

Charakterisierung von Kavitationsblasenpopulationen

DISSERTATION

zur Erlangung des mathematisch-naturwissenschaftlichen Doktorgrades

"Doctor rerum naturalium"

der Georg-August-Universität Göttingen

vorgelegt von

ANDREA THIEMANN

aus

Göttingen

Göttingen 2011

Referent: Prof. Dr. Christoph F. Schmidt
Korreferent: Prof. Dr. Werner Lauterborn

Tag der mündlichen Prüfung: 09.06.2011

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen	3
2.1. Kavitation	3
2.1.1. Blasenoszillationen	4
2.1.2. Blasentranslationen	7
2.1.3. Diffusion	11
2.1.4. Oberflächeninstabilität	12
2.1.5. Numerische Studien für verschiedene Flüssigkeitsparameter	19
2.2. Vielblasendynamik	23
2.3. Sonolumineszenz	24
2.4. Sonochemolumineszenz	28
2.5. Acoustic Streaming	29
3. Blasenstrukturen	31
3.1. Hintergrund/Idee	31
3.2. Entstehung	32
3.3. Miller-Struktur bei verschiedenen Frequenzen	33
3.3.1. Hochgeschwindigkeitsaufnahmen	33
3.3.2. Numerische Simulationen	36
3.3.3. Diskussion	39
3.4. Struktur bei 230 kHz	40
3.4.1. Hochgeschwindigkeitsaufnahmen	40
3.4.2. Lumineszenzaufnahmen	46
3.4.3. Reinigungstests	48
3.4.4. Diskussion	51
4. Vielblasensonolumineszenz	53
4.1. Hintergrund/Idee	53
4.2. Aufbau	55

4.3.	Bearbeitungsverfahren	57
4.4.	Untersuchungen von Wasser und Luminol-Lösung	57
4.4.1.	Langzeitaufnahmen mit einer Farbkamera	59
4.4.2.	Zeitgemittelte Aufnahmen in den einzelnen Farben	60
4.4.3.	Raum-, zeit- und farbaufgelöste Aufnahmen	61
4.4.4.	Pseudostreaks	61
4.4.5.	Globale räumliche Mittel- und Spitzenwerte	64
4.4.6.	Lokaler Signalverlauf	66
4.4.7.	Diskussion	69
4.5.	Untersuchungen mit SDS-Lösungen	70
4.5.1.	Langzeitaufnahmen mit einer Farbkamera	70
4.5.2.	Zeitgemittelte Aufnahmen in den einzelnen Farben	71
4.5.3.	Raum-, zeit- und farbaufgelöste Aufnahmen	72
4.5.4.	Pseudostreaks	74
4.5.5.	Globale räumliche Mittel- und Spitzenwerte	76
4.5.6.	Lokaler Signalverlauf	78
4.5.7.	Diskussion	80
4.6.	Akustisches Spektrum	82
4.6.1.	Messung des akustischen Spektrums	83
4.6.2.	Diskussion	88
4.7.	Strömungen in der Küvette	89
4.7.1.	Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit	90
4.7.2.	Diskussion	92
4.8.	Hochgeschwindigkeitsaufnahmen	92
4.8.1.	Reines Wasser	93
4.8.2.	Luminol	95
4.8.3.	1 mM SDS	97
4.8.4.	10 mM SDS	98
4.8.5.	Diskussion	99
4.9.	Xenon-gesättigte Schwefelsäure mit Natriumsulfat	100
4.9.1.	Langzeitaufnahmen mit einer Farbkamera	100
4.9.2.	Zeitgemittelte Aufnahmen in den einzelnen Farben	101
4.9.3.	Raum-, zeit- und farbaufgelöste Lumineszenzaufnahmen	102
4.9.4.	Globale und lokale Mittel- und Spitzenwerte	105
4.9.5.	Hochgeschwindigkeitsaufnahmen	107
4.9.6.	Optisches Emissions-Spektrum	115
4.9.7.	Diskussion	117

5. Zusammenfassung und Ausblick

121

A. Numerische Simulationen	124
B. Bearbeitungsverfahren	127
C. Verwendete Küvetten	128
C.1. 5 cm×5 cm×5 cm Quarzquader	128
C.2. Großes Becken	129
C.3. Wandlerblock	129
C.4. PMMA-Küvette	130
C.5. Titan-Sonotrode	131
Symbolverzeichnis	134
Literaturverzeichnis	147

Kapitel 1

Einleitung

Akustische Kavitation wird heutzutage in einer Vielzahl von Anwendungen als Hilfsmittel genutzt, ohne dass die genauen physikalischen Vorgänge vollständig verstanden sind. Sie wird zum Beispiel in der Medizin bei Augenoperationen (Behandlung vom „grauen Star“), bei der Zerstörung von Gallen-, Blasensteinen und Blutgerinnseln, bei der Fettentfernung [1,2] sowie bei Kontrastmittelaufnahmen eingesetzt [3]. In der Chemie wird Kavitation zur Erzeugung von stabilen Emulsionen, bei der besseren und schnelleren Vermischung verschiedener Komponenten, beim Aufschließen von Zellen sowie bei der Beschleunigung diffusionsbeschränkter Prozesse eingesetzt [4–7]. Auch für die Wasseraufbereitung wird Kavitation zum Aufbrechen organischer Komponenten und zur Ablösung von Schmutz auf Filtermembranen verwendet. In vielen Bereichen wird die Kavitation zur Reinigung genutzt, wie zum Beispiel in der Feinmechanik, der Halbleiterindustrie oder beim Optiker zur Reinigung von Brillengläsern. Bei der Reinigung wird meist die Probe in ein mit Wasser oder Lösungsmittel gefülltes Becken gebracht und dann für einige Zeit beschallt. Dass dabei nicht der Ultraschall direkt, sondern die durch den Ultraschall erzeugten und in Schwingung versetzten Kavitationsblasen reinigen, ist zwar schon lange in Fachkreisen bekannt [8], überrascht aber auch heute noch manchen Anwender (man spricht z. B. immer noch von „Ultraschallreinigung“). Oft ist bei Reinigung im Ultraschallbad eine Bewegung der Probe nötig, um homogene Abreinigung zu erzielen, da sich in der Anordnung stehende Wellen bilden, die Bereiche ohne Blasen zur Folge haben. Generell ist die Reinigungswirkung auch eng mit der Kavitationserosion verbunden, die schon sehr früh in der Schiffsindustrie an Schiffspropellern entdeckt wurde [9].

Die Aufgabe dieser Arbeit soll es sein, das Verhalten von akustischen Kavitationsblasen und deren Strukturbildung besser zu verstehen sowie den zugrunde liegenden Mechanismen bei der Entstehung von Sonolumineszenz einen Schritt näher zu kommen, insbesondere in Bezug auf die Blasendynamik. Es zeigt sich nämlich, dass die Blasen in einem akustischen Kavitationsfeld nicht eine homogene Gruppe bilden, sondern dass durchaus verschiedene Blasen-“Populationen“ exi-

stieren können, die sich in räumlicher Anordnung und Bewegung, in ihrer Schwingungsdynamik und -form und anderen Charakteristika unterscheiden. Hierzu zählen u. a. Sonolumineszenz-Emission oder Reinigungs- und Erosionsaktivität. Für Anwendungen wie Reinigung oder Chemie durch Kavitation ist ein Verständnis solcher Blasenpopulationen essentiell, wenn beabsichtigt wird, die Kavitationseffekte zu optimieren oder gar zu kontrollieren und zu steuern. Beispiele, die z. T. auch in dieser Arbeit eine Rolle spielen, sind die Trennung von Kavitationsreinigung und Kavitationserosion und die sonochemische Reaktion von nichtflüchtigen Substanzen im Blasenkollaps. Beide Effekte sind offenbar von Details der Blasendynamik abhängig, die sich in den Populationen unterscheiden können. Ergebnisse hierzu werden in dieser Arbeit vorgestellt.

In Kapitel 2 werden zunächst einige Grundlagen von Kavitation und Sonolumineszenz erklärt. Numerische Simulationen sollen dabei das Verhalten von Kavitationsblasen in verschiedenen Flüssigkeiten näher erläutern.

An die Theorie schließen sich die experimentellen Ergebnisse an. In Kapitel 3 wird die Frequenzskalierung einer oft beobachteten Blasenordnung im Schallfeld, der so genannten „Miller-Struktur“, untersucht. Weiterhin wird eine typische Blasenstruktur, die die Miller-Struktur in einer etwas anderen Form beinhaltet, durch Hochgeschwindigkeits- und Sonolumineszenzaufnahmen, sowie Reinigungstests untersucht.

In Kapitel 4 wird die räumlich, zeitlich und farblich aufgelöste Sonolumineszenzmessung vorgestellt. Mit dieser neuen Methode wird ein Kavitationsblasenfeld in unterschiedlichen wässrigen Lösungen untersucht. Für das betrachtete Kavitationsblasenfeld werden ebenso die akustischen Emissionsspektren gemessen, als auch die Flüssigkeitsströmung in der Küvette ermittelt. Aufnahmen mit einer Hochgeschwindigkeitskamera bilden detailliert das Blasenverhalten ab. Im abschließenden Teil des Kapitels wird das Sonolumineszenzsignal in konzentrierter Schwefelsäure mit Natriumsulfat untersucht und mit der beobachteten Blasendynamik verglichen.

Kapitel 5 beinhaltet eine Zusammenfassung der Ergebnisse sowie einen Ausblick für mögliche weitere Untersuchungen.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1. Kavitation

Als Kavitation wird das Aufreißen und anschließende Kollabieren von Hohlräumen in Flüssigkeiten bezeichnet. Dies kann im Wesentlichen durch zwei unterschiedliche physikalische Mechanismen geschehen: Zum einen durch das Anlegen einer Zugspannung und zum anderen durch lokalen Energieeintrag (wird auch als „Sieden“ bezeichnet) [9, 10]. Der Energieeintrag kann durch das Einbringen von Licht mit genügend hoher Intensität oder durch elementare Partikel geschehen. Eine Zugspannung kann entweder durch schnelles Strömen einer Flüssigkeit oder durch das Einkoppeln von Schall in die Flüssigkeit entstehen. In dieser Arbeit wird nur der letzte Fall, der akustischen Kavitation, betrachtet. Einen Überblick zum Thema gibt es z.B. in den Werken von Knapp, Daily und Hammit [11], Young [9], Leighton [12] und Brennen [13] sowie in Übersichtsartikeln von Nikipiras [14] und Lauterborn [15].

Um einen Hohlraum, der mit nicht kondensierbarem Gas und Dampf gefüllt ist (wird im Folgenden vereinfachend als sphärische Blase angenommen) in einer Flüssigkeit zu stabilisieren, müssen mehrere Parameter aufeinander abgestimmt werden. Einerseits erfahren die Blasen in der Flüssigkeit alle eine Auftriebskraft, wobei sich ein stärkerer Auftrieb für größere Blasen ergibt. Andererseits lösen sie sich langsam auf, wenn der Druck in ihrem Inneren, verursacht durch die Oberflächenspannung, höher als der Druck in der Flüssigkeit ist. Je nachdem, welcher der beiden Effekte überwiegt, steigen die Blasen auf und verschwinden aus der Flüssigkeit oder das Gas löst sich in die Flüssigkeit, bevor die Blase die Oberfläche erreicht. Sehr kleine Blasen können dabei durch Verunreinigungen der Flüssigkeit oder in Mikrorissen stabilisiert werden und wirken beim Anlegen einer Zugspannung als Kavitationskeime [9, 16]. Im Diffusionsgleichgewicht müssen sich Innendruck und Druck der Flüssigkeit ausgleichen. Hinzu kommt noch die Oberflächenspannung der Blase. Bei einer kugelförmigen Blase muss im Gleichgewicht

gelten:

$$P_g = P_0 + \frac{2\sigma}{R_0}, \quad (2.1)$$

wobei P_g den Gasdruck in der Blase, P_0 den Druck in der Flüssigkeit, R_0 den Blasenruheradius und σ die Oberflächenspannung bezeichnet.

2.1.1. Blasenoszillationen

Um die Radiusänderung einer vom akustischen Wechseldruck angetriebenen kugelförmigen Blase zu beschreiben, gibt es mehrere Gleichungen, die unterschiedliche Vereinfachungen voraussetzen und unterschiedlich komplex sind. Sie bilden bei nicht allzu großen Anregungsamplituden jedoch die Blasenwanddynamik relativ genau ab. Die einfachste Gleichung ist die Rayleigh-Plesset Gleichung:

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho_1} \left[\left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\eta} - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu\dot{R}}{R} - P_\infty \right], \quad (2.2)$$

wobei ein Punkt die Ableitung nach der Zeit bedeutet, R den zeitabhängigen Blasenradius, ρ_1 die Dichte der Flüssigkeit, η den Polytropenexponent des Gases in der Blase ($\eta = 1$: isotherm, $\eta = \gamma$: adiabatisch, γ : Verhältnis der spezifischen Wärmen), μ die Viskosität der Flüssigkeit und P_∞ den Druck in der Flüssigkeit weit entfernt von der Blase beschreibt.

Für einen heftigen Kollaps können sich für diese Gleichung Ungenauigkeiten bei der Lösung ergeben, weshalb bei großen Schalldruckamplituden besser die Keller-Miksis-Gleichung benutzt werden sollte, bei der die Kompressibilität der Flüssigkeit bis zur 1. Ordnung in der Mach-Zahl \dot{R}/c berücksichtigt wird [17–19]:

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{c} \right) R\ddot{R} + \frac{3}{2} \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c} \right) \dot{R}^2 = \frac{1}{\rho} \left[P_L \left(1 + \frac{\dot{R}}{c} \right) + \frac{R}{c} \frac{dP_L}{dt} \right], \quad (2.3)$$

wobei c die Schallgeschwindigkeit der Flüssigkeit ist und:

$$P_L = \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\eta} - P_0 - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu}{R} \dot{R} - P_\infty. \quad (2.4)$$

Eine bessere Wahl stellt die Gilmore Gleichung dar, die jedoch geringfügig

komplexer ist und daher einen höheren Rechenaufwand erfordert [20]:

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{C}\right) R\ddot{R} + \frac{3}{2} \left(1 - \frac{\dot{R}}{3C}\right) \dot{R}^2 = \left(1 + \frac{\dot{R}}{C}\right) H + \frac{R}{C} \left(1 - \frac{\dot{R}}{C}\right) \dot{H}, \quad (2.5)$$

wobei gilt:

$$H = \int_{P_\infty}^{p(R, \dot{R})} \frac{1}{\rho_1} dp, \quad \frac{p + B}{p_0 + B} = \left(\frac{\rho_1}{\rho}\right), \quad (2.6)$$

$$C = c|_{r=R} = \sqrt{\left.\frac{dp}{d\rho_1}\right|_{r=R}} = c_0 \left(\frac{p(R, \dot{R}) + B}{p_0 + B}\right)^{\frac{n-1}{2n}}, \quad (2.7)$$

$$p(R, \dot{R}) = P_g - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu}{R} \dot{R}, \quad (2.8)$$

wobei C die Schallgeschwindigkeit in der Flüssigkeit, H die Enthalpiedifferenz der Flüssigkeit zwischen dem Druck im Unendlichen P_∞ und dem Druck an der Blasenwand beschreibt. B und n sind Konstanten, die sich über die Zustandsgleichung für die Flüssigkeit ergeben (z. B. mit der Tait-Gleichung: $n = 7,025$ und $B = 3046$ bar).

Die Differentialgleichungen für die Blasenoszillation können alle durch Linearisierung in die Form eines harmonischen Oszillators gebracht werden, für den die Eigenfrequenz ω_0 bekannt ist. Die Eigenfrequenz hängt von der linearen Resonanzfrequenz des Oszillators ab ($\omega_0 = 2\pi f_{\text{res}}$). Als Gleichung für die Resonanzfrequenz ergibt sich:

$$f_{\text{res}} = \frac{1}{2\pi R_{\text{res}}} \sqrt{\frac{3\gamma P_{\text{stat}}}{\rho}}, \quad (2.9)$$

wobei P_{stat} den statischen Druck bezeichnet. Die Gleichung 2.9 lässt sich auch umgekehrt als Bestimmungsgleichung für den Resonanzradius bei einer festen Frequenz benutzen. Diese Form der Gleichung wurde zuerst von Minnaert beschrieben [21], weshalb oft die Bezeichnung Minnaert-Radius für den linearen Resonanzradius und Minnaert-Frequenz für die Resonanzfrequenz benutzt wird.

Zwei Beispiele für Blasenoszillationen mit unterschiedlichen Ruheradien aber gleichem sinusförmigen Anregungsdruck bei einer Anregungsfrequenz von 230 kHz

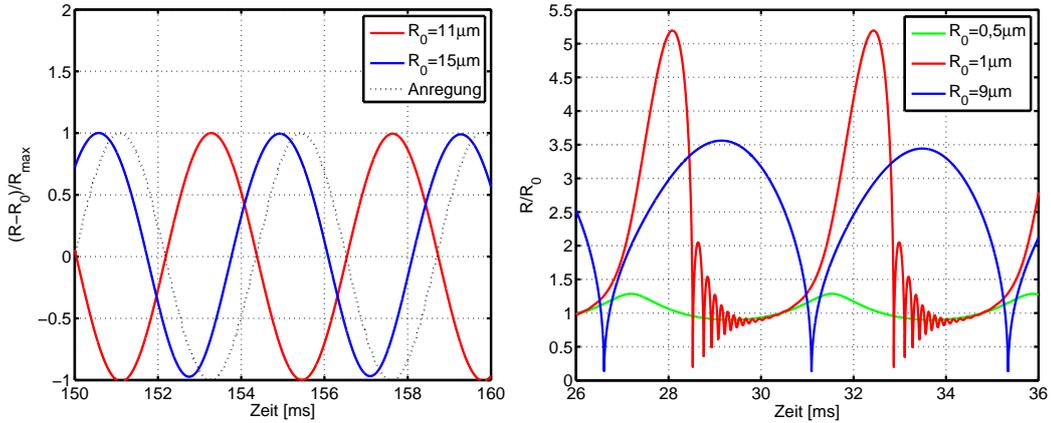


Abbildung 2.1.: Links: Blasendynamik bei schwacher Anregungsdruckamplitude $\hat{P}_a = 1 \text{ kPa}$, für zwei Blasen knapp unter bzw. über dem linearen Resonanzradius ($R_{\text{res}} = 13 \mu\text{m}$). Rechts: Blasendynamik für unterschiedliche Radien bei gleich starker Anregungsdruckamplitude von $\hat{P}_a = 190 \text{ kPa}$. Anregungsfrequenz: 230 kHz .

(linearer Resonanzradius $13 \mu\text{m}$) sind in Abb. 2.1 dargestellt. Bei einer geringen Druckamplitude von $\hat{P}_a = 1 \text{ kPa}$ schwingen die Blasen sinusförmig mit der Anregung. Lediglich die Phase unterscheidet sich. Blasen mit Radien, die kleiner sind als der lineare Resonanzradius, schwingen gegenphasig zur Anregung, Blasen, die größer sind, schwingen nahezu in Phase zur Anregung. Bei einer höheren Druckamplitude ergeben sich nichtlineare Schwingungen.

Drei Beispiele für Blasenschwingungen mit kleineren Radien als der lineare Resonanzradius für $\hat{P}_a = 190 \text{ kPa}$ sind in Abb. 2.1 rechts gezeigt. Sehr kleine Radien von $0,5 \mu\text{m}$ schwingen kaum, da der Radius unterhalb der Blake-Schwelle liegt¹. Die Blase mit einem Ruheradius von $9 \mu\text{m}$ schwingt bereits nichtlinear, folgt der Anregungsdruckschwankung jedoch gut. Für eine Blase mit einem Ruheradius von $1 \mu\text{m}$ ergibt sich eine lange Aufziehphase auf einen Radius, der fünfmal dem Ruheradius entspricht, mit einem anschließenden schnellen und heftigen Kollaps. Nach dem ersten Kollaps schwingt die Blase noch einige Male etwas schwächer, bis auf etwa den doppelten Ruheradius, auf. Jedes weitere Mal schwingt sie etwas schwächer auf, bis die Nachschwinger abgeklungen sind und die nächste lange Aufziehphase beginnt.

¹ Blasen unterhalb der Blake-Schwelle können nicht zu starken Radiusoszillationen angeregt werden [12, 22].

2.1.2. Blasentranslationen

Auf eine einzelne Blase im Schallfeld wirkt das Schallfeld über die Primäre Bjerknes-Kraft \mathbf{F}_{Bj1} [12, 23]. Sie entsteht aus der nicht verschwindenden Mittelung über die momentan zur Zeit t herrschende Kraft auf die Blase durch das Blasenvolumen $V(t)$ in Richtung des negativen Druckgradienten am Ort \mathbf{x} der Blase $-\nabla P_a(\mathbf{x}, t)$. Unter der Annahme, dass die Blase klein im Vergleich zur Wellenlänge ist, und falls Volumen und Druckgradient periodisch oszillieren, lässt sich eine Zeitmittelung über die Periode T durchführen:

$$\mathbf{F}_{\text{Bj1}} = - \langle V(t) \nabla P_a(\mathbf{x}, t) \rangle_T. \quad (2.10)$$

Für eine äußere Anregung der Form $P_a(\mathbf{x}, t) = \hat{P}_a(\mathbf{x}) \cos(\omega t - \Phi(\mathbf{x}))$, wobei ω die Kreisfrequenz und Φ die Phase ist, ergibt sich die allgemeine primäre Bjerknes-Kraft zu:

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_{\text{Bj1}} = & - \nabla \hat{P}_a(\mathbf{x}) \langle V(t) \cos(\omega t - \Phi(\mathbf{x})) \rangle_T \\ & - \hat{P}_a(\mathbf{x}) \nabla \Phi(\mathbf{x}) \langle V(t) \sin(\omega t - \Phi(\mathbf{x})) \rangle_T. \end{aligned} \quad (2.11)$$

Dieser Ausdruck ist gültig für beliebige harmonische Wellenformen mit ortsvariabler Phase.

Im Falle einer ebenen stehenden Welle gilt $\Phi = 0$ oder $\Phi = \pi$ und die äußere Anregung ändert sich zu $P_a(\mathbf{x}) = \hat{P}_a \cos(\mathbf{k}\mathbf{x})$, wobei \mathbf{k} der Wellenvektor ist. Damit ergibt sich der Gradient der Anregung zu $\nabla P_a(\mathbf{x}) = \hat{P}_a(-\sin(\mathbf{k}\mathbf{x})\mathbf{k})$ und der zweite Term aus Gleichung 2.11 verschwindet.

Im Falle einer ebenen laufenden Welle gilt $\Phi = \mathbf{k}\mathbf{x}$ und $\hat{P}_a(\mathbf{x}) = \hat{P}_a = \text{const.}$ Damit verschwindet der erste Term aus Gleichung 2.11.

Das Vorzeichen der Bjerknes-Kraft ist abhängig von der Phasenbeziehung zwischen Blasen volumensoszillation und dem Anregungsdruck sowie seiner räumlichen Ableitung. Für kleine Oszillationen (mit einer linearisierten Bewegung der Blasenwand) spielt der lineare Resonanzradius R_{res} eine wichtige Rolle: In stehenden Wellen werden Blasen mit $R_0 < R_{\text{res}}$ von den Druckbäuchen und mit $R_0 > R_{\text{res}}$ von den Druckknoten angezogen. Bei laufenden Wellen zeigt die Bjerknes-Kraft immer in Richtung der Ausbreitung der Welle. Sie ist am größten für Blasen mit $R_0 = R_{\text{res}}$ und verschwindet für sehr große und sehr kleine Blasen.

Werden nichtlineare Blasenoszillationen mit hinreichend großen Druckamplituden betrachtet, so kann es vorkommen, dass auch kleine Blasen vom Druckbauch abgestoßen werden oder Blasen in laufenden Wellen sich gegen die Ausbreitungsrichtung der Welle bewegen [24].

Allgemein und ohne Zeitmittelung lässt sich eine Differentialgleichung für die Bewegung der Blase im Schallfeld aufstellen (z. B. nach dem Lagrange- oder Hamiltonformalismus [25]):

$$\frac{1}{3}R\ddot{x} + \dot{R}\dot{x} = \frac{\mathbf{F}_{\text{ext}}}{2\pi\rho R^2}, \quad (2.12)$$

wobei \mathbf{F}_{ext} die Summe der externen Kräfte (wie z. B. primäre Bjerkens-Kraft, Reibungskraft) bezeichnet. In vielen Fällen ist eine zeitgemittelte Betrachtung mit entsprechend sinnvollen Bjerkens-Kräften legitim. In manchen Fällen ist jedoch die Beschreibung ohne Zeitmittelung notwendig [26–28].

Virtuelle Masse

Ein durch eine Flüssigkeit strömender oder von einer Flüssigkeit umströmter Körper besitzt nicht nur die träge Masse, die durch sein Gewicht bestimmt wird [12]. Im Falle einer Gasblase in Wasser wäre die Masse i. d. R. vernachlässigbar. Trotzdem besitzt eine solche Blase eine nicht unbedeutende Trägheitskraft, verursacht durch die sie umströmende Flüssigkeit („virtuelle“ oder „addierte“ Masse). Eine Erklärung für die Entstehung dieser Kraft ergibt sich durch die Betrachtung einer Blase unter Berücksichtigung der sie umgebenden Flüssigkeit. Wird zum Beispiel der Effekt der Gravitation auf die Blase und die sie umgebende Flüssigkeit betrachtet, so ist der Effekt der Gravitation auf die Flüssigkeit wichtig, da dieser das Phänomen des Auftriebs erklärt.

