der Blase und der Außendruck gleich groß sind.

Hat man nun den richtigen Gasgehalt (siehe 4.1.4) und die Resonanzfrequenz eingestellt, so wird unter Umständen trotzdem keine Lichtemission zu beobachten sein, denn ein sehr wichtiger Parameter ist noch nicht berücksichtigt worden. Die Blase zeigt bei verschiedenen Druckamplitude ganz un-

terschiedliches Verhalten und nur in einen sehr begrenzten Bereich ist SL möglich. In 4.1.5 werden wir die Druckbedingungen kennenlernen, bei der man Lichtemission beobachten kann.

Entsprechen alle Parameter den für die Lichtemission erforderlichen Bedingungen, leuchtet die Blase in einem bläulichen Licht. Seine Helligkeit ist mit dem eines schwach leuchtenden Sternes am nächtlichen Himmel zu vergleichen. Aufnahmen am Oszillograph zeigen eine gepulste Emission, dessen Frequenz gerade der Resonanzfrequenz des Kolbens entspricht (Abb.: 4.16).

Mit einem Hydrophon, dessen Aufbau und Funktion in 4.1.8 beschrieben wird, hat man die Möglichkeit zu kontrollieren, ob eine Blase vorhanden ist oder nicht. Mit ihm wird die Schalldruck in einem Gefäß gemessen. Ist eine kavitierende Blase vorhanden, wird dem Schalldrucksignal das Kavitationsgeräusch überlagert. Außerdem sendet die Blase eine akustische Stoßwelle aus, die in Abbildung 4.3 als scharfer Peak zu erkennen ist.

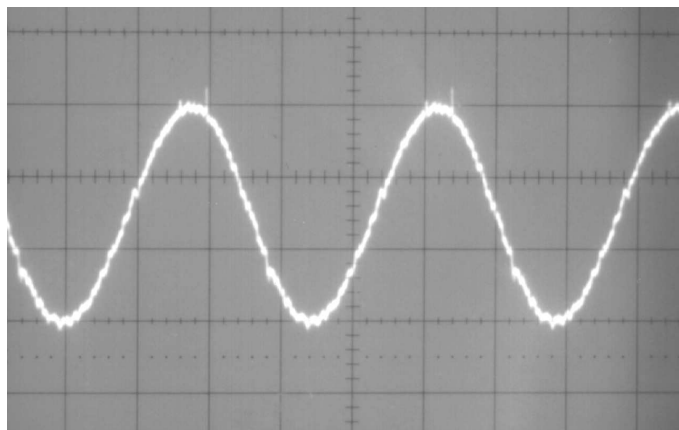


Abbildung 4.3: Typisches Signal eines Hydrophons, wenn eine kavitierende Blase vorhanden ist. Die Schalldruckamplitude beläuft sich auf 1.2 bar bei Abwesenheit der Blase

4.1.3 Blasendynamik

Es existiert nur ein verhältnismäßig kleiner Druckbereich, in dem eine Blase unter besonderen Bedingungen über einen längeren Zeitraum stabil oszillieren kann. Ansonsten ist die Dynamik eines kavitierenden Hohlraumes eher

“flüchtig”, das heißt, es findet eine Oszillation statt, die nach wenigen Zyklen in der Auflösung oder Zerstörung des Hohlraumes endet, während die “stabilen” Oszillation auch über Stunden bestehen bleibt. Flynn [17] führte diese Unterscheidung zwischen stabiler und flüchtigen Kavitation ein und gibt eine Schwelle der Druckamplitude an, oberhalb derer sich Blasen in einen flüchtigen Hohlraum entwickeln, während sich unterhalb eine stabile Oszillation ausbildet. Diese Schwelle besitzt einen bestimmten Wert des Verhältnisses R_{max}/R_0 und wird, wie unten angedeutet, experimentell auch bestätigt.

Die Luftblase, die einer akustischen Sinuswelle ausgesetzt ist, kann bei der entsprechenden Frequenz im Druckbauch der stehenden Welle eingefangen werden und unterliegt daher einer sinusförmigen Druckschwankung. Die Reaktion der Blase auf den veränderlichen Druck war der Inhalt vieler theoretischer Arbeiten [26] [43] [44] [48] [46], die als Ergebnis eine einfache nichtlineare gewöhnliche Differentialgleichung lieferten und den Radius als Funktion der Zeit beschreiben.

Eine wesentliche Verfeinerung des Problems ist in der theoretische Arbeit von Prosperetti, Crum und Commander [49] sowie von Flynn [16] erarbeitet worden, die unter anderem auch partielle Differentialgleichungen des inneren Druck und Temperatur der Blase beinhalten und mit der radialen Bewegungsgleichung gekoppelt sind.

Experimentell wurden für kleine Druckamplituden (≤ 0.25 bar) die theoretischen Vorhersagen der radialen Dynamik einer kavitierenden Blase recht gut in einer Arbeit Holt [30] bestätigt. Die sphärische Oszillation der Blase ist periodisch und hängt stark vom Gleichgewichtsradius R_0 ab. Zusätzlich zur linearen Hauptresonanz bei $R_0/R_{res} = 1/1$ treten weitere nichtlineare Resonanzen bei $R_0/R_{res} = 1/2, 1/3, \dots, 1/n$ auf mit den n-fachen Werten der antreibenden Frequenz f_d . R_{res} bedeutet hier den Radius einer Blase mit der natürlichen Eigenfrequenz f_{res} , die gerade der antreibenden Frequenz f_d entspricht. Sie berechnet sich nach Minneart [42] aus

$$f_{res} = \frac{1}{2\pi R} \sqrt{\frac{3\kappa p}{\rho}}. \quad (4.2)$$

Für das Experiment sind Oszillationen bei kleinen Druckamplituden jedoch nur bedingt interessant, da erst bei $p \geq 1.0$ bar Lichtemission zu beobachten ist. Blasenoszillationen bei einer Druckamplituden zwischen 1.0 und 1.5 bar sind von Gaitan et. al. [21] eingehend untersucht worden. Sie fanden heraus, das sich die Blasenoszillation im wesentlichen mit drei Parametern

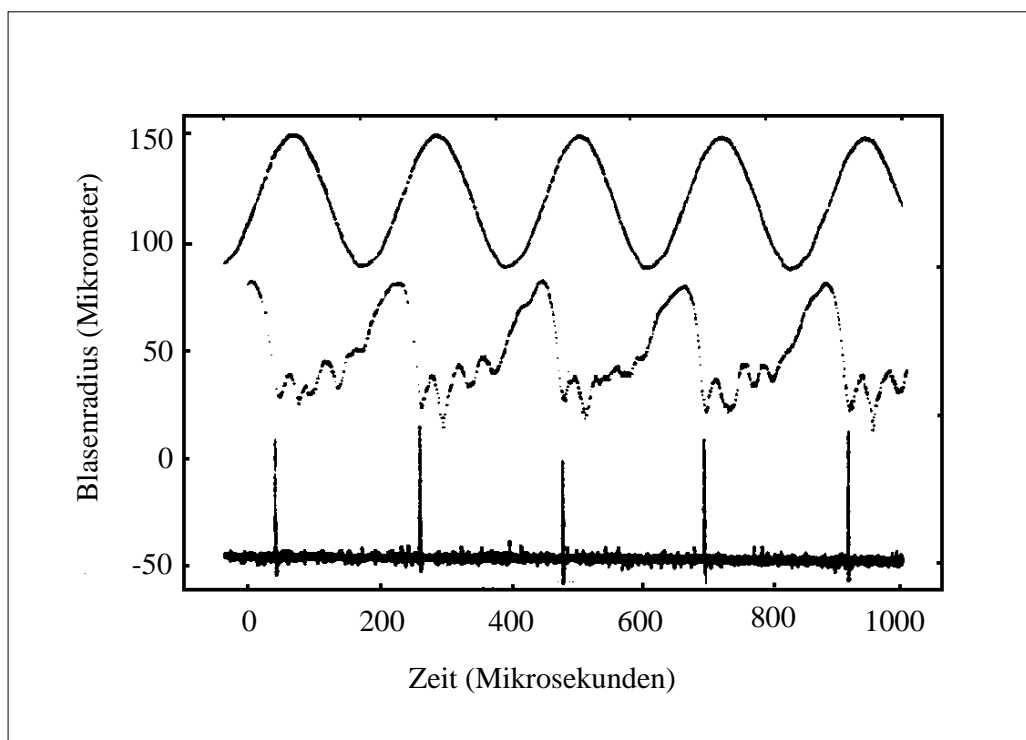


Abbildung 4.4: Experimentelle Kurve des Schallfeldes (oben), des Blasenradius (Mitte) und der Sonolumineszenz (unten) bei $P_a = 1.2$ bar und $f = 22.3$ kHz (Abb. aus [21])

(R_{max} , ϕ_c , M) beschreiben läßt. R_{max} steht für den maximalen Radius, der während einer Periode erreicht wird, ϕ_c beschreibt die Phase der Oszillation relativ zum Beginn des negativen akustischen Halbzykluses, und M gibt die Anzahl der Minima eines Zykluses an. In der Anzahl der Minima spiegelt sich die subharmonische Resonanz wieder. Beispielsweise beträgt die Anzahl der Minima der experimentellen Kurve aus Abbildung 4.4 vier. Das entspricht einer subharmonischen Resonanz mit dem Verhältnis $R_0/R_{res} = 1/4$. Dieser experimentelle zeitliche Verlauf des Blasenradius ist typisch für eine Blase, die Licht emittiert. In Abbildung 4.5 ist zum Vergleich ein theoretischer Verlauf des Blasenradius dargestellt.

Die radiale Oszillation, die mit einem Laserstreuexperiment aufgezeichnet worden ist [21], weist einen verhältnismäßig langsamen Anstieg des Blasenradius auf. Ist die Blase auf ihre maximale Größe angewachsen, beginnt sie

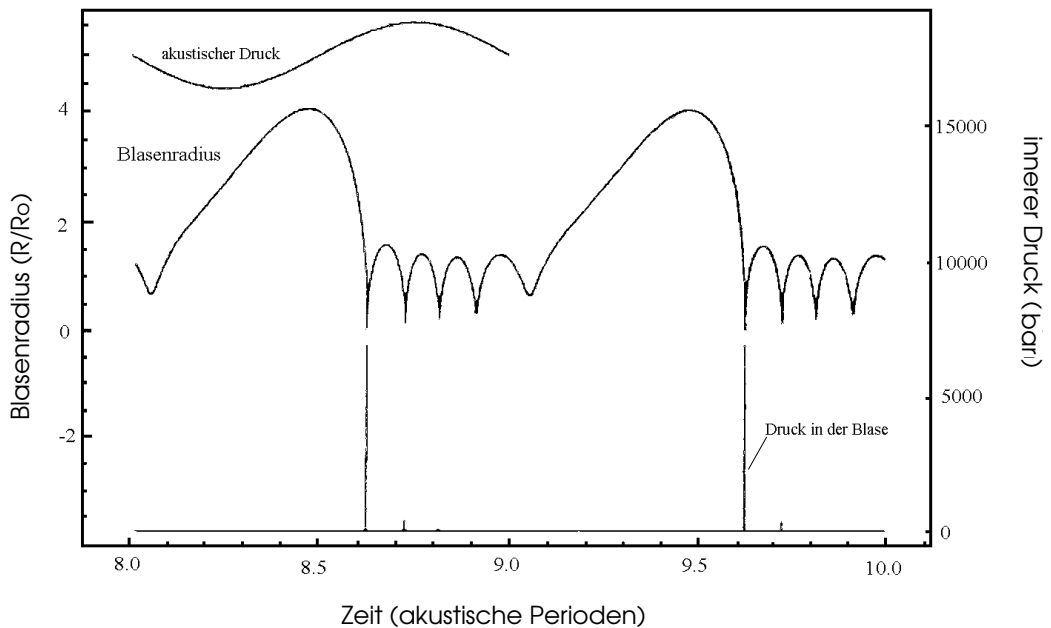


Abbildung 4.5: Theoretische Blasenkurve bei den gleichen Bedingungen wie in Bild 4.4 (Abbildung aus [21])

auf ihre kleinste Ausdehnung zu kollabieren, bei der die Bedingungen für Lichtemission erreicht werden. Danach schwingt der Blaseradius nach, bis von neuem der langsame Anstieg beginnt.

R_{max} ist jedoch kein statischer Wert, sondern hängt von der Druckamplitude ab. Erhöht man die Amplitude, so wächst auch der Radius, bis die Schwelle der flüchtigen Kavitation erreicht ist. Flynn gibt einen theoretischen Wert der Schwelle $R_{max}/R_0 \approx 2.2$ an für $R_0 = 20 \mu m$ an. Allerdings liegt der experimentelle Wert bei ~ 4 und ist größer als der vorausgesagte.

Des Weiteren kann man aus dem Abbildung 4.4 auch die Anzahl der Minima ablesen. Experimente bei verschiedenen Druckamplituden und verschiedenen Blasengrößen [21] haben ergeben, daß mit steigendem R_{max} die Zahl der Minima abnimmt. Man erklärt sich das aus dem zunehmenden Zeitaufwand für die Wachstumsphase der Blase bei zunehmendem maximalen Radius.

Der letzte die Blasendynamik beschreibende Parameter ist die Kollapsphase ϕ_c . Sie ist definiert, als die Phasenverschiebung (in Grad) vom Beginn der negativen Halbperiode der Schallamplitude zum Auftreten des minimal-

sten Radius, bei dem die Lichtemission stattfindet. ϕ_c verschiebt sich mit zunehmender Druckamplitude im Vergleich zur Amplitude der antreibenden Schallwelle. Die Kompressionsphase der Blase, deren Dynamik in Bild 4.5 dargestellt ist, beginnt bei 180° , während sich der Blasenkolllaps bei ca. 220° ereignet. Gaitan et. al. fanden, daß die Kollapsphase einer Blase über viele Zyklen bemerkenswert stabil ist, während sie aber für verschiedene Blasen-
größen unterschiedlich sein kann.

4.1.4 Präparation des Wassers

Es sollte zweifach deionisiertes Wasser verwendet werden, das nach Möglichkeit frei von Schwebeteilchen ist, damit die Oszillation so wenig wie möglich gestört wird. Es kann vom Institut für Biochemie bezogen werden. Allerdings ist dieses Wasser nicht frei von Schwebeteilchen, und es stand auch sonst keine Geräte zur Verfügung, die das Wasser filtern konnte. Handelsübliche Filteranlagen, die reinstes Wasser produzieren, sind sehr teuer und kommen deshalb aus Kostengründen für die kleinen benötigten Mengen nicht in Frage. So wurde eine einfache Methode entwickelt, die für die Experimente genügend reines Wasser lieferte.

Das Wasser wird zunächst entgast mittels der Anordnung, die in Abbildung 4.6.a zu sehen ist. Durch Unterdruck (der Dampfdruck des Wassers bei 23° C beträgt 21.068 Torr) wird das Wasser zum Kochen gebracht, während dabei die gelöste Luft aus der Flüssigkeit entweicht. Eine Vakuumpumpe wird an das Wasserreservoir angeschlossen, und ca. eine halbe Stunde betrieben, bis der Gehalt der gelösten Luft zwischen 5 und 25 % (das entspricht 0.5–2.7 mg/l) der Sättigung unter Normalbedingungen (1 bar und 23° C) liegt. Die Schwebezelle wird jetzt gründlich gereinigt, und anschließend mit einem Stülpstopfen verschlossen. Zwei große Injektionsnadeln (Durchmesser 1 mm) werden durch den Gummi gestoßen und jeweils über einen Schlauch mit der Vakuumpumpe bzw. mit dem Reservoir verbunden (Abbildung 4.6.b). Es ist darauf zu achten, daß kein Wasser in die Pumpe gelangt. Aus Sicherheitsgründen ist es empfehlenswert, ein großes Puffergefäß in die Leitung einzubauen, falls aus welchen Gründen auch immer, trotzdem Wasser in die Leitung eintreten sollte. Das Ende des Schlauchs im Reservoir muß dagegen unter Wasser sein, damit dieses angesaugt werden kann. In der Leitung zum Reservoir ist ein Filter der Firma *Millipore* geschaltet, dessen Porengröße $5\ \mu\text{m}$ beträgt. Schaltet man die Pumpe ein, wird das Wasser angesaugt, und gelangt durch den Filter in die Schwebezelle. Es ist empfehlenswert das Glas

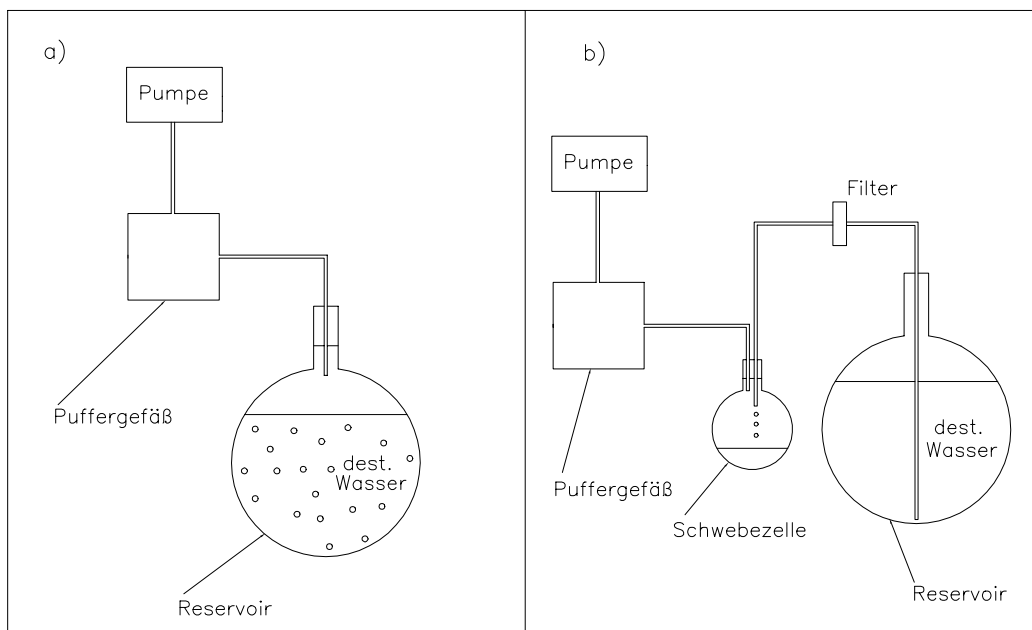


Abbildung 4.6: Entgasungsprozedur

mit dem ersten angesaugten Wasser nochmals auszuspülen, bevor man die so präparierte Schwebzelle für das Experiment verwendet.