Wird eine translatierende Blase betrachtet, so ergibt sich aus Newtons zweitem Gesetz eine Trägheitskraft, die ein Verhältnis von einer einseitigen Nettokraft auf die Blase zu der sich ergebenden Beschleunigung beschreibt. Das bedeutet, die Flüssigkeitsteilchen müssen in Bewegung versetzt werden, um den Körper zu umströmen. Diese zusätzliche Masse tritt nicht nur in Flüssigkeiten auf, sondern auch in Gasen und Gasgemischen wie z. B. in Luft. Ein Tennisball, der durch die Luft fliegt, erfährt ebenfalls eine zusätzliche Trägheitskraft, die jedoch vernachlässigbar klein ist im Vergleich zur Trägheit der Ballmasse.

Bei Kavitationsblasen ist es genau umgekehrt. Die Dichte des Gases in der Blase ist wesentlich geringer als die Dichte der Flüssigkeit, wodurch die zusätzliche Masse der Flüssigkeit nicht mehr zu vernachlässigen ist. Für ideale Fluide

kann gezeigt werden, dass die virtuelle Masse für eine Kugel genau der halben Masse der verdrängten Flüssigkeit entspricht [12, 13, 29]. Sie kann auch für andere Körper berechnet werden, ist aber komplexer und hängt von der genauen Bewegungsrichtung des Körpers ab.

Die sich durch die virtuelle Masse ergebende gesamte Trägheitskraft einer sphärischen Gasblase der Dichte ρ , Masse m_g und Volumen V_0 in einer Flüssigkeit der Dichte ρ_1 , Masse m_1 und Volumen V lautet somit:

$$\mathbf{F}_M = (m_g + m_1) \ddot{\mathbf{x}} = \left(\rho V_0 + \frac{\rho_1}{2} V \right) \ddot{\mathbf{x}} \approx \frac{\rho_1}{2} V \ddot{\mathbf{x}}. \quad (2.13)$$

Die Näherung ist dadurch zu rechtfertigen, dass die Dichte $\rho \approx 11,2 \text{ kg/m}^3$ von Luft wesentlich geringer ist als die von Wasser mit $\rho_1 \approx 1000 \text{ kg/m}^3$. Dem entsprechend wird die Trägheit der Blase fast ausschließlich durch die virtuelle Masse bestimmt.

Reibungskräfte

Umströmt eine viskose Flüssigkeit einen Körper, so erfährt dieser eine Reibungskraft. Sie ist unterschiedlich für verschieden geformte Körper. Wird als erstes eine harte Kugel betrachtet, so kann davon ausgegangen werden, dass die Teilchen der

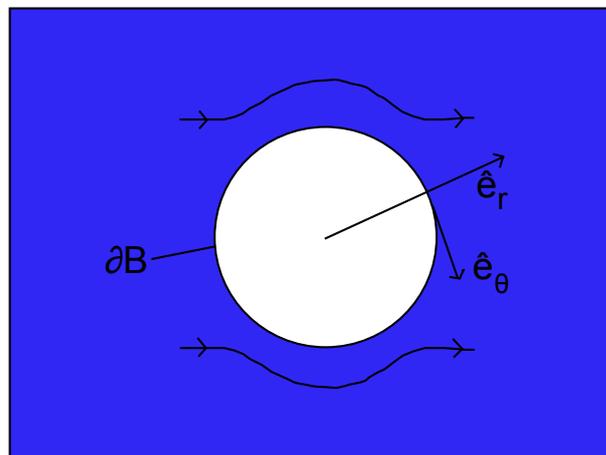


Abbildung 2.2.: Skizze zur Verdeutlichung der Richtung der Vektoren, ∂B bezeichnet den Rand der Kugel.

Flüssigkeit, die sich direkt auf der Kugel befinden, keine tangentielle Geschwindigkeit besitzen, also $\mathbf{v}_\theta|_{\partial B} = 0$ gilt (Richtung der Geschwindigkeitskomponente siehe Abb. 2.2). Außerdem ist die Radialgeschwindigkeit $\mathbf{v}_r|_{\partial B}$ an der Kugelwand

gleich null, da die Kugelgröße erhalten bleibt. Mit dieser Randbedingung ergibt sich für eine laminare Umströmung eine Reibungskraft für eine harte Kugel [30] von:

$$\mathbf{F}_D^{(1)} = -6\pi\mu R\mathbf{v}. \quad (2.14)$$

Durch Einführen der Reynoldszahl mit $Re = 2Rv\rho_1/\mu$ und des Reibungskoeffizienten mit $c_D = -F_D/(1/2\rho_1v^2\pi R^2)$, ergibt sich:

$$c_D^{(1)} = 24\frac{1}{Re}. \quad (2.15)$$

Wird als nächstes eine leere Kugel betrachtet, so ist eine Tangentialkomponente der Geschwindigkeit ungleich null erlaubt und als Randbedingung ergibt sich die so genannte „zero-shear-stress“-Bedingung, das heißt $\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial r}|_{\partial B} = 0$. Mit dieser Bedingung ergibt sich eine Reibungskraft für eine leere Kugel [30, 31] von:

$$\mathbf{F}_D^{(2)} = -4\pi\mu R\mathbf{v}, \quad (2.16)$$

sowie ein Reibungskoeffizient von:

$$c_D^{(2)} = 16\frac{1}{Re}. \quad (2.17)$$

Durch Messungen an aufsteigenden Blasen wurde herausgefunden, dass Blasen in Wasser eher ein Verhalten von harten Kugeln zeigen [31]. Ein Versuch, diese Entdeckung zu erklären, ist die Verunreinigung der Flüssigkeit. Selbst in „reinem“ Wasser gibt es Spuren organischer Stoffe, die vermutlich eine Hülle um die Blase aufbauen.

Im Falle einer Kavitationsblase reicht es jedoch nicht aus, eine Kugel mit festem Radius zu betrachten. Für eine oszillierende, leere Blase ergibt sich für $Re \ll 1$ eine Reibungskraft von:

$$\mathbf{F}_D^{(3)} = -4\pi\mu R(t)\mathbf{v}(t) + \mathbf{F}_H, \quad (2.18)$$

wobei \mathbf{F}_H die so genannte „history force“ bezeichnet [32]. Wie \mathbf{F}_H im Allgemeinen aussieht, soll hier nicht erläutert werden. Es ergibt sich ein längerer, meist nicht analytisch ausrechenbarer Term. Wichtig ist nur, dass sich bei kleinen Geschwindigkeiten die Blase daran „erinnert“, wie sie sich vorher bewegt hat.

Eine einfachere Form ergibt sich dagegen für $Re \gg 1$ [32]:

$$\mathbf{F}_D^{(4)} = -4\pi\mu R(t)\mathbf{v}(t). \quad (2.19)$$

Hierbei ist die Bewegung der Blase so groß, dass ihre Vergangenheit sie praktisch nicht mehr beeinflusst. Hinter der Blase entsteht eine turbulente Strömung, aufgrund der nichthaftenden Randbedingung, die aber weit hinter der Blase liegt. Bei noch größeren Reynoldszahlen ab $Re > 700$ verformt sich die Blase und die sphärische Näherung ist nicht mehr gültig [31].

Experimente von Krefting et al. [33] haben ergeben, dass für Kavitationsblasen bei moderaten Schalldrücken die folgende Reibungskraft näherungsweise gilt:

$$\mathbf{F}_D^{(5)} = -\alpha\pi\mu\overline{R(t)\mathbf{v}(t)}, \quad (2.20)$$

wobei $\overline{R(t)}$ und $\overline{\mathbf{v}(t)}$ gemittelte Größen sind und $6 < \alpha < 12$ gilt.

2.1.3. Diffusion

Jede Blase tauscht Gasmoleküle durch Diffusion über ihre Oberfläche mit der sie umgebenden Flüssigkeit aus. Eine stationäre, nicht schwingende Blase löst sich langsam auf, da durch die Oberflächenspannung im Inneren ein höherer Druck als Atmosphärendruck herrscht. Schwingt die Blase hingegen, so kann im zeitlichen Mittel mehr Gas in die Blase gelangen als hinaus, was als gleichgerichtete Diffusion bezeichnet wird. Diese wird durch drei Mechanismen begünstigt [34]: Schwingt eine Blase um ihren Ruheradius, so gelangt zur Zeit größerer Radien Gas in die Blase (durch eine Verringerung des Innendrucks) und zur Zeit kleinerer Radien Gas in die Flüssigkeit (Erhöhung des Innendrucks). Beim Aufschwingen wird die Oberfläche der Blase vergrößert, wodurch gemittelt mehr Gas in die Blase gelangen kann, da der Teilchenfluss proportional zur Oberfläche ist. Der zweite Mechanismus ist der Schaleneffekt. Damit wird beschrieben, dass sich ein konstantes Volumenelement an der Blasenwand für große Blasen über einen größeren Bereich der Oberfläche verteilt als bei kleinen Blasen, bei denen sich das Volumenelement stärker in radialer Richtung in die Flüssigkeit erstreckt. Durch diese

Stauchung des Volumenelements ergibt sich ein steilerer Konzentrationsgradient, wodurch wiederum mehr Gas in die Blase eindringen kann. Drittens befindet sich bei einer nichtlinearen Schwingung die Blase i. d. R. länger in der Phase eines großen Radius, wodurch über eine Schwingungsperiode gemittelt mehr Gas in die Blase gelangen kann.

Die Diffusion kann mathematisch durch die folgende von Crum [35] aufgestellte Gleichung beschrieben werden:

$$\dot{R}_0 = \frac{DR_g\Theta C_g}{P_0R_0 + 4\sigma/3} \left\langle \frac{R}{R_0} \right\rangle_T \left(\frac{C_i}{C_g} - \frac{\left\langle \left(\frac{R}{R_0} \right)^{4-3\eta} \right\rangle_T}{\left\langle \left(\frac{R}{R_0} \right)^4 \right\rangle_T} \right), \quad (2.21)$$

wobei $C_g = \left(1 + \frac{2\sigma}{R_0P_0}\right) C_i$ gilt. D bezeichnet die Diffusionskonstante, R_g die Gaskonstante, Θ die absolute Temperatur, C_i die Konzentration von gelöstem Gas in der Flüssigkeit weit entfernt von der Blase und C_0 die Sättigungskonzentration des Gases in der Flüssigkeit. Die spitzen Klammern bezeichnen eine Zeitmittelung über die Periode T . Insbesondere entscheidet der Term in den großen runden Klammern über Anwachsen (falls > 0) oder Auflösen (falls < 0) der Blase.

2.1.4. Oberflächeninstabilität

Die Form einer Blase kann durch Instabilitäten oder durch Störung der Symmetrie von der Kugelgestalt, wie es vereinfachend für die Blasenoszillationsgleichungen angenommen wurde, abweichen. Dann entstehen Unregelmäßigkeiten der Blasenoberfläche. Diese sind bei Instabilitäten in der Form von Oberflächenmoden und Oberflächenoszillationen zu finden. Bei Symmetriestörungen entstehen oft so genannte Jets (s. u.).

Das Schwingungsverhalten für schwache Oberflächenoszillationen wurde erstmals 1932 von Lamb beschrieben, der die Eigenfrequenzen solcher Oberflächenmoden bestimmte [36]. Experimentell wurden nicht sphärisch schwingende und kollabierende Blasen als erstes 1944 von Kornfeld und Suvorov untersucht [37]. Es gelang ihnen für geringe Wechseldruckamplituden Aufnahmen von Blasen zu machen, die Oberflächenmoden ausbildeten und über viele Zyklen stabil waren. Außerdem konnten sie durch Erhöhung der Wechseldruckamplitude den Übergang von stabil schwingenden Oberflächenmoden hin zu großen (un-)regelmäßigen Oberflächenauslenkungen beobachten, die in der Zerteilung der Blase in eine Vielzahl von kleineren Blasen endete. Plesset beschrieb 1954 als einer der ersten die

Kopplung zwischen Volumen- und Oberflächenmoden [38]. Aus der Beobachtung einer erratischen Translationsbewegung beim Einsetzen von Oberflächenmoden einer sonst lokalen Einzelblase [39, 40] wurde vermutet, dass die Bewegung zumindest teilweise von den Oberflächenmoden angetrieben wird [41–44]. Der umgekehrte Effekt wurde 2002 von Reddy und Szeri [45] numerisch untersucht. Dabei ergab sich, wie erwartet, bei höheren Anregungsdruckamplituden der Blase eine leichtere Störung der sphärischen Stabilität. Bei Anregung der Blase durch eine geringere Frequenz als der Resonanzfrequenz, ergaben sich schon bei geringen Druckamplituden sphärische Instabilitäten. Dies ist durch einen stärkeren Kollaps zu erklären, aus dem höhere Translationsgeschwindigkeiten der Blase hervorgehen. Vor allem die $n = 2$ Mode (prolat/oblate Form) lässt sich leicht durch eine Bewegung der Blase in der Flüssigkeit anregen. Das lässt sich durch die unterschiedlich schnell strömende Flüssigkeit an den verschiedenen Stellen der Blase erklären. Die Flüssigkeit muss am Äquator der Blase schneller fließen als an den Polen (Staupunkte), wodurch sich ein geringerer Druck am Äquator und ein höherer Druck an den Polen ergibt. Dieses Ungleichgewicht führt zu einer ungleichmäßigen Verformung der Blasenwand und bedeutet eine Einschnürung an den Polen und eine Verbreiterung am Äquator bei der Bewegung der Blase durch die Flüssigkeit. Diese Oberflächenform ist am stärksten bei der $n = 2$ Mode ausgeprägt. Andere Moden können ebenfalls aktiv sein. Weiterhin fanden die Autoren heraus, dass höhere Moden nur geringe Einflüsse auf die niedrigeren Moden ausüben.

Um Oberflächenmoden mathematisch beschreiben zu können, wird die Oberfläche der Blase in Kugelkoordinaten dargestellt. Zu einem gemittelten zeitabhängigem Radiusterm $R(t)$ werden Kugelflächenfunktionen Y_n^m addiert, die die Oberflächenmoden beschreiben: $r(t, \xi, \zeta) = R(t) + \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n a_n^m Y_n^m(\xi, \zeta)$, wobei die a_n^m die Amplituden der Moden darstellen. Dabei bezeichnet n den Grad der Oberflächenmode und m die Ordnung. Bei einer linearen Betrachtung ist die Dynamik unabhängig von m . Es ist natürlich möglich, dass mehrere Moden gleichzeitig angeregt sind. Im Allgemeinen koppeln alle Moden untereinander nach bestimmten Regeln [12, 46].

Eine Kombination der Gleichungen von Reddy und Szeri [45] sowie von Holzfuss [47] (siehe auch [48, 49]) für die Berechnung der Amplitude der Kugelflächenfunktion a_n liegt in der folgenden Gleichung vor, wobei Holzfuss eine Beschreibung für eine nicht translatierende Blase unter Berücksichtigung der Viskosität der Flüssigkeit vornimmt und Reddy und Szeri die Viskosität vernachlässigen, aber die Blasentranslation mit einbeziehen. Die Kombination von beiden Gleichungen ergibt:

$$\begin{aligned}
& \ddot{a}_n + \left(3\frac{\dot{R}}{R} + 2(n+2)(2n+1)\frac{\eta}{\rho R^2} \right) \dot{a}_n \\
& + (n-1) \left(-\frac{\ddot{R}}{R} + \frac{(n+1)(n+2)\sigma}{\rho R^3} - \frac{9n(n+1)^2 U^2}{2(2n-1)(2n+3)R^2} + (2n+4)\frac{\eta\dot{R}}{\rho R^3} \right) a_n \\
& = -\frac{9U^2}{4R},
\end{aligned} \tag{2.22}$$

wobei gilt $n = 2$ (für höhere Moden ergeben sich weitere Terme der Ordnung a_{n-1} , \dot{a}_{n-1} und a_{n-2}). Es gilt $U = U_a - \dot{R}$ und bezeichnet die Relativgeschwindigkeit von Blasenwand und Flüssigkeit, wobei U_a die Geschwindigkeit der Flüssigkeit ist.

Es gibt im Wesentlichen zwei Formen der Instabilität, die Rayleigh-Taylor (RT) [50, 51] und die Parametrische Instabilität, wobei die letzt genannte in planarer Geometrie auch durch das Auftreten von Faradaywellen bekannt ist [52, 53]. Die RT Instabilität wirkt nur auf sehr kurzen Zeitskalen der Größenordnung des Blasenkollapses. Sie wirkt nur, wenn die Beschleunigung der Blasenwand \ddot{R} positiv ist, so dass das leichtere Gas in die schwerere Flüssigkeit beschleunigt wird (also nur, wenn sich die Blase zusammen zieht). Eine Oberfläche, die sich ausdehnt, neigt dazu Irregularitäten der Oberfläche zu reduzieren. Eine Oberfläche, die sich zusammenzieht, verbeult sich. Beim Aufschwingen der Blase wird demnach die Oberfläche geglättet, und beim Kollaps können kleine Störungen von $a_n < R$ entstehen, die exponentiell vergrößert werden und zu einer Zerteilung der Blase führen können. Eine wichtige Größe ist dabei der Betrag des Verhältnisses von $a_n(t)/R(t)$. Überschreitet das Verhältnis den Wert 1, so wird die Blase spätestens durch die Oberflächenmoden zerteilt.

In dieser Arbeit wurde für Stabilitätsbetrachtungen die RT Instabilität berechnet, indem zu Beginn der Rechnung eine kleine Störung von $a_n = 1$ nm angenommen wurde und solche Blasen als instabil angesehen wurden, bei denen das Verhältnis $a_n(t)/R(t)$ den Wert eins überschritten hat.

Die Parametrische Instabilität wirkt auf relativ langen Zeitskalen (Anregungsperiode T) [54]. Falls nichtsphärische Störungen der Blasenoberfläche ein Nettowachstum über eine Anregungsperiode zeigen, werden sie die stabile Schwingung nach vielen Zyklen überwiegen. Im relevanten Parameterbereich der Parametrischen Instabilität ist der Radius $R(t)$ (ebenso \dot{R} und \ddot{R}) periodisch in der Zeit mit der Anregungsperiode. Instabilitäten erscheinen immer dann, wenn

der Betrag des größten Eigenwerts der so genannten Floquet Übergangsmatrix F_n größer als eins ist (Floquet Theorie, siehe z. B. [55]). Die Floquet Übergangsmatrix ist definiert als die Ausbreitungsfunktion des Störungsvektors über eine Periode:

$$\begin{pmatrix} a_n(t+T) \\ \dot{a}(t+T) \end{pmatrix} = F_n \begin{pmatrix} a_n(t) \\ \dot{a}(t) \end{pmatrix}. \quad (2.23)$$

In dieser Arbeit wird lediglich die RT-Instabilität betrachtet.

Jetbildung

Kollabieren Blasen in der Nähe einer harten Wand, so können sich Flüssigkeitsjets durch die Blase hindurch und in Richtung der Blasenwand bilden (bei „weichen“ Wänden oder freien Grenzflächen auch von der Wand weg, Übersichten dazu siehe [56, 57]). Die Entstehung eines Jets passiert dabei auf Grund der verlorenen Symmetrie der Umgebung, die ein gleichmäßiges Nachströmen der Flüssigkeit beim Kollaps verhindert. Für laserinduzierte Blasen in der Nähe einer festen Wand gibt es eine Vielzahl an experimentellen Berichten (siehe z. B. [58–63]) und für das Kollapsverhalten numerische Simulationen (siehe z. B. [61, 64–69]). Der Flüssigkeitsjet wird für einen Teil der erosiven Wirkung von Kavitation verantwortlich gemacht [37, 70].

Je nach Abstandparameter Γ ($\Gamma = d/R_{\max}$, wobei R_{\max} der Maximalradius ist und d der Abstand zwischen Blasenmittelpunkt zur Zeit der Blasenentstehung und der Wand) ergeben sich unterschiedliche Erscheinungsformen beim Blasen-kollaps. Bei Werten von $\Gamma > 1$ bis mindestens 2,9 stülpt sich die Blase auf der Wand abgewandten Seite ein und es bildet sich ein Flüssigkeitsjet durch die Blase in Richtung der Wand aus (siehe Abb. 2.3, Zeile 1-3). Dieser trifft auf die gegenüberliegende Blasenwand auf und schiebt sie vor sich her (siehe Abb. 2.4, Zeile 3, letzten drei Bilder und Zeile 4). Auf diese Weise entsteht ein Verwirbelungsring und die Blase nimmt die Form eines Torus an. Im weiteren Verlauf der Kompression wird der Torus instabil und eine Reihe von Stoßwellen wird emittiert [62, 63](siehe Abb. 2.5).

Schwingt die Torus-Blase wieder auf, so ergibt sich bei Werten zwischen $1 < \Gamma \lesssim 3$ ein „Counterjet“, der entgegengesetzt zum Flüssigkeitsjet von der Wand weggerichtet ist (siehe Abb. 2.3, die letzten drei Bilder). Dieser Counterjet ist nicht mit der aufschwingenden Blase verbunden, sondern besteht aus einer Vielzahl an kleinen Blasen [58, 62, 71]. Die Entstehung der Counterjets ist bis heute nicht abschließend geklärt. Eine denkbare Erklärung wäre eine Mikro-Blas-

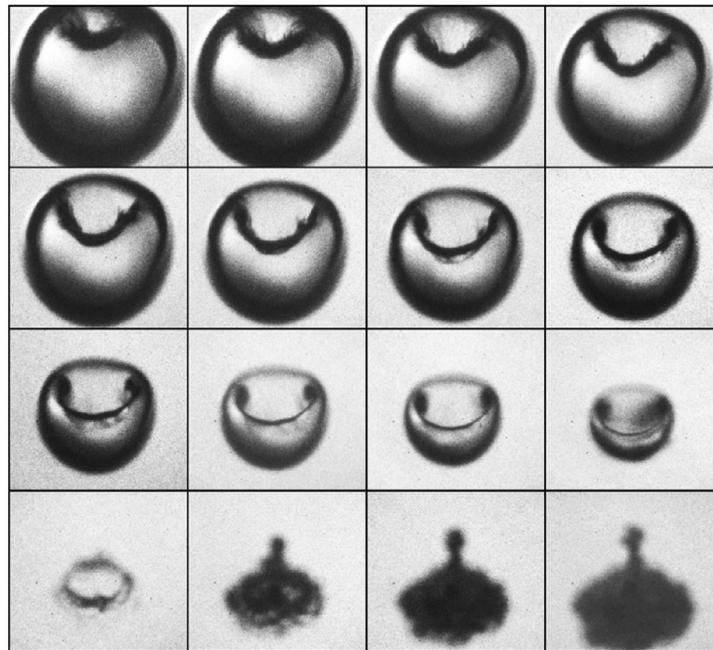


Abbildung 2.3.: Aufnahme einer Blase mit Flüssigkeitsjet durch die Blase und Counterjet betrachtet aus 45° von oben mit $\gamma = 2,6$, einer Belichtungszeit von 200 ns und einem Bildabstand von $1 \mu\text{s}$. Bildabmessungen $1,2 \text{ mm} \times 1,1 \text{ mm}$. Aus [62].

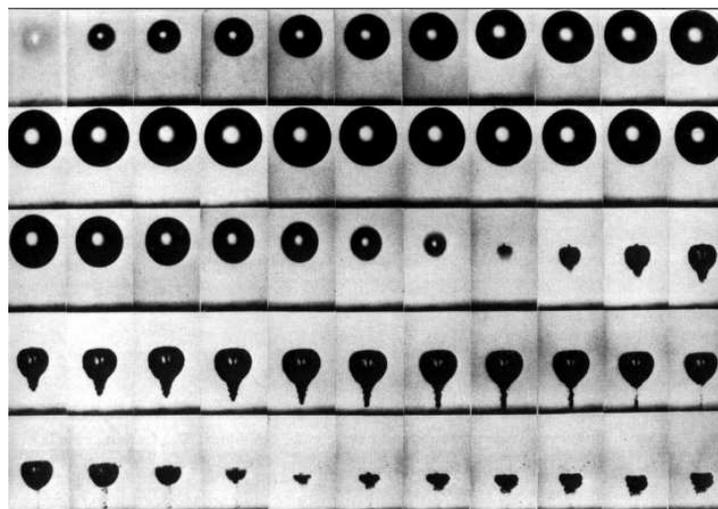


Abbildung 2.4.: Aufnahme der Dynamik einer lasererzeugten Blase mit Maximalradius von 2 mm, $\Gamma = 2,45$ und einer Aufnahmegeschwindigkeit von 75 000 Bildern pro Sekunde. Die Bildbreite beträgt $7,2 \times 4,6 \text{ mm}$. Aus [58].

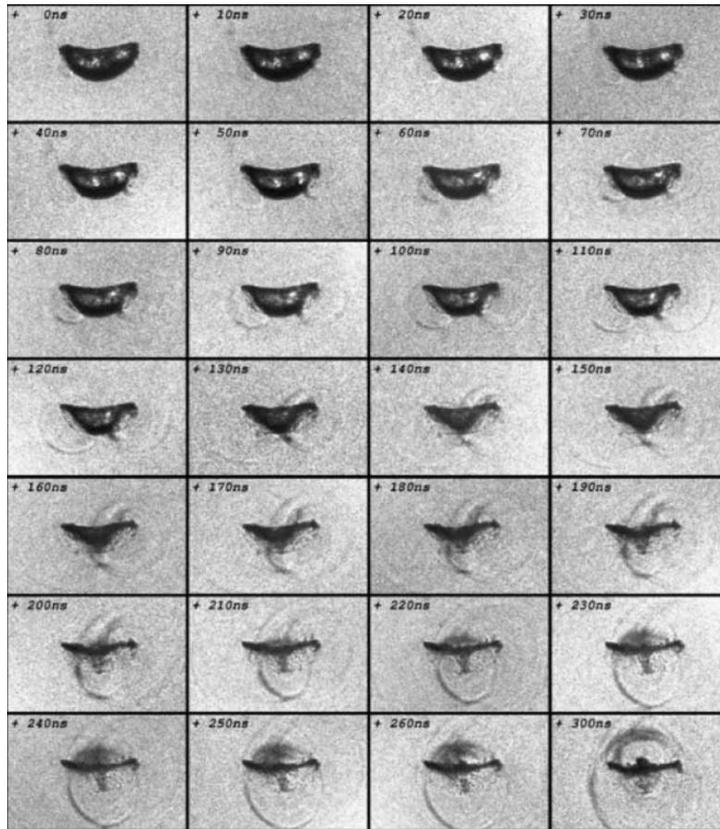


Abbildung 2.5.: Aufnahme der Stoßwellenemission einer lasererzeugten Blase mit Maximalradius von 1,5 mm, $\Gamma = 2,6$ und einer Aufnahmege-
schwindigkeit von 100 Millionen Bildern pro Sekunde. Die Bildbreite be-
trägt $1,3 \times 0,8$ mm. Aus [62].

sennukleation von einer den Flüssigkeitskanal in der Blase hinauflaufenden Stoßwelle. Wenn sich der Flüssigkeitsjet durch die Blase auf die gegenüberliegende Blasenwand zu bewegt und dort auftrifft, geschieht dies meist auf einer kreisförmigen Grenzfläche, wodurch eine torusförmige Stoßwelle emittiert wird. Dabei kann es zur Abspaltung von kleinen Blasen auf der der Wand zugerichteten Seite kommen. Beim Auftreffen des nicht punktförmigen Flüssigkeitsjet wird zwischen ihm und der Blasenwand eine Gastasche eingeschlossen. Die Kompression dieser Gastasche führt zur Entstehung einer weiteren Stoßwelle (siehe Abb. 2.5).

In einigen Fällen kann auch beim zweiten Kollaps ein Counterjet entstehen, der wesentlich breiter als der Counterjet beim ersten Blasenkollaps ist und eine abgeflachte Spitze hat [58] (siehe Abb. 2.4, letzte Zeile 3. bis 7. Bild).

Bei Abstandsparametern von $\Gamma < 1$ berührt die Blase die Wand und der Flüssigkeitsjet trifft direkt auf die Wand auf. Dabei flacht sich die Spitze des Flüs-

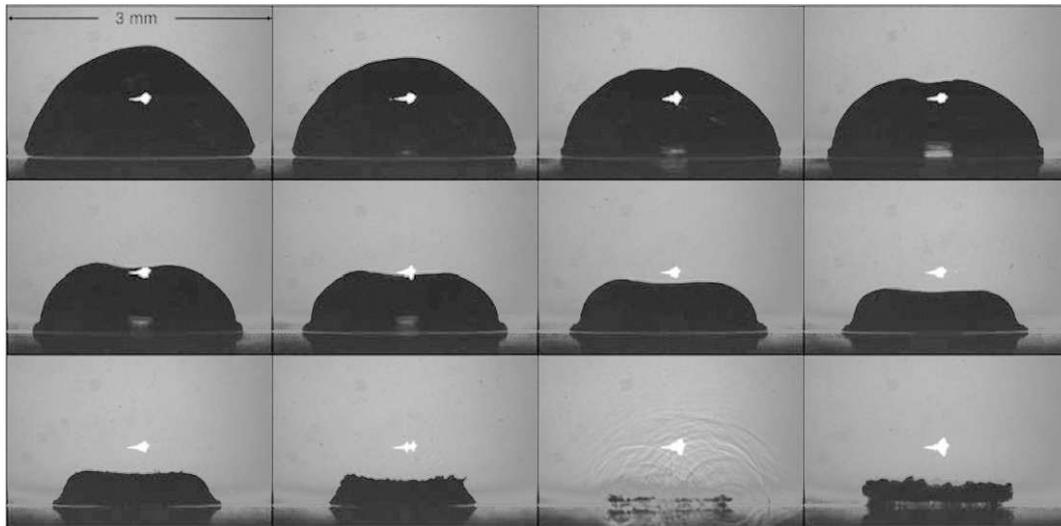


Abbildung 2.6.: Kollaps einer Blase nahe einer festen Grenzfläche mit $\gamma = 0,5$, Bildabstand $5 \mu s$. Aus [72].

sigkeitsjet ab und die Flüssigkeit wird radial über die Wandoberfläche umgelenkt und strömt am Rand der Blase wieder nach oben. Diese Seitwärts- und Aufwärtsbewegung des Flüssigkeitsjets wird „splashing“ genannt [61]. Dabei nimmt die Blase die Form eines Pilzes an oder schnürt Teile der Blase ab, je nach Dicke der Flüssigkeitsschicht zwischen Blase und Wand. Für eine solche „splashende“ Blase wurde von Kröniger et al. [72] in einer experimentellen Arbeit gezeigt, dass die Glattheit der Torusblase auf der Oberfläche durch den auf die Wand auftreffenden Flüssigkeitsjet beeinflusst wird. Sie bildet Unregelmäßigkeiten aus, die auch beim Wiederaufschwingen der Blase nach dem Kollaps weiterhin vorhanden sind. Bei so gearteten Kollapsen liegt die Vermutung nahe, dass Flüssigkeitstropfen ins Innere der Blase gelangen, wodurch die Anregung nicht-flüchtiger Alkali-Metalle erklärt werden kann (siehe Abschnitt 2.3).

Für die Geschwindigkeit des Flüssigkeitsjets gibt es bis heute nur wenige Messungen, da eine Aufnahme des Jets in der Blase schwierig ist. Für einen reduzierten Umgebungsdruck sowie sehr große Blasen (2 cm Maximalradius) konnten Benjamin und Ellis 1966 [73] sowie Gibson 1968 [74] die Jetgeschwindigkeit direkt messen. Extrapoliert für Normaldruck ergaben sich Werte von 50 bzw. 76 m/s. Plesset und Chapman berechneten 1971 die Form und Geschwindigkeit des Jets für eine Blase mit $\Gamma = 1$ sowie für $\Gamma = 2$ [70]. Dabei ergaben sich maximale Geschwindigkeiten für den Flüssigkeitsjet je nach Abstandsparameter von 130 m/s bzw. 170 m/s. Ihre Rechnung endete beim Auftreffen des Flüssigkeitsjet auf die Blasenwand. Die Geschwindigkeit der unteren Blasenwand kann jedoch experi-

mentell gemessen werden. Von Lauterborn und Bolle wurden Geschwindigkeiten von 120 m/s gemessen [58].

Ein Jet beim Kollaps kann ebenso entstehen, wenn die Blase mit einer äußeren Stoßwelle interagiert [68, 75]. Der Jet bildet sich dann in Ausbreitungsrichtung der Stoßwelle aus.

Ebenso können zwei oder mehrere Blasen, die nebeneinander kollabieren, zur Jetbildung angeregt werden. Die Richtung des Jets hängt dabei von der gegebenen Geometrie und dem Zeitpunkt der Blasenentstehung ab [57].

Eine weitere Entstehung von Jets kann durch translatierende Blasen (Blasen im Schallfeld) oder eine Flüssigkeitsströmung verursacht werden. Hierzu gibt es einige experimentelle Beobachtungen [24, 76, 77] sowie numerische Berechnungen [45, 78]. In den Berechnungen wird eine Kopplung der Translation an die Oszillation vorgestellt, die ein Springen im Kollaps hervorruft. Die Bjerknes-Kraft verhindert eine einfache Bewegung der Blase mit der Flüssigkeit. Wächst die Blase, so erhöht sich auch der Betrag der Bjerknes-Kraft, teilweise begründet durch die größere Oberfläche, auf die der Druckgradient wirkt. Da eine große Blase mehr Flüssigkeit wegschieben muss als eine kleine, translatiert die Blase nur langsam bei großen Radien. Während der Aufschwingphase der Blase wächst die virtuelle Masse beträchtlich. Beim Blasen-kollaps ist die Bjerknes-Kraft vernachlässigbar. Da sich der Radius im Kollaps rasch verringert und die virtuelle Masse wegen der viskosen Reibung nur langsam sinkt, erhöht sich die Translationsgeschwindigkeit im Kollaps drastisch. Die Blase springt deshalb im Kollaps in Richtung ihrer Bewegung. Je stärker der Kollaps, desto größer ist die maximal erreichbare Geschwindigkeit.

2.1.5. Numerische Studien für verschiedene Flüssigkeitsparameter

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Beschallung unterschiedlicher Flüssigkeiten bzw. wässriger Lösungen untersucht. Zudem wurden numerische Simulationen für das Verhalten von Blasen in den verschiedenen Flüssigkeiten durchgeführt, um festzustellen, wie stark das Medium die Blasendynamik bei vorgegebenen Blasen-größen beeinflusst. Hierzu wurden Einzelblasen simuliert und die Ergebnisse in Phasendiagrammen dargestellt [24].

Zunächst soll der Einfluss der Oberflächenspannung betrachtet werden. Dazu wurde in der $\hat{P}_a - R_0$ -Ebene der maximale Radius für die Xenon-gesättigten Flüssigkeiten Wasser und 10 mM SDS in Wasser bei einer Anregungsfrequenz von 375 kHz nach dem Einschwingvorgang berechnet. Dabei wurde jeweils eine Blase fest an die Position der maximalen Druckschwankung (Druckbauch) gesetzt

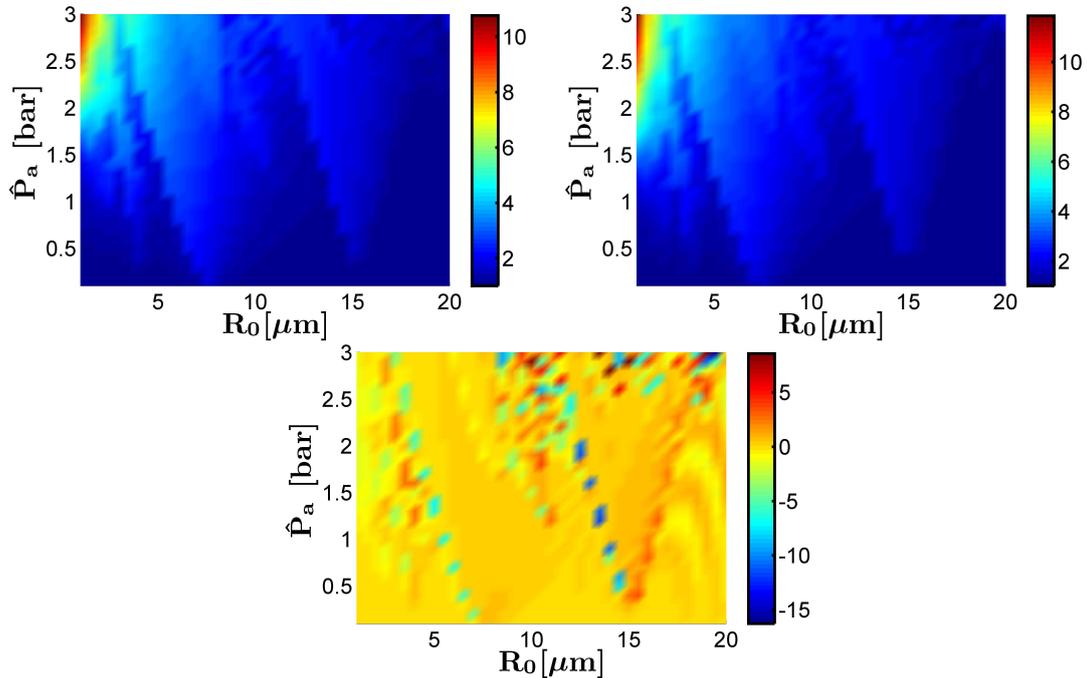


Abbildung 2.7.: Berechnung der maximalen normierten Radien (farbkodiert) über einem Gitter aus vorgegebenem Ruheradius R_0 und Anregungsdruck \hat{P}_a bei einer Frequenz von 375 kHz. Oben links: Wasser. Oben rechts: 10 mM SDS. Unten: Differenz von Wasser und 10 mM SDS farbkodiert in μm .

und für 60 Perioden gerechnet. Für die letzte berechnete Periode wurde der Maximalradius bestimmt. Zur Berechnung wurden die Gleichungen und Parameter aus Anhang A verwendet. Der Unterschied der beiden Flüssigkeiten liegt in einem leichten Dichteunterschied ($\rho_l = 998 \text{ kg/m}^3$ für Wasser und $\rho_l = 1001 \text{ kg/m}^3$ für 10 mM SDS) sowie in einem deutlichen Unterschied der Oberflächenspannung ($\sigma = 0,0725 \text{ N/m}$ für Wasser und $\sigma = 0,038 \text{ N/m}$ für 10 mM SDS).

Das Ergebnis ist in Abb. 2.7 dargestellt. Die oberen beiden Auftragungen zeigen die maximalen normierten Radien für Wasser (links) und wässrige 10 mM SDS-Lösung (rechts). Bei beiden Flüssigkeiten sind scharfe Kanten zu sehen, bei denen sich das Schwingungsverhalten der Blase für eine kleine Erhöhung des Ruheradius oder der Anregungsspannung stark ändert. Der Maximalradius springt an diesen Stellen um $10 \mu\text{m}$. Das sich ergebende Muster in der $\hat{P}_a - R_0$ -Ebene ist für beide Flüssigkeiten annähernd identisch. In der unteren Auftragung ist die Differenz der beiden Flüssigkeiten aufgetragen. Für einen Großteil der Flä-

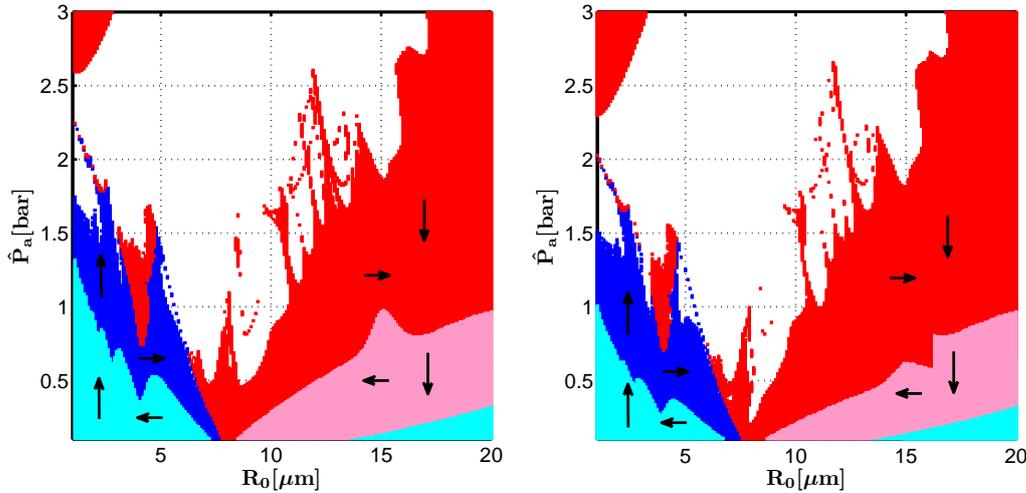


Abbildung 2.8.: Berechnung zum Blasenverhalten über der $\hat{P}_a - R_0$ -Ebene für eine Anregungsfrequenz von 375 kHz (linearer Resonanzradius $8 \mu\text{m}$). Weiße Bereiche bedeuten instabile Blasen, rote/rosane Bereiche bedeuten Anziehung zu den Druckknoten, blaue/cyan-farbige Bereiche Anziehung zu den Druckbäuchen, rote/blau Bereiche bedeuten ein Anwachsen der Blasenradien und rosane/cyan-farbige Bereiche eine Abnahme der Blasenradien. Links: Wasser. Rechts: 10 mM SDS.

che gibt es keinen oder einen nur sehr kleinen Unterschied für den Maximalradius der Blase. Nur an den Sprungstellen zu höheren Radien ergeben sich unterschiedliche Bereiche. Die Maximalradien sind im Extremfall für Wasser bis zu $8,41 \mu\text{m}$ größer bzw. $16,27 \mu\text{m}$ kleiner als bei 10 mM SDS für den gleichen Ruheradius. Bei einer Beschallung der gleichen Blasenpopulation in Wasser oder 10 mM SDS sollte sich demnach kein großer Unterschied im Einzelblasenverhalten ergeben. Wie die Blasen entstehen und welche Blasen in einem Schallfeld vorhanden sind, wird durch diese Berechnung allerdings nicht berücksichtigt. Durch diese Berechnung kann nur gezeigt werden, dass die Oberflächenspannung auf die Blasenoszillation von gleichen Blasenpopulationen keinen bedeutenden Einfluss hat.

Ein Überblick über das Verhalten einzelner Blasen in einem eindimensionalen Stehwellenfeld ist in Abb. 2.8 gezeigt. Für diese Auftragungen wurde über der $\hat{P}_a - R_0$ -Ebene mit den Gleichungen aus Anhang A die Translation und die Oszillation berücksichtigt. Zusätzlich wurde mit Gleichung 2.21 die Diffusion sowie mit Gleichung 2.22 die Stabilität der Blasen berechnet. Dabei wurde für 10 Perioden in einem eindimensionalen Stehwellenfeld gerechnet. Die Blase wurde in Ruhe an die Position $0,01 \lambda$ nahe des Druckbauches gesetzt. Die Auftragung ist farblich kodiert. In weißen Bereichen ist die Blase innerhalb der zehn Perioden zu ei-

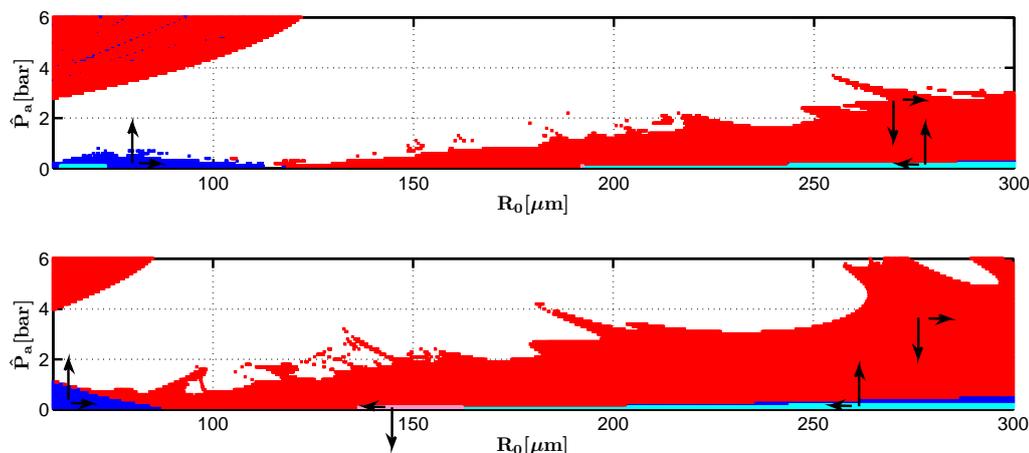


Abbildung 2.9.: Berechnung zum Blasenverhalten über der $\hat{P}_a - R_0$ -Ebene für eine Anregungsfrequenz von 23 kHz (linearer Resonanzradius 130 μm). Weiße Bereiche bedeuten instabile Blasen, rote/rosane Bereiche bedeuten Anziehung zu den Druckknoten, blaue/cyan-farbige Bereiche Anziehung zu den Druckbäuchen, rote/blau Bereiche bedeuten ein Anwachsen der Blasenradien und rosane/cyan-farbige Bereiche eine Abnahme der Blasenradien. Oben: Wasser. Unten: 95%-ige Schwefelsäure.

nem nicht bestimmten Zeitpunkt instabil geworden und schwingt demnach nicht stabil, sondern zerteilt sich in mehrere kleinere Blasen. In roten und rosanen Bereichen war die Position der Blase nach zehn Perioden näher am Druckknoten als zu Beginn der Rechnung. Für blaue und cyan-farbene Bereiche gilt das Gegenteil, nach zehn Perioden war die Position der Blase näher am Druckbauch. Für rote und blaue Bereiche ist der Blasenradius nach zehn Perioden durch Diffusion angestiegen, für rosane und cyan-farbene geschrumpft. Die Farbübergänge markieren daher die Stabilitätsgrenzen der RT-Stabilität bzgl. der Oberflächenmode $n = 2$, Bjerknes-Kraft und gleichgerichteter Diffusion. Für beide Flüssigkeiten ergeben sich wie auch in den Auftragungen der Maximalradien keine großen Unterschiede über einen weiten Parameterbereich.

Als weitere mögliche Einflussfaktoren werden die Viskosität und die Dichte verändert. Dazu wird das Verhalten von Blasen im eindimensionalen Stehwel-lenfeld für DI-Wasser und 95%-ige Schwefelsäure über der $\hat{P}_a - R_0$ -Ebene bei einer Frequenz von 23 kHz berechnet. Der Unterschied zwischen den Flüssigkeiten liegt bei nahezu einer Verdopplung der Dichte ($\rho_1 = 998 \text{ kg/m}^3$ für Wasser, $\rho_1 = 1836 \text{ kg/m}^3$ für Schwefelsäure) sowie einem 26 mal höheren Wert der Viskosität ($\mu = 0,001 \text{ kg/(m}\cdot\text{s)}$ für Wasser, $\mu = 0,026 \text{ kg/(m}\cdot\text{s)}$ für Schwefelsäure). Das

Ergebnis ist in Abb.2.9 dargestellt. Hierbei zeigt sich, dass die Blasen in Schwefelsäure bei höheren Druckamplituden stabiler bleiben als in Wasser und für Ruherradien um $100\ \mu\text{m}$ von den Druckknoten angezogen werden, anstatt von den Druckbäuchen, wie es bei Wasser der Fall ist (linearer Resonanzradius $130\ \mu\text{m}$). Die höhere Viskosität scheint die Blasenoszillation bei höheren Anregungsdrücken zu stabilisieren. Während sich bei Wasser bei etwas niedrigeren Werten ($118\ \mu\text{m}$) als dem Resonanzradius die Bereiche der Anziehung vom Druckbauch, bzw. Druckknoten treffen, ist diese Grenze bei Schwefelsäure bei geringeren Radien zu finden ($87\ \mu\text{m}$). Bei Schwefelsäure werden demnach im Vergleich zu Wasser mehr Blasen zum Druckknoten gezogen, als zum Druckbauch. Weiterhin gibt es für die kleinsten Blasen ($1\text{-}70\ \mu\text{m}$) bei Schwefelsäure eine Stabilisierung auch für Druckamplituden bis 1 bar, die es bei Wasser nicht gibt.

2.2. Vielblasendynamik

Werden nun anstatt einer einzelnen ungestörten Blase mehrere Blasen im Schallfeld betrachtet, so müssen zusätzlich auch die Kräfte der Blasen aufeinander berücksichtigt werden. Dies geschieht durch die sekundäre Bjerknes-Kraft $\mathbf{F}_{\text{Bj}2}$ [12, 23, 24, 79]. Sie beschreibt die Kraft einer Blase „1“ am Ort \mathbf{x}_1 auf eine Blase „2“ am Ort \mathbf{x}_2 :

$$\mathbf{F}_{\text{Bj}2}^{1\rightarrow 2} = -\frac{\rho_1 (\mathbf{x}_2 - \mathbf{x}_1)}{4\pi |\mathbf{x}_2 - \mathbf{x}_1|^3} \left\langle \dot{V}_1 \dot{V}_2 \right\rangle_T. \quad (2.24)$$

Eine wichtige Erkenntnis aus der sekundären Bjerknes-Kraft ist die quadratische Abnahme mit dem Blasenabstand sowie eine anziehende Wirkung für annähernd gleich große Blasen. Für nichtlinear oszillierende und oberflächeninstabile Blasen ergeben sich gewisse Komplikationen.

Die stillschweigende Annahme, dass die Blasen das Schallfeld nicht beeinflussen wird bei der Betrachtung der sekundären Bjerknes-Kraft eigentlich verletzt, da der an den Blasen gestreute Schall betrachtet wird. Dies kann zunächst bei geringen Blasendichten durch das schnelle Abklingen des an den Blasen gestreuten Schalls gerechtfertigt werden.

Die Bjerkneskräfte bewirken eine räumliche Verteilung der Blasen. Durch die primäre Bjerknes-Kraft werden die Blasen in stehenden Wellenfeldern nach Größe sortiert. In den Druckbäuchen sammeln sich kleine Blasen und in den Druckknoten die großen Entgasungsblasen. Aufgrund der sekundären Bjerknes-Kraft bilden die Blasen untereinander Strukturen aus. Weiterhin können akustisch harte Ob-

jekte Blasen anziehen, da an ihnen die Kräfte reflektiert werden und wie virtuelle Spiegelblasen wirken.

Um die Oszillations- und Translationsgleichungen mehrerer Blasen aufstellen zu können, muss die Wechselwirkung der Blasen untereinander berücksichtigt werden. Gleichungssysteme dazu wurden zum Beispiel von Ilinskii et al. [25] sowie von Mettin et al. [80–83] (als Partikelmodell bezeichnet) aufgestellt.