Um den Gehalt der gelösten Luft nach dem Entgasen zu messen, stand uns ein Oximeter der Firma *WTW* zur Verfügung. Allerdings mißt dieses Gerät nur den gelösten Sauerstoff, nicht aber die anderen gelösten Bestandteile der Luft. Es genügt jedoch, die richtigen Bedingung für die Blase zu finden, bei der sie stabil oszillieren kann. Wollte man die anderen Bestandteile messen, müßte man einen erheblichen technischen Aufwand betreiben.

Die Messung des O_2 Gehaltes sollte entweder vor dem Filtern oder nach Beenden des Experimentes gemessen werden, weil die sauerstoffaktive Sonde im Wasser bewegt werden muß und das einerseits die Gefahr birgt, das Wasser zu verunreinigen und andererseits die Bewegung der Sonde eine Bewegung der Wasseroberfläche nach sich zieht, die den Lösungsvorgang der Luft in Wasser beschleunigt. Das Bewegen der Sonde ist notwendig, da die aktive Membran mit einem kleinen Teil des im Wasser gelösten Sauerstoffes reagiert und dabei ihre Empfindlichkeit verliert. Durch ständige Anströmen der Membran wird das verhindert. Der Filtervorgang hat selbst nur einen unwesentlichen Einfluß auf die gelösten Bestandteile des Wassers.

4.1.5 Resonanzabstimmung

Jedes Gefäß im Experiment hat eine eigene Resonanzfrequenz, deren Amplitude stark vom Wasserstand im Kolbenhals abhängig ist. Ist die Schwebezeile für den Versuch präpariert worden, erzeugt man nun die Schallwelle. Aus Erfahrung kennt man den Frequenzbereich, in dem diese Resonanzfrequenz sitzt. Für die verwendeten Gefäße liegt sie zwischen 20 und 30 kHz.

Man fährt für die grobe Bestimmung der Resonanz ein Frequenzintervall in 100 Hz-Schritten durch und mißt die Druckamplituden mit einem Hydrophon. Bei einer bestimmten Frequenz wird man eine erhöhte Schallamplitude auf dem Oszillograph beobachten können. Um die genaue Resonanzfrequenz zu bestimmen, verringert man die Intervallschritte, da sie bis auf 2 Hz kritisch ist. Der Wasserstand wird nun mit Hilfe einer Spritze reguliert, bis das Hydrophon (4.1.8) eine maximale Druckamplitude anzeigt. Durch das veränderte Wasservolumen verschiebt sich die Resonanzfrequenz etwas, weswegen die Frequenz der antreibenden Schallwelle nachgestimmt werden muß.

Verwendet man Wasser direkt nach der Entgasungsprozedur, ist es in Folge der Verdampfungsprozesses unter Vakuum kälter als die Temperatur im Raum. Deshalb muß man warten, bis sich die Temperatur des Wasser an die Umgebung angeglichen hat, oder falls man die Flüssigkeit kühlt, bis die Kühltemperatur erreicht ist. Dies ist erforderlich, da sich die Resonanzfrequenz durch die Temperatur ändert.

4.1.6 Stabilitätsverhalten

Es gibt mehrere Stabilitätskriterien, die für eine leuchtende Blase erfüllt sein müssen. Um überhaupt eine Blase zu erhalten, die stabil im Wasser oszillieren kann, muß der richtige Gasgehalt, der zwischen 5 und 25 % der Sättigung unter Normalbedingungen liegt, eingestellt werden. Ist der Gasgehalt unterhalb dieses Bereich, so verschwindet die Blase bei jeder Druckamplitude, da die Diffusion des Gases aus der Blase in die Flüssigkeit größer ist, als in der entgegengesetzten Richtung. Darüber sind die Diffusionsverhältnisse umgekehrt, und die Blase wächst, bis sie bei einer bestimmten Größe aus dem Druckbauch herausgetrieben wird. Nur in dem angegebenen Bereich kann sich ein Gleichgewicht der beiden Diffusionsrichtungen einstellen, so daß eine stabile Oszillation zustande kommt.

Ein weiteres wichtiges Kriterium ist die Höhe der Druckamplitude der stehenden Schallwelle, in deren Druckbauch die Blase oszilliert (Abbildung 4.7).

Ist sie klein, so wandert die Blase zwar in den Druckbauch und bleibt dort stabil stehen, aber sie zeigt keine Lichtemission. Die Blase wird allmählich kleiner und verschwindet wegen der Diffusion in Richtung des entgasten Wassers schließlich ganz. Erhöht man nun die Druckamplitude, erreicht man einen Bereich, in dem sie ihre Größe beibehält. Hier hat die "gleichgerichtete" Dif-

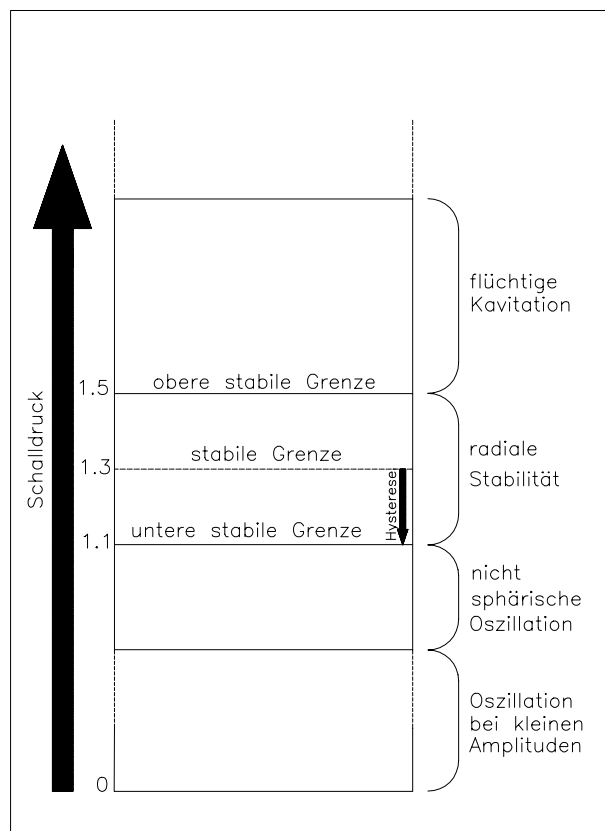


Abbildung 4.7: Diagramm der beobachteten Stabilitätsgrenzen von 15-20 μm Blasen bei akustischen Frequenzen zwischen 21 und 28 kHz

fusion (2.3.2) einen so großen Einfluß, daß sie die Diffusion in die Flüssigkeit kompensieren kann. Sie beginnt immer stärker zu "tanzen" und wirft zunehmend Mikroblasen aus, die durch Bjerkens Kräfte [5] wieder hineingezogen werden. Für das Auge erscheint eine Wolke aus Mikroblasen, die sich um eine größere Mutterblase scharen. Bei weiterer Anhebung der Amplitude, erreicht man ab ca. 1.3 bar einen Bereich, in dem die Blase äußerst stabil

steht. Dies ist mit dem Auge ersichtlich und wird durch Streuexperimente [21] bestätigt. In diesem Bereich beobachtet man nun Lichtemission der Blase, die mit zunehmender Druckamplitude stärker wird. Überschreitet der Druck ca. 1.5 bar, verschwindet die Blase plötzlich, und damit die Lichtemission. Auch bei weiterem Erhöhen des Druckes ist es nicht mehr möglich eine Blase zu stabilisieren.

Ist man im stabilen Bereich angelangt, in dem ein Leuchten beobachtet werden kann, tritt beim Senken der Druckamplitude ein Hystereseeffekt auf. Sie kann bis auf ca. 1.1 bar erniedrigt werden, ohne das die Blase instabil wird und die Lichtemission aufhört.

Obwohl es zunächst unmöglich erscheint, mit einer Injektionsnadel Blasen im Gefäß zu erzeugen, die ebengenannt Stabilitätskriterien genügen, so ist dies trotzdem die Methode, SL zu erzeugen. Denn bei einer Injektion werden viele Blasen gebildet. Die Großen ($> 200\mu m$) werden auf Grund des in 2.3.2 beschriebenen Gradientenfeldes sofort aus dem Kolben herausgetrieben, während die kleinen sich im Druckbauch zu einer einzigen zusammenschließen. Es ist auszuschließen, daß diese sofort die richtige Größe hat.

Wie in 2.3.2 beschrieben wurde, kann die gleichgerichtete Diffusion bei geeigneter Schalldruckamplitude die Diffusion auf Grund des Druckbeitrages der Oberflächenspannung kompensieren. Durch Senkung des Gasgehaltes der Flüssigkeit verschiebt sich diese Druckamplitude unter die Blake'sche Gleichgewichtskurve (Abb. 2.2) und es kann sich immer ein Gleichgewicht zwischen Radius und Schalldruck einstellen. Liegt der Gasgehalt zwischen 5 und 25 % entspricht die Druckamplitude gerade der Bedingung für Sonolumineszenz.

4.1.7 Eigenschaften der Piezos

Für die Erzeugung der Ultraschallwelle, deren Frequenz je nach Gefäßgröße zwischen 20 und 30 kHz variiert, werden piezoelektrische Keramiken verwendet. Den piezoelektrische Effekt findet man nur in Kristallgittern, die kein Symmetriezentrum haben. Das hat zur Folge, daß die elektrische Verteilung in der Einheitszelle asymmetrisch ist, und sich somit Dipole bilden können. Nach der Herstellung der äußeren Abmessungen liegen die Keramiken als polykristalline Körper vor mit regellos angeordneten Dipolen und zeigen noch keine piezoelektrischen Eigenschaften. Durch Anlegen einer hohen elektrischen Spannung an die angebrachten Elektroden des Kristalls werden die Dipole in Richtung des angelegten Feldes polarisiert und bleiben anschließend in dieser Lage. Damit ist die Keramik polarisiert.

In Abbildung 4.8 ist der piezoelektrischen Effekt und seine Umkehr dargestellt. 4.8.a zeigt einen Zylinder ohne äußere Beanspruchung. Wirkt ein externer Druck auf die Keramik so wird durch die Änderung des Dipolmomentes Ladungen auf den Elektroden erzeugt (4.8.b). In diesem Fall hat die entstehende Ladung dieselbe Polarität wie die Spannung bei der Polarisation, während bei Zug die Verhältnisse umgekehrt sind (4.8.c).

Im anderen Fall wird eine Spannung an die Elektroden gelegt, wodurch eine Längenänderung des Zylinders bewirkt wird. Hat die angelegte Spannung die gleiche Richtung wie die Dipole im Bauteil, so wird die Keramik zusammengedrückt (4.8.c), während bei entgegengesetzter Spannung eine Dehnung des Materials hervorgerufen wird (4.8.d).

Bevor die Frage aufkommt, welche Keramiken für das Experiment geeignet sind, werden zunächst einige piezoelektrische Konstanten vorgestellt, weil die Wahl letztlich von diesen abhängt. Als erstes werden die statischen Beziehungen der Konstanten zu den Parametern des piezoelektrischen Effektes betrachtet. Wird eine Keramik einer mechanischen Belastung oder einem elektrischen Feld ausgesetzt, tritt in Krafrichtung eine Längenänderung von

$$S = s \cdot T \quad (4.3)$$

auf, wobei s die Elektrizitätskonstante des Materials bzw. der Kehrwert des Elastizitätsmoduls ist. Die mechanische Spannung wird mit T bezeichnet. Legt man eine elektrische Spannung an die Elektroden wird ein elektrisches Feld induziert und man erhält die dielektrische Verschiebung D über die Beziehung

$$D = \epsilon \cdot E, \quad (4.4)$$

wobei ϵ die Dielektrizitätskonstante des Materials ist. Jede mechanische bzw. elektrische Beanspruchung bewirkt eine elektrische bzw. mechanische Reaktion in einem piezoelektrischen Bauteil. Das Wechselspiel zwischen mechanischer Kraft und elektrischem Feld ergibt sich aus den beiden Gleichungen:

$$S = s^E \cdot T + d \cdot E \quad (4.5)$$

$$D = d \cdot T + \epsilon^T \cdot E \quad (4.6)$$

Hochgestellte Indizes repräsentieren bei dieser Betrachtung die jeweils konstanten Größen. So ist s^E die Elastizitätskonstante bei konstantem E und ϵ^T die Dielektrizitätskonstante bei konstantem T .

Übersicht der wichtigsten Piezokonstanten eines Kristalls

| Symbol | Definition | SI-Einheiten |
|--------|--|---|
| d | <p><u>Piezoelektrische Ladungskonstante</u></p> <p>$\frac{\text{Erzeugte dielektrische Verschiebung}}{\text{Angelegte mechanische Spannung}} \quad (E=\text{const})$</p> <p>$\frac{\text{erzeugte Dehnung}}{\text{Angelegte Feldstärke}} \quad (T=\text{const})$</p> | <p>$\frac{C}{Pa \cdot m^2}$</p> <p>oder</p> <p>$\frac{C}{N}$</p> <p>$\frac{m}{V}$</p> |
| g | <p><u>Piezoelektrische Spannungskonstante</u></p> <p>$\frac{\text{Erzeugte Feldstärke}}{\text{Angelegte mechanische Spannung}} \quad (D=\text{const})$</p> <p>$\frac{\text{Erzeugte Dehnung}}{\text{Angelegte dielektrische Verschiebung}} \quad (T=\text{const})$</p> | <p>$\frac{V}{Pa \cdot m}$</p> <p>oder</p> <p>$\frac{Vm}{N}$</p> <p>$\frac{m^2}{C}$</p> |
| k | <p><u>Kopplungsfaktor</u></p> <p>$k^2 = \frac{\text{umwandlungsfähige, gespeicherte Energie}}{\text{gesamte, aufgenommene Energie}}$</p> | |

E: Energie, T: mechanische Spannung, D: dielektrische Verschiebung

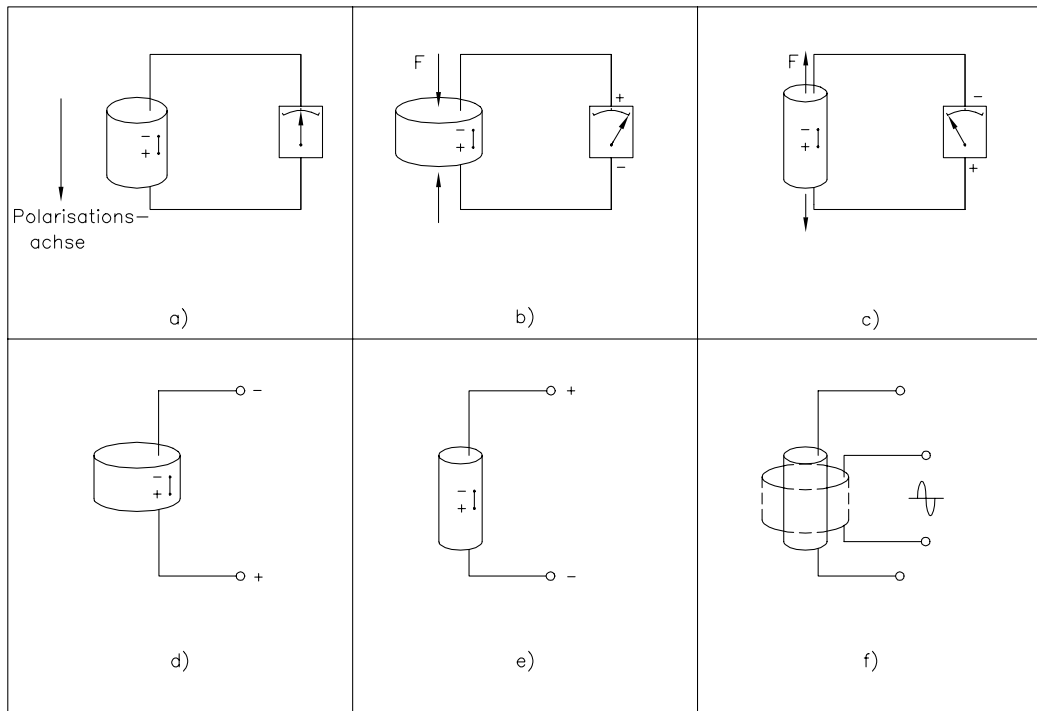


Abbildung 4.8: Allgemeiner piezoelektrischer Effekt a) keine Belastung des Piezos b) Piezo unter mech. Druckbelastung c) Piezo unter mech. Zugbelastung d) Piezo bei Anlegen eines el. Feldes mit gleicher Richtung wie die Polarisationsachsen e) Piezos bei entgegengesetztem el. Feld f) Piezo bei angelegtem el. Wechselfeld

Wir haben nun zwei Möglichkeiten, die Größe d zu betrachten. Setzt man in Gleichung 4.5 $E = 0$, so reduziert sie sich auf

$$D = d \cdot T \quad (4.7)$$

d bedeutet hier die Ladungsdichte pro Einheit der mechanischen Spannung bei konstanter elektrischer Feldstärke. Für den unbelasteten Zustand ($T = 0$) ergibt sich aus Gleichung (4.4) eine weitere Definition von d :

$$S = d \cdot E \quad (4.8)$$

Die Konstante d bezeichnet in diesem Fall die mechanische Dehnung pro Feldstärkeeinheit bei konstantem äußeren Druck.

Die in der Tabelle angegebene Konstante g ergibt sich aus Gleichung 4.5 zu:

$$E = -\frac{d}{\epsilon^T} \cdot T \quad (4.9)$$

oder, für

$$\frac{d}{\epsilon^T} = g \quad (4.10)$$

$$E = -g \cdot T \quad (4.11)$$

Damit ist die piezoelektrische Spannungskonstante g als die Feldstärke definiert, die auf eine mechanische Druckeinheit im elektrisch unbelasteten Fall bezogen ist. Auch für g gibt es einen zweiten Zugang. Kombiniert man Gleichung 4.4 und 4.5 so erhält man

$$S = \frac{d}{\epsilon^T} \cdot D = g \cdot D \quad (4.12)$$

und die Dehnung S wird auf die Ladungsdichte bei konstantem äußeren Druck bezogen.

d erhält man aus folgender Formel

$$d = k \cdot \sqrt{\epsilon^T \cdot s^E} \quad (4.13)$$

Somit ergibt sich für das Produkt von d und g die Gleichung

$$g \cdot d = k^2 \cdot s^E, \quad (4.14)$$

das proportional zum Quadrat des Kopplungsfaktor ist. Man erkennt daraus, das für die meisten Anwendungen die beiden Werte g und d groß sein sollten, um die Verlust möglichst klein zu halten.