2.3. Sonolumineszenz

Als Sonolumineszenz (SL, zu deutsch „Schallleuchten“) wird die Lichtemission durch (akustische) Kavitation bezeichnet. Als Erstes wurde SL 1933 von Marinenco und Trillat beobachtet, die entdeckten, dass sich Fotoplatten schwärzen, wenn sie in ein mit intensivem Ultraschall beschalltes Wasserbecken eingebracht werden [84]. Ihre Erklärung, dass die Schwärzung durch eine direkte Wechselwirkung zwischen Fotoplatten und Ultraschall entsteht, erwies sich als falsch. Ein Jahr später fanden Frenzel und Schultes heraus, dass die Lichtemission durch die Kavitationsblasen verursacht wurde [85].

Der zugrunde liegende Mechanismus bei der Lichtentstehung ist bis heute nicht abschließend geklärt. Es gibt mehrere Theorien, von denen keine lückenlos mit den experimentellen Ergebnissen in Einklang gebracht werden konnte. Die im Moment als wahrscheinlichst angesehene Erklärung ist die so genannte „Hot-Spot“-Theorie. Wie genau der Hot-Spot aussieht, ist unklar. Eine Möglichkeit ist eine weitgehend homogene Erhitzung des Inneren der Blase, wobei die Emission über Schwarzkörperstrahlung entstehen würde [86]. Eine Alternative ist, dass das Innere der Blase inhomogen ist und sich von der inwärts gerichteten Blasenwandbewegung eine Stoßwelle, bzw. Kompressionswelle in Richtung des Blasen-zentrums bildet, die das Blaseninnere noch weiter komprimiert und so ein Plasma erzeugt [87–89]. In diesem Fall würde Bremsstrahlung entstehen [54, 90, 91]. Eine dritte Möglichkeit ist das Auftreten von chemischen Reaktionen der Blasenbestandteile aufgrund der hohen Temperaturen und Drücke, so dass das Licht nach Dissoziation durch Rekombination entsteht [92].

Bei der SL wird zwischen Einzelblasensonolumineszenz (single bubble sonoluminescence, SBSL), die von einer einzigen im Schallfeld gefangenen Blase ausgeht und Vielblasensonolumineszenz (multi bubble sonoluminescence, MBSL), bei der mehrere Blasen oder eine Struktur Licht emittieren, unterschieden. Die am häufigsten verwendete Möglichkeit eine Blase im Schallfeld zu fangen, ist eine Geometrie und Frequenz zu wählen, bei der nur ein Druckbauch in der Mitte der Küvette entsteht [93, 94]. Für die geringste Wechseldruckamplitude, bei der eine

Blase gefangen werden kann, schwingt die Blase sphärisch und löst sich wegen der Oberflächenspannung langsam auf, sofern die Flüssigkeit vorher entgast wurde. Bei Erhöhung der Wechseldruckamplitude wächst die Blase durch gleichgerichtete Diffusion [95]. In den meisten Fällen bewegt sich die Blase um ihre Ruhelage, jettet, führt Oberflächenoszillationen aus und zerbricht womöglich sogar in eine Vielzahl von kleinen Blasen, die sich immer wieder neu zusammenschließen und sich beim nächsten Kollaps wieder zerteilen. Solche Blasen emittieren kein Licht [96]. Bei weiterer Erhöhung der Wechseldruckamplitude wird die Region der stabilen SBSL erreicht. Das Blasenvolumen schrumpft plötzlich und die Blase beginnt Licht zu emittieren, wobei die Blase stationär wird [97, 98]. Dieser Übergang ist fließend und entsteht durch eine stärker werdende Blasenoszillation. Je heftiger die Blase kollabiert, desto heißer wird sie im Kollaps. Ab einem bestimmten Punkt reicht die Temperatur aus, um die meisten Bestandteile der Blase (O_2 , N_2) miteinander oder mit Wasserdampf zur chemischen Reaktion zu bringen und sie sich in der Flüssigkeit lösen. Wenn die Blase vorher aus Luft bestanden hat, schrumpft sie, bis nur noch Argon in der Blase zurück bleibt und Licht emittiert wird. Durch den fließenden Übergang ist es möglich, auch in Wasser bei einer sich erratisch um die Ruhelage bewegenden Blase SL zu erhalten, was als m-SBSL (moving-SBSL) bezeichnet wird [71]. Bei Schwefelsäure bewegt sich die Blase auf einer Ellipsenbahn [99]. Bei weiterer Erhöhung der Wechseldruckamplitude wird kein Licht mehr emittiert und die Blase kollabiert so heftig, dass sich die Blase selbst zerstört.

Bei der SBSL können die Eigenschaften der Lichtemission gut untersucht werden, da Reproduzierbarkeit und eine gute Beobachtbarkeit gegeben sind. So konnten u. a. die Pulsdauern von SBSL weitreichend untersucht werden. Sie hängen sensitiv von den experimentellen Parametern (Umgebungstemperatur und -druck, Druckamplitude sowie Art und Menge des gelösten Gases in der Flüssigkeit) ab und erreichen in Wasser Pulsdauern zwischen 30 bis über 200 ps [100–102]. Die Pulse entstehen nur zum Zeitpunkt des minimalen Radius. Als grobes Kriterium für das Auftreten der SL wird bei der Oszillation das Verhältnis von Ruheradius zu Maximalradius benutzt. Wird in Wasser ein Wert von ungefähr 10 erreicht, so tritt SL auf [103].

Bei den gemessenen Spektren der SL ergeben sich Unterschiede für SBSL und MBSL. Bei der SBSL werden deutlich höhere mittlere, an Schwarzkörperstrahlung angefüttete Temperaturen erreicht ($\approx 10000 - 50000$ K [104–106]) als bei der MBSL (2000–5000 K [107]). Dabei ist es jedoch wichtig zu beachten, dass die hohen Temperaturen der SBSL nur entstehen, wenn die Blase stationär bleibt. Bewegt sie sich erratisch um eine Nulllage (m-SBSL), so ist die maximal erreichbare Temperatur niedriger und es können, wie bei der MBSL, Emissionsbanden

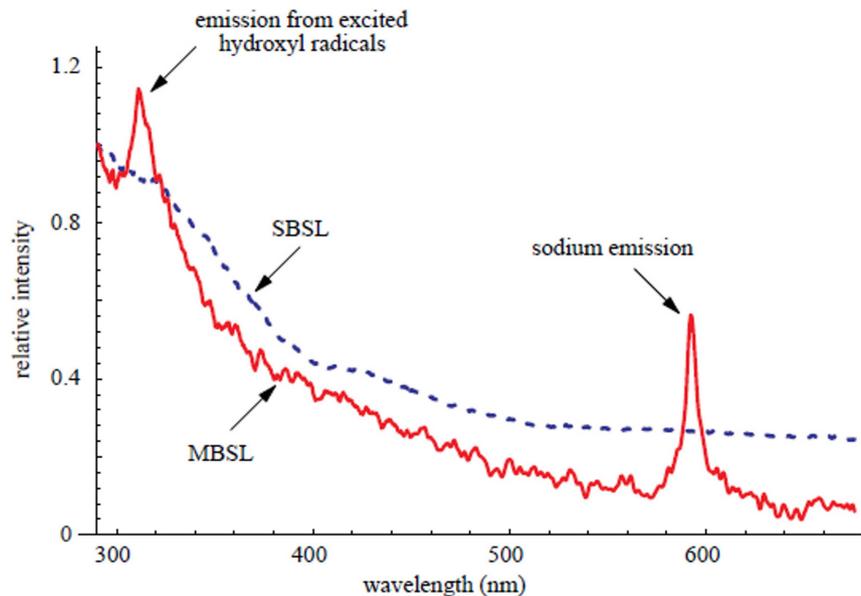


Abbildung 2.10.: Auftragung der Spektren für SBSL und MBSL von beschallter 0,1 M wässriger NaCl-Lösung. Die Spektren wurden bei 290 nm normiert. Aus [98].

auftreten [108]. Die Kollapstemperatur wird offenbar durch die Sphärizität des Kollaps bestimmt, der bei der SBSL gegeben ist, bei der m-SBSL und der MBSL im Allgemeinen nicht [109]. Bei MBSL und m-SBSL kommt es offenbar häufig zum asphärischen Kollaps, wodurch sich eine schlechtere Energiefokussierung und damit niedrigere Endtemperatur ergibt. Durch Oberflächenmoden, Jetten sowie das Zerteilen in viele kleine Blasen, mischen sich außerdem vermutlich Tröpfchen der Flüssigkeit in das Innere der Blase und können dort angeregt werden. Dadurch wird zusätzlich Energie verbraucht, was zu einer niedrigeren Endtemperatur gegenüber der SBSL führt. Gleichzeitig wird Linien- und Bandemission von nicht-flüchtigen Substanzen ermöglicht. Ein Beispiel für Spektren von MBSL und SBSL ist in Abb. 2.10 gezeigt. Beschallt wurde hier 0,1 M NaCl in Wasser. Für SBSL ist ein glattes Kontinuum deutlicher zu erkennen. Bei MBSL ist die Natrium-Linie um 590 nm sowie ein Peak bei 310 nm zu sehen, der wahrscheinlich auf die Rekombination von Hydroxyl-Radikalen zurückzuführen ist [98].

Der Mechanismus der Anregung nicht flüchtiger Alkalimetall-Ionen ist bis heute nicht vollständig verstanden. Veröffentlichungen darüber gibt es für MBSL ([98, 110–114]) und m-SBSL [99]. Zwei mögliche Mechanismen werden diskutiert (siehe Abb. 2.11): Eine Möglichkeit ist das „heated-shell“-Modell. Dabei werden

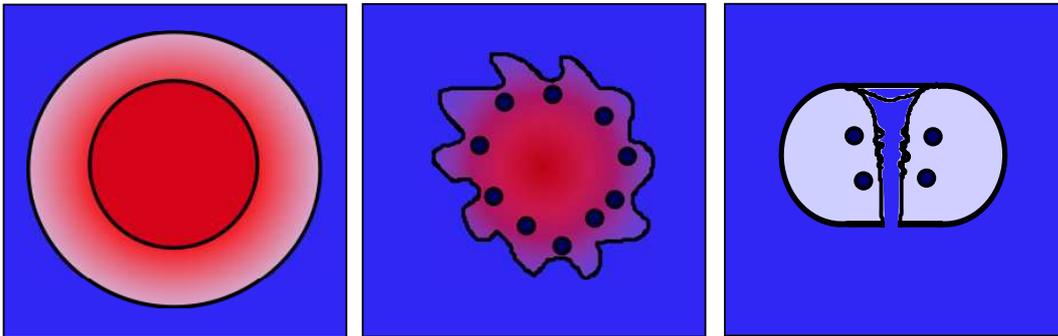


Abbildung 2.11.: Skizze zu den verschiedenen Mechanismen der Anregung von nicht flüchtigen Molekülen. Links: heated-shell-Modell. Mitte und rechts: droplet-injection-Modell.

die Alkali-Kationen an der Blasenwand reduziert, erhitzt und angeregt. Eine Alternative dazu beschreibt das „droplet-injektion“-Modell [114]. Dabei werden sehr kleine Flüssigkeitstropfen durch einen noch nicht geklärten Mechanismus in die Blase gebracht. Ein von Xu et al. [114] vorgeschlagener Mechanismus diskutiert Oberflächenmoden der Blase als Quelle der Tropfen. Eine Alternative ist durch eine jettende Blase gegeben. Ist das nicht flüchtige Alkali-Kation in die Gasphase der Blase eingedrungen, so kann ein angeregtes neutrales Atom entstehen, das dann durch Lichtemission in den Grundzustand zurück fällt.

Die Lichtintensität beim Blasenkollaps kann durch mehrere Faktoren beeinflusst werden [115]. Eine Möglichkeit, die Lichtemission zu verstärken, besteht in der Verringerung der Temperatur der Flüssigkeit [116]. Weiterhin kann auch der statische Druck erhöht werden [117]. Auch der Inhalt der Blase spielt eine entscheidende Rolle: Wird die Flüssigkeit mit Edelgasen gesättigt, so lässt sich die Emission im Vergleich zu Luftsättigung vervielfachen; wird die Flüssigkeit mit gasförmigen Alkoholen gesättigt, so verringert sich die Intensität [22]. Die Erhöhung der SL-Intensität durch Edelgase lässt sich durch die Wärmeleitfähigkeit erklären, die bei Edelgasen niedriger ist als bei Luft. Zudem reagieren Edelgase nicht mit anderen Bestandteilen in der Blase, so dass ein zusätzlicher Energieverbrauch ausgeschlossen werden kann. Eine Änderung des Mediums Wasser hin zu viskoserer Flüssigkeiten mit einem niedrigeren Dampfdruck (z. B. Phosphorsäure [118] oder Schwefelsäure [87, 119–121]) erhöht noch einmal die Lichtausbeute. Andererseits wird sie geschwächt oder sogar ganz unterdrückt bei steigender Konzentration an Methylester und Ketonen in der Flüssigkeit [122].

Eine Übersicht über SL kann z. B. in den Werken von Barber [97], Matula [98], Putterman [91], Brenner [54] und Suslick [123] gefunden werden.

In dieser Arbeit wird im späteren Verlauf insbesondere der Zusammenhang von Blasendynamik bzw. Kollapseeigenschaften und Emissionen nicht flüchtiger Komponenten untersucht.

2.4. Sonochemolumineszenz

Unter Sonochemolumineszenz (SCL) wird das Leuchten, das indirekt/sekundär durch die Kavitation erzeugt wird, verstanden. Beim Blasenkollaps entstehen Hydroxyl-Radikale, die anschließend mit Molekülen in der Flüssigkeit reagieren. Das Licht wird demnach nicht durch den Blasenkollaps, sondern durch eine chemische Reaktion erzeugt. Durch die Reaktion mit dem Hydroxyl-Radikal gehen die Moleküle in der Flüssigkeit in einen angeregten Zustand über, bei dem durch Zurückfallen in den Grundzustand Licht emittiert wird. Die SCL kann später als die SL auftreten, da die Moleküle nicht zwangsläufig instantan reagieren und Licht emittieren, sondern möglicherweise in einem metastabilen Zustand verweilen. Aus dem selbem Grund kann auch die Lichtemission an anderen Orten als der Blasenkollaps stattfinden, da durch die Strömung in der Flüssigkeit oder durch die Bewegung der Blasen das angeregte Molekül zu einem anderen Ort gebracht werden kann, an dem es emittiert.

Ein Beispiel für die SCL ist die Lichtemission von Luminol² (Summenformel: $C_8H_7N_3O_2$).

Der Reaktionsablauf, der wahrscheinlich für die SCL von Luminol verantwortlich ist, ist in Abb. 2.12 gezeigt (aus [125]). Das Luminolmolekül reagiert mit einem OH^\bullet -Radikal und einem $O_2^{\bullet-}$ -Radikal zur Form (III). Aus dieser Form geht es unter Abgabe eines H^+ weiter in ein Zwischenprodukt, das unter Oxidation und N_2 Abgabe in einen angeregten Triplett-Zustand übergeht, der durch „intersystemcrossing“ durch einen verbotenen Übergang in einen angeregten Singulett-Zustand übergeht und aus dem unter Emission eines Photons der Wellenlänge 340 nm in den Grundzustand zurückfällt.

Um Luminol in Wasser lösen zu können, muss NaOH hinzu gegeben werden (oder eine andere Base). Dadurch ist in der Flüssigkeit eine höhere Konzentration an OH^- vorhanden. Durch eine Verunreinigung von Metallkationen im Wasser kann das Wasser zusätzlich in OH^- und OH^\bullet aufgespalten werden, was zu einer Verstärkung der Lumineszenz führt. Diese Verunreinigung ist selbst in kleinen

² Luminol wird auch in der Spurensicherung eingesetzt [124]. Dabei wird eine Lösung aus Luminol in Natronlauge mit einer wässrigen Wasserstoffperoxydlösung kurz vor der Verwendung zusammengebracht und auf die zu untersuchenden Stellen gesprüht. Sind Blutspuren vorhanden, so wirkt das Hämoglobin im Blut als Katalysator und es entsteht ein helles blaues Leuchten. So ist es möglich selbst geringste Spuren von Blut nachzuweisen.

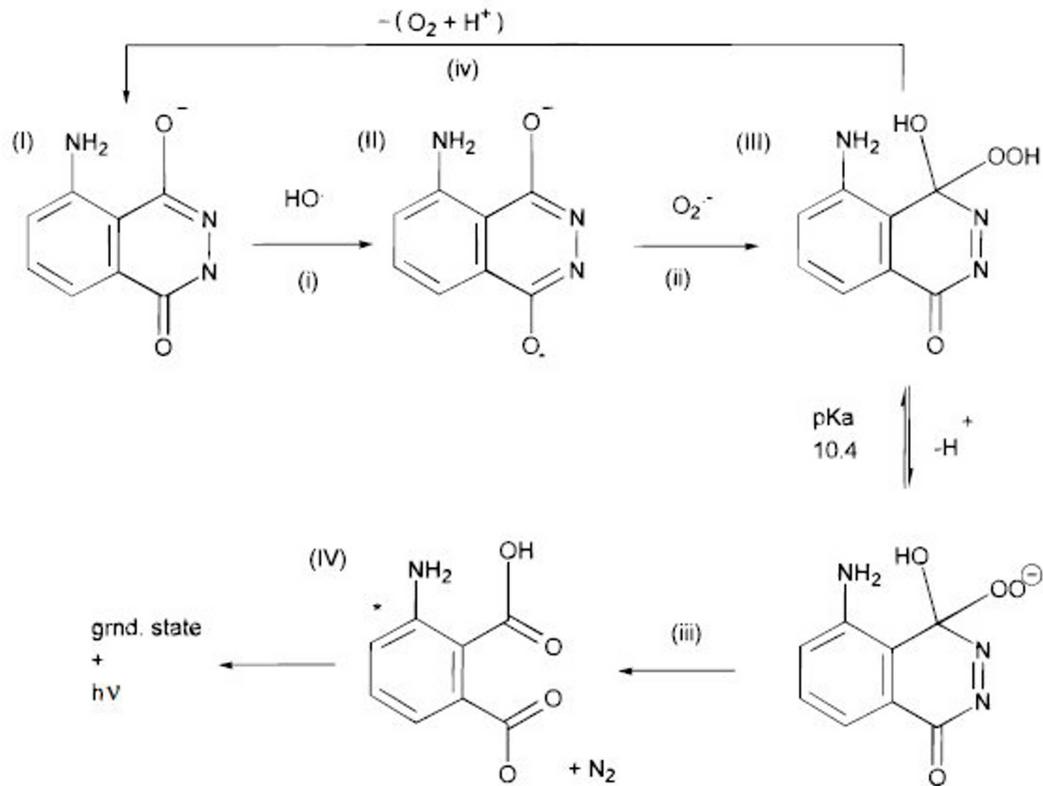


Abbildung 2.12.: Schematischer Reaktionsablauf bei der SCL von Luminol. Aus [125].

Konzentrationen in der Lage, ein Hintergrundleuchten in der Luminollösung zu erzeugen. Dies kann zum Beispiel durch EDTA (Ethyldiamintetraacetat, Summenformel: $\text{C}_{10}\text{H}_{16}\text{N}_2\text{O}_8$) oder Phosphonate (Salze und organische Verbindungen der Phosphonsäure) unterdrückt werden, die Komplexbildner sind und die Metallkationen binden.

Der gesamte Prozess der Anregung und Emission eines Luminolmoleküls dauert maximal einige Millisekunden. Der langsamste Prozess ist dabei der verbotene Übergang vom Singulett- in den Triplett-Zustand, der im Wesentlichen die Zeit zwischen Anregung und Emission bestimmt.

2.5. Acoustic Streaming

Beim „Acoustic Streaming“ handelt es sich um eine durch Nichtlinearitäten und Verluste verursachte Strömung durch Schalleinkopplung in der Flüssigkeit [126–129]. Um Gleichungen für das Acoustic Streaming zu erhalten, müssen die

Terme Erster Ordnung bei den hydrodynamischen Gleichungen für kompressible Flüssigkeiten (Navier-Stokes- und Kontinuitätsgleichung) berücksichtigt werden. Um die Gleichungen für die Geschwindigkeit \mathbf{u} der Flüssigkeit zu bestimmen, wird eine Reihenentwicklung für Druck, Dichte und Geschwindigkeit vorgenommen. Dabei ergibt eine Berücksichtigung der Terme Erster Ordnung eine lineare Schallausbreitung (Helmholtz-Gleichung). Werden nun auch Terme Zweiter Ordnung berücksichtigt und über die Zeit gemittelt, so ergibt sich für die gesuchte akustisch getriebene Gleichströmungsgeschwindigkeit wiederum eine Navier-Stokes-Gleichung mit einem Volumenkraft-Term („Reynolds stress“). Die Volumenkraft hängt von den Geschwindigkeiten Erster Ordnung ab und treibt die Strömung an.

Das Acoustic Streaming entsteht nur bei endlicher Dämpfung. In einer viskosen Flüssigkeit entsteht Reibung und dadurch ergeben sich Verluste. Der Schall, der sich durch die Flüssigkeit bewegt, erfährt kontinuierlich eine leichte Abschwächung. Ebenso entstehen an Berandungen in der viskosen Grenzschicht Verluste. Der Impuls, der auf die Flüssigkeit übergeht, initiiert nun die Strömung. Im Flüssigkeitsvolumen ergibt sich eine Flüssigkeitsströmung, die dem Verlauf von Konvektion ähnelt und Eckart-Streaming genannt wird [126]. An Berandungen und Körpern entstehen ebenfalls Strömungen, die Schlichting-Streaming oder in Resonatoren oder stehenden Wellen Rayleigh-Streaming genannt werden [130].

Kapitel 3

Blasenstrukturen

3.1. Hintergrund/Idee

Eine Vorhersage über die Strukturen zu treffen, die sich in einem bestimmten Schallfeld ergeben, scheitert in den meisten Fällen. Der Grund dafür ist, dass die vielen Faktoren, die das Verhalten bestimmen, oft nicht hinreichend bekannt sind oder sich Parameter durch entstehende Blasen verändern können. Die Bewegung einer einzelnen Blase im Schallfeld wird durch die Primäre Bjerknes-Kraft bestimmt. Sobald mehrere Blasen vorhanden sind, gibt es eine weitere Wechselwirkungskraft unter den Blasen, die Sekundäre Bjerknes-Kraft. Zusätzlich kann das Schallfeld durch die Blasen abgeschirmt werden und sich so verändern, was wiederum Einfluss auf die Blasen hat. Daraus ergibt sich ein zeitlich variables Schallfeld. Einen weiteren Einfluss auf die Struktur hat auch die Blasenentstehung, die im Allgemeinen statistisch ist.

All dies erschwert die zuverlässige Vorhersagbarkeit der Blasenstrukturen, doch ein Verständnis für die grundlegenden strukturerzeugenden Kräfte ist wichtig für viele Anwendungen. Zum Beispiel sollte bei der Verwendung von Kavitation zur Reinigung - gerade bei filigranen Strukturen - auf der zu reinigenden Probe vorher bekannt sein, wie stark der Blasenkollaps maximal werden kann, um Zerstörungsfreiheit zu gewährleisten.

Ein weiteres Problem ist die Beobachtbarkeit von Strukturen bei höheren Frequenzen (mehrere MHz), da die Radien der aktiven Blasen reziprok mit der Frequenz abnehmen. Dieses Problem ließe sich umgehen, wenn Kavitationsstrukturen mit der Frequenz skalieren. So könnten die Eigenschaften und das Verhalten der Strukturen bei niedrigen Frequenzen einfacher untersucht werden und ließen sich dann für die höheren Frequenzen übernehmen bzw. extrapolieren.

Im folgenden Abschnitt wird zunächst auf die Skalierbarkeit einer speziellen Struktur eingegangen und anschließend ein Fall bei einer bestimmten Frequenz genauer untersucht, die diese spezielle Struktur in ähnlicher Form beinhaltet.

3.2. Entstehung

Die im folgenden als „Miller-Struktur“ bezeichnete Kavitationsstruktur wurde erstmals 1967 von Miller bei einer Frequenz von 1 MHz beobachtet [131, 132]. Bei dieser Struktur sind ungefähr gleich große Blasen wie Perlen auf einer Schnur äquidistant in einer Zone minimalen Anregungsdrucks aufgereiht. Diese Aufreihung kann in einer geraden oder gebogenen Form auftreten. Die Blasen führen meistens nur leichte Volumenzillationen aus und kreisen radial oder elliptisch um die Achse ihrer Aufreihung. Der Orbitradius hängt dabei von der Größe des Druckgradienten in der Blasennähe ab. Je größer der Druckgradient, desto kleiner wird der Orbitradius, bis zu einem kritischen Druck, bei dem die Blasen sich fast nicht mehr bewegen und die Struktur instabil wird und sich auflöst. Je kleiner der Druckgradient, desto größer wird der Orbitradius und desto weniger Blasen befinden sich in der Struktur. Bleibt bei einer weiteren Verringerung des Druckgradienten nur noch eine Blase übrig, so hat diese einen sehr großen Orbitradius. Bei weiterer Verringerung des Druckgradienten wird dieser Radius so groß, dass die Blase dem Feld entkommt. Oft treten in den Blasenketten einzelne deutlich größere Blasen auf, die keine Volumenzillation ausführen. Der Abstand der anderen Blasen ändert sich durch die großen Blasen nicht. Die Kette wird als Ganzes von der großen Blase angezogen, und über einen längeren Zeitraum vereinigen sich nach und nach die kleineren Blasen auf der Kette mit der großen Blase.