Die Konstanten hängen in piezoelektrischen Materialien von der Richtung des elektrischen Feldes, der dielektrischen Verschiebung der mechanischen Spannung und der Dehnung ab. Es werden deshalb den Symbolen untere Indizes angehängt, die die Richtung angeben.

Die Ziffern 1, 2 bzw. 3 entsprechen der x, y und z Achsen, wobei gewöhnlich die positive Polarisationsachse in z Richtung gewählt wird (Abb. 4.9). Die Scherung an diesen Achsen werden mit den Ziffern 4, 5 und 6 versehen. So ist beispielsweise ϵ_{11}^T die Dielektrizitätskonstante für die dielektrische Verschiebung in Richtung 1 bei konstanter Spannung ($T = 0$). Die zweite eins

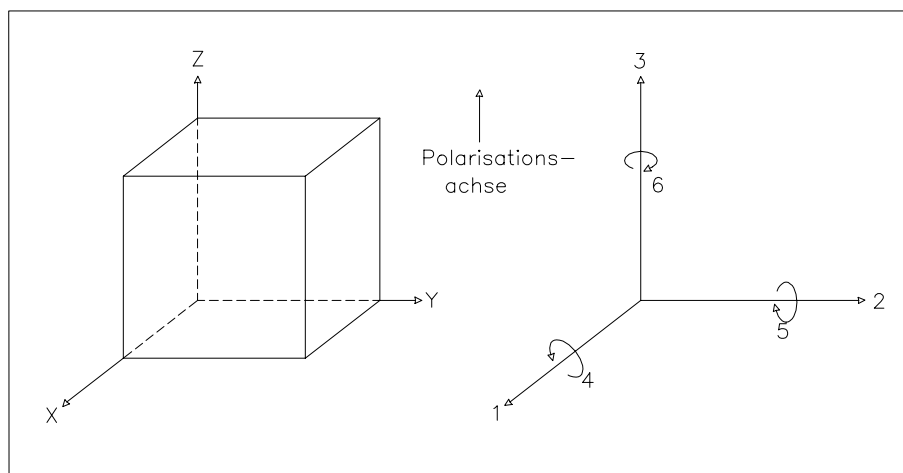


Abbildung 4.9: Notation der Richtungen

gibt die Richtung des elektrischen Feldes an, das hier in dieselbe Richtung zeigt.

Für das Experiment wurden piezoelektrische Scheiben bzw. Ringe der Firmen *PI Ceramic* und *Ferroperm* verwendet. Die Elektroden bestehen aus einem Silberleitüberzug, und befinden sich auf den Kreis- bzw. Ringflächen. Auf diese werden dünne Drahte aufgelötet, die über kleine Bananenstecker an den Transformator angeschlossen sind. Die Kreisflächen der Piezobauteile werden anschließend mit einem Zwei-Komponentenkleber auf das Gefäß aufgeklebt.

Um eine möglichst große Schallamplitude zu erhalten, benötigen wir Werkstoffe, deren mechanische Dehnung d pro Feldstärkeinheit möglichst groß ist. Mit anderen Worten, die Keramik sollte eine möglichst große d_{33} Konstante haben.

Die Werkstoffe *Pz26* und *Pz27* der Firma *Ferroperm* stellten sich als geeignet heraus. Allerdings wirkten sich die großen Abmessungen der bestellten Bauteile (Außendurchmesser 51 mm, Innendurchmesser 20 mm, Dicke 10 mm) störend auf die Symmetrie der Schwebezelle aus. Außerdem lag bei ca. 20 kHz eine Resonanzfrequenz der Bauteile, so daß die Kapazität der Piezos im Bereich von 20 bis 30 kHz nicht konstant ist.

Abbildung 4.10 zeigt die kapazitive Abhängigkeit der verschiedenen Piezokeramiken von der Frequenz. Die Störung der Schwebezellsymmetrie äußer-

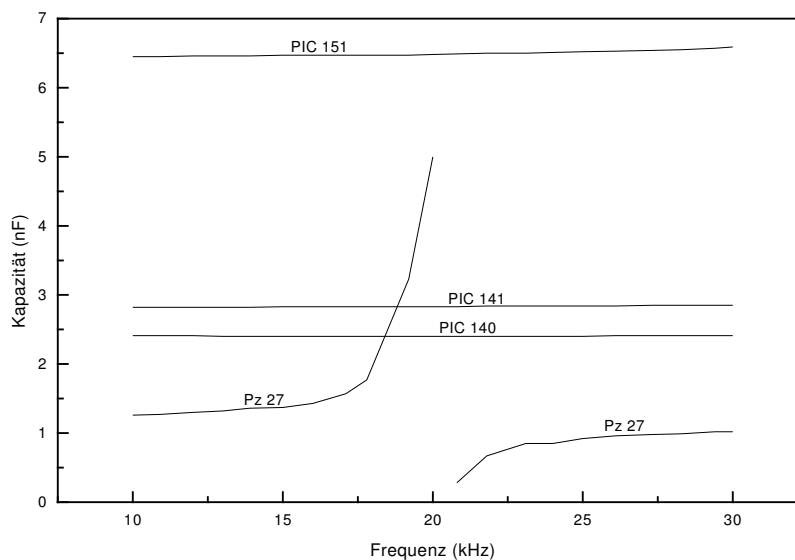


Abbildung 4.10: Kapazitive Abhängigkeit verschiedener Piezokristalle von der Frequenz

te sich darin, daß die Blase zwar stabilisiert und zu Lichtemission angeregt werden konnte, sie aber nie in der Mitte des Kolbens saß. Außerdem war es nicht möglich die Blase über einen längeren Zeitraum zu beobachten, da sie regelmäßig nach wenigen Minuten verschwand.

Anders war das bei den verwendeten Scheiben mit einem Durchmesser von 10 oder 20 mm und einer Dicke von 1 mm, mit denen die emittierende Blasen über Stunden stabil gehalten werden konnte. Auch war die Kapazität im oben genannten Frequenzbereich nahezu konstant (Bild 4.10). Diese Piezokeramiken können von der Firma *PI-Ceramic* bezogen werden, und bestehen aus den Materialien *PIC 140*, *PIC 141* oder *PIC 151*, die sich alle drei als geeignet erwiesen.

4.1.8 Druckmessung

Zum Messen der Druckamplitude überließ uns die Arbeitsgruppe von Professor Eisenmenger von der Universität Stuttgart ein Sonden- oder Nadelhydrophon.

Es besitzt ein aktives Element aus einem piezoelektrischem Polymer. Das Polyvinylidenfluorid (PVDF) ist stofffester als kristalline Werkstoffe. Dabei bleibt die Linearität zwischen Druck und elektrischer Spannungen über weite Bereiche erhalten. Meeks und Ting [39] fanden bei dynamischer Belastung von PVDF-Folien mit Drucken zwischen 0 und 650 bar Abweichungen unter 7% von der Linearität.

Ein Hydrophon besteht aus einem Stück Kupferfestmantel-Koaxialkabel (Außendurchmesser 3 mm, Durchmesser des Innenleiters 1 mm), dessen inneres Ende auf der Spitze mit einer 24 μm dicken PVDF-Folie beklebt ist (Abb. 4.11). Der Mantel wird auf eine Länge von 20 mm entfernt, und das

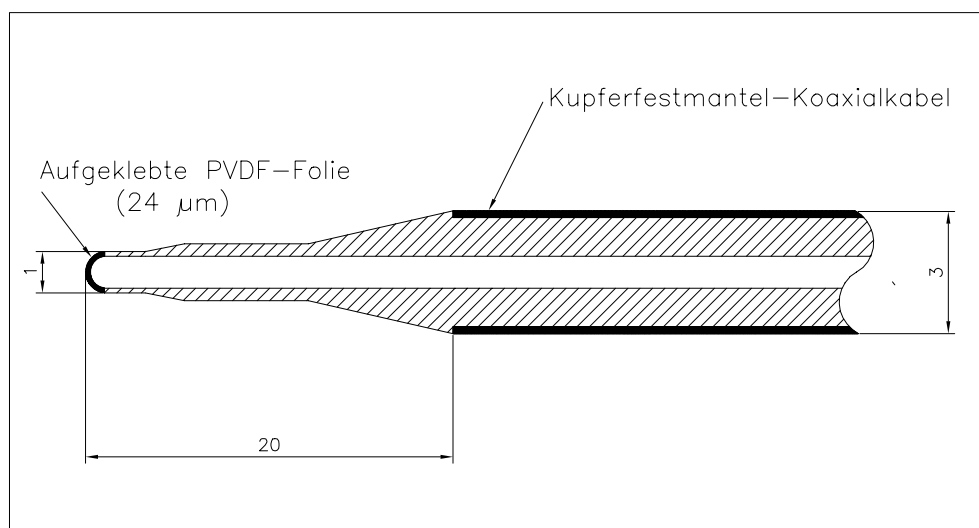


Abbildung 4.11: Querschnitt durch ein Hydrophon

Isoliermaterial zwischen Innen- und Außenleiter nach vorne verjüngt.

Der aktive Bereich der Folie bleibt auf den Durchmesser des Innenleiters beschränkt. Das vordere Ende und der Bereich, in dem der Mantel entfernt wurde, wird mit Leitsilber überzogen, oder es wird ein Chrom-Gold Überzug aufgedampft, um die Abschirmung des Innenleiters in diesem Bereich

wiederherzustellen.

War die aufgeklebte Folie vorher noch nicht polarisiert, so wird sie es anschließend, damit sie ihre piezoelektrischen Eigenschaften erhält. Dies erreicht man, indem für einige Sekunden bei Zimmertemperatur eine Polarisationsfeldstärke von 2 MV/cm angelegt wird [4]. Man erhält typischerweise einen homogenen aktiven Bereich von 0.5 mm Durchmesser. Am anderen Ende des Koaxialkabels wird eine handelsübliche Steckverbindung angelötet, und kann durch ein Kabel direkt mit einem Oszillograph verbunden werden. Die im Piezomaterial unter mechanischem Druck entstehenden Ladungen

1st: -0.146 mV / +0.0109 ms 2nd: +1.56 mV / +0.013 ms



Abbildung 4.12: Hydrophonantwort auf einen ebenen Drucksprung mit $P_r = 37\,100$ Pa

können dort direkt abgelesen werden, falls die Y-Koordinate eine genügend feine Auflösung (2 mV) hat.

Natürlich hat jedes auf diese Weise hergestelltes Hydrophon charakteristische Eigenschaften und muß deshalb geeicht werden. Die Arbeitsgruppe von Professor Eisenmenger besitzt eine solche Kalibrierungsanlage mit der auch unser Gerät geeicht wurde. Die Kalibrierung erfolgte bei einer Temperatur von 25°C mit einem rechteckigen Drucksignal von $P_r = 37\,100$ Pa. Die

Hydrophonkapazität betrug 14.7 pF, während sich die Gesamtkapazität, die Summe aus Hydrophon-, Kabel- und Gerätekapazität, bei der Eichung auf $C_0 = 116$ pF belief.

Bei einer Meßanordnung mit der Kapazität C^* gilt für die Empfindlichkeit H^* des Hydrophons:

$$H^* = H^0 \frac{C^0}{C^*} \quad (4.15)$$

In der Sprungantwort des Hydrophons auf den Rechteckpuls beobachtet man bei der Anstiegsflanke eine Druckerhöhung. Sie entsteht durch schallharte Reflexion der Druckwelle an der Hydrophonspitze [24]. Das hat zur Folge, daß man bei unterschiedlichen Zeitaufösungen unterschiedliche Empfindlichkeiten erhält.

| Zeit t (μ s) | 0.148 | 0.2 | 0.5 | 1 | 1.5 | 2 |
|--|-------|-----|-----|-----|-----|-----|
| Empfindlichkeit H^0 ($\text{mV}10^{-1}\text{MPa}^{-1}$) | 7.9 | 7.5 | 5.1 | 4.3 | 4.2 | 4.4 |

Die äußeren Abmessungen legen weitgehend die Sprungantwort des Hydrophons fest. Das durch das Hydrophon gestörte Schallfeld setzt sich aus einfallender, schallhart reflektierter und am Hydrophon gebeugter Welle zusammen. Dabei erfahren die hohen Frequenzkomponenten an der Spitze schallharte Reflexion, solange ihre Wellenlängen klein gegenüber dem Sonden-durchmesser bleibt. Bei einer senkrecht einfallenden Welle verdoppelt sich der auf dem aktiven Element ruhende Druck. Dagegen werden tiefe Komponenten durch das Hydrophon gestreut [55]. Die Druckamplitude auf der Hydrophonoberfläche entspricht dabei der Amplitude der einfallenden Welle. Abbildung 4.13 zeigt die Wechselwirkung eines ebenen Drucksprunges mit einem stabförmigen Hindernis.

Betrachtet man die Oberfläche eines Hydrophons als ebenen Kolbenstahler, so kann man seinem Schallfeld die schallhart reflektierte Welle und die Beugungswelle zuordnen. Trifft eine ebene Schallwelle auf diese Oberfläche, wird diese schallhart reflektiert, während an den Ecken die gebeugten Wellen entstehen und sich danach ausbreitet. Für die Druckverteilung im Moment des Auftreffens der Welle auf das Hydrophon trägt die Beugungswelle also nicht bei. Man beobachtet einen doppelt so großen Druck wie erwartet, der sich aus der Druckwelle selbst und der reflektierten Welle zusammensetzt. Erst

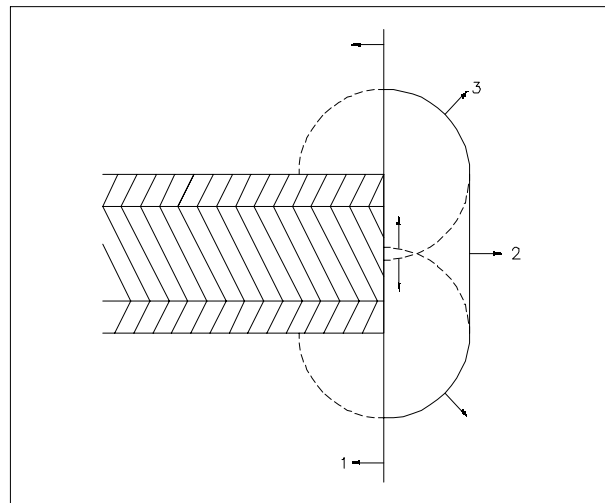


Abbildung 4.13: Drucksprung: durchgezogene Linien kennzeichnen Gebiete mit Kompression, gestrichelte dagegen solche mit Expansion. (1) reflektierte -, (2) und (3) gebeugte Welle

nach und nach, so wie sich die Beugungswelle ausbreitet, sinkt der Druck und erreicht seinen eigentlichen Wert, wenn die Beugungswelle den ganzen aktiven Bereich überstreicht.

Bei dem hier verwendeten Nadelhydrophon fällt die anfängliche Amplitude innerhalb von ca. 500 ns auf die Hälfte ab (siehe Tabelle). Legt man einer Schallgeschwindigkeit $c = 1500$ m/s zu Grunde, läßt das auf einen polarisierten Durchmesser von 0.5 mm schließen.

4.1.9 Schwebezelle

Die Schwebezelle muß so ausgerichtet sein, daß sich eine stehende Welle mit mindestens einem Druckbauch ausbilden kann. Andererseits sind mehrere Druckbäuche unerwünscht, da dann die Amplituden kleiner sind. Hierzu eignen sich sphärische und zylindrische Gefäße besonders gut, aber es werden auch rechteckige Schwebezellen verwendet. Welche Gefäße schließlich benutzt werden, hängt von der Art des Experimentes ab. Für Streuexperimente wird man die sphärische oder zylindrische Variante bevorzugen.

An dieser Stelle sei kurz erklärt, wie dieses Streuexperiment aufgebaut

ist (Abb. 4.14). Die Blase wird wie in 4.2.1 erzeugt. Der Laserstrahl wird

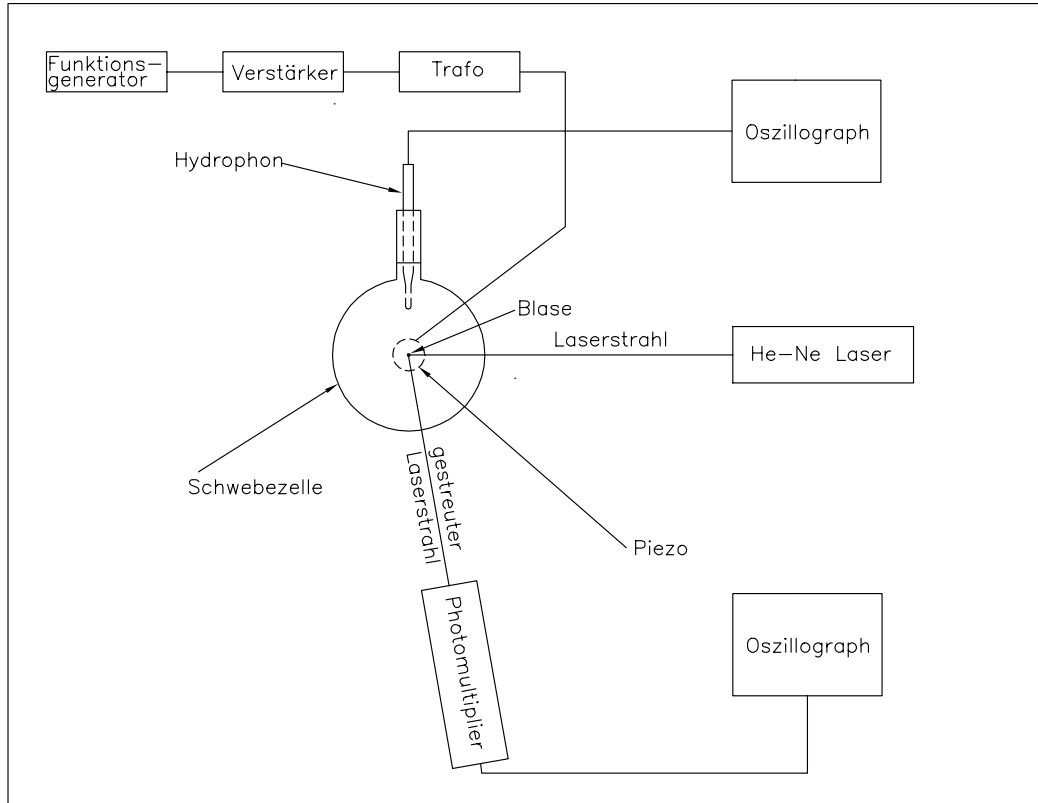


Abbildung 4.14: Steuexperiment mit einem He- Ne Laser um die radiale Blasenschwingung aufzunehmen

so positioniert, daß sich die Blase möglichst in der Mitte des Strahlprofils befindet. Eine Detektoreinheit, die das Streulicht mißt, wird in der horizontalen Ebene montiert, in der sich auch der Laserstrahl befindet. Der Winkel zwischen Laserstrahl und der Linie Blase-Detektor beträgt ca. 80° , weil auf Grund der Mie-Streuung bei diesem Winkel eine maximale Intensität erwartet wird. Näheres zu diesem Versuch findet sich bei Hansen [23], Hold [29], Lentz [37] und Mie [41].