Auftreten kann diese Struktur in allen Stehwellenfeldern mit ausreichender Gassättigung, da sie im Wesentlichen aus einem Entgasungsvorgang der Flüssigkeit entsteht: Die kleinen Blasen, die im Druckbauch heftig kollabieren wachsen durch Zusammenschlüsse von mehreren Blasen abrupt bzw. durch gleichgerichtete Diffusion langsam an. Sobald sie den Resonanzradius überschreiten oder bei höheren Anregungsdrücken einen geringeren Schwellwert aufweisen [28], werden sie von den Druckbäuchen abgestoßen und von den Druckknoten angezogen. Diese sind im dreidimensionalen Raum als ebene oder leicht gekrümmte Flächen zu erwarten. Auf diesen Flächen können die Blasen in einer geraden Linie oder auf einer gebogenen Kurve erscheinen. Sobald sich zwei oder mehrere Blasen annähern, entsteht eine bis jetzt noch nicht hinreichend geklärte Kraftwirkung, die die Blasen über längere Zeit einen frequenzabhängigen endlichen Abstand auf der minimalen Druckfläche halten lässt. Aus linearer Theorie wäre ein Zusammengehen der Blasen zu erwarten [12]. Aus Hochgeschwindigkeitsaufnahmen geht hervor, dass benachbarte Blasen gegenphasig oszillieren. Über einen längeren Zeitraum hinweg ist zu beobachten, dass es auf der Blasenkette einen Punkt gibt, an dem eine größere Blase entsteht, in diesem Fall tatsächlich durch Zusammenschlüsse

der Blasen auf der Linie. Von dieser Blase wird die gesamte Kette angezogen und nach und nach schließen sich die einzelnen Blasen mit der großen Blase zusammen. Erreicht die Blase einen kritischen Radius, bei dem die akustischen Kräfte nicht mehr die Auftriebskraft überwiegen, steigt die Blase auf, stoppt gegebenenfalls in einer anderen Fläche minimalen Drucks näher an der Wasseroberfläche noch einmal für kurze Zeit, steigt dann weiter auf und verschwindet aus der Flüssigkeit. Auf diese Weise wird die Flüssigkeit langsam entgast.

3.3. Miller-Struktur bei verschiedenen Frequenzen

In einem großen Becken (siehe Anhang C.2) wird die Miller-Struktur bei verschiedenen Frequenzen beobachtet. Für die Frequenzen oberhalb von 200 kHz wird ein halb eingetauchter Wandlerblock im selben Becken benutzt (siehe Anhang C.3). Das Becken wird mit Leitungswasser gefüllt und begast. Die Begasung erfolgt dabei über Wasser aus der Leitung, das über einen Schlauch, mit einem bis auf ein kleines Loch verschlossenem Endstück, in das Becken geleitet wird. Durch den starken Druckabfall am Loch entstehen viele kleine Blasen, die nach kurzer Zeit das gesamte Becken füllen. Nach Einschalten des Ultraschalls verschwinden die kleinen Gasblasen sofort und es bilden sich im Becken willkürlich verteilt, aber immer horizontal orientiert, kurze Miller-Linien in den Bereichen minimalen Drucks aus. Mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (Fastcam APX RS, Photron) und einem Fernfeldmikroskop (K2, Infinity) werden die Strukturen aufgenommen. Als Beleuchtung dient ein Diaprojektor, der in einer Linie mit Kamera und Mikroskop aufgestellt wird.

3.3.1. Hochgeschwindigkeitsaufnahmen

Eine Übersicht für die verschiedenen Frequenzen, in denen die Miller Struktur beobachtet werden kann, ist in Abb. 3.1 gezeigt. Für den beobachteten Frequenzbereich von 40 kHz bis 800 kHz sind die Strukturen ähnlich. Für alle Frequenzen sind mehrere Blasen auf einer Linie zu sehen. Da die Blasenlinien nicht immer genau im rechten Winkel zur Beobachtung ausgerichtet sind und die Blasen sich kreisförmig um ihre Linie bewegen, ist nicht auf allen Bildern die Linie, auf der sie sich befinden, deutlich zu erkennen. Bei einigen Frequenzen ist auch die größere Entgasungsblase zu sehen, zu welcher sich die Blasenketten hin bewegen. Für 40 kHz kann beobachtet werden, dass die Blasen leichte Volumenzillationen ausführen und benachbarte Blasen gegenphasig schwingen. Außerdem ist der

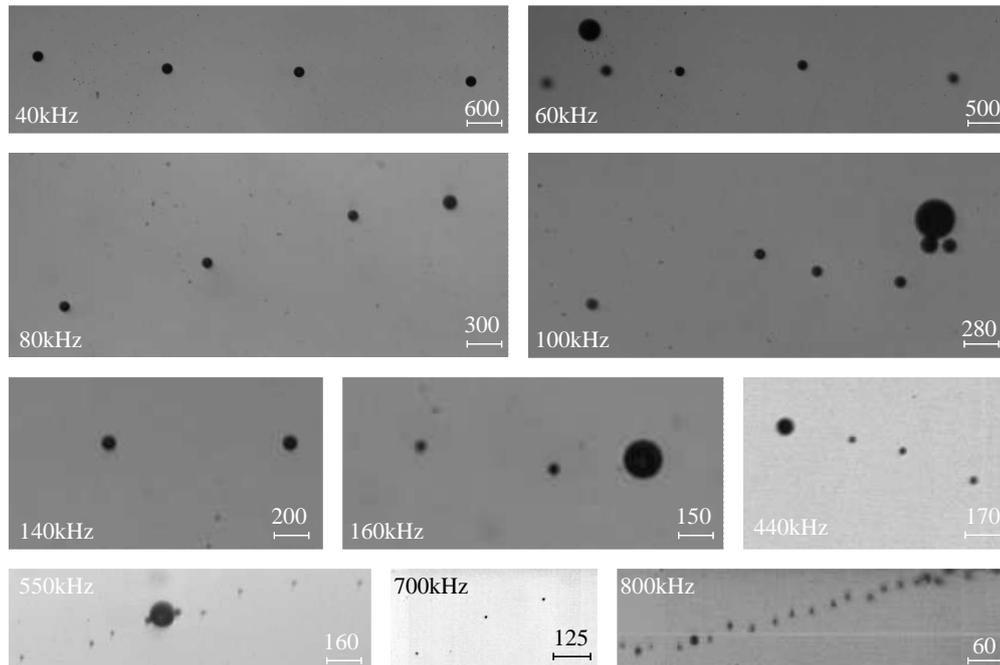


Abbildung 3.1.: Übersicht über die „Miller“-Blasenstruktur bei verschiedenen Frequenzen. Die Maßstäbe im Bild sind jeweils in μm angegeben.

Orbit der übernächsten Blasen immer gleich: In Seitenansicht bewegt sich jede zweite Blase nach oben, wenn sich die anderen nach unten bewegen und umgekehrt. Fängt eine Blase plötzlich an Oberflächenmoden auszubilden sowie kleine Blasen abzuschneiden und wieder einzusammeln, so werden benachbarte Blasen beeinflusst, auch Oberflächenmoden auszubilden. Die Bewegungsform der Blasen wird deutlich stärker, die Auf- und Abbewegung deutlich größer und die Symmetrie der Bewegung bleibt nicht immer erhalten, wenn Oberflächenmoden angeregt sind.

Aus den Hochgeschwindigkeitsaufnahmen können jeweils die beobachtbaren Radien der Blasen sowie die Abstände der Blasen untereinander bestimmt werden. Eine Auftragung dieser Werte gegen die Frequenz ist in Abb. 3.2 gezeigt. Für die Blasenradien wird der reziproke Radius aufgetragen und als Vergleich der reziproke lineare Resonanzradius (Berechnung siehe Gleichung 2.12). Für den Frequenzbereich bis 200 kHz ist die gemessene Kurve annähernd linear und folgt dem Resonanzradius mit jeweils etwas größeren Radiuswerten gut. Für höhere Frequenzen ergeben sich in der Auftragung deutlich größere Abstände zum linearen Resonanzradius, was zu einer Erhöhung des gemessenen Radius im Ver-

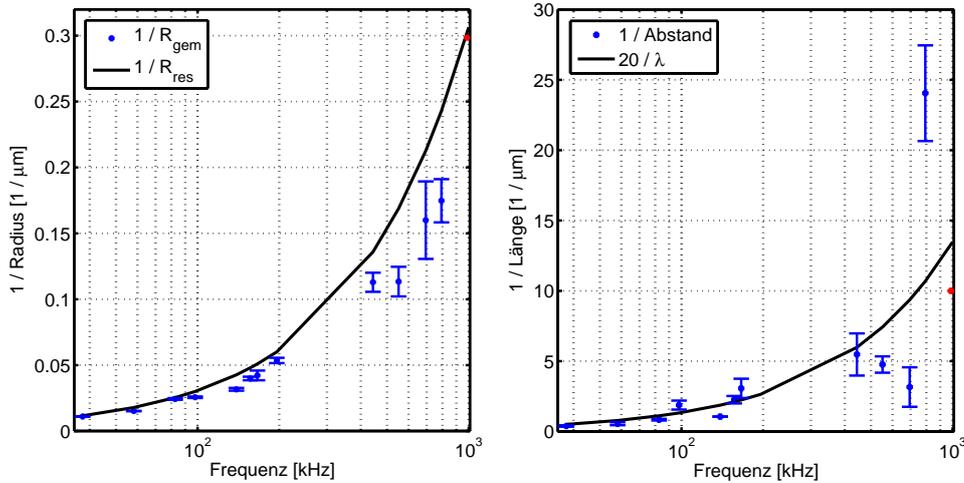


Abbildung 3.2.: Links: Auftragung des reziproken gemessenen Radius gegen die Frequenz, als Referenz wurde der reziproke lineare Resonanzradius für die entsprechenden Frequenzen mit aufgetragen. Rechts: Auftragung des reziproken Abstandes der Blasen gegen die Frequenz, als Referenz wurde die Wellenlänge mit aufgetragen. Der rote Punkt markiert jeweils die von Miller gemessenen Werte für 986 kHz.

gleich zum linearen Resonanzradius führt. Für die gemessenen Abstände wird die Wellenlänge als Vergleich herangezogen, wobei der Abstand reziprok gegen die Wellenlänge aufgetragen wird und die Wellenlänge noch mit einem Faktor von 20 versehen ist, damit die Werte besser verglichen werden können. Bis 200 kHz liegen die reziproken Radien eng um die Kurve der reziproken Wellenlänge. Die drei Messpunkte zwischen 400 und 700 kHz haben mit höher werdender Frequenz immer kleinere Werte, was eine Vergrößerung des Abstandes bedeutet. Der letzte Wert bei 800 kHz liegt deutlich über der Kurve, was zu einem deutlich kleinerem Abstand gegenüber der Wellenlänge führt. Die roten Punkte in den Auftragungen sind die Werte, die Miller für 1 MHz gemessen hat.

Werden nun die gemessenen Radien mit dem linearen Resonanzradius der entsprechenden Frequenz und die Abstände mit der Wellenlänge normiert und gegen die Frequenz aufgetragen, so ergeben sich die Werte in Abb. 3.3. Der normierte Radius bleibt in einem Bereich zwischen 1 und 1,5. Die Tendenz zu hohen Frequenzen ist ansteigend. Für den normierten Abstand ergeben sich Werte, die - bis auf den Wert bei 700 kHz - im Bereich zwischen 0,02 und 0,08 liegen. In diesem Intervall springen die Werte hin und her und ein Trend ist nicht zu erkennen. Auch in dieser Auftragung zeigen die roten Punkte die von Miller gemessenen Werte.

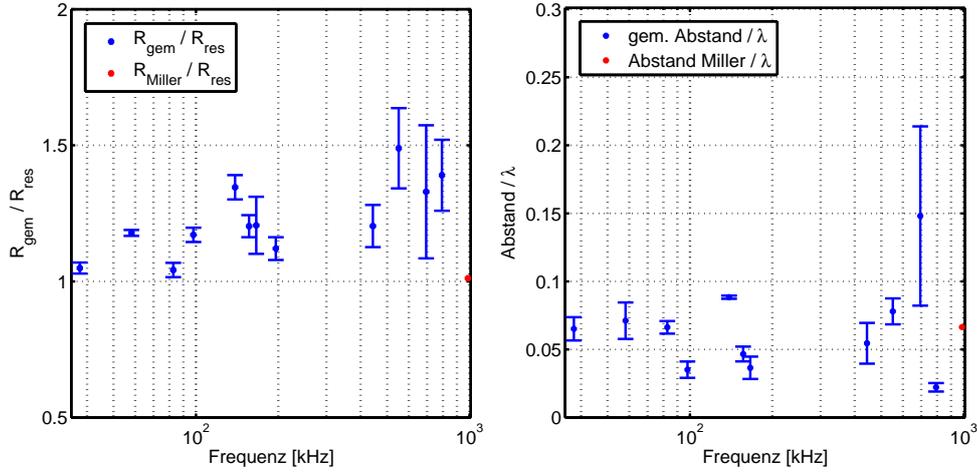


Abbildung 3.3.: Auftragung der normierten gemessenen Werte gegen die Frequenz. Links: Radius normiert mit dem linearen Resonanzradius. Rechts: Abstand normiert mit der Wellenlänge. Der rote Punkt markiert jeweils die von Miller gemessenen Werte für 986 kHz.

3.3.2. Numerische Simulationen

Um das Verhalten der Blasen theoretisch zu beschreiben und die für die Strukturbildung verantwortlichen Kräfte zu ermitteln, werden numerische Simulationen mit Matlab durchgeführt. Dazu werden die Gleichungen für die Blasenoszillation und Blasentranslation von Doinikov (siehe Anhang A) für $n = 3$ Blasen benutzt. Als Frequenz für die Simulation wird 37,6 kHz gewählt, da diese die tiefste Frequenz darstellt, bei der die Miller-Struktur zu beobachten ist. Für den Ruheradius der Blasen wird $90 \mu\text{m}$ gewählt, wie aus den Hochgeschwindigkeitsmessungen aus Abschnitt 3.3.1 ermittelt. Als Anregungsdruck wird $P_a(\mathbf{x}, t) = -\hat{P}_a \sin(\omega t) \cos(kx) \cos(ky) \cos(kz)$ gewählt, mit $\hat{P}_a = 130 \text{ kPa}$. Um einen geeigneten Anfangsabstand der Blasen zu erhalten, wird für zwei Blasen die Grenze zwischen Anziehung und Abstoßung ermittelt. Dazu werden mehrere Berechnungen für unterschiedliche Abstände durchgeführt. Eine Blase wird dabei immer in den Ursprung gesetzt (Druckbauch in alle drei Richtungen). Eine zweite Blase wird an verschiedene Punkte im Raum bis zum ersten Druckbauch gesetzt (Punkte auf einem kubischem Gitter mit Gitterabstand $0,05 \lambda$). Bei $t = 0$ werden die Blasen in Ruhe dem Schallfeld ausgesetzt und nach 10 Perioden der Ort der zweiten Blase betrachtet. Die erste Blase kann sich dabei auch bewegen, was zwar berücksichtigt, aber hier nicht dargestellt wird. Eine Auftragung der Positionsveränderung der zweiten Blase ist in Abb. 3.4 links zu sehen. Der blaue Punkt markiert die Startposition der ersten Blase. Die roten Linien markieren die Start-

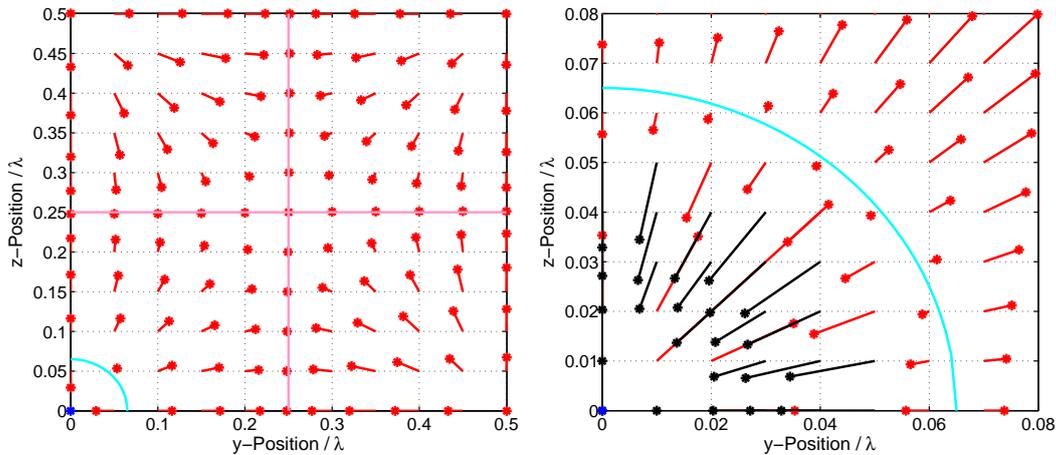


Abbildung 3.4.: Berechnung der Bewegung einer Blase - gestört durch eine weitere Blase im Ursprung - nach 10 Perioden. Blau markiert ist die erste Blase und mit den roten Linien die Anfangs- und Endposition der zweiten Blase für verschiedene Anfangspunkte. Die roten Sterne markieren die Endposition. Die schwarzen Linien bedeuten, dass in den 10 Perioden die Blasen einen Abstand, der kleiner als 1,5-mal die Summe ihrer Radien ist, erreichen. Die rosane Linie markiert die Druckknoten und die cyanfarbene die Lage des instabilen Gleichgewichts.

und Endposition der zweiten Blase nach 10 Perioden, wobei der Stern die Endposition markiert. Zu sehen ist die y-z-Ebene, in der x-Ebene ist ein Schnitt durch den Ursprung gemacht, so dass sich in dieser Richtung der Druckbauch befindet. Bei einem mit der Wellenlänge normierten Abstand zwischen 0,05 und 0,1 ändert sich das Verhalten der zweiten Blase (verdeutlicht durch den cyanfarbenen Halbkreis). Für Anfangsabstände bis 0,05 zum Ursprung bewegt sich die zweite Blase in Richtung Ursprung, auf die erste Blase zu. Für Anfangsabstände ab 0,1 vom Ursprung bewegt sie sich von der ersten Blase weg, in Richtung des näher gelegenen Druckknotens. Zwischen den beiden Werten liegt ein instabiles Gleichgewicht. Bei einem Abstand von mehr als 0,1 wird die zweite Blase nicht mehr von der ersten beeinflusst. In der gesamten Auftragung ist deutlich zu erkennen, dass sich die zweite Blase immer schnell in Richtung der Druckknoten bewegt (markiert durch die rosanen Linien bei $y = 0,25$ bzw. $z = 0,25$). In den Druckknotenebenen sind die Blasen in einer indifferenten Gleichgewichtslage und bewegen sich nur langsam. Werden die Druckknotenebenen um 45° um ihren Schnittpunkt gedreht, so ergeben sich die Grenzebenen, die bestimmen, zu welchem Druckknoten sich die Blasen hinbewegen. Auf den Grenzebenen bewegen sich die Blasen direkt zum gemeinsamen Druckknoten für die y- und z-Richtung. Befinden sich Blasen

direkt neben dieser Grenzebene, so werden sie zu dem jeweils nächsten Druckknoten gezogen. Die Miller-Struktur könnte sich also dadurch ergeben, dass Blasen, die nebeneinander in den Druckbäuchen entstehen, sich zu unterschiedlichen Positionen der Druckknoten bewegen. Dort sind sie quasi kräftefrei. Es wirken nur geringe Kräfte des Schallfeldes. Allerdings können die Blasen durch ihre leichten Oberflächenschwingungen und Volumenszillationen Dipolkräfte auf benachbarte Blasen ausüben.

Um die instabile Gleichgewichtslage der Blasen besser zu bestimmen, wird eine weitere Rechnung auf einem kleineren Gitter durchgeführt. Das Ergebnis ist in Abb. 3.4 rechts zu sehen. Die schwarzen Pfeile markieren hier Blasen, bei denen $d < 1,5(R_1 + R_2)$ gilt, wobei d den Abstand der Blasenmittelpunkte und R_1 und R_2 die Radien der Blasen bezeichnet. Bei diesem d ist eine starke Interaktion der Blasen wahrscheinlich. Aus der Auftragung lässt sich die Lage des instabilen Gleichgewichts bei einem Abstand von ca. $0,065$ erkennen. Dieser entspricht $1/150 \lambda$ und wird im Folgenden als Anfangsabstand der Blasen verwendet.

Das Ergebnis für die Blasenbewegung einer beispielhaften Berechnung für $n = 3$ ist in Abb. 3.5 gezeigt. Die Werte für Radius und Anregungsdruck wurden wie in der vorherigen Rechnung gewählt. Diesmal wurde für 500 Perioden gerechnet. Die Startpositionen der x- und z-Koordinaten der drei Blasen wurden alle auf $0,002 \lambda$ gesetzt und die y-Koordinate auf einen Abstand von jeweils $1/150 \lambda$ mit der mittleren Blase bei $4/15 \lambda$.

Die Blasen werden in Ruhe sehr nah beieinander gestartet und beginnen zu oszillieren. Dabei bewegt sich die grüne Trajektorie in die entgegengesetzte Richtung der anderen beiden. Die blaue Trajektorie hat einen weiten Ausschwinger weg von den anderen Blasen, kommt aber wieder zurück. Alle drei Blasen oszillieren um eine Gerade, die quer durch den Raum verläuft. Die blaue Trajektorie führt zunächst räumlich auseinander gezogene Oszillationen aus, die zum Ende der Berechnung enger werden. Die rote Trajektorie bewegt sich am Anfang in die gleiche Richtung wie die grüne und kehrt dann um, um der blauen Trajektorie zu folgen. Die Oszillationen der blauen und roten Trajektorie bewegen sich auf einer ähnlichen räumlichen Fläche. Die Oszillation der Blasen ist hier nur in einer Ebene zu beobachten. Eine Bewegung auf einer Kreisbahn um die Achse der Blasen tritt nicht auf; im Experiment dagegen schon (vgl. Abschnitt 3.2). Der Abstand der roten und blauen Trajektorie beträgt am Ende der Simulation $3,3 \text{ mm}$. Der beobachtete Abstand aus den Hochgeschwindigkeitsaufnahmen bei dieser Frequenz beträgt $2,57 \text{ mm}$. Der sich ergebende Abstand aus der Simulation liegt somit nah an dem gemessenen Abstand aus dem Hochgeschwindigkeitsfilm.

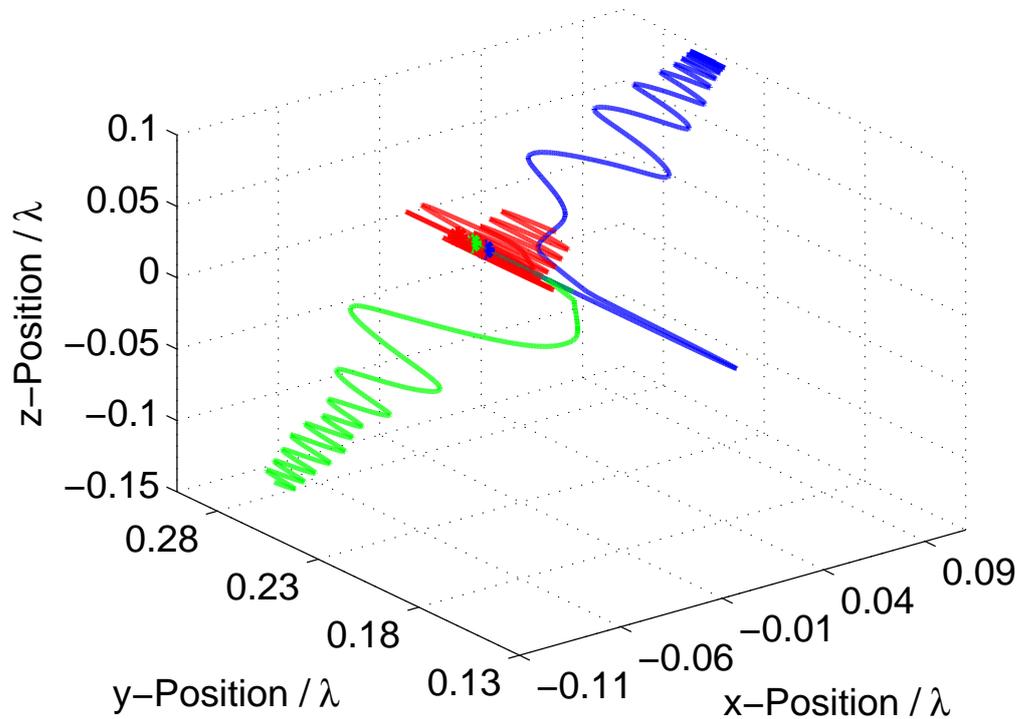


Abbildung 3.5.: Numerische Simulation der Bewegung von drei Blasen im dreidimensionalen Schallfeld bei einer Anregungsfrequenz von 37,6 kHz und einer Anregungsdruckamplitude von 130 Pa. Die Ruheradien der Blasen betragen jeweils 90 μm . Der Stern markiert jeweils den Startort der Blasen. Die verwendeten Parameterwerte sind im Text erläutert.

3.3.3. Diskussion

Für einen Frequenzbereich von 40 kHz bis 800 kHz konnte die Miller-Struktur aufgenommen werden. Eine Erhöhung der Frequenz bedeutet eine Verkleinerung des Radius und des Abstands der Blasen der Struktur. Eine Normierung mit dem Resonanzradius bzw. der Wellenlänge ergibt einen annähernd konstanten Wert. Daraus ergibt sich, dass die Kräfte, die für den Abstand der Blasen verantwortlich sind, bei allen Frequenzen dieselben sein sollten und die Struktur auf die selbe Art entsteht. Der von Miller gemessene Abstand sowie der Blasenradius bei einer Frequenz von 986 kHz liegen normiert im gleichen Wertebereich wie die gemessenen Werte für die anderen Frequenzen. Der Radius liegt am unteren Ende und der Abstand genau in der Mitte des Wertebereichs. Lediglich der Messpunkt bei 700 kHz fällt aus dem Rahmen. Dies kann jedoch damit zusammenhängen, dass

bei dieser Frequenz die Kreisbewegung deutlicher ausgeprägt war als bei den anderen Frequenzen, wodurch der Abstand der Blasen leicht beeinflusst wird (siehe Miller [131, 132]).

Die Frage nach den verantwortlichen Kräften kann nicht abschließend geklärt werden, da sich aus den Simulationen nicht die erwarteten Translationsverläufe restlos rekonstruieren lassen. Die These von Miller, dass die gleichgerichtete Diffusion für die Umkreisung der Blasen verantwortlich ist, scheint nicht zu stimmen, da dieser Prozess zu langsam ist. Wahrscheinlicher ist eine Kopplung von Bjerknæs-, Oberflächen- und Dipolkräften [109].

Für den harmonischen Blasen-Oszillator wurde schon 1984 von Zabolotskaya [133] gezeigt, dass es einen Abstand gibt, bei dem sich die anziehenden und abstoßenden Kräfte aufheben. Der Grund hierfür ist eine Anregungskopplung, d. h. das gestreute/emittierte Schallfeld regt die jeweils andere Blase zusätzlich an. Diese wurde später ausführlich diskutiert von Ida [134, 135]. Die Kopplung ist auch im hier für die Simulationen verwendeten Modell von Doinikov enthalten. Trotzdem sind die Simulationsergebnisse noch nicht befriedigend und sollten bei Gelegenheit fortgeführt werden.

3.4. Struktur bei 230 kHz

Eine Kavitationsstruktur, bei der die Miller Struktur in einer etwas anderen Form mit auftritt, soll im folgenden Abschnitt genauer beobachtet und beschrieben werden. Dazu wird die Struktur bei einer Frequenz von 230 kHz durch Hochgeschwindigkeitsaufnahmen, Sonolumineszenzaufnahmen und durch Oberflächenreinigungstests untersucht [136].

3.4.1. Hochgeschwindigkeitsaufnahmen

Für alle Aufnahmen wird eine rechteckige PMMA-Küvette (siehe Anhang C.4) verwendet. Der Wandler ist bei dieser Küvette an der Seitenwand angebracht. Die sich ergebende Struktur besteht aus zwei Blasenpopulationen. Zum einen bilden große Blasen, d. h. Blasen, die größer als der lineare Resonanzradius sind, Ringstrukturen aus, die vertikal in der Küvette und parallel zum Wandler ausgerichtet sind. Der Abstand der Ringe beträgt jeweils ca. eine halbe Wellenlänge. Die Blasen in den Ringen steigen mit einem festen Abstand nacheinander auf (ähnlich wie bei Miller, nur hier unter Einfluss der Schwerkraft). Erreichen sie den obersten Punkt, steigen sie gerade auf und verlassen die Flüssigkeit. Die zweite Population besteht aus kleinen Blasen (kleiner als der lineare Resonanzradius), die ausgehend vom Wandler durch die Ringe hindurch strömen. Dies geschieht

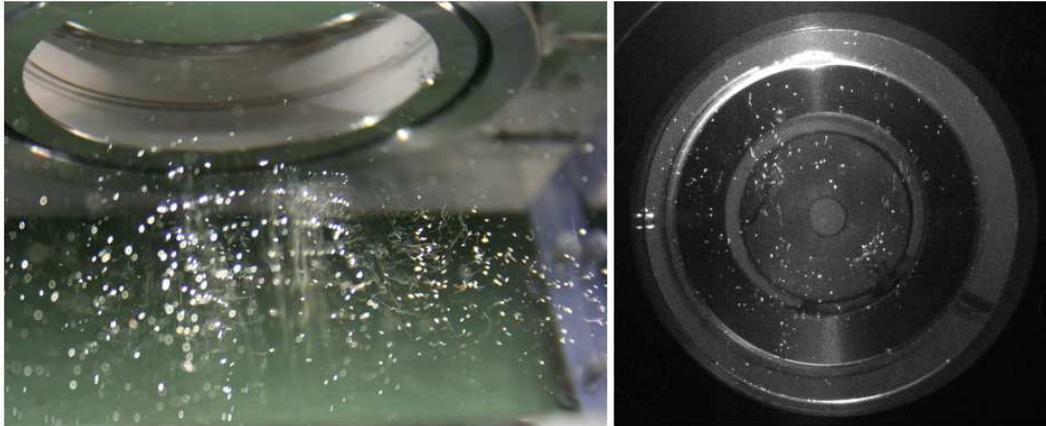


Abbildung 3.6.: Fotos der Miller-Struktur bei einer Anregungsfrequenz von 230 kHz und 135 V. Links: Aufnahme von schräg oben. Rechts: Aufnahme in Aufsicht auf den Wandler.

angeordnet in mehreren Strängen aus Blasen, die sich in Anzahl und Position verändern, jedoch immer von der Fläche vor dem Wandler ausgehen und die Ringe durchqueren.

Eine Übersicht zu der Struktur ist in Abb. 3.6 gezeigt. In der linken Aufnahme ist die Struktur von schräg oben gezeigt. Der Wandler ist in dieser Aufnahme unten. Oben im Bild ist der Quarzreflektor zu sehen. Die großen Blasen erscheinen hier als helle Punkte, die ringförmig angeordnet sind. Die kleinen Blasen erscheinen als diffuse, nebelige helle Streifen durch die Ringe. In der rechten Aufnahme ist eine Aufsicht auf den Wandler gezeigt. Zu sehen sind hier nur die hintereinander liegenden Ringstrukturen. Die kleinen Blasen sind nicht zu sehen, da sie sich auf die Kamera zubewegen. Der lineare Resonanzradius, der kleine und große Blasen trennt, beträgt in Wasser bei 230 kHz etwa $13 \mu\text{m}$ [12].

Große Blasen

Die großen Blasen steigen nacheinander mit einem festen Abstand auf. Beim Aufsteigen beschreiben aufeinander folgende Blasen gleiche Bewegungen. Ein Beispiel für die Translation zweier aufeinander folgenden Blasen und deren Geschwindigkeiten ist in Abb. 3.7 gezeigt. In der linken Abbildung ist die Position der Blasenmittelpunkte in der x-y-Ebene aufgetragen. Dabei bezeichnet die x-Richtung die horizontale Position der Blase und y die Höhe in der Küvette. Die Blickrichtung der Hochgeschwindigkeitsaufnahme ist dabei quer zur Ringebene, so dass die Ringe als vertikale Streifen erscheinen. Der Wandler befindet sich auf der linken Seite weit außerhalb der Aufnahme. Die Zeit zwischen zwei Punkten beträgt $200 \mu\text{s}$.

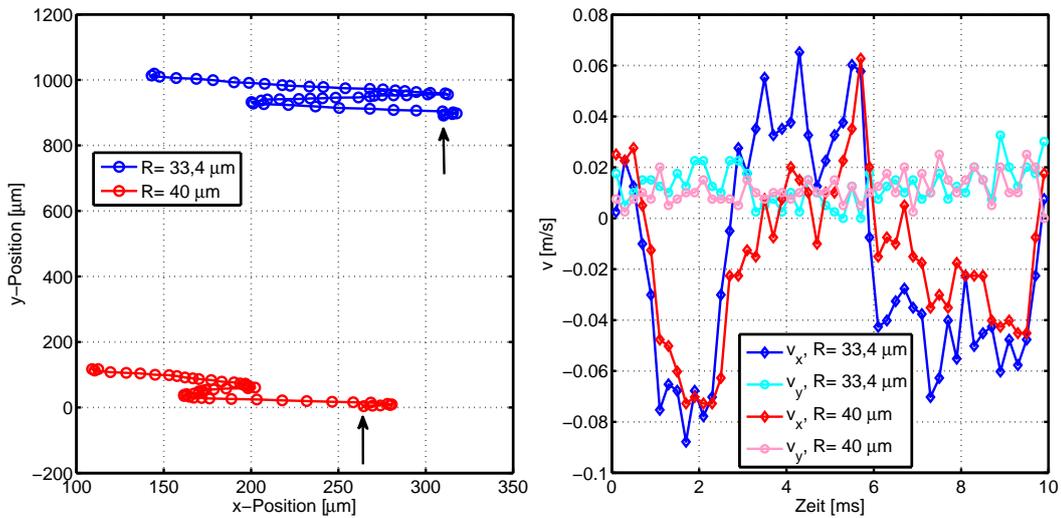


Abbildung 3.7.: Links: Auftragung der x- und y-Koordinaten von zwei nacheinander aufsteigenden Blasen. Die Pfeile markieren jeweils den Beginn der Bewegung. Rechts: Geschwindigkeit der Blasen in x- bzw. in y-Richtung.

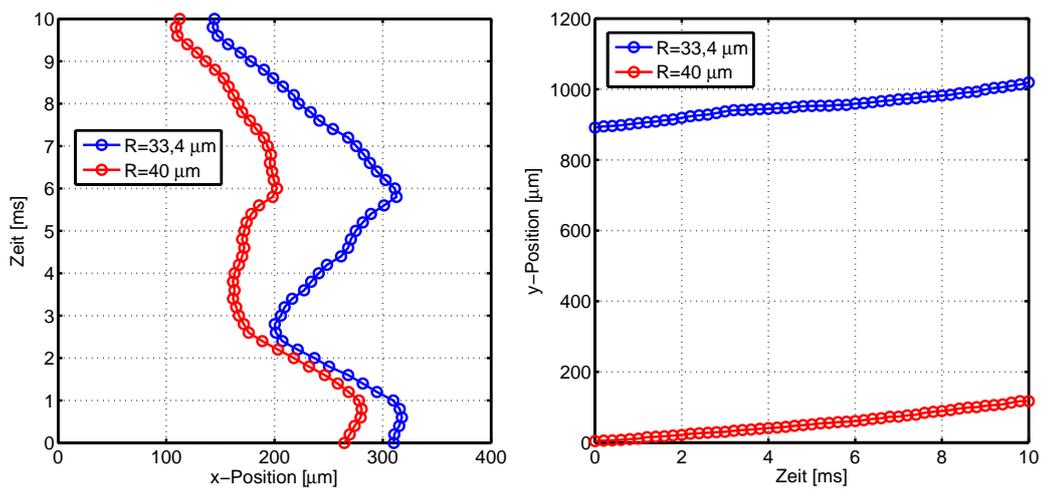


Abbildung 3.8.: Bewegung von zwei nacheinander aufsteigenden Blasen. Links: Auftragung der x-Position gegen die Zeit. Rechts: Auftragung der y-Position gegen die Zeit.

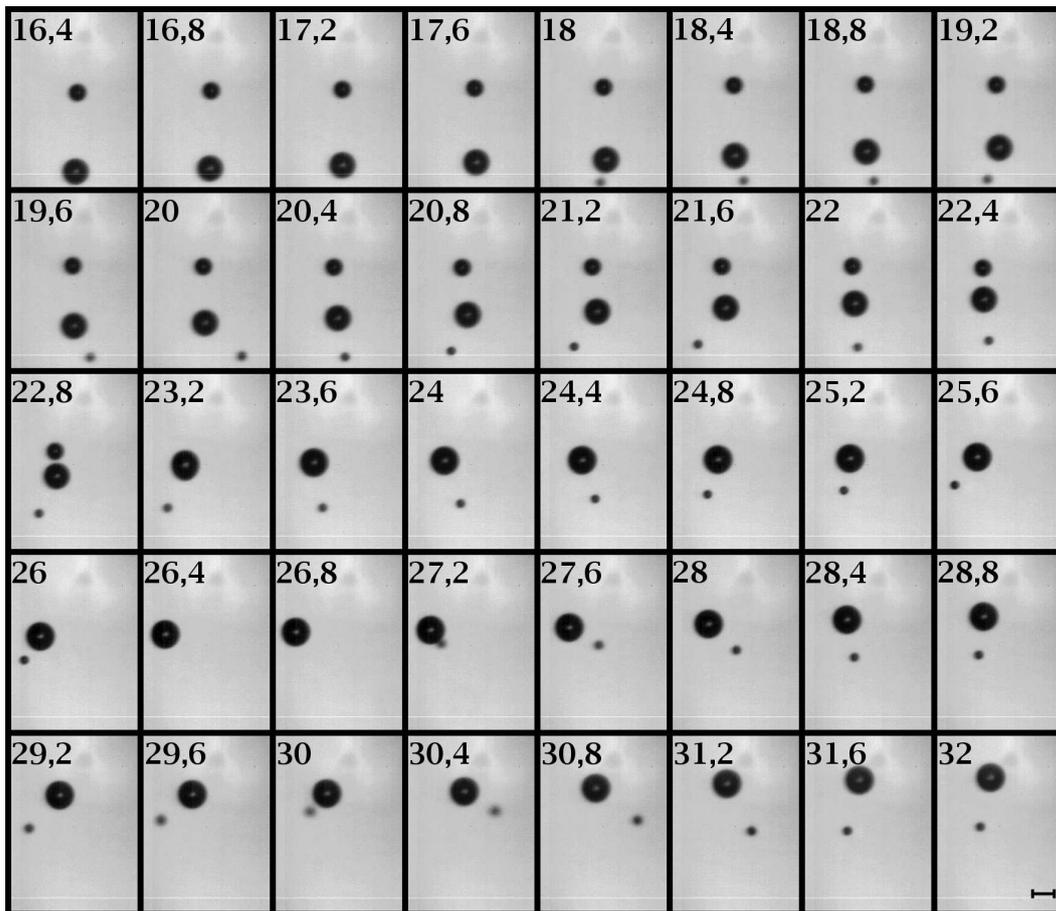


Abbildung 3.9.: Bildsequenz aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm zur Veranschaulichung von drei aufsteigenden Blasen. Die Aufnahmegeschwindigkeit beträgt 5000 Bilder pro Sekunde. Die Zahlen bezeichnen die Zeit in ms. Die Zeit 0 ms entspricht dem Beginn der Aufnahme. Die Maßstab im letzten Bild entspricht 50 μm .

Die Radien betragen 33,4 μm für die obere und 40 μm für die untere Blase. Die Geschwindigkeiten in x- und y-Richtung sind in der rechten Auftragung in Abb. 3.7 gezeigt. Die Aufstiegsgeschwindigkeiten sowie die Geschwindigkeiten, die zu den Seiten erreicht werden, liegen für beide Blasen im gleichen Wertebereich. Die einzelnen Werte schwanken zwar, im Mittel steigen die Blasen jedoch gleich schnell auf (mit ca. 1 cm/s) und die Seitwärtsbewegungen sind auch neben kleinen Schwankungen im Wesentlichen gleich. Die Geschwindigkeit, mit der die Blasen sich zur Seite bewegen, haben einen maximalen Wert von 8 cm/s. Folglich ergeben sich deutlich höhere Seitwärts- als Aufstiegsgeschwindigkeiten. Beide Blasen führen demnach eine synchrone Bewegung zu den Seiten aus und steigen mit der

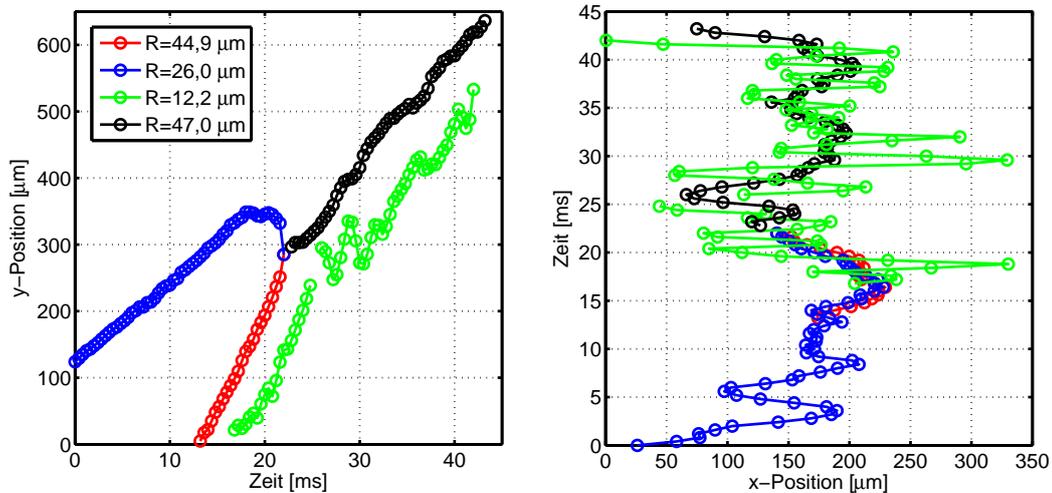


Abbildung 3.10.: Positionen der drei aufsteigenden Blasen berechnet aus dem Film, der teilweise in Abb. 3.9 gezeigt ist. Links: Auftragung der y-Position der Blasen gegen die Zeit. Rechts: Auftragung der Zeit gegen die x-Position der Blasen.

gleichen Geschwindigkeit auf.

In Abb. 3.8 ist die jeweilige x- bzw. y-Position gegen die Zeit aufgetragen. Für die x-Position ergibt sich eine nicht ganz parallele Bewegung, die jedoch bei beiden Blasen die gleiche geschwungene Form hat. Für die y-Position der Blasen ergeben sich parallele Anstiege.

Steigen Blasen nacheinander auf, die einen deutlichen Größenunterschied aufweisen, so ist ihre Aufstiegs geschwindigkeit unterschiedlich. Ein Beispiel aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm für die Bewegung von drei Blasen ist in Abb. 3.9 gezeigt. Die größere Blase hat eine höhere Aufstiegs geschwindigkeit als die mittlere Blase, die in der Aufnahme bereits weiter aufgestiegen ist als die größere Blase. Durch die höhere Aufstiegs geschwindigkeit erreicht die größere Blase bei 23,2 ms die mittlere Blase, woraufhin sich beide zu einer geringfügig größeren Blase zusammenschließen. Auf der gesamten Trajektorie wird die größere Blase von einer kleinen Satellitenblase umkreist, die sich schnell hin und her bewegt. Ob die Bewegung in Kreisbahnen oder eine Zickzack-Bewegung beschreibt, lässt sich aus der zweidimensionalen Aufnahme nicht eindeutig bestimmen. Eine Kreisbewegung in der Tiefenebene ist wahrscheinlich, da die kleine Blase im Verlauf der Bildsequenz abwechselnd scharf und unscharf zu sehen ist.

Die Auftragung der x- bzw. y-Position der drei Blasen gegen die Zeit ist in Abb. 3.10 gezeigt. In der Auftragung der y-Position ist hier sehr gut zu erkennen, dass die mittlere Blase kurz vor dem Zusammenschließen nicht weiter steigt,

sondern ihre Richtung ändert und sich nach unten auf die große Blase zu bewegt. Einen Zeitschritt vor dem Zusammenschließen legen beide Blasen einen wesentlich größeren Weg zurück als zu den anderen Zeiten. Bei einem Abstand von ca. $80\ \mu\text{m}$ ziehen sich die Blasen stark an.

Die betragsmäßig absoluten Geschwindigkeiten der drei Blasen sind in Abb. 3.11 aufgetragen. Während der ersten 10 ms schwankt die Geschwindigkeit der mittleren Blase um $5\ \text{cm/s}$. Danach ist die Geschwindigkeit der Blase nur noch halb so groß. Die Geschwindigkeit der großen Blase liegt im Bereich der mittleren, also bei $2,5\ \text{cm/s}$, zu den meisten Zeitpunkten jedoch geringfügig darüber. Dies bleibt so bis kurz vor dem Zusammenschluss mit der großen Blase bei $22,8\ \text{ms}$, in dem beide Blasen einen Anstieg in der Geschwindigkeit erfahren: Bei der mittleren Blase steigt sie auf $11\ \text{cm/s}$ und bei der großen Blase auf $8\ \text{cm/s}$. Die Geschwindigkeit nach dem Zusammenschluss ist mit $3\ \text{cm/s}$ etwas höher als die Geschwindigkeiten der einzelnen Blasen zuvor. Die Geschwindigkeit der kleinen Blase variiert stark um einen Mittelwert von $16\ \text{cm/s}$ und erreicht Maximalwerte von bis zu $43\ \text{cm/s}$.

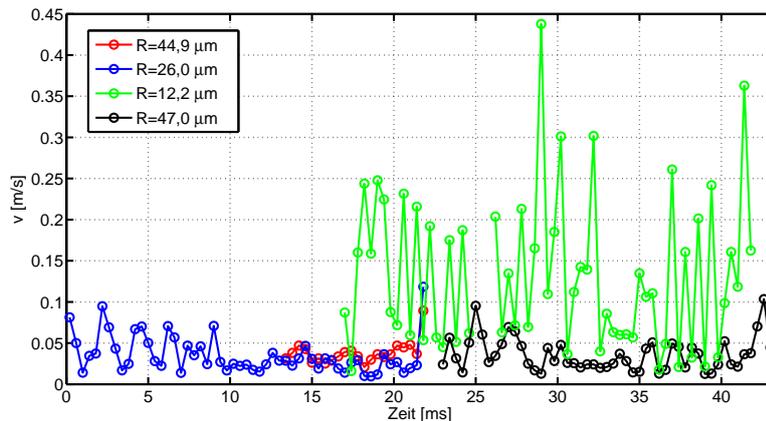


Abbildung 3.11.: Auftragung der Beträge der absoluten Geschwindigkeiten der drei Blasen berechnet aus dem Film, der teilweise in Abb. 3.9 gezeigt ist.

Kleine Blasen

Die kleinen Streamerblasen beschreiben eine annähernd horizontale Bewegung vom Wandler weg. Die x- und y-Positionen einiger Blasen sowie deren Geschwindigkeiten in horizontaler und vertikaler Richtung sind in Abb. 3.12 gezeigt. Dabei befindet sich der Wandler weit links außerhalb der Auftragung. Die Abstände

beziehen sich auf die Orte in der Ebene der Hochgeschwindigkeitsaufnahme. Der Punkt (0,0) bezeichnet die linke untere Ecke des Aufnahmeausschnittes. Die Aufnahme­geschwindigkeit beträgt 3000 Bilder pro Sekunde. Sämtliche Radien der Streamerblasen betragen weniger als $12\ \mu\text{m}$. Ihre Geschwindigkeit in vertikaler Richtung beträgt maximal $16\ \text{cm/s}$. Die Blasen bewegen sich bis auf eine Ausnahme ausschließlich nach unten. In horizontaler Richtung erreichen die sich vom Wandler weg bewegend Blasen eine maximale Geschwindigkeit von $1,1\ \text{m/s}$.

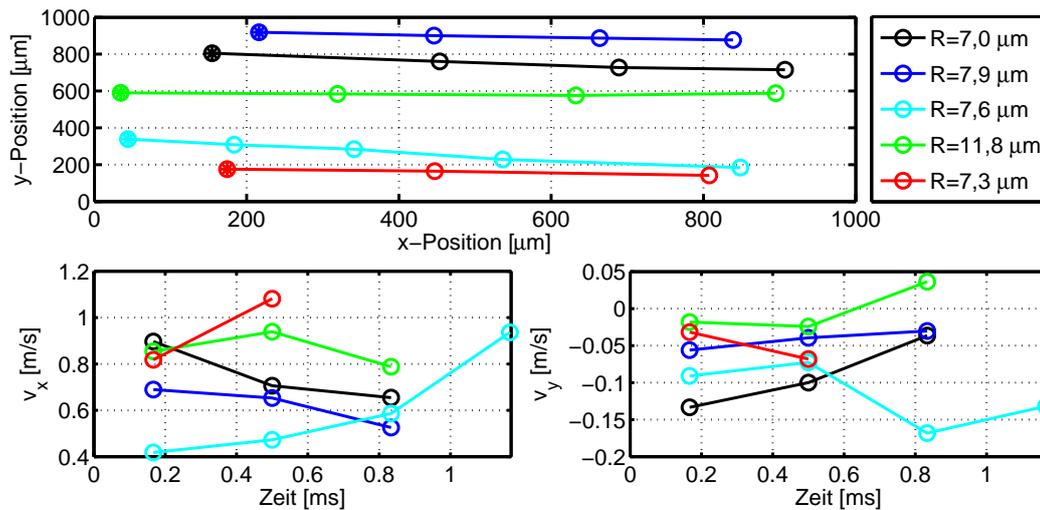


Abbildung 3.12.: Oben: Auftragung der x- und y-Positionen einiger Streamerblasen. Der Wandler befindet sich auf der linken Seite weit außerhalb des Ausschnittes. Die vollen Kreise markieren den Startpunkt der Bewegung. Unten links: Auftragung der horizontalen Geschwindigkeit der Blasen. Unten rechts: Auftragung der Aufstiegs­geschwindigkeit der Blasen. Die Zeit zwischen zwei Auftragungspunkten beträgt $0,33\ \text{ms}$.