Es wurden in dieser Arbeit zylindrische und sphärische Gefäße ausprobiert. Die zylindrischen haben gewisse Nachteile, die letztlich den Ausschlag für die sphärische Variante gaben. Beispielsweise ist die Herstellung einer zylindrischer Schwebezelle etwas komplizierter, während kugelförmige im Handel

erhältlich sind, und man nur noch die Piezokristalle aufzukleben hat.

Für die Aufnahme eines Spektrums ist natürlich auch die Transmission des verwendeten Glases sowie die des Wassers von Wichtigkeit. Das hier verwendete Material ist PYREX, dessen Transmissionskurve neben einigen anderen aus Abbildung 4.15 zu entnehmen ist. Es ist ersichtlich, dass ein Quarzkolben einen zum UV hin größeren Spektralbereich transmittieren wird, aber da die Empfindlichkeit des zur Verfügung stehenden Photomultipliers bei ca. 300 nm abschneidet, ist die Verwendung des Materials PYREX gerechtfertigt. Für die Aufnahme der ganzen Breite des Spektrums muß nicht nur das Glas, sondern der PTM und die optische Einheit entsprechend ausgelegt sein. Die

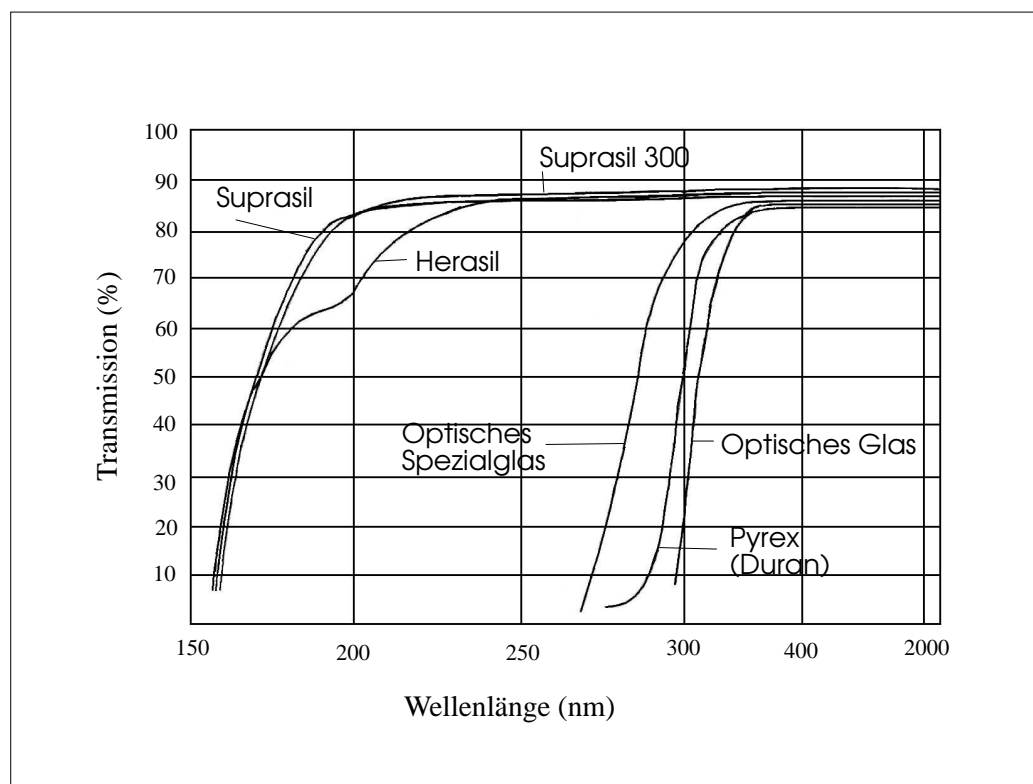


Abbildung 4.15: Transmissionskurven verschiedener Küvetten

natürliche Grenze des Spektrums zu kurzen Wellenlängen ist das Wasser, das unterhalb von ca. 180 nm absorbiert.

Das Gefäß ist, wie bereits erwähnt, mit zweifach destillierten und entga-

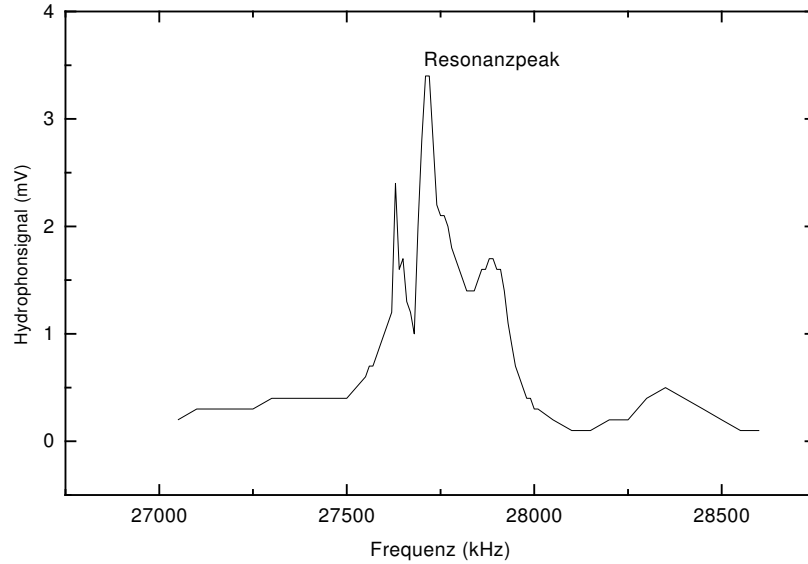


Abbildung 4.16: Typische Resonanzkurve einer 100 ml Schwebzelle

stem Wasser gefüllt. Wasser-Glyzerin Gemische eignen sich ebenfalls für die Lichterzeugung, werden aber in diesen Experimenten nicht verwendet. Von besonderer Wichtigkeit ist die Füllhöhe im Kolbenhals, da sie die Amplitude der Resonanzfrequenz maßgeblich beeinflusst. Es gehört etwas Geschick und Geduld dazu, die optimale Füllhöhe zu finden. Gelegentlich beobachtet man bei mehreren Frequenzen eine größere Amplitude, die auch dicht beieinander liegen können, aber nur eine davon ist die Frequenz, die eine Blase im Druckbauch zu Lichtemission anregen kann (Abbildung 4.16).

Ein weiteres Problem besteht darin, daß sich die Resonanzamplitude bei Zugabe oder Entnahme von wenigen Tropfen Wasser drastisch ändern kann und gleichzeitig eine leichte Änderung der Resonanzfrequenz beobachtet wird.

4.2 Spektrale Verteilung der Lichtemission

4.2.1 Technischer Aufbau

Der im 3.1.1 beschriebene Aufbau gestattete nur die Erzeugung und Beobachtung der Lichtemission. Um nun eine Vorstellung der spektralen Verteilung der emittierten Quanten und deren Intensität zu erhalten, wurde das Experiment modifiziert (Abb. 4.17).

Der Kern des bisherigen Versuchsaufbau ist im wesentlichen gleich geblieben. Mit einem Hydrophon, dessen Ausgang an einem Oszillograph zugeführt wird, überwacht man die Druckamplitude. Es ist darauf zu achten, ein Oszillograph mit entsprechend kleiner Y-Skalierung zu verwenden, da das Signal nur einige Millivolt groß ist. Als Alternative verwendet man einen Verstärker, dessen Eingangswiderstand hoch genug ist, damit das schwache Signal vom Hydrophon nicht zusammenbricht.

Über zwei Linsen wird ein Teil des gestreuten Lichtes auf den Eintrittsspalt eines Monochromators fokussiert. Die Linse 1 sollte möglichst nahe am Glaskolben positioniert werden, um einen großen Raumwinkel zu erfassen. Die Brennweite beträgt 50 mm. Die Linse 2 fokussiert den Streustrahl auf den Eintrittsspalt. Es wurde eine Linse mit einer Brennweite von 80 mm verwendet. Damit ist gewährleistet, dass das Gitter vollständig ausgeleuchtet ist. Bei einem voll ausgeleuchteten Gitter erreicht man die beste spektrale Auflösung.

Am Austrittsspalt ist ein Photomultiplier montiert, dessen Signal über einen Discriminator einem Photonenzähler zugeführt wird. Der Discriminator hat die Aufgabe das Signal in einen definierten und verstärkten Impuls umzuwandeln, der dann am Photonenzähler registriert und in einen internen Speicher geschrieben werden kann. Von dort wird er zur Speicherung und zur späteren Verarbeitung an einen Computer weitergegeben. Ein zweiter Photomultiplier (Abb. 4.17) registriert ebenfalls ein Lichtsignal, das an den Triggereingang des Photonenzählers gelegt wird. Um auf dieses Signal triggern zu können, muß das zu messende Signal verzögert werden. Dies erreicht man, indem die Leitung vom Discriminator zum Photonenzähler entsprechend lang dimensioniert wird. Im Photonenzähler werden die Zählraten der einzelnen Wellenlängen gespeichert und später mit einem selbstgeschriebenen C-Programm ausgelesen. Diese Daten werden mit dem Programm Origin in eine grafische Darstellung der aufgenommenen Spektren weiterverarbeitet. Sie werden in Kapitel 5 vorgestellt.

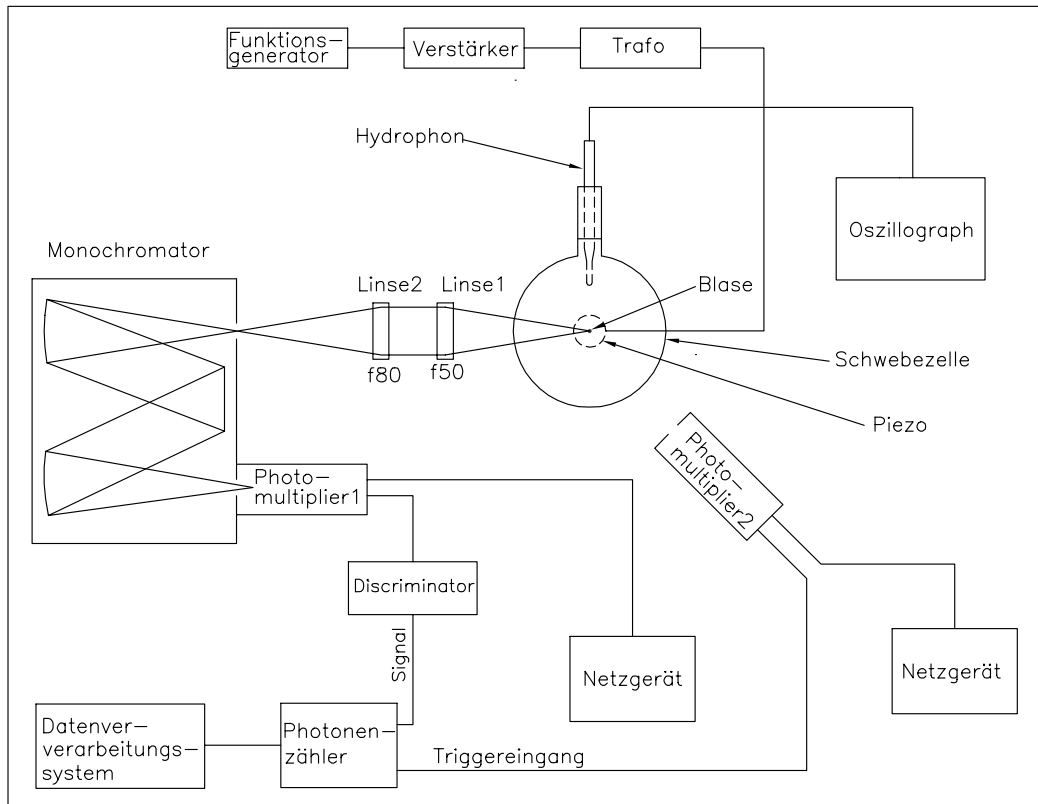


Abbildung 4.17: Experiment zur Bestimmung des Spektrums einer sonolumineszierenden Blase

4.2.2 Monochromator und Optik

Für die Aufnahme des Spektrums einer sonolumineszierenden Blase wurde ein Monochromator verwendet. Eine Linse mit der Brennweite $f50$ und einem Durchmesser von 20 mm sammelt einen Teil der von der Blase ausgesandten Strahlung (Abb.4.17). Sitzt die Blase im Brennpunkt, so wird die Strahlung nach Durchgang der Linse parallelisiert. Eine zweite Linse mit der Brennweite $f80$ fokussiert die Strahlung auf den Eintrittsspalt des Monochromators.

Um eine hohe Auflösung zu erzielen, ist es wichtig das Gitter voll auszuleuchten. Das legt die Brennweite der zweiten Linse fest. Bei einem Abstand zwischen Eintrittsspalt und Parabolspiegel von 500 mm (Abb. 4.18) und einer Gitter- bzw. Spiegelgröße von $50/50$ mm wird bei einer Brennweite von $f150$ das Gitter gerade noch ausgeleuchtet. Mit der verwendeten Linse (Brennweite

80 mm) liegt man auf der sicheren Seite.

Die empfindliche Fläche des Photomultiplier (3.3.2) befindet sich 50 mm hinter dem Austrittsspalt. Sie hat einen Durchmesser von 31.5 mm, womit gewährleistet ist, daß die gesamte durch die Blende kommende Strahlung der Blase auf den Photomultiplier registriert werden kann.

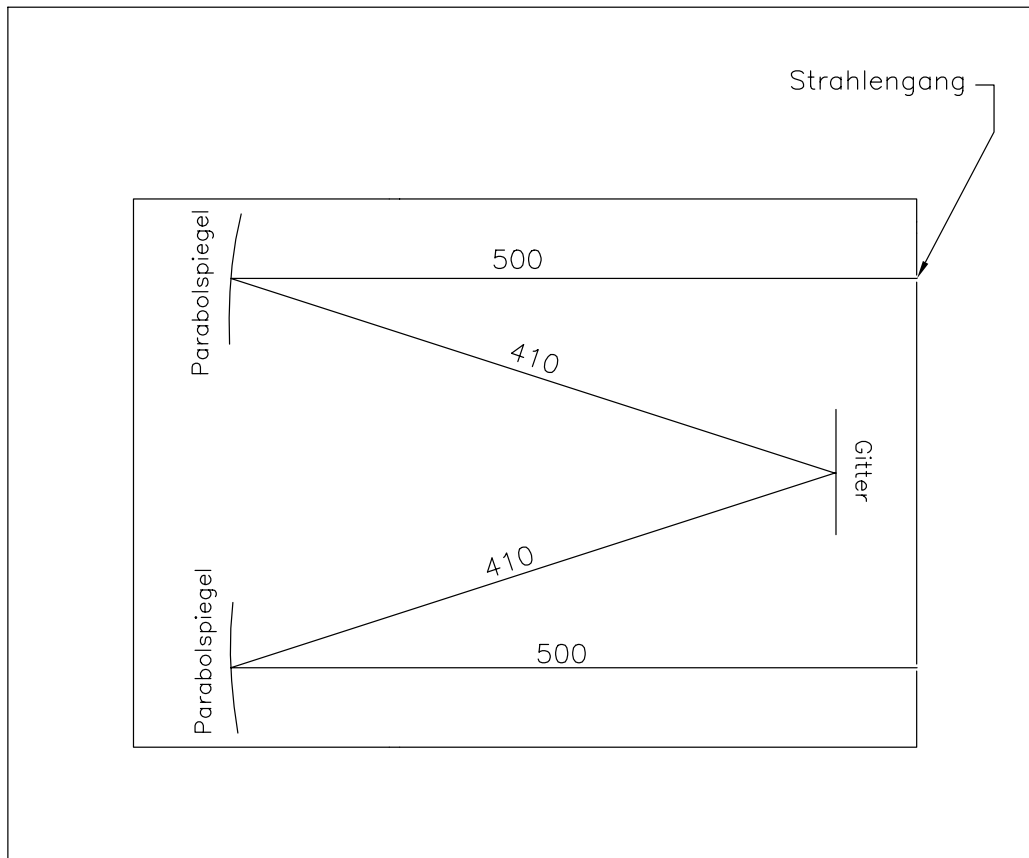


Abbildung 4.18: Schematische Darstellung des Strahlengangs im Monochromator

In der Regel stimmt die optische Anzeige der Wellenlänge des Monochromators nicht mit der tatsächlichen Wellenlänge überein. Deshalb wird mit einer Quecksilberdampfampe eine spektrale Eichung durchgeführt, deren Ergebnisse in 5.1 angegeben sind. Die Lampe ist bei der Kalibrierung 300 mm vor dem Eintrittsspalt positioniert. Eine Linse mit der Brennweite von 150 mm fokussierte die Strahlung auf den Eintrittsspalt, den man 0.2 mm geöffnet

hat. Obwohl in Folge des 1 mm breiten Austrittsspalt bei der Aufnahme des SL Spektrum nur eine spektrale Auflösung von 2 nm zu erwarten ist, wird die Breite des Austrittsspalt bei der spektralen Eichung auf 0.2 mm eingestellt. Das ergibt eine spektrale Auflösung von $\Delta\lambda = 0.5$ nm.