3.4.2. Lumineszenzaufnahmen

Um die Position der stark oszillierenden Blasen in der Küvette zu bestimmen, wurde das Sonolumineszenzsignal der Struktur aufgenommen. Eine zeitgemittelte Lumineszenzaufnahme der Struktur in Seitenansicht, mit Blick parallel zur Ringebene, so dass die Ringe als vertikale Streifen erscheinen, ist in Abb. 3.13 gezeigt. Die Aufnahme wurde mit einer EMCCD Kamera (iXon^{EM} DV 885, Andor) und mit einer Belichtungszeit von $30\ \text{s}$ aufgenommen. Der Wandler befindet sich auf der linken Seite außerhalb der Aufnahme. Die vertikalen Lumineszenzstreifen werden mit größerem Abstand vom Wandler trichterförmig immer länger

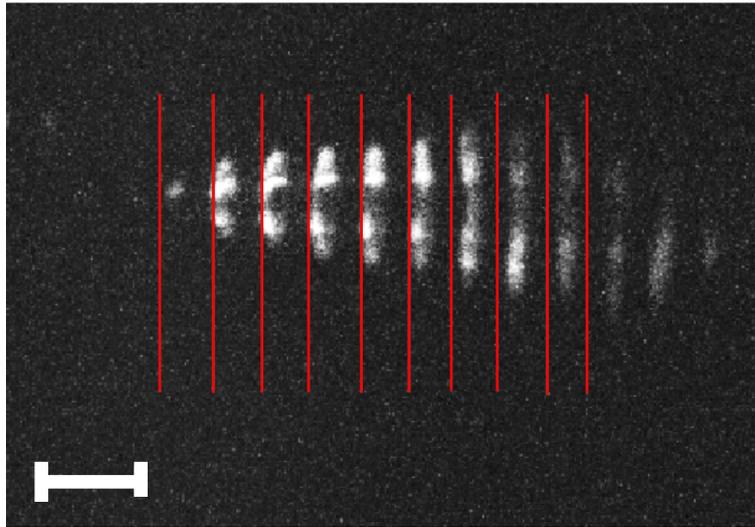


Abbildung 3.13.: Lumineszenzaufnahmen der Struktur in Seitenansicht. Die roten vertikalen Linien markieren die Positionen von großen Ringblasen (Druckknoten) aus Streulichtaufnahmen. Die Belichtungszeit beträgt 30 s. Der Maßstab unten links beträgt 7 mm.

und die Intensität sinkt. Daraus lässt sich schließen, dass das Schallfeld mit zunehmendem Abstand vom Wandler schwächer wird und leicht divergent ist. Die Abstände der roten Linien zueinander nehmen mit zunehmendem Abstand vom Wandler ab, was auf Nahfeldeffekte vor dem Wandler schließen lässt. Die Abstände zwischen Emissionsstreifen und Druckknoten ändern sich mit zunehmendem Abstand vom Wandler. Weiter entfernt vom Wandler liegen die Lumineszenzbereiche genau zwischen zwei Druckknoten, näher am Wandler ist die Position verschoben und die Blasen sind näher am Knoten, was eventuell durch eine nicht ganz parallele Aufnahme bedingt ist. Vermutlich sind aber eher die Knotenzonen, in denen sich die großen Blasenringe finden, im Nahfeld etwas gekrümmt, so dass sie perspektivisch etwas vor die Leuchtzonen geschoben werden. Das Lumineszenzmuster bleibt bei mehreren Aufnahmen nacheinander gleich. Lediglich die Intensitätsmaxima können geringfügig in vertikaler Richtung variieren. Dies lässt sich jedoch durch eine Frontalaufnahme auf den Wandler klären.

Mehrere zeitgemittelte Aufnahmen in Aufsicht auf den Wandler, durch die Ringe hindurch, sind in Abb. 3.14 gezeigt. Im ersten Bild sind vier runde Emissionsbereiche zu sehen, im zweiten Bild nur zwei und im dritten Bild ist einer der beiden Leuchtbereiche deutlich heller als der andere. Die Position der Streamerstruktur, die in Strängen von der Wand ausgeht, ist zeitlich nicht konstant. Sie bildet sich an variablen Punkten, wodurch die unterschiedlichen Helligkeiten

in den Aufnahmen von der Seite zu erklären sind: Die Streamerblasen sind nicht homogen über die gesamte Fläche vor dem Wandler verteilt, sondern schließen sich zu Strängen zusammen, die zeitlich variabel sind. Dadurch entstehen in der Seitenansicht in den vertikalen Streifen hellere und dunklere Bereiche, je nachdem an welcher Position die Streamerblasen die Ringe durchqueren.



Abbildung 3.14.: Lumineszenzaufnahmen der Struktur in Richtung des Wandlers. Die Bildbreite beträgt 1,1 cm und die Belichtungszeit 12 s.

3.4.3. Reinigungstests

Im Folgenden wird die Kavitationsstruktur auf ihre Reinigungsaktivität hin untersucht. Dazu wird ein Objektträger erst mit einer SC1 Lösung (Ammoniak, Wasserstoffperoxid und Wasser) hydrophilisiert und anschließend mit einer wässrigen Lösung von $1\ \mu\text{m}$ Melaninresin-Partikeln beschichtet. Die Lösung wurde kurz stehen gelassen, so dass die Partikel antrocknen können und dann auf einem Spin-Motor abrotiert. Die auf dem Objektträger zurückbleibenden Partikel bilden eine Schicht aus einzelnen Partikeln und kleinen Konglomeraten aus maximal fünf Partikeln. Diese Partikel lassen sich unter fließendem Wasser nicht vom Objektträger lösen. Der beschichtete Objektträger wird anschließend mit einem Halter vertikal und parallel zu den Seitenwänden in der Küvette positioniert, so dass die Streamer am Objektträger vorbei strömen können. Mit einer Hochgeschwindigkeitskamera kann so die Abreinigung der Partikel durch die Blasen beobachtet werden.

Ein Beispiel für die Abreinigung durch Blasen ist in Abb. 3.15 gezeigt. Der hellgraue Hintergrund entspricht hierbei gereinigten Bereichen, der dunklere Bereich ist noch mit Partikeln verschmutzt. Die beiden fast schwarzen Bereiche sind Blasen, die entweder auf der Oberfläche anhaften oder sich nah an der Oberfläche befinden. Hier ist die rechte Blase ortsfest und kollabiert nicht oder führt nur sehr schwache Volumenzillationen aus. Die kleine Blase bewegt sich im Bereich links von der großen Blase. Dabei führt sie starke Oberflächenoszillationen und möglicherweise auch einen starken Kollaps aus. In Bild 11 wird sogar eine kleine Blase

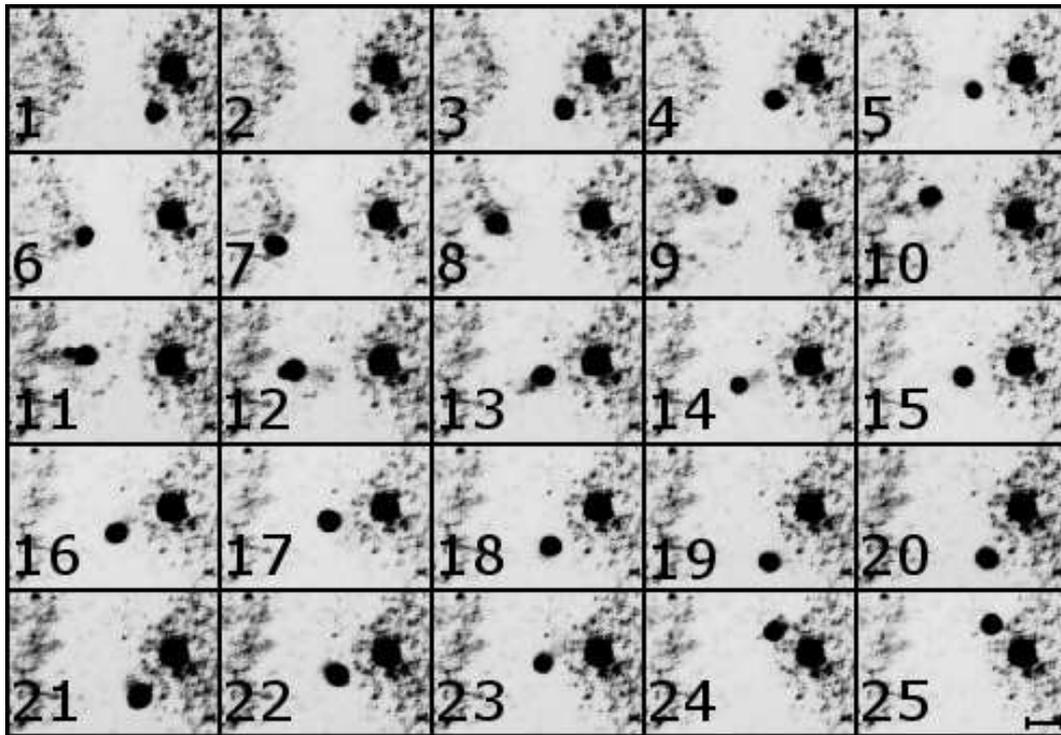


Abbildung 3.15.: Bilder aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm zur Abreinigung von Partikeln durch Blasen, die sich nah der Oberfläche befinden. Die Aufnahmegeschwindigkeit beträgt 1000 Bildern pro Sekunde und die Belichtungszeit $5 \mu\text{s}$. Der Maßstab rechts unten beträgt $55 \mu\text{m}$.

abgespalten. In Bild 1 hat die bereits gereinigte Fläche die Form einer Sanduhr, im letzten Bild der Serie ist die Sanduhrform auf der linken Seite einer gezackten, vertikalen Kante zwischen gereinigter und nicht gereinigter Fläche gewichen. Gereinigt wurden nur Bereiche, über die sich die kleine Blase hinweg bewegt hat.

Die x- und y- Koordinate der kleinen reinigenden Blase, ihr Radius sowie ihre Geschwindigkeit wurden aus dem Film berechnet. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.16 gezeigt. Die Bewegung der kleinen Blase ist relativ erratisch im Bereich links der großen stationären Blase. Ihr geschätzter äquivalenter Radius ändert sich von Bild zu Bild mit Sprüngen im Bereich von bis zu $3,5 \mu\text{m}$. Da die Belichtungszeit länger als die Periodendauer ist, wird immer über die gesamte Oszillation einer Periode gemittelt. Die Geschwindigkeit, mit der sich die kleine Blase über den Objektträger bewegt, erreicht Werte von bis zu 5 cm/s .

Eine eindeutige Klärung, ob die Abreinigung durch einen starken Kollaps oder durch Oberflächenmoden ausgelöst wird, kann nicht erfolgen, da die Aufnahme- rate zu gering ist, um die Blasendynamik vollständig aufzulösen. Einiges spricht

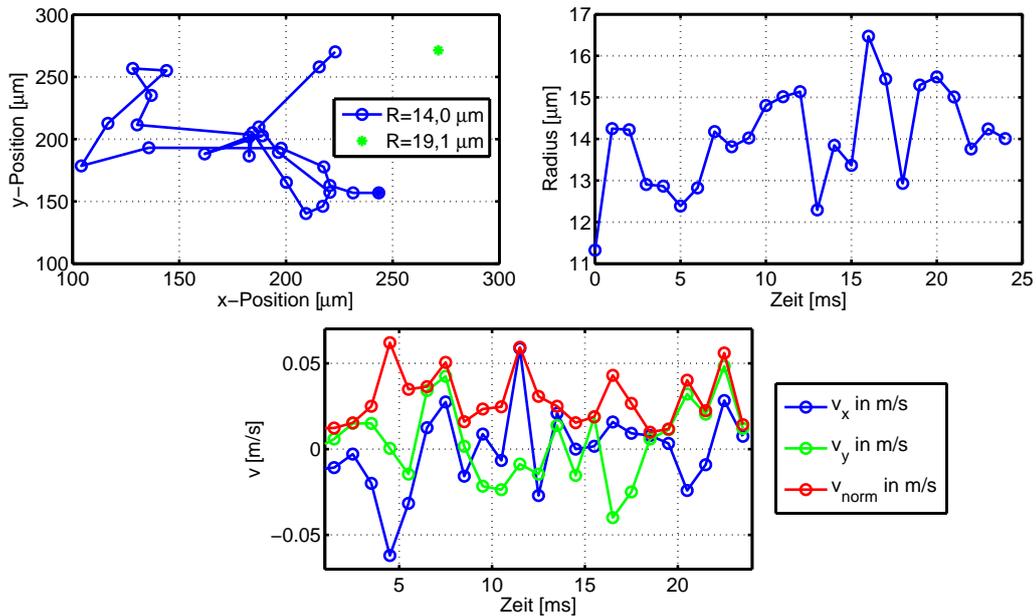


Abbildung 3.16.: Oben links: x- und y-Position der reinigenden Blase. Oben rechts: Radius-Zeit-Kurve der reinigenden Blase. Unten: Geschwindigkeiten der reinigenden Blase. Alle Werte sind aus dem Film aus Abb. 3.15 berechnet.

jedoch dafür, dass lediglich starke Oberflächenschwingungen zum Umherwandern der Blase führen und eventuell ein Verschieben der Blasenwand über die Partikel durch Oberflächenspannungseffekte zum Ablösen der Partikel führt. Festzuhalten bleibt, dass die Blasen die Testverschmutzung abreinigen können. Die große stationäre Blase stammt wohl aus der ersten Population von aufsteigenden, großen Blasen, die eine kleinere Satellitenblase um sich hatte (eine leichte Kippung des Objektträgers ist nicht auszuschließen). Das Anhaften an der festen Oberfläche wird durch sekundäre Bjerkneskräfte der am Substrat reflektierten Streuemissionen unterstützt („Spiegelblase“) [137].

Eine andere Reinigungsstruktur ergibt sich durch die Streamerblasen. Aus einer Aufnahme mit 1000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von 2 μs sind zwei Bilder in Abb. 3.17 gezeigt. Hierbei ergeben sich leicht gekrümmte horizontal abgereinigte Streifen an den Orten, an denen Streamerblasen in der Nähe der Oberfläche vorbeigekommen sind. Die rote Linie entspricht dabei der Trajektorie einer Blase über den Objektträger. Das erste Bild zeigt den Objektträger 1 ms nachdem eine Blase mit einer Geschwindigkeit von bis zu 0,4 m/s den Bildausschnitt verlassen hat, das zweite Bild zeigt den Objektträger 50 ms später. Dabei zeigt sich, dass nicht nur die Bereiche über die sich die Blase direkt be-

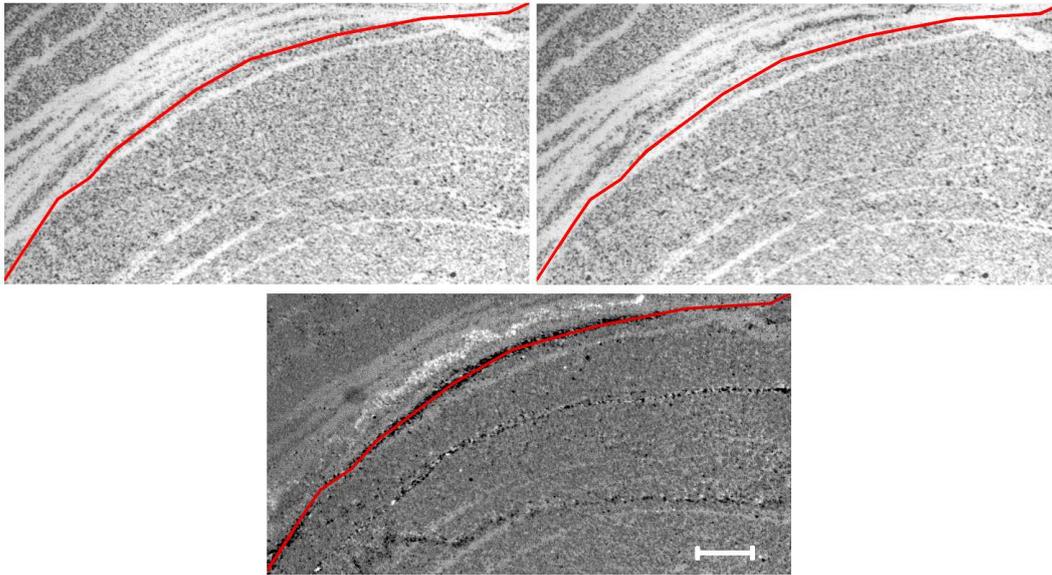


Abbildung 3.17.: Oben: Zwei exemplarische Aufnahmen zur Abreinigung von vobeiströmenden Kavitationsblasen aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 1000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $2\ \mu\text{s}$. Die Zeit zwischen den beiden Bildern beträgt 50 ms. Unten: Differenz der beiden oberen Bilder. Der Maßstab im unteren Bild beträgt $300\ \mu\text{m}$.

weg abgelöst haben, sondern über einen längeren Zeitraum ein ganzer Bereich an Partikeln in der Nähe der sofort abgereinigten Blasenspur als Wolke in die Flüssigkeit übergeht. Dies lässt sich jedoch nur in der Hochgeschwindigkeitsaufnahme gut erkennen. Im dritten Bild ist eine Differenz der oberen beiden Aufnahmen gezeigt. Schwarze Bereiche zeigen Partikel, die nur im ersten Bild zu sehen sind und weiße Bereiche zeigen Partikel, die nur im zweiten Bild zu sehen sind. Hier ist deutlich zu erkennen, dass sich Partikel in der näheren Umgebung der bereits abgereinigten Blasenspur abgelöst und sich nach schräg oben links bewegt haben. Die Geschwindigkeit der weg strömenden Partikelwolke beträgt $0,3\ \text{mm/s}$.

3.4.4. Diskussion

Durch die Sonolumineszenzaufnahmen lässt sich der Stehwellencharakter der Struktur deutlich zeigen. In der Seitenansicht lassen sich die vertikalen Streifen mit den Druckbäuchen identifizieren, in denen sich nur die kleinen Blasen befinden, wenn sie sich vom Wandler entfernen. Die großen Entgasungsblasen in den Ringen leuchten nicht. Im Bereich des halben Nahfeldes vor dem Wandler gibt es

weder Ringstrukturen, noch Lichtemission. Die Länge des Nahfeldes beträgt hier 4 cm. Direkt vor dem Wandler ist das Schallfeld noch sehr diffus, ferner entstehen dort eventuell auch keine Entgasungsblasen. Ab der Hälfte des Nahfeldes ist das Stehwellenfeld gut genug ausgeprägt, um Blasen in den Knoten zu halten, was wahrscheinlich auch durch die überlagerte reflektierte Welle vom Quarzreflektor verstärkt wird.

Die Reinigungstests ergeben zwei unterschiedliche Abreinigungsarten. Zum einen können vorbeiströmende Blasen Partikel ablösen. Dabei wird zusätzlich ein weiterer Bereich um die direkte Blasenspur abgelöst, die sich dann langsam mit der Flüssigkeitsströmung von ihrem ursprünglichen Ort wegbewegt. Zum anderen können Blasen, die sich lokal auf bzw. nah der Oberfläche bewegen, Partikel abreinigen. Der dahinter steckende Mechanismus kann durch diese Aufnahmen nicht vollständig geklärt werden, da Belichtungszeit und Aufnahmegeschwindigkeit die Oszillation der Blase nicht auflösen können. Zumindest für die lokale Reinigung scheinen starke Oberflächenmoden (evtl. mit heftigem Kollaps) vorzuherrschen, da auch kleine Blasen abgeschieden werden. Ein möglicher Mechanismus für die Abreinigung von Partikeln an Oberflächen wird von Ohl et al. [138] beschrieben. Die Autoren gehen davon aus, dass die Abreinigung durch die Scherspannung, die beim Auftreffen eines Jets entsteht, die Partikel abreinigen kann. Bei ihren Versuchen werden lasererzeugte Blasen untersucht. Ein anderer Abreinigungsmechanismus wird von Kim et al. [139] vorgeschlagen. Die Arbeitsgruppe hat die Reinigung bei MHz-Feldern untersucht und hält zwei Mechanismen für möglich. Eine Möglichkeit ist die Reinigung durch Blasen, die nah an den Partikeln oszillieren, sie aber nicht berühren. Durch den entstehenden Druckgradienten bei der Pulsation wird auf den Partikel ein Drehmoment ausgeübt, das stärker als die Adhäsion ist. Eine Alternative besteht aus Blasen, die an der Oberfläche anhaften und durch die Bewegung der Grenzschicht Blase/Flüssigkeit ein Drehmoment auf den Partikel ausüben, das den Partikel ablöst.

Die hier gezeigten Aufnahmen können keine der Thesen unterstützen oder widerlegen, da die Blasenoszillation nicht aufgelöst werden konnte. Jetten scheint jedoch gerade bei den vorbei strömenden Blasen eher unwahrscheinlich.

Von Interesse ist vor allem, ob die vorbei strömenden Blasen tatsächlich Partikel loslösen, die nicht mit der Gasphase in Berührung kommen. Eine solche „Fernwirkung“ könnte durch emittierte Stoßwellen (bei heftigem Kollaps) oder durch starke Wirbelströmungen im Nachlauf der Blasen erklärt werden. Die lokalen Blasen scheinen jeden abgelösten Partikel tatsächlich „berührt“ zu haben. Das heißt, ein Überstreichen der Gas-Flüssigkeitsgrenzfläche scheint hier ablösendes Moment zu sein, wenn von Jets abgesehen wird.

Kapitel 4

Vielblasensonolumineszenz

4.1. Hintergrund/Idee

Um Sonolumineszenz in Wasser räumlich aufzunehmen, wird in den meisten Fällen über mehrere tausend Zyklen gemittelt, da das Emissionssignal sehr schwach ist. Durch diese Mittelung geht die Information über den Verlauf der Emission innerhalb eines akustischen Zyklus verloren und eventuelles sequentielles Aufleuchten an verschiedenen Orten kann nicht aufgelöst werden. Die Leuchtintensität kann durch Gassättigung mit Xenon oder durch das Hinzufügen von Luminol oder SDS verstärkt werden [112]. Das hellste erreichbare Lumineszenzsignal kann in mit Xenon gesättigter Schwefelsäure erzeugt werden [87].

Für Einzelblasen ist bekannt, zu welchem Zeitpunkt die Lichtemission stattfindet und wie lange sie in etwa dauert. Die Lichtemission erfolgt bei minimaler Blasengröße und dauert zwischen 50 und 300 ps in Wasser [100, 101], bzw. je nach Konzentration zwischen 600 ps und 4 ns in Schwefelsäure [140, 141]. Für ein System, das aus vielen Blasen besteht ist die Emission zeitlich und räumlich verteilt, da viele Blasen unterschiedlicher Größe an unterschiedlichen Positionen im Schallfeld existieren, die nicht alle zur gleichen Zeit kollabieren. Dennoch ergeben sich räumliche und zeitliche Muster bzw. Regelmäßigkeiten. Für ein Stehwellenfeld lassen sich z. B. durch zeitgemittelte Aufnahmen die Druckbäuche sichtbar machen, da nur in der Umgebung der Wechseldruckmaxima die Blasenschwingungen hinreichend stark verlaufen. Zeitlich gesehen sollten benachbarte Druckbäuche abwechselnd „blinken“. In einer gedämpften laufenden Welle sollten bei einer Zeitmittelung alle Bereiche leuchten, wobei die Intensität mit größerem Abstand zum Wandler abnimmt, da die Druckamplitude und damit die Blasenschwingungen mit Fortschreiten der Welle geringer werden. Durch räumliche Aufnahmen des zeitlichen Verlaufs lässt sich das abwechselnde Aufleuchten benachbarter Druckbäuche in einer Stehwelle aufnehmen und die Dauer der Lichtemission in einzelnen Bereichen in der Struktur bestimmen. Bei einer Zeitmittelung des SL-Signals ei-

ner laufenden Welle würde sich eine fortschreitende Front des Leuchtens ergeben.

Eine zusätzliche Auflösung des optischen Spektrums könnte noch weitere Informationen, z. B. über die Temperatur der Blasen geben, woraus sich Rückschlüsse auf die Art des Blasenkollaps ziehen ließen. Bei einem sphärischen Kollaps ist im Allgemeinen eine höhere Kollapstemperatur als beim asphärischen Kollaps zu erwarten [109]. Ebenso ergibt sich eine höhere Temperatur für Blasen mit einer höheren Radiuskompressionsrate R_{\max}/R_{\min} . Daraus ergibt sich im Spektrum ein höherer Anteil von blau für die „heißeren“ und ein höherer Anteil von rot für die „kälteren“ Blasen. Des Weiteren könnten auch Informationen darüber gewonnen werden, welche Blasen zuerst kollabieren und welche später - was in einem Feld mit vielen Blasen, die sich gegenseitig beeinflussen, nicht trivial ist. Generell sollten Blasen, die nicht so weit durch das Schallfeld aufgezogen werden und eine geringere Endtemperatur erlangen, früher kollabieren, als Blasen die weiter aufgezogen werden und dementsprechend stärker kollabieren, wodurch höhere Endtemperaturen erreicht werden können. Über Kavitationsstrukturen mit verschiedenen Bereichen, die in unterschiedlichen Farben emittieren, wurde u. a. von Sunartio et al. [112] für SDS-Luminol-Mischungen und von Xu et al. [114] für gelöstes Natriumsulfat in Schwefelsäure sowie für gelöstes Natriumphosphat in Phosphorsäure berichtet.