Für den ersten Versuch, ein Spektrum aufzunehmen, wählt man den Eintritts- und Austrittsspalt groß (ca. 5 mm), damit man einen Eindruck von der Größenordnung der Photonenzahl erhält. Außerdem erleichtert es das Justieren der Blase, da man eine größere Zählrate erwartet als bei kleinen Spalten. Nachteil dabei ist die schlechte spektrale Auflösung. Nach Optimierung der Apparatur in Bezug auf die Aufnahme eines Spektrums, kann der Spalt verkleinert werden. Allerdings nimmt dadurch die spektrale Zählrate ab. Bei einer Spaltöffnung von einem Millimeter erhält man meßbare Zählraten bei nicht allzugroßen Meßzeiten (6 Sekunden).

Die Wellenlängen werden mit einem im Monochromator eingebauten Uhrwerk verstellt. Bei der Aufnahme des Spektrums läuft es kontinuierlich den zu messenden Wellenlängenbereich ab. Die einzelnen Zeitintervalle müssen dabei auf die Geschwindigkeit des Uhrwerkes abgestimmt werden (5.2).

4.2.3 Auflösungsvermögen des Monochromators

Für die Aufnahme des Spektrums stand eine Gitter mit der Gitterkonstanten $g = 1200/mm$ zur Verfügung.

Jedes Spektrometers hat eine bauart bedingte Auflösung, die im Folgenden näher beschrieben wird. Bei der Betrachtung des Auflösungsvermögens setzt man eine infinitesimal kleine, inkoherente Lichtquelle voraus. Bei dem durchgeführten Experiment, ist die Blasengröße, bei der die Emission stattfindet, kleiner als $5 \mu m$ und genügt somit recht gut der Bedingung.

Als effektive Breite einer Spektrallinie kann der Winkelabstand der beiden Intensitätsnullpunkte links und rechts des Hauptmaximums genommen werden. Somit ergibt sich für die Winkelbreite einer Spektrallinie $\Delta\theta$ bei der Wellenlänge λ folgende Gleichung:

$$\Delta\theta = \frac{2\lambda}{Na \cos \theta_m}, \quad (4.16)$$

deren Ursache in der Natur des Gitterspektrographen liegt. In dieser Gleichung ist a die Breite einer Gitterlinien und N die Anzahl der Gitterlinien. θ_m ist der Winkel zwischen der Flächennormale des Gitters und der Richtung der m -ten Ordnung.

Eine weitere wichtige Größe für das Auflösungsvermögen, ist die “Winkeldispersion”, oder mit anderen Worten, die Differenz in der Winkelposition bei gegebener Differenz der Wellenlänge.

$$\mathcal{D} = \frac{d\theta}{d\lambda} \quad (4.17)$$

Durch Differentiation der Gittergleichung

$$a \sin \theta_m = m\lambda \quad (4.18)$$

erhält man die Gleichung

$$\mathcal{D} = \frac{m}{a \cos \theta_m}. \quad (4.19)$$

Jetzt sind die Voraussetzungen gegeben, das Auflösungsvermögen \mathcal{R} eines Spektrometers zu bestimmen. Es ist wie folgt definiert:

$$\mathcal{R} = \frac{\lambda}{(\Delta\lambda)_{min}} \quad (4.20)$$

$\Delta\lambda$ ist der kleinste auflösbare Unterschied zwischen zwei Wellenlängen und λ ist die mittlere Wellenlänge der beiden Linien. Nimmt man für die Auflösung zweier Quellen gleicher Intensität Lord Rayleighs Kriterium heran, so muß das Hauptmaximum der ersten Quelle mit dem ersten Minima der anderen Quelle zusammenfallen, damit beide noch als aufgelöst betrachtet werden können. Verwendet man den Ausdruck für die Winkeldispersion 4.18, so erhalten wir die Gleichung:

$$(\Delta\theta)_{min} = \frac{(\Delta\lambda)_{min} m}{a \cos \theta_m} \quad (4.21)$$

Der Winkelabstand an der Auflösungsgrenze ist gleich einer halben Linienbreite. Gemäß Gleichung 4.16 gilt:

$$(\Delta\theta)_{min} = \frac{\lambda}{Na \cos \theta_m}$$

und kann mit der oberen Gleichung zu

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_{min}} = mN \quad (4.22)$$

kombiniert werden. Für das Auflösungsvermögen ergibt sich dann:

$$\mathcal{R} = \frac{Na(\sin \theta_m - \sin \theta_i)}{\lambda} \quad (4.23)$$

Das Auflösungsvermögen eines Gitters ist also von der Gitterbreite Na , der Wellenlänge λ und dem Einfallswinkel θ_i abhängig.

Bei einer fokussierenden Linse (f80) vor dem Eintrittsspalt ist das Gitter mit der Breite $b = 5 \times 10^{-2}$ m voll ausgeleuchtet. Für die Auflösung erhalten wir bei 300 nm $\Delta\lambda_{min} \approx 0.023$ nm bzw. bei 700 nm $\Delta\lambda_{min} \approx 0.01$ nm.

Doch sind diese Grenzen nicht entscheidend für das Auflösungsvermögen des Monochromators. Wie bereits oben erwähnt, wurde auf Grund der geringen Intensität der Austrittsspalt auf 1 mm eingestellt. Bei einer Weglänge von 500 mm vom Gitter zum Austrittsspalt ergibt das einen Winkel von $\sim 0.14^\circ$. Zurückgerechnet auf die Wellenlängendifferenz erhalten wir $\Delta\lambda \approx 1.6$ nm. Im Experiment bestätigte sich die Größenordnung der Auflösung.

4.2.4 Photomultiplier (PTM)

Nach dem die schwache, von der Blase ausgesandte Strahlung den Monochromator passiert hat, trifft sie nach dem Austrittsspalt auf die aktive Fläche des Photomultipliers. Zur Detektion steht ein verhältnismäßig kleiner Raumwinkel zur Verfügung, der durch die Größe des Gitters bestimmt ist (5.3). Wird nun die Strahlung, die durch den Eintrittsspalt des Monochromators gelangt, noch spektral aufgelöst, so ist zu vermuten, das wirklich nur einzelne Photonen pro Blitz auf den Photomultiplier gelangen. Diese Tatsache ist im Experiment bestätigt worden. Bei einer Meßzeit von 36 Sekunden, das entspricht ca. 10^5 Blitzen, werden bei 500 nm maximal 5000 Photonen registriert. Das ist auch sinnvoll, da die Ansprechzeit des Photomultipliers bei ca. 35 nsec liegt. Der Lichtblitz, den die Blase aussendet, hat jedoch eine obere Grenze von 50 psec. Es ist also wünschenswert, wenn man pro Blitz höchstens ein Photon registriert.

Für die Detektion von Photonen ist ein *Head-on-* einem *Side-on-* Photomultiplier vorzuziehen, da dieser eine homogene räumliche Empfindlichkeit aufweist, wie aus Abbildung 4.19 deutlich zu erkennen ist. Prinzipiell benötigt man für diesen Versuch eine Empfindlichkeit in einem breiten Wellenlängenbereich (180 - 800 nm). Begrenzende bauarttechnische Faktoren sind einerseits das Kathodenmaterial auf der langwelligen und das Fenstermaterial auf der kürzwelligen Seite.

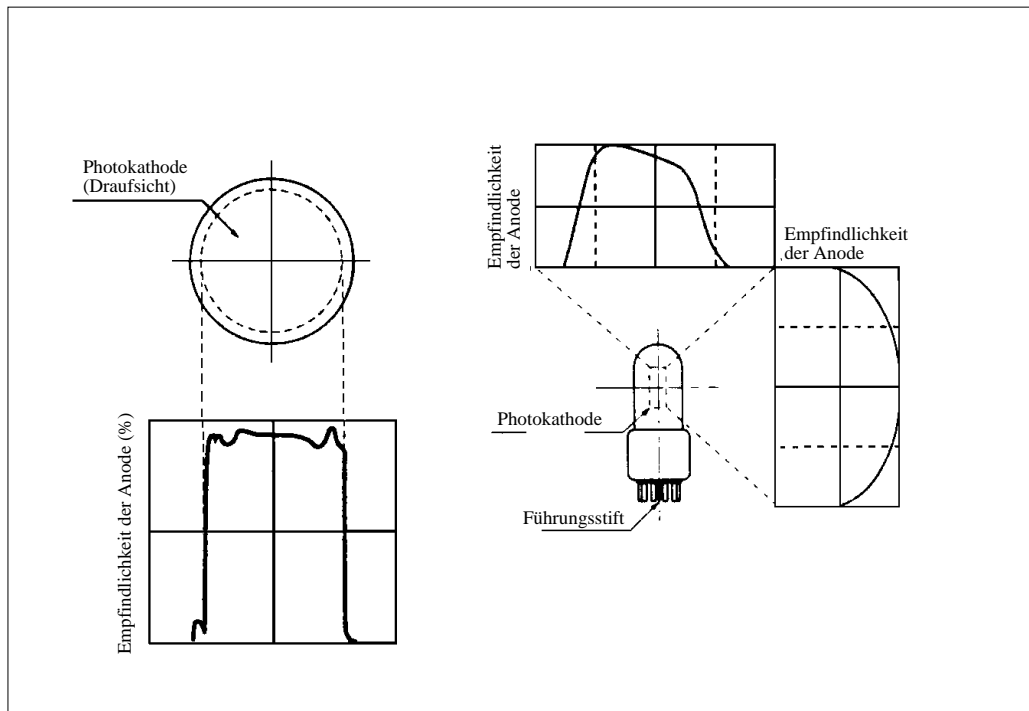


Abbildung 4.19: Empfindlichkeit eines Head-on und Side-on Photomultipliers

Die zur Verfügung stehende Röhre war ein *Head-on*-PTM der Bauart 6199 von der Firma *Burle*. Sie ist im Wellenlängenbereich von 300 – 660 nm empfindlich und hat einen Detektordurchmesser von 31.5 mm (Abb. 4.20). Das entspricht einer empfindlichen Fläche von 780 mm^2 . Das Kathodenmaterial besteht aus einer Sb-Cs-Legierung, die die Empfindlichkeit auf 660 nm zu langen Wellenlängen begrenzt. Das Fensterglas, bestehend aus Borosilikatglas, wirkt zu kurzen Wellenlängen als begrenzender Faktor.

Die Anstiegs- und die Totzeit der Röhre beträgt 2.8 nsec bzw. 32 nsec. Sie spielen aber bei diesem Experiment keine große Rolle, da wie schon erwähnt pro Puls höchstens ein Photon registriert wird, und die Frequenz der Lichtblitze ca. 25 kHz ist. Das entspricht einer Periode von $40 \mu\text{sec}$ und ist damit wesentlich länger als die Totzeit des PTM's.

Der verwendete PTM ist für dieses Experiment nicht der geeignetste, vor

allem wegen des beschränkten Wellenlängenbereiches. Will man nun eine Röhre verwenden, die ein breites Spektrum abdeckt, so muß man darauf achten, daß auch die verwendete Optik entsprechend ausgewählt wird. In diesem Fall sind das die Linsen und der Kolben, in dem die Blase die Strahlung produziert.

Ein geeigneter Kandidat wäre beispielsweise ein C31034A *Head-on* der Firma *Burle* mit einem breitem Spektrum, das sich von 200 bis 900 nm erstreckt. Dabei ist die Empfindlichkeit von 300 bis 850 nm nahezu konstant. Nachteil dieses Exemplares ist die sehr kleine empfindliche Fläche von nur

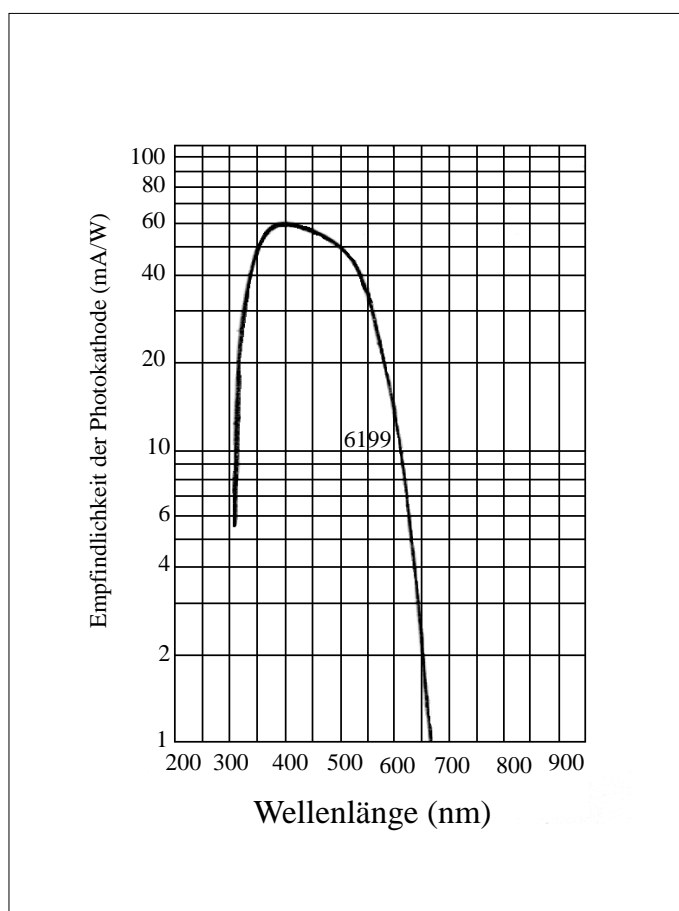


Abbildung 4.20: Typische spektrale Kurve der Photokathode vom Typ 6199 der Firma *Burle*

40 mm². Des weiteren muß er auf minus 40⁰ C gekühlt werden, da sonst der Dunkelstrom zu hoch ist. Bei der Wahl ist auch zu berücksichtigen, daß dieser PTM sehr teuer ist. So kostet nur die Röhre, d. h.: ohne Kühlvorrichtung, Netzgerät und Gehäuse, ca. 10 000 DM.

Als Alternative bietet sich ein R 928 der Firma *Hamamatsu* zum Preis von ca. 800 DM an. Er deckt ebenfalls ein Wellenlängenbereich von 185 - 900 nm ab, allerdings ist die Empfindlichkeit nicht konstant, wie beim anderen Modell. Außerdem ist es ein *Side-on* mit einer empfindliche Fläche von 192 mm².

4.2.5 Photonenzähler und computergesteuerte Aufnahme

Nach dem die Photonen im Photomultiplier registriert und verstärkt wurden, werden diese Pulse einem Discriminator zugeführt, der sie in nach Form und Höhe definierte Pulse umwandelt. Diese so gewonnenen Pulse werden dem Photonenzähler zugeführt, dort registriert und in einem Speicher, der bis zu 2000 Daten abspeichern kann, eingelesen.

Mit dem Gerät der Firma *Stanford Research System* Modell *SR 400* kann im Menue "A GATE" das zeitliche Intervall eingestellt werden. Da Pulse im Pikosekundenbereich erwartet werden, wählt man eine Breite von ca. 50 ns. Das gewährleistet, daß der Puls in jedem Fall in diesem Intervall liegt. Das "Gate" wird einmal pro akustischem Zyklus geöffnet, wenn die Blase Strahlung emittiert. Für die Meßzeit von sechs Sekunden ergibt das bei einer Frequenz von 27 kHz ca. $1.6 \cdot 10^6$ Zeitintervalle. Jedoch wird nicht in jedem Intervall ein Photon registriert. Aus den Zählraten der Abbildung 5.5 ist ersichtlich, daß tatsächlich nur einzelne Photonen pro Zeitfenster gezählt werden.

Um das GATE immer im richtigen Moment aufzumachen, wird das Signal eines zweiten Photomultipliers ebenfalls über einen Discriminator auf den Triggereingang des Zählers gelegt (Abb. 4.17). Die Strahlung der Blitze werden von beiden Photomultiplier etwa gleichzeitig registriert. Damit man triggern kann, muß das zu messende Signal aus dem Monochromator zeitlich verzögert werden. Deshalb verwendet man zwischen Discriminator und Zähler ein ca. 10 m langes Kabel. Mit der internen Verzögerung des Discriminator ergab sich eine zeitliche Verschiebung von ca. 50 nsec. Die Eingänge des Zählers und des Triggers müssen auf die Pulshöhe des Discriminatorpulses abgestimmt

werden, damit sie registriert werden.

Für die weitere Verarbeitung der Daten, wurden ein C-Programm geschrieben, das es auch ermöglicht den Photonenzähler vom Computer aus zu starten. Die Verbindung zwischen dem Photonenzähler und dem Computer wird durch eine "NI488.2 IEEE" Karte hergestellt und die interne Kommunikation mit der Software "Universal Language Interface" oder kurz "ULI" erleichtert. Nach Beendigung des spektralen Scans, wird der interne Speicher des Photonenzählers ausgelesen und in einer Datei auf dem Computer abgespeichert. Die Daten können anschließend mit einem Grafikprogramm weiter bearbeitet werden.

Kapitel 5

Ergebnisse

In dieser Diplomarbeit wurde eine Apparatur aufgebaut, mit der es möglich ist, eine einzelnen sonolumineszierende Blase herzustellen und das Spektrum der Strahlungsemission aufzunehmen. Darüber hinaus sollte experimentell die Anzahl der pro Blasen kollaps emittierten Photonen abgeschätzt werden.

Um die Photonenzahl pro Wellenlänge zu erhalten, die während eines Blitzes ausgesendet werden, wurde das verwendete Spektrometer mit einer 50 W Halogenlampe absolut kalibriert. Die Untersuchungen werden in diesem Kapitel vorgestellt.

5.1 Eichung des Monochromators

5.1.1 Spektrale Eichung

Zur spektralen Eichung des Monochromators wurde eine Quecksilberdampf-lampe verwendet, die in 300 mm Entfernung vor dem Eintrittsspalt im Strahlengang des Monochromator aufgebaut wurde. Eine Linse mit der Brennweite f_{150} auf halber Distanz fokusierte einen Teil des Lichtes auf den Eintrittsspalt des Monochromators. Eintritts- sowie Austrittsspalt wurden 0.2 mm geöffnet. Damit erzielt man bei den gegebenen Größenverhältnissen (Abb. 4.18) eine nach oben abgerundete spektrale Auflösung von $\Delta\lambda = 0.5$ nm bei einer eingestellten Wellenlänge von 500 nm. Bei der Aufnahme des SL Spektrums wurde ein 1 mm breiter Austrittsspalt verwendet. Damit erzielt man eine Auflösung von 1.6 nm. Die Auflösung bei der spektralen Eichung von $\Delta\lambda = 0.5$ nm ermöglicht eine genauere Kalibrierung der vom Monochromator

angezeigten Wellenlänge.

Aus dem Emissionsspektrum des Quecksilbers wurden 5 Linien hoher Intensität ausgewählt und die Position der Linien mit Literaturdaten verglichen. Die zur Eichung verwendeten experimentellen Spektrallinien sind in Abbildung 5.1 mit den entsprechenden Wellenlängen markiert. Der Ver-

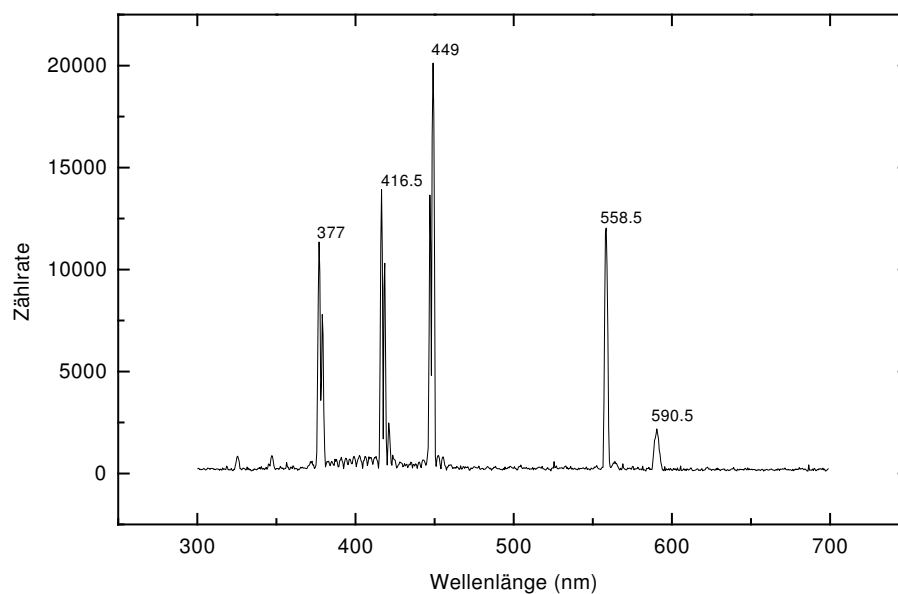


Abbildung 5.1: Das aufgenommene Spektrum einer Quecksilberdampfampe ohne Korrekturen

gleich mit den Literaturwerten ($\lambda_{lit} = 365.015, 404.656, 435.835, 546.074, 576.959$ nm) ergibt eine mittlere Abweichung der experimentellen Werte von $\Delta\lambda = \lambda_{exp} - \lambda_{lit} = -12.52$ nm zu kürzeren Wellenlängen. Mit diesem Wert wird die Wellenlängenskala des Emissionsspektrums der leuchtenden Blase korrigiert.

5.1.2 Kalibrierung der Transmission

Zur Bestimmung der absoluten, spektral aufgelösten Strahlungsleistung der sonolumineszierenden Blase muß die Transmission des Monochromators, des

Linsensystems sowie der Schwebezele und des Wassers berücksichtigt werden.

Zur Messung der Transmission des Monochromators und der abbildenden Einheit wurde eine 50 W Halogenlampe verwendet, die im Abstand von einem Meter vor dem Eintrittsspalt in den Strahlengang des Monochromators positioniert wurde. Die Lampe befindet sich in der mit Wasser gefüllten Schwebezele, die zur Aufnahme des SL Spektrums verwendet wurde. Dabei nimmt die Glühwendel die gleiche Position ein wie die sonolumineszierende Blase (Abb. 5.2). Die Linsen sind in Bezug auf den Ort der Glühwendel

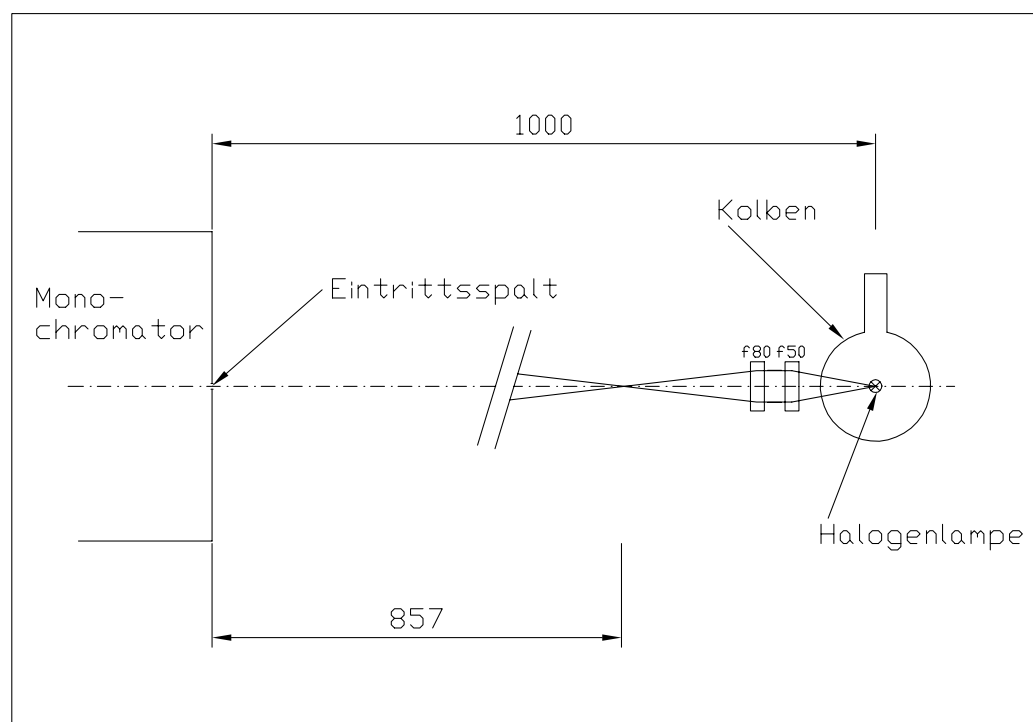


Abbildung 5.2: Versuchsanordnung zur Bestimmung der spektralen Transmission Längenangaben in mm

bzw. der Blase in den selben Entfernungen positioniert, die in Kapitel 4.2.1 angegeben sind.

Wenn bei der Versuchsanordnung in Abbildung 4.17 die Halogenlampe an Stelle der Blase sitzt, ist ihre Intensität so groß, daß der Photomultiplier überlastet wird und verfälschte Zählraten liefert. Deshalb wurde die Lampe im Abstand von einem Meter vor dem Eintrittsspalt positioniert. Die

ausgeleuchtete Fläche bei der spektralen Eichung ist durch die Größe des Eintrittsspalt (6 mm x 0.04 mm) gegeben und beträgt: $A_H = 2.4 \cdot 10^{-7} m^2$. Die Strahlung der Halogenlampe, welche die erste Linse mit der Brennweite f50 passiert, wird durch die zweite Linse auf deren Brennpunkt abgebildet. Er liegt 857 mm vor dem Eintrittsspalt des Monochromators (Abb. 5.2). Das

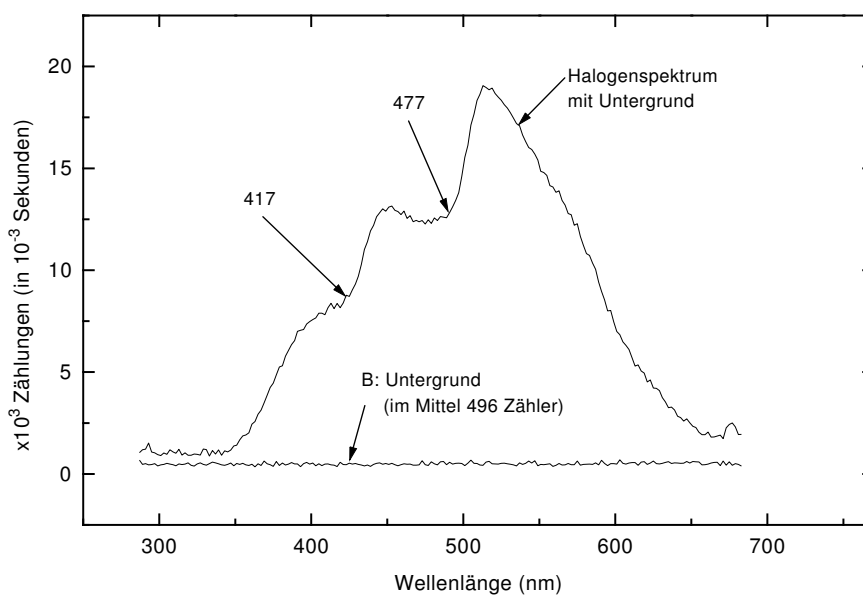


Abbildung 5.3: A: Mit der Versuchsanordnung in Abbildung 5.2 aufgenommenes Spektrum einer 50 W Halogenlampe, B: Untergrund. Bei jeder Wellenlängeneinstellung (2 nm Schritte) wurde über eine Millisekunde integriert.

Bild der Glühwendel wird an dieser Position vergrößert abgebildet und kann als virtueller Standort der Halogenlampe betrachtet werden. Dieser Standort ist für die Bestimmung des absoluten SL Spektrums relevant.

Ist der Kolben mit Wasser gefüllt, so werden alle durch optische Bauteile entstehenden Verluste bei der Eichung berücksichtigt. Das experimentelle Eichspektrum der Halogenlampe ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Gegenüber dem Spektrum der absolut kalibrierten Halogenlampe (siehe Abb.: 5.4) nimmt das experimentell ermittelte in Folge der nachlassenden Empfindlichkeit des Photomultipliers bei ca. 520 nm wieder ab. Außerdem sind

zwei markante Einbrüche bei 417 und 477 nm zu beobachten, die ebenfalls im experimentellen Spektrum der SL zu erkennen sind (Abb. 5.5). Sie sind auf apparative Einflüsse (Transmission des Gittermonochromators) zurückzuführen und werden bei der Eichung herausdividiert.

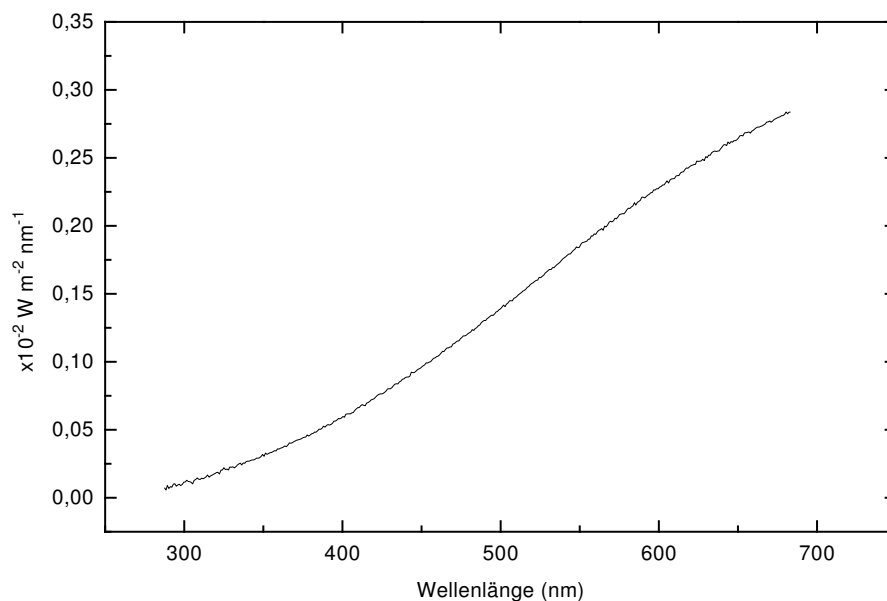


Abbildung 5.4: Absolute Bestrahlungsstärke der 50 W Halogenlampe $S_H(\lambda)$ im Abstand von 857 mm

Zur Bestimmung der absoluten Bestrahlungsstärke der 50 W Halogenlampe wurde ein kommerzielles Spektralradiometer der Firma *Politec* verwendet. Die Glühwendel wurde 857 mm vor der Detektorfläche positioniert. Die so bestimmte absolute Bestrahlungsstärke in der Einheit $[W \cdot m^{-2} \cdot nm^{-1}]$ im Spektralbereich von 280–690 nm ist in Abbildung 5.4 wiedergegeben. Der Abstand von 857 mm entspricht dem Abstand vom virtuellen Standort der Halogenlampe bis zum Eintrittsspalt in Abbildung 5.2. Seien nun $N_{SL[ex]}$ und $N_{H[ex]}$ die experimentell gezählten Ereignisse der Sonolumineszenz bzw. der Halogenlampe und $S_{H[a]}(\lambda)$ die absolute Bestrahlungsstärke der Halogenlampe (Abb. 5.4), die aus der Eichung der Lampe ermittelt wurde, so berechnet sich die absolute Bestrahlungsstärke $S_{SL[a]}(\lambda)$ der sonolumineszierenden Bla-

se im Abstand von 857 mm wie folgt:

$$S_{SL[ex]}(\lambda) = \frac{N_{SL[a]} \cdot S_{H[a]}}{N_{H[ex]}} \cdot f, \quad (5.1)$$

wobei f ein Faktor ist, der die unterschiedlichen erfaßten Raumwinkel und die Meßzeiten bei den Aufnahme von N_{SL} bzw N_H berücksichtigt. Im nächsten Abschnitt wird diese Gleichung benutzt, um das aufgenommene Spektrum der Strahlungsemission einer Blase zu kalibrieren und die tatsächliche Emission zu berechnen.

5.2 Spektrum der Sonolumineszenz

Für die Aufnahme des SL Spektrums wird der in Abbildung 4.17 dargestellte Versuchsaufbau verwendet. Mit einer Breite des Austrittspalts am Monochromator von 1 mm erzielt man eine Auflösung von 1.6 nm.

Das Spektrum wurde im Spektralbereich von 287 bis 685 nm in 2 nm Schritten aufgenommen. Die Meßzeit bei jeder Wellenlängeneinstellung betrug 6 Sekunden, wobei das Zeitfenster um die Emissionsdauer des Blitzes am Photonen-zähler auf 50 nsec eingestellt wurde.

Es sind 6 Spektren einer Blase unter gleichen Bedingungen aufgenommen worden, die später aufaddiert werden. Die Plots der einzelnen Spektren sind untereinander ähnlich, aber auf Grund der geringen Zählrate (maximal 600 Zähler/6 s) stark verrauscht. Durch Addition aller 6 Spektren vermindert sich das statistische Rauschen (Abb. 5.5) erheblich. In den gemessenen Spektralbereichen von 285–325 nm und von 600–680 nm liegt die Zählrate im Untergrund. Die durchschnittliche Rate lag bei ca. 600 Zähler und wurde von aufgenommenen Spektrum abgezogen.

Dieses aufaddierte Spektrum wurde mit der in 5.1.2 beschriebenen Methode kalibriert und ist in Abbildung 5.7 zu sehen. Auf der senkrechten Achse ist die Strahlungsleistung einer Blase aufgetragen. Dividiert man diese Größe durch die Frequenz der Schallwelle erhält man die Strahlungsleistung pro Blitz.

In Folge der Absorption des Glasmaterials PYREX (Abb. 4.15) zu kurzen Wellenlängen und der begrenzten Empfindlichkeit des Photomultipliers (Abb. 4.20) ist die Zählrate des Kalibrierspektrums (Abb. 5.3) an den Enden des aufgenommenen Spektralbereichs in der Größenordnung des Untergrunds. Dadurch ist die Auswertung des kalibrierten SL Spektrum in diesen

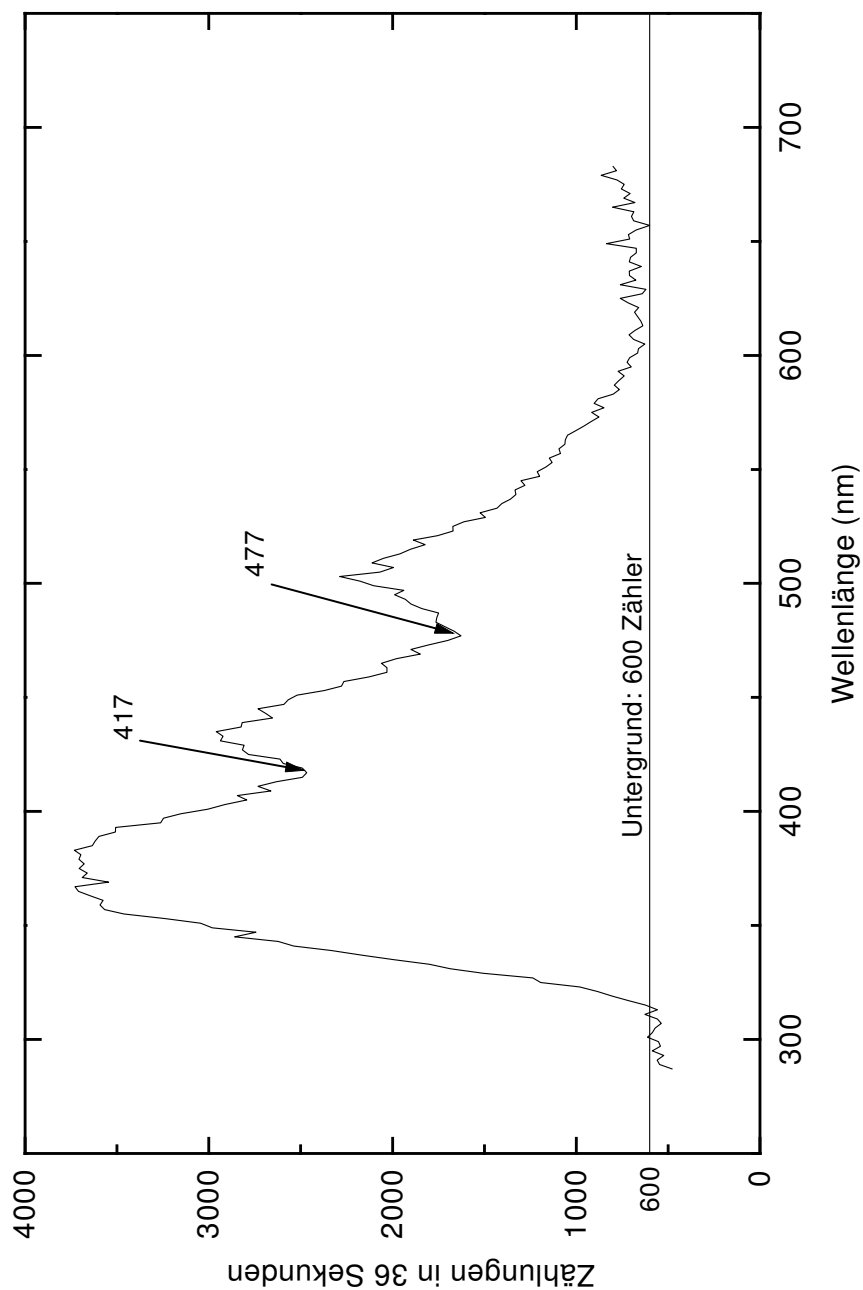


Abbildung 5.5: Sonolumineszenzspektrum ohne Kalibrierung. Bei jeder Wellenlänge wurde über 36 Sekunden (entspricht 36×27700 sonolumineszenten Blitzen) integriert.

Bereichen nicht möglich. Deshalb wird der Wellenlängenbereich für die Auswertung auf 360–550 nm beschränkt.

Durch die Kalibrierung sind die starken Einbrüche des Spektrum aus Abbildung 5.5 fast ganz ausgeglättet worden, wie in Abbildung 5.7 zu sehen ist.

5.3 Auswertung

Die Angaben der Bestrahlungsstärke $S_{H(a)}(\lambda)$ aus Abbildung 5.4 in der Einheit $[10^{-2} \cdot W \cdot m^{-2} \cdot nm^{-1}]$ sind bezogen auf die Entfernung $l_H = 857$ mm zwischen Detektorfläche und Halogenlampe. Bei der Berechnung der tatsächlichen Bestrahlungsstärke einer sonolumineszierenden Blase sind verschiedene Faktoren zu berücksichtigen, die im Folgenden angegeben werden.

Die ausgeleuchtete Fläche des Eintrittspaltes beträgt bei der Kalibrierung des Monochromators und der optischen Einheit $A_H = 2.4 \cdot 10^{-7} m^2$. Die Meßzeit pro Wellenlänge ist auf $t_H = 10^{-3}$ Sekunden eingestellt worden. Bei der Berechnung von $S_{SL[a]}(\lambda)$ müssen die gezählten Ereignisse des experimentellen Halogenspektrums durch $A_H \cdot t_H$ dividiert werden.

Wie aus Abbildung 5.6 zu erkennen ist, läßt sich mit dem Strahlensatz das Flächenstück A_R berechnen, durch die die von PTM registrierten Photonen durchtreten. Es liegt auf einer Kugel um die Blase mit dem Radius von 50 mm. Die Oberfläche A_K ist für die Berechnung der Bestrahlungsstärke relevant, weil aus ihr der zur Detektion benötigte Raumwinkel herausgeschnitten wird (5.6). Rechnet man vom Gitter zurück auf die Kugeloberfläche, beträgt die Fläche des ausgeschnittenen Raumwinkels $A_R = 6.4 \cdot 10^{-5} m^2$.

Die tatsächliche Meßzeit bei der Aufnahme des SL Spektrums ergibt sich aus der Addition der sechs Einzelspektren zu $t_{SL} = 36$ s. In der Berechnung der Bestrahlungsstärke einer Blase wird die experimentelle SL Zählrate mit dem Verhältnis A_K/A_R multipliziert, wobei A_K die Oberfläche der Kugel im Abstand $r = 50$ mm um die Blase ist, und durch t_{SL} dividiert.

Da in der optischen Einheit Linsen mit unterschiedlichen Brennweiten benutzt werden, ist das Abbildungsverhältnis der Glühwendel auf den virtuellen Standort $\neq 1$. Das führt zu unterschiedlichen Öffnungswinkel des registrierten Raumwinkeln an den Brennpunkten der beiden Linsen. In die Berechnung von $S_{SL[a]}(\lambda)$ wird dies mit dem Verhältnis des Quadrats der Brennweiten $g = f_{80}^2/f_{50}^2 = 64/25$ berücksichtigt und ergibt sich aus dem Strahlensatz.

Damit erhält man folgende Gleichung für die Berechnung der absoluten

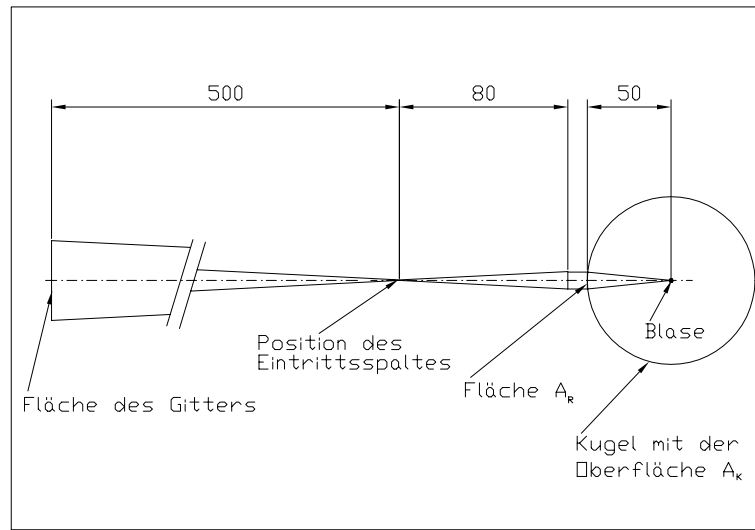


Abbildung 5.6: Graphische Darstellung der Berechnung der Fläche A_R , durch welche die Photonen gelangen, die bei der Aufnahme des SL Spektrums vom PTM registriert werden.

spektralen Strahlungsleistung $P_{SL[a]}$ der sonolumineszierenden Blase (in $[W \cdot nm^{-1}]$):

$$P_{SL[a]}(\lambda) = \frac{N_{SL[ex]} \cdot S_{H[a]}}{N_{H[ex]}} \cdot \frac{f80^2 \cdot A_K \cdot A_H \cdot t_H}{f50^2 \cdot A_R \cdot t_{SL}}. \quad (5.2)$$

Den zweiten Bruch auf der rechten Seite kann zu $8.27 \cdot 10^{-9} m^2$ zusammengefasst werden und Gleichung 5.2 vereinfacht sich zu:

$$P_{SL[a]}(\lambda) = \frac{N_{SL[ex]} \cdot S_{H[a]}}{N_{H[ex]}} \cdot 8.27 \cdot 10^{-9}. \quad (5.3)$$

Das Spektrum in Einheiten der Strahlungsleistung ist in Abbildung 5.7 zu sehen.

Um einen Eindruck zu bekommen, wieviele Photonen pro Blitz ausgesendet werden, rechnet man die Strahlungsleistung $P_{SL[a]}(\lambda)$ in Photonen um. Die Energie E eines Photons bei der Wellenlänge λ ist gegeben durch $E = hc/\lambda$. h ist die Plancksche Konstante ($6.626 \cdot 10^{-34} Js$), c die Lichtgeschwindigkeit ($2.998 \cdot 10^8 ms^{-1}$) und λ ist die Wellenlänge in Meter. Die Anzahl der Photonen pro Joule bei einer Wellenlänge λ berechnet sich aus

$$N_{P_\lambda} = \lambda \cdot 5.03 \cdot 10^{24}. \quad (5.4)$$

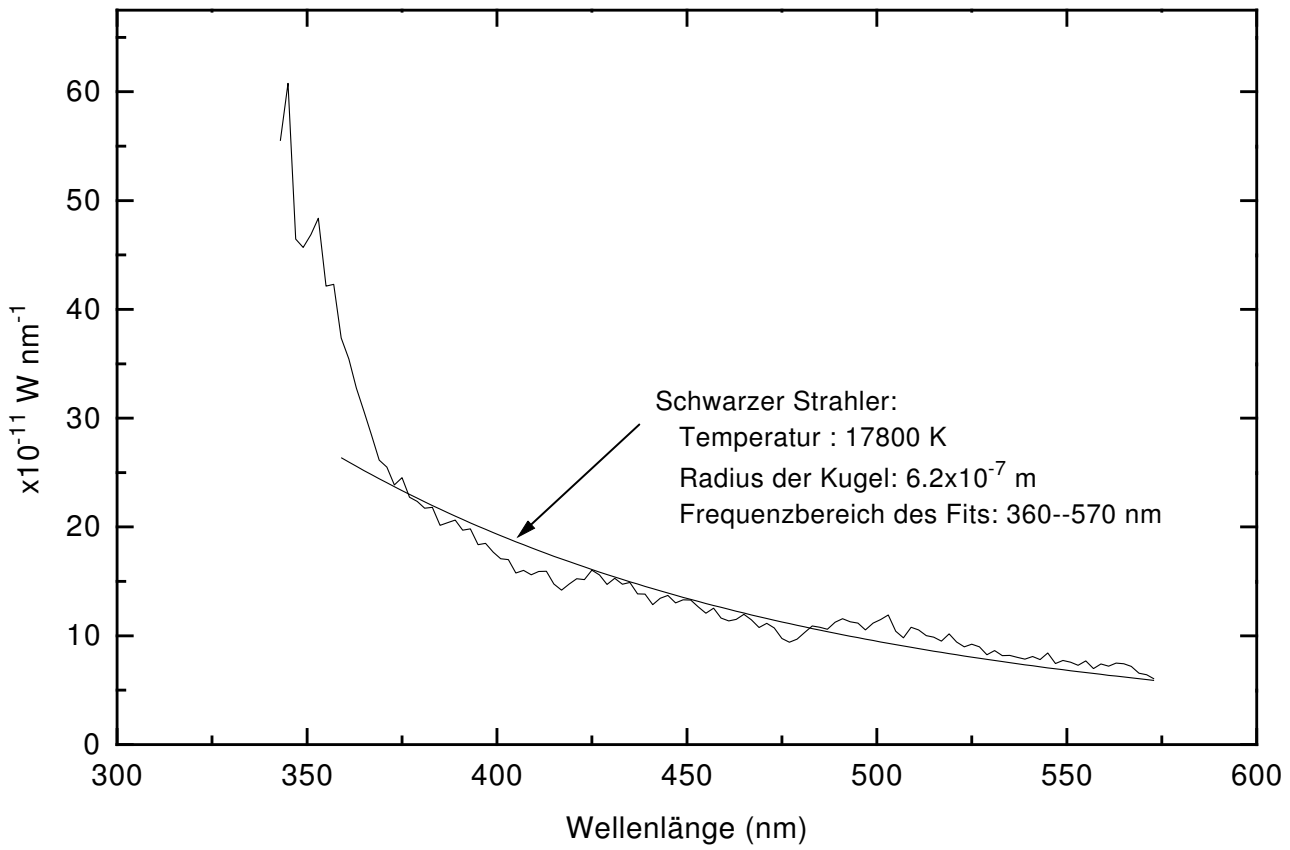


Abbildung 5.7: Spektrale Strahlungsleistung der sonolumineszenten Blase bei einer Betriebsfrequenz von 27.7 kHz

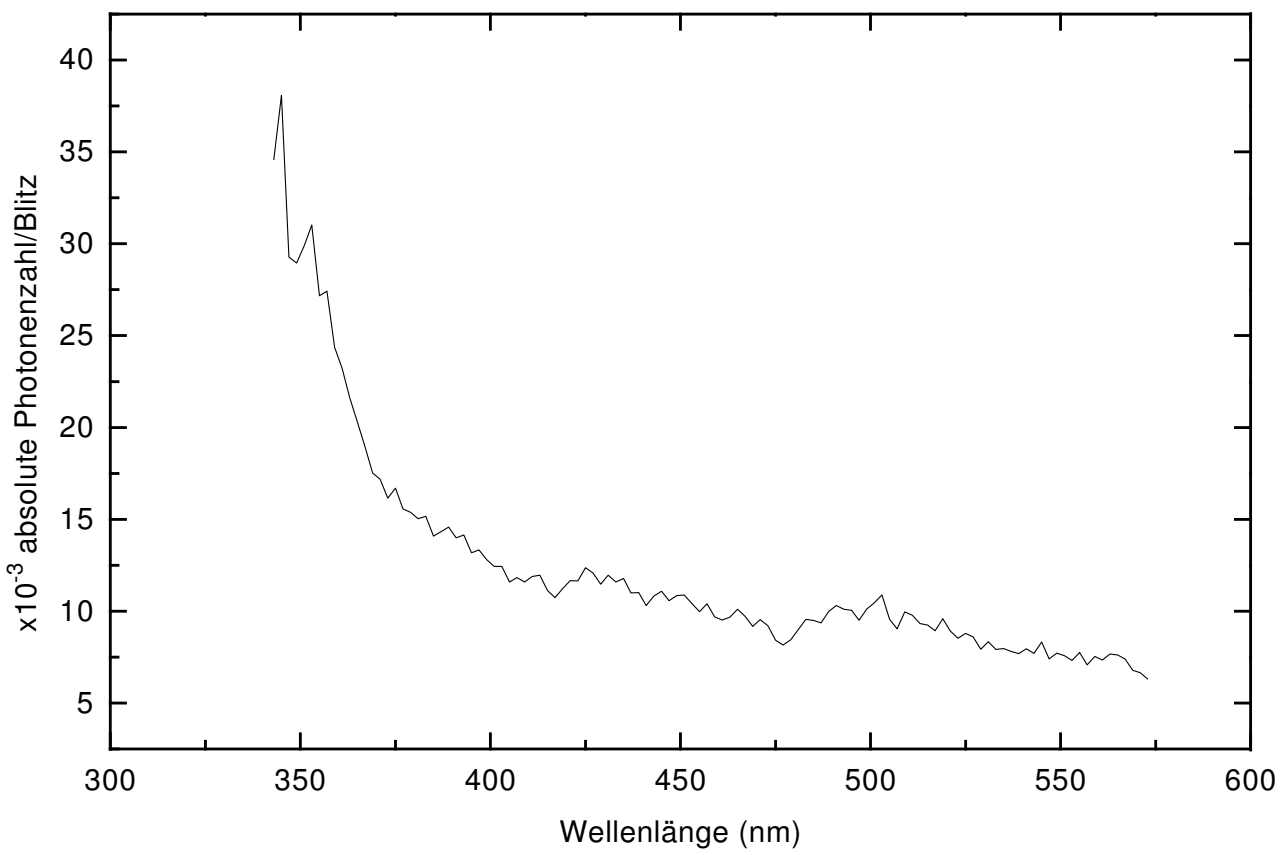


Abbildung 5.8: Photonenzahl der sonolumineszenten Blase bei einer Betriebsfrequenz von 27.7 kHz

Der Index P_λ ist die Energie pro Sekunde bei der Wellenlänge λ . Daraus folgt die Photonenzahl pro Sekunde:

$$\frac{dNP_\lambda}{dt} = P_\lambda \cdot 5.03 \cdot 10^{24} \quad (5.5)$$

und ergibt für die Photonenzahl N pro Sekunde:

$$N(\lambda) = P(\lambda) \cdot \lambda \cdot 5.03 \cdot 10^{24} \quad (5.6)$$

Um die Zahl der Photonen pro Blitze zu erhalten, muß $N(\lambda)$ durch die Repulsionsrate der Lichtblitze dividieren werden, die der Frequenz der Schallwelle entspricht. Die tatsächliche wellenlängenabhängige Photonenzahlen $N(\lambda)$ pro Blitz, die eine sonolumineszierende Blase aussendet ist in Abbildung 5.8 graphisch dargestellt.

Aus der Literatur bekannte Spektren der SL stimmen meist recht gut mit den von schwarzen Strahler überein, deren Temperatur zwischen 15 000 und 80 000 Kelvin liegt [27].

Das in dieser Arbeit ermittelte Spektrum der sonolumineszierenden Blase wurde ebenfalls mit dem eines schwarzen Strahlers angefitet. Das Fitspektrum ist in Abbildung 5.7 zu sehen. Die Strahlleistung pro Wellenlänge eines schwarzen Strahlers berechnet sich aus:

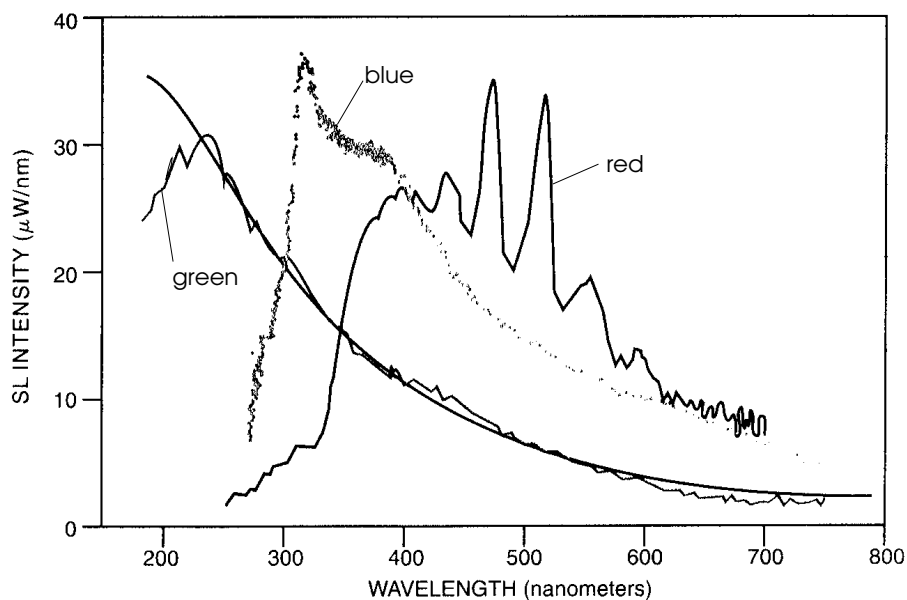
$$P_{Bl}(\lambda, T) = V \cdot 2\pi hc^2 \lambda^{-5} (e^{ch/k\lambda T} - 1)^{-1} \quad (5.7)$$

V ist das Volumen, eines solchen schwarzen Strahlers und $k = 1.381 \cdot 10^{-23} JK^{-1}$ ist die Boltzmann Konstante. In dem mit Gleichung 5.7 durchgeführten Fit, sind die Temperatur T und das Volumen V die veränderliche Parameter. Für die Temperatur ergibt sich $T = (17800 \pm 840) K$, und für das Volumen $V = (3 \cdot 10^{-18} \pm 2.6 \cdot 10^{-19}) m^3$. Bei der Annahme einer sphärischen Gestalt des schwarzen Strahlers errechnet sich der Radius auf $R = 0.62 \mu m$. Durch Steuexperimente [1] ermittelte minimale Radien der sonolumineszenten Blase, an denen die Emission der Strahlung stattfindet, ergaben Werte von ca. $R = 0.5 \mu m$.

Sehgal et. al. [54] nahm 1979 eine Reihe von Spektren von sonolumineszierenden Blasenfeldern auf – damals war es noch nicht möglich, einzelne Blasen zu untersuchen –, die sehr unterschiedlich aussahen. Sie führten die Strahlung auf die Emission verschiedene angeregte Bestandteile der Flüssigkeit wie beispielsweise H_2O^* , OH^* und auf chemische Reaktionen zurück.

Allerdings ist ein Vergleich dem in dieser Arbeit aufgenommenen Spektrum kaum möglich, da sich die experimentellen Bedingungen bei Sehgal et. al. und bei dieser Arbeit erheblich unterscheiden.

In den Abbildungen 5.9 und 5.10 sind zum Vergleich zwei neuere Spektren von Autoren gegeben, welche die spektrale Verteilung einer einzelnen sonolumineszierenden Blase untersuchten. Sie zeigen beide einen ähnlichen Verlauf, auch wenn die Angaben der Strahlungsleistung sehr unterschiedlich sind. Die Strahlungsleistung, die in dieser Arbeit ermittelt wurde, liegt zwischen diesen beiden Literaturwerten. Eine einleuchtende Deutung dieser Diskrepanz kann unseres Wissens noch nicht gegeben werden.



Sonoluminescence spectra. The red curve is for MBSL in dodecane.¹³ The blue dots are for MBSL in water at a frequency of 16 kHz and a temperature of 25 °C.¹⁴ The green curve is for SBSL, also in 25 °C water, driven at 43 kHz;¹⁵ the smooth curve is the tail of a blackbody curve for a temperature of 16 200 K (the maximum is off the scale). The scale on the left applies only to the green curve; the scales for the other two curves have been arbitrarily shifted for comparison purposes. **Figure 6**

Abbildung 5.9: Erstes Vergleichsspektrum der Sonolumineszenz. (Entnommen aus [12])

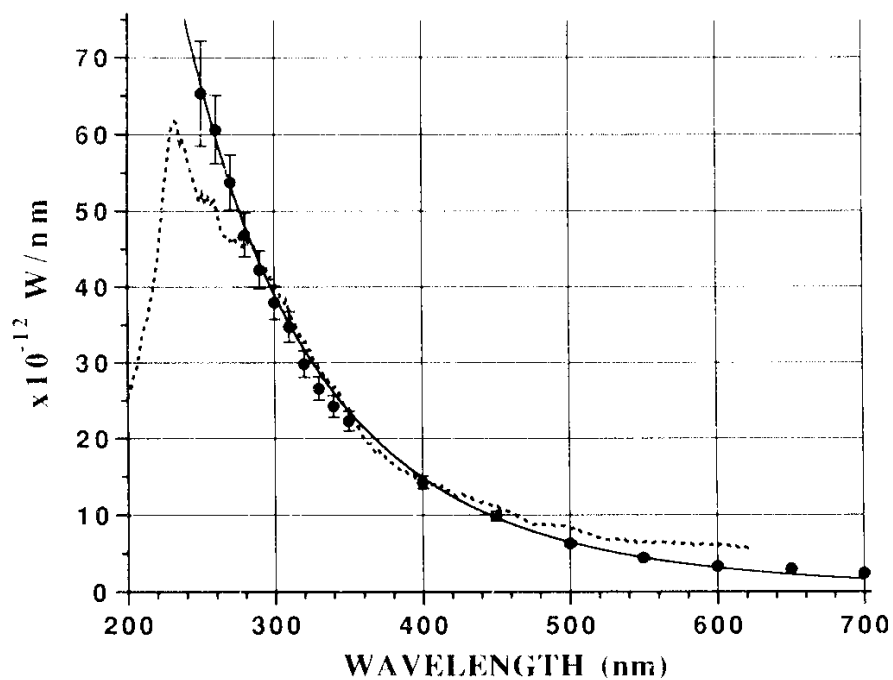


FIG. 1. Calibrated spectral density of the synchronous picosecond flashes of sonoluminescence at 22°C. The average spectral energy density of a single flash can be obtained by dividing by the acoustic frequency of 27 kHz. The dotted line was obtained via the D lamp calibration. The points with error bars were obtained by calibrating our apparatus with a QTH standard of spectral irradiance. The solid line is a 25000 K blackbody spectrum.

Abbildung 5.10: Zweites Vergleichsspektrum der Sonolumineszenz. (Entnommen aus [27])

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblicke

In dieser Diplomarbeit wurde ein Experiment zur Erzeugung einer sonolumineszierenden Blase aufgebaut und ihr Spektrum vermessen.

Zur Erzeugung einer stabilen Blase wurde eine Apparatur aufgebaut, die im wesentlichen ein definiertes aber variables Ultraschallfeld in einem mit Wasser gefülltem Glaskolben erzeugt. Unter den in Kapitel 4 beschriebenen Bedingungen kann eine Blase zu Lumineszenz angeregt werden. So ist bei Zimmertemperatur in einem 100 ml Kolben bei einer Resonanzfrequenz von 27.7 kHz eine in Größe und Strahlung für das Auge sichtbare Blase realisiert worden.

Zur Aufnahme des SL Spektrums wurde die geeignete Optik, ein Monochromator und ein Strahlungsdetektor aufgebaut und an einer Normlampe kalibriert. Die eigentliche Messung wurde mit einer Koinzidenzschaltung durchgeführt. Die Intensität der Sonolumineszenz pro Blitz und pro Wellenlänge ist in Abbildung 5.7 zu sehen. Das ermittelte Spektrum kann am besten mit dem eines schwarzen Strahlers angefüllt werden, dessen Temperatur 17800 K beträgt.

Eine Klärung des tatsächlichen Mechanismus der Emission ist jedoch noch nicht in Sicht. Bisher wurde von vielen Autoren chemische Reaktionen als Ursache der Lichtemission angenommen. Jüngst ist die Diskussion neu angefasst worden, durch eine Theorie, die als Ursprung der Strahlung gewegte Grenzflächen annimmt (Casimireffekt) [13].

Eine Untersuchung des Spektrums auf mögliche Feinstrukturen und in Wellenlängenbereichen, in dem das Wasser die Strahlung absorbiert, könnte

weitere Aufschlüsse über die Natur der Strahlung geben.

Momentan ist es nur möglich eine obere Grenze der Pulslänge eines Blitzes anzugeben. Sie liegt derzeit bei 50 Pikosekunden. Die tatsächliche Länge des Pulses könnte eine Entscheidung treffen, ob der Casimireffekt die Grundlage der Lichtemission bildet. Eberlein sagt eine theoretische Pulslänge von 12 Pikosekunden voraus.

Man ist erst seit ca. 6 Jahren in der Lage, SL unter stabilen Bedingungen zu untersuchen. Das ist eine verhältnismäßig kurze Zeit, und es bleibt die Hoffnung, die Rätsel einer sonolumineszierenden Blase weiter zu lüften, auch wenn eine vollständige Lösung nicht möglich sein wird. Doch eben diese Tatsache macht den Reiz der Forschung aus.

Literaturverzeichnis

- [1] Barber B. P. and Putterman S. J., Light scattering measurements of the repetitive supersonic implosion of a sonoluminescing bubble, Phys. Review Letters, Vol. 69 No. 26 (1992)
- [2] Braber B. P., Wu C. C., Löfstedt R., Roberts P. H., and Putterman S. J., Sensitivity of sonoluminescence to experimental parameters, Phys. Rev. Letters, vol. 72 no. 9 (1994)
- [3] Beuthe H., Über den Einfluß der Ultraschallwelle auf chemische Prozesse, Z. physikal Chem. Abt. A. Bd.163, Heft 3/4, (1932)
- [4] Bihler E., Stabilität des Piezoeffektes in Polyvinylidenfluorid (PVDF), Fortschrittberichte VDI Reihe 21, Nr 62 (VDI-Verlag) (1990)
- [5] Bjerkness V. F. K., Die Kraftfelder, Vieweg und Sohn Braunschweig (1909)
- [6] Blake F. G. Jr., Technical Memo 12, Acoustics Research Laboratory, Harvard University, Cambridge, Massachusetts 1949
- [7] Casimir H. B. G., Proc. K. Ned. Akad. Wet. 51, 793 (1948)
- [8] Chambers L. A. , The emission of visible light in pure liquids during acoustic excitation, Phys. Rev. 49, 881 (1936)
- [9] Chambers L. A., The emission of visible light from cavitating liquids, J. Chem. Phys. 5, 290-292 (1937)
- [10] Crum L. A. Surface oscillations and jet development in pulsating air bubbles, J. Phys. (Paris) 40, 131 (1979)

- [11] Crum L. A., Sonoluminescence, sonochemistry and sonophysics, *J. Acoust. Soc. Am.*, 95 Vol. 1 (1994)
- [12] Crum L. A., Sonoluminescence, *Physics Today*, September (1994)
- [13] Eberlein C., Sonoluminescence as quantum vacuum radiation, Department of Physics, Cavendish Laboratory, University of Cambridge
- [14] Euler. L, *Classe de Philosophie experimentale, Histoire de l'Academie Royale des Sciences et Belles Lettres*, Mem. R. 10, pp 227-295, (1754)
- [15] Flynn H. G., Physics of acoustic cavitation in liquids, *Physical Acoustics* (w. P. Maston, ed.) Vol. IB, pp. 57-172 Academic Press, New York 1964
- [16] Flynn H. G., Cavitation dynamics. I. A mathematical formulation, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 57, No. 6, Part I, (1975)
- [17] Flynn H. G., Cavitation dynamics. II. Free pulsation and models for cavitation bubbles, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 58, No.6 (1975)
- [18] Frenkel, Ya. I., Electrical effects associated with ultrasonically induced cavitation in liquids, *Zh. Fiz. Khim.* 14, 305-308 (1949)
- [19] Frenzel H. und Schultes H., Lumineszenz in ultraschallbeschickten Wasser, *Z. physikal. Chem.* B27 421 (1934)
- [20] Gaitan D. F. and Crum L.A. *J. Acoust. Soc. Am. Suppl.*1 87, S141 (1990); Gaitan D. F., Ph. D. theseis, University of Mississippi, (1990)
- [21] Gaitan F. D., Crum L. A., Church C. C., and Roy R. A. Sonoluminescence and bubble dynamics for a single, stable, cavitation bubble *J. Acoust. Am.* 91, Vol. 6 (1992)
- [22] Griffing V. und Sette D., Luminescence produced as a result of intense ultrasonic waves, *J. Chem. Phys.* 23, 503-509 (1955)
- [23] Hansen G. M., Mie scattering as a technique for the sizing of air bubbles, *Applied Optics*, Vol. 24, No. 19, (1985)
- [24] Harris G. R., Review of transient field theory for a baffled planar piston, *JASA* 70, 608-621 (1981)

- [25] Hickling R., Effects of thermal conduction in sonoluminescence, *J. Acoust. Soc.*, Vol 35, 967-974 (1963)
- [26] Hickling R. and Plesset M. S., Collaps and rebound of a spherical bubble in water, *Phys. Fluids*, Vol 7, No 7 (1964)
- [27] Hiller R. A., Putterman S. J. and Barber B. P., Spectrum of synchronous picosecond sonoluminescence, *Phys. Rev. Letters*, Vol. 69 No. 8 (1992)
- [28] Hiller R. A. und Barber B. P., Producing light from a bubble of air, *The Amateur Scientist*, *Scientific American* (February 1995)
- [29] Hold R. G. and Crum L. A., Mie scattering used to determine spherical bubble oscillations, *Applied Optics*, Vol. 29, No. 28 (1990)
- [30] Holt R. G. and Crum L. A., Acoustically forces oscillation of air bubbles in water: Experimental results, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 91 No 4 (1992)
- [31] Keller J. B. and Miksis M., Bubble oscillations of large amplitude, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 68, No. 2 (1980)
- [32] Kuttruff H., *Physik und Technik des Ultraschalls*, S. Hirzel Verlag Stuttgart (1988)
- [33] Lauterborn W., Numerical Investigation of nonlinear oscillations of gas bubbles in liquids, *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 59 (1976)
- [34] Lauterborn W., Cavitation bubble dynamics. New tools in intricate problems, *Appl. Sci. Res.* 38, 165 (1982)
- [35] Lauterborn W. and Holzfuss J., Evidence for a low-dimensional strange attractor in acoustic turbulence, *Phys. Lett. A*, 115, 369 (1986)
- [36] Lauterborn W. and Parlitz U., Methods of chaos physics and their applications to acoustics, *J. Acoust. Soc. Am.* 84, 1975-1993 (1988)
- [37] Lentz W. J., Atchley A. A. and Gaitan D. F., Mie scattering from a sonoluminescing air bubble in water, *Applied Optics*, Vol. 34, No. 15 (1995)
- [38] Marinesco N. and Trillat J.J., *C. R. Acad. sci. Paris* 196, 858 (1933)

- [39] Meeks S. W. and Ting R. Y., Effects of static and dynamic stress on the piezoelectric and dielectric properties of PVF_2 , JASA 74, 1681-1686 (1983)
- [40] Meyer, Neumann, Physikalische und Technische Akustik, Friedrich Vieweg & Sohn Braunschweig
- [41] Mie G., Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, Annalen der Physik, vierte Folge, Band 25 (1908)
- [42] Minneart M., On Musical Air-Bubble and the Sound of Running Water, Philos. Mag., 16, 235, (1933)
- [43] Nolting B. E. and Neppiras E. A., Cavitation produced by ultrasonics, Proc. Phys. Soc. London Sect. B 63, 674 (1950)
- [44] Nolting B. E. and Neppiras E. A., Cavitation produced by ultrasonics: Theoretical conditions for onset of cavitation, Proc. Phys. Soc. London Sect. B 64, 1032 (1951)
- [45] Paounoff P., C. R. Hebd. Seances Acad. Sci. Paris 44, 261, (1947)
- [46] Plesset M. S., J. Appl. Mech., 16, 277, (1949)
- [47] Plesset S. and Hsieh D.-Y., Phys. Fluids 3, 882, (1960)
- [48] Poritsky H., The collapse or growth of a spherical bubble or cavity in a viscous liquid, Proceedings of the 1st U. S. National Congress in Applied Mechanics (American Society of Mechanical Engineers, New York), p. 813 (1952)
- [49] Prosperetti A., Crum L. A. and Commander K. W., Nonlinear bubble dynamics, J. Acoust. Soc. Am., Vol. 83, No. 2 (1988)
- [50] Prudhomme R. O. and Guillmart T., Photogenese ultraviolette par irradiation ultrasonore de L'eau en presence des gaz rares, J. Chem. Phys. ,54, 336-340 (1957)
- [51] Lord Rayleigh, On the pressure developed in a liquid during the collapse of a sperical cavity, Philos. Mag.34, 94, (1917)

- [52] Sedgewick S. A. and Trevena S. A., Limiting negative pressure of water under dynamic stressing, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 9, 1983-1990 (1976)
- [53] Sedgewick S. A. and Trevena S. A., An estimate of the tensile strength of water, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 9, L203-L205 (1976)
- [54] Segal C., Sutherland R. G. and Verrall R. E., Optical Spectra of sonoluminescence from transient and stable cavitation in water, *J. Phys. Chem.* 84, 388-395 (1980)
- [55] Staudenraus J., Erzeugung und Ausbreitung freifeldfokussierter Hochenergiegedruckimpulse in Wasser, *Fortschrittsberichte VDI Reihe 21, Elektrotechnik* (1992)
- [56] Verrall R. E. and Sehgal C. M., Sonoluminescence in ultrasound: Its chemical, physical and biological effects, edited by Suslick K. S., (VCH, New York), pp. 319-334 (1988)
- [57] Wexl W. A. and Marboe E. C., Surface structure of water and some of its chemical manifestation, *Research (London)* 2, 19-28 (1949)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ich bedanke mich bei Prof. Dr. Helm für die Vergabe des interessanten und vielseitigen Themas.

Ich danke allen Mitarbeitern der Abteilung Helm für das angenehme Arbeitsklima und die stets vorhandene Hilfsbereitschaft.

Mein Dank geht an alle Mitarbeiter der mechanischen und elektrischen Werkstatt, die mich in allen handwerklichen Angelegenheiten unterstützten.

Mein besonderer Dank gilt Michael Schall und Ralf Adelhelm, die mir in der Endphase meiner Arbeit eine besondere Hilfe waren.

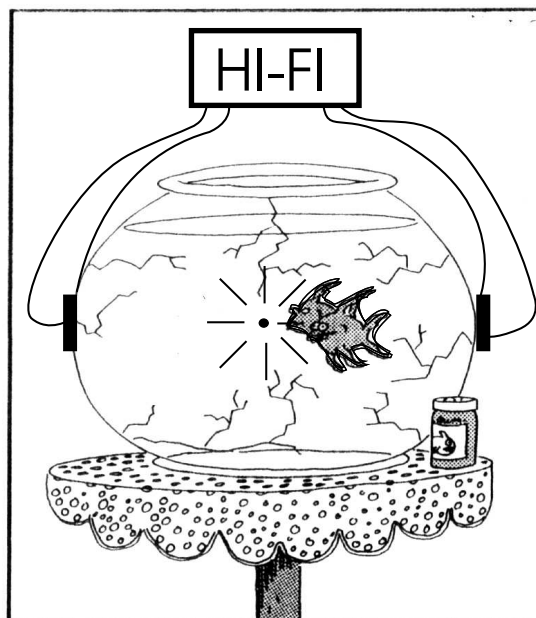
Prof. Eisenmenger und Dr. Gompf aus Stuttgart möchte ich für die fruchtbaren Dialoge und für die Bereitstellung eines Hydrophons danken.

Ein ganz besonderer Dank geht an meine Mutter für ihre aufopfernde Art, mit der sie uns Kindern immer zur Seite steht.

Ganz allgemein danke ich allen Freunden und Bekannten für die immer willkommenen Ablenkungen und Zerstreuungen.

Hiermit erkläre ich, daß ich die vorliegende Arbeit eigenhändig verfaßt habe und nur die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe.

Freiburg, den 30. 10. 1996



Oh, it's so beautiful to hear
Marinesco's Flash-Light
Sinfonie