Erste Aufnahmen zur zeit- und orts aufgelösten SL haben Ohl et al. 1996 vorgestellt [142]. Dabei wurde eine Streamerstruktur mit einer zeitlichen Auflösungsgrenze von 300 ns untersucht. Allerdings betrug die Belichtungszeit pro Bild 60 s. Mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Aufbau kann die Belichtungszeit pro Bild auf maximal 1 s verkürzt werden. Die hier präsentierten Messungen erreichen eine untere zeitliche Auflösungsgrenze von 100 ns und bilden aus dem sichtbaren Licht drei 100 nm breite spektrale Bereiche ab. Diese Einteilung ist ein Kompromiss zwischen hoher spektraler Auflösung und erhaltenem Licht pro Spektralbereich. Da der Anteil des aufnehmbaren Lichts durch eine Verkleinerung des spektralen Bereichs immer geringer wird, müssen längere Aufnahmezeiten verwendet werden. Dies erhöht aber das Risiko, dass sich die Kavitationsstruktur während der Aufnahmezeit verändert.

In den folgenden Abschnitten wird das Sonolumineszenz- bzw. Sonochemolumineszenzsignal von vier unterschiedlichen, mit Xenon gesättigten, wässrigen Flüssigkeiten, bei einer Anregungsfrequenz von 370 kHz, in einer speziellen Küvette untersucht. Dafür werden zeitlich gemittelte Aufnahmen mit einer Farbkamera, zeitlich gemittelte farbaufgelöste Aufnahmen sowie orts-, zeit- und farbaufgelöste Aufnahmen gemacht. Um die Kavitationsstruktur und das Schallfeld besser zu charakterisieren, wird weiterhin das akustische Spektrum und die akustisch induzierte Flüssigkeitsströmung bestimmt sowie mit Hochgeschwindigkeitsaufnahmen

die Bewegung der Kavitationsblasen verfolgt. Abschließend wird eine weitere Kavitationsstruktur in Xenon gesättigter Schwefelsäure, mit gelöstem Natriumsulfat, bei einer Anregungsfrequenz von 23 kHz untersucht. Für diese Struktur wird versucht, eine Korrelation zwischen den farblich unterschiedlichen Sonolumineszenzbereichen und dem Kollapsverhalten der Kavitationsblasen herzustellen.

4.2. Aufbau

Der Versuchsaufbau ist schematisch in Abb. 4.1 gezeigt. Für die Aufnahmen sind eine lichtempfindliche EMCCD Kamera (iXon^{EM} DV 885, Andor) und eine Bildverstärkereinheit (IRO, Intensified Relay Optics, La Vision) hintereinander geschaltet. Die IRO ist an eine Steuerungseinheit angeschlossen, an der die Belichtungs- und Verzögerungszeit eingestellt werden können. Diese ist wiederum mit der Kamerasteuerungseinheit verbunden. Die EMCCD-Kamera ist mit einem PC und ebenfalls mit der Kamerasteuerungseinheit verbunden. Zur spektralen Einteilung kann zusätzlich ein Filtrerrad mit sechs Positionen verwendet werden, welches wiederum mit einer Steuerbox verbunden ist. Eine schaltbare Halogenlampe sorgt für genügend Licht bei Kalibrier- und Streulichtaufnahmen.

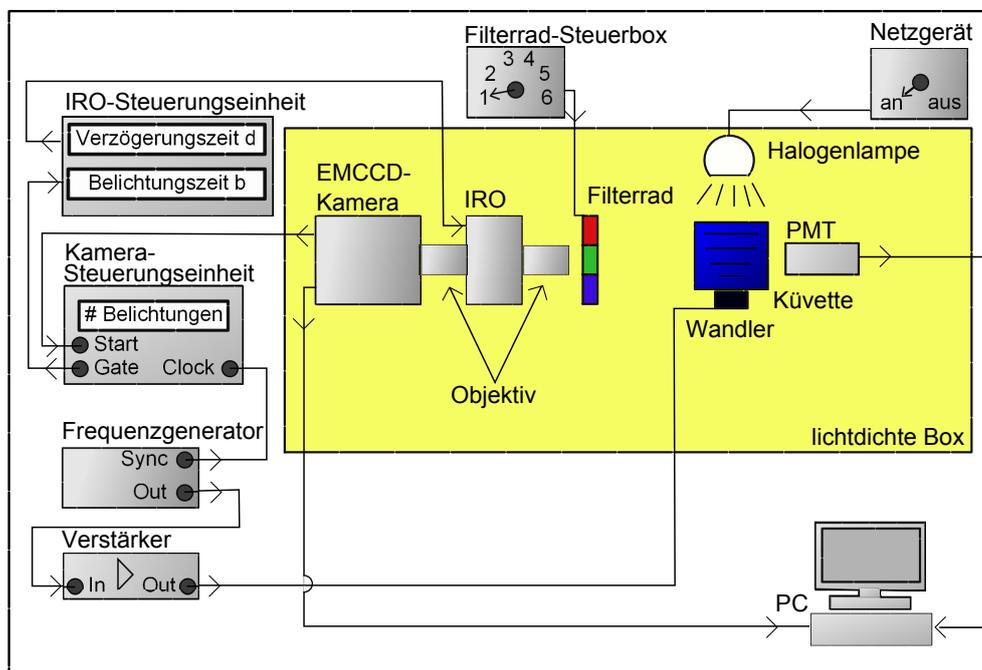


Abbildung 4.1.: Schematischer Versuchsaufbau zur Aufnahme von orts-, zeit- und farbaufgelöster SL. Erläuterungen siehe Text.

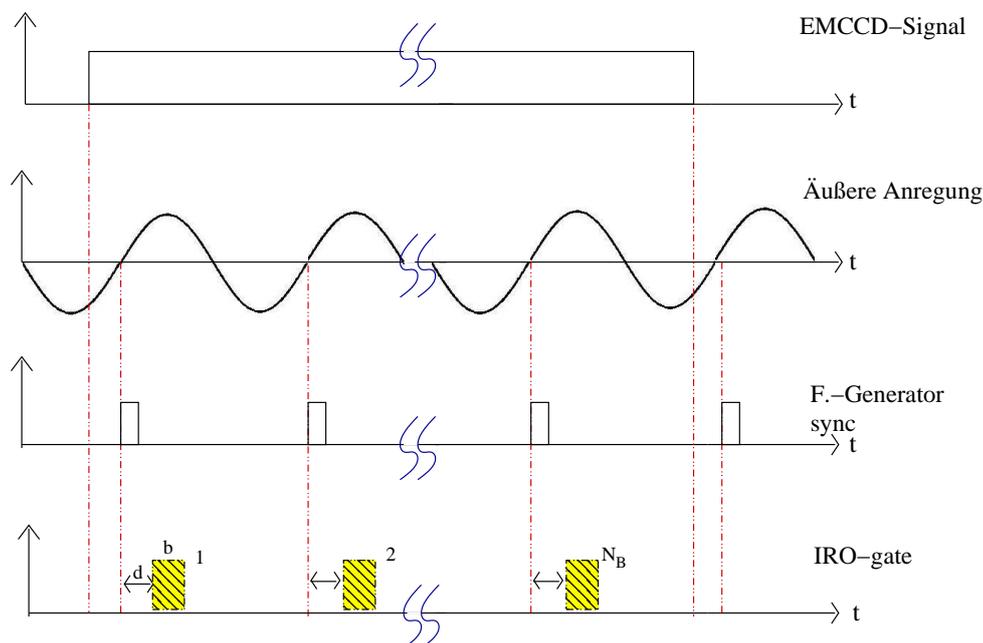


Abbildung 4.2.: Schematische Zeichnung des Kameratriggers. Erläuterungen siehe Text.

Ein Photomultiplier ist so positioniert, dass die Intensität des Lumineszenzsignals während den Messungen überprüft werden kann. Der gesamte Versuchsaufbau ist lichtdicht gekapselt. Alle Geräte lassen sich von außerhalb der Box steuern. Vor dem Filtrerrad wird die Küvette so positioniert, dass die zu untersuchende Struktur den Bildausschnitt der Kamera komplett ausfüllt.

Die Steuerung der IRO und der Kamera ist schematisch in Abb. 4.2 dargestellt. Sobald der Kamerashutter geöffnet wird, bekommt die IRO einen Trigger-Puls bei jedem von negativ nach positiv wechselndem Nulldurchgang der anregenden sinusförmigen Spannung, die am Piezokristall angelegt ist. Die IRO hat ihrerseits eine Steuerung, an der eine Verzögerungszeit (0-99 999 ns) und eine Belichtungszeit (100-99 999 ns) eingestellt werden kann. Die IRO besteht im Wesentlichen aus einer Photokathode, einer Multikanalplatte (multi channel plate, MCP) und einem Phosphorschirm. Das einfallende Licht wird auf der Photokathode in Elektronen umgewandelt, die durch eine anlegbare und einstellbare Hochspannung (IRO-Gain 0-10) durch die MCP weitergeleitet und vervielfacht werden können. Die Elektronen treffen auf den Phosphorschirm, auf dem sie dann wieder in Photonen umgewandelt werden. Auf diese Weise wird das einfallende Licht verstärkt und die räumliche Auflösung bleibt erhalten. Das einfallende Licht wird dementsprechend nur an die Kamera weitergeleitet, wenn die IRO auch belichtet (also

Hochspannung anliegt). Die nachgeschaltete EMCCD-Kamera integriert zeitlich über alle IRO-Belichtungen, solange ihr Shutter geöffnet bleibt. So kann durch die Kopplung an die Anregungsphase immer das selbe Fenster von minimal 100 ns über N_B Perioden akkumuliert werden, bis die Leuchtstruktur sichtbar wird. Um die vollständige Periode mit den kleinstmöglichen Zeitintervallen abzudecken, sind $T/100$ ns (wobei T die Periodendauer ist) Aufnahmen notwendig. Dabei wird die Verzögerungszeit für jede weitere Aufnahme um 100 ns erhöht.

Für die im folgenden Abschnitt gezeigten Aufnahmen wird eine $5\text{ cm} \times 5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ Quarz-Küvette benutzt (siehe Anhang C.1). Von den verwendeten Flüssigkeiten, die durch 30-minütiges Durchströmen mit Xenon gesättigt werden, werden immer 100 ml in die Küvette gefüllt und mit einem Teflondeckel abgedeckt.

4.3. Bearbeitungsverfahren

Die orts-, zeit- und farbaufgelösten Sonolumineszenzaufnahmen werden alle auf die gleiche Weise bearbeitet (siehe Abb. 4.3). Für drei verschiedene Bandpassfilter (rot: $650\text{ nm} < \lambda < 750\text{ nm}$, grün: $550\text{ nm} < \lambda < 650\text{ nm}$, blau: $450\text{ nm} < \lambda < 550\text{ nm}$) wird jeweils eine Serie mit $N_B \times 100$ ns Belichtungszeit aufgenommen. Die einzelnen Serien, die vom Kameraprogramm aus Rohdaten in Graustufen umgewandelt vorliegen, werden anschließend bearbeitet, um das Hintergrundrauschen der Kamera zu minimieren. Des Weiteren werden die Bilder invertiert und in den Farbbezeichnungen der Filter koloriert. Die drei einzelnen Filme werden im letzten Schritt übereinander gelegt, so dass in einem Bild die Information der drei Filterkanäle gleichzeitig vorliegt. Dabei bedeuten die farbigen Bereiche Emission in dem jeweiligen Kanal, wie oben beschrieben, und weiße Bereiche keine Lichtemission. In dunklen Bereichen emittieren alle drei Kanäle. Die weiter unten gezeigten Grafiken mit der Einheit Intensität I_{ph} werden aus den Rohdaten der EMCCD-Kamera durch Abzug des Hintergrunds und den entsprechenden Korrekturfaktoren für die die Photonenzahl verändernden Komponenten im Aufbau erstellt. Eine detaillierte Beschreibung hierzu ist im Anhang B zu finden.

4.4. Untersuchungen von Wasser und Luminol-Lösung

Als erstes werden die Lumineszenzstrukturen in reinem Wasser mit denen in 0,01 mM wässriger Luminol-Lösung mit 0,25 mM NaOH in reinem Wasser vergli-

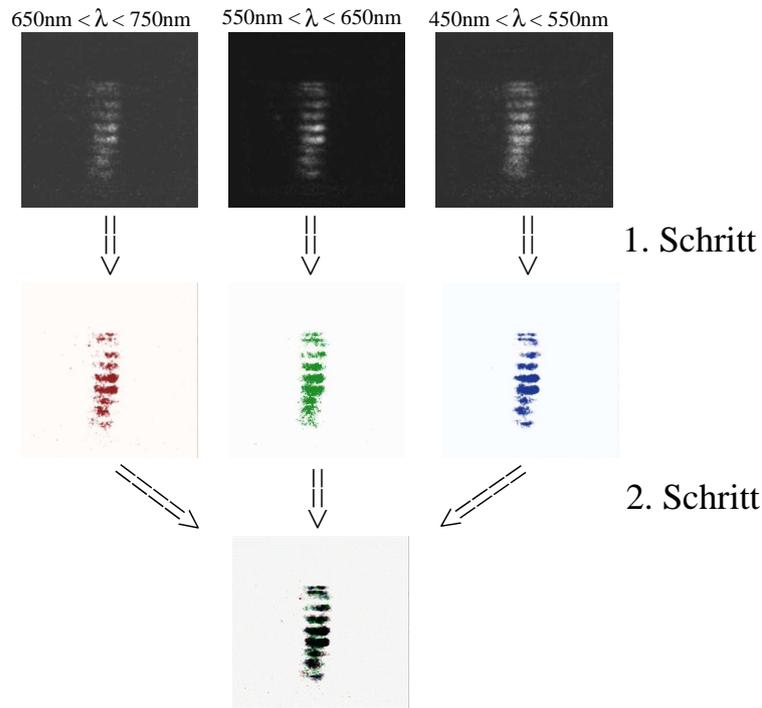


Abbildung 4.3.: Bearbeitungsverfahren für die Entstehung der farbigen SL-Filme. Aus drei Graustufen-Aufnahmen der EMCCD-Kamera mit den Bandpassfiltern entsteht durch Invertierung, Kontrasterhöhung und Kolorierung ein Film in dem alle Filterkanäle gleichzeitig verfolgt werden können. Weiß bedeutet im sich ergebenden Film keine Lichtemission und rot, grün sowie blau entspricht einer Lichtemission in dem entsprechend bezeichneten Wellenlängenbereich der Filter.

chen. Dabei wird im Folgenden für reines Wasser synonym Wasser verwendet. Reines Wasser bedeutet hier gefiltertes, deionisiertes Wasser¹. Die Luminol-Lösung wird im Folgenden nur Luminol genannt. Als Küvette wird eine quadratische Quarzküvette mit einer Innenkantenlänge von 5 cm verwendet, mit einer an ihrem Boden angeklebten Piezoscheibe (Details siehe Anhang C.1). Die Frequenz wird bei beiden Flüssigkeiten im Bereich von 370 kHz gewählt. Die exakte Frequenz wird jeweils so eingestellt, dass die Gesamtlichtintensität, gemessen mit dem Photomultiplier in der Box, ein Maximum erreicht. Dabei ergeben sich Anregungsfrequenzschwankungen von maximal 3%. Die angelegte Spannung beträgt jeweils 140 V.

¹ Die Filtergröße beträgt hier $0,22\ \mu\text{m}$ und die Leitfähigkeit $0,1\ \mu\text{S}/\text{cm}$.

4.4.1. Langzeitaufnahmen mit einer Farbkamera

Um einen Eindruck von der Lichtemissionsstruktur und den emittierten Farben zu erhalten, werden zeitgemittelte Aufnahmen mit einer digitalen Spiegelreflexkamera gemacht (Canon EOS 500 D). Die Aufnahmen für Wasser und Luminol sind in Abb. 4.4 gezeigt. Bei beiden Aufnahmen sind leicht gebogene horizontale Linien zu sehen, die einen durch das Stehwellenfeld verursachten Abstand von einer halben Wellenlänge (2 mm) aufweisen. Die dunklen Bereiche zwischen den Lichtemissionen stellen die Druckknoten dar, in denen kein Licht emittiert wird. In der Mitte direkt über dem Wandler ist die Struktur heller als an den Rändern, was entweder durch die höhere Anzahl an Blasen hintereinander zu erklären ist oder dadurch, dass die Blasen in der Mitte einen höheren Wechseldruck erfahren und somit heftiger kollabieren, wodurch mehr Licht emittiert wird. Die Lumineszenzfarbe im Wasser ist weiß bis leicht blau und konzentriert sich auf die Mitte der Küvette. Bei Luminol hingegen ist die Emissionsfarbe zum Blauen hin verschoben und das Emissionsgebiet ist in Richtung der Ränder der Küvette breiter ausgedehnt. Die Licht emittierende Zone ist bei Luminol größer als bei Wasser und die Struktur deutlich heller. Aufgrund der Reflexionen der Emissionsstruktur sind die Küvettenwände und der Teflondeckel zu sehen.

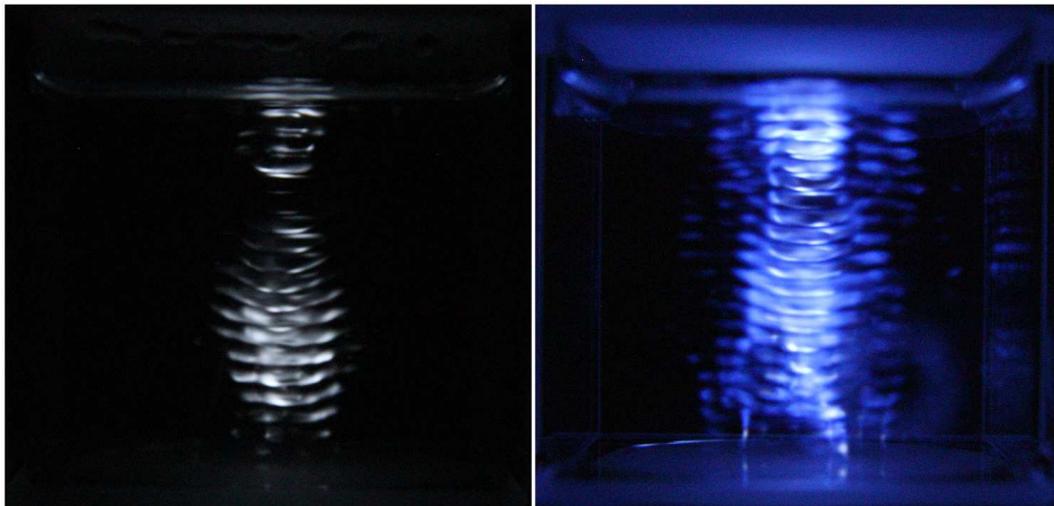


Abbildung 4.4.: Zeitgemittelte Aufnahmen der Sonolumineszenz und der Sonochemolumineszenz mit einer digitalen Farb-Spiegelreflexkamera. Die Belichtungszeit beträgt jeweils 5 Minuten und die Bildbreite 5 cm. Links: Wasser. Rechts: Luminol.

4.4.2. Zeitgemittelte Aufnahmen in den einzelnen Farben

Die über mehrere Perioden ($N_B = 366\,000$ für Wasser, $N_B = 184\,000$ für Luminol) gemittelte Intensitätsverteilung der Lumineszenz der drei Filterkanäle ist in Abb. 4.5 gezeigt. Zum Vergleich ist auch eine Aufnahme ohne Filter gezeigt. Sämtliche Aufnahmen werden mit der iXon EMCCD-Kamera durchgeführt. Für Wasser ergibt sich bei den einzelnen Farben eine Steigerung der Intensität von rot über grün zu blau. Die Leuchtstruktur an sich ist in allen vier Fällen gleich. Die geringste Intensität ist für den roten Filterkanal sichtbar. Für Luminol ergibt sich eine ähnliche Intensitätsverteilung, wobei blau aber stark überbetont ist. Die gesamte Leuchtstruktur wird im Wesentlichen im blauen Filterkanal abgebildet. Beim roten und grünen Filterkanal ist die Struktur auf die Mitte beschränkt und die Intensität ist wesentlich schwächer, wobei der rote Kanal noch schwächer als der grüne Kanal zu sehen ist. Im Vergleich sind die Intensitäten von Wasser und Luminol für den roten und grünen Filterkanal ähnlich, beim blauen Filterkanal ergibt sich hingegen ein deutlicher Unterschied. Dabei ist die Belichtungszeit von Wasser doppelt so lang wie die von Luminol.

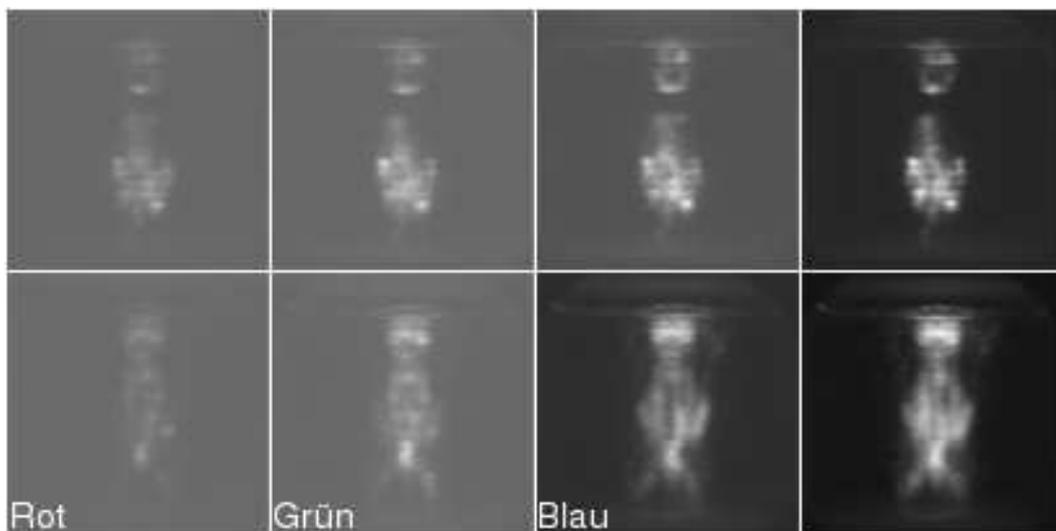


Abbildung 4.5.: Zeitgemittelte EMCCD-Aufnahmen der Sonolumineszenz und Sonochemolumineszenz für die drei Filterkanäle und eine Aufnahme ohne Filter. Oben: Wasser. Unten: Luminol. Die Bildbreite beträgt 5 cm und die Belichtungszeit pro Aufnahme 1 s für Wasser und 0,5 s für Luminol.

4.4.3. Raum-, zeit- und farbaufgelöste Aufnahmen

Für Wasser und Luminol wird die raum-, zeit- und farbaufgelöste Lichtverteilung der Kavitationsstruktur aufgenommen. Das Ergebnis ist in Abb. 4.6 gezeigt, wobei die einzelnen Farbkanäle übereinander gelegt sind. Die 27 Bilder für Wasser, bzw. 26 Bilder für Luminol decken jeweils eine akustische Anregungsperiode ab. Für Wasser ergibt sich ein Intensitätsmaximum in den ersten Bildern mit einem anschließenden Minimum (Bild 6), gefolgt von einem weiteren Anstieg (Maximum bei Bild 16) und einem anschließendem Rückgang. Zu bemerken ist die Homogenität in allen Farben. Gibt es an einer Position in der Struktur eine Lichtemission, so sind alle drei Kanäle vorhanden. Die Leuchtbereiche in den beiden Zeitspannen starker Intensität (Bild 1-10 und 13-24) sind unterschiedlich. In einer stehenden Welle sind benachbarte Druckbäuche in der Phase um π verschoben. Der Zeitpunkt des Blasenkollapses ist demnach auch um eine halbe Periode verschoben. Im ersten Bereich der maximalen Intensität leuchtet nur jeder zweite Druckbauch. Im zweiten Bereich maximaler Intensität leuchten alle Druckbäuche, in denen vorher keine Emission zu sehen war. Dadurch ergibt sich im zeitlichen Ablauf ein abwechselndes Aufleuchten benachbarter Druckbäuche.

Für Luminol sieht der zeitliche Verlauf des Leuchtens anders aus. Zu jeder Zeit ist mindestens im blauen Filterkanal ein Signal zu erkennen. Für den roten und grünen Filterkanal ergibt sich ein ähnliches abwechselndes Aufleuchten der Druckbäuche wie bei Wasser. Für diese beiden Kanäle ist eine Emission von Bild 1 bis 7 und von Bild 15 bis 20 zu sehen, sofern der unterste Punkt der Struktur vernachlässigt wird, da dieser fast durchgehend leuchtet. Die Intensitätsmaxima werden dabei in Bild 5 und 18 erreicht. Das überlagerte Signal im blauen Filterkanal ist auf die zusätzliche Sonochemolumineszenz des Luminols zurückzuführen. Dabei reagiert das Luminolmolekül mit den im Blasenkollaps entstehenden Hydroxyl-Radikalen, geht in einen angeregten Zustand über und emittiert beim Zurückfallen in den Grundzustand ein Photon der Wellenlänge 430 nm. Der genaue Mechanismus ist in Abschnitt 2.4 beschrieben.

4.4.4. Pseudostreaks

Bei einer so genannten „Pseudostreak“-Darstellung wird aus jedem Bild einer Filmsequenz der gleiche schmale Bereich ausgeschnitten und hintereinander zu einem neuen Bild zusammengesetzt. Dadurch lässt sich die Veränderung eines kleinen räumlichen Bereiches zeitlich einfach verfolgen. Ein Pseudostreak aus den Aufnahmen aus Abb. 4.6 mit der gesamten Bildhöhe und einer Breite von 60 Pixeln aus der Bildmitte ist in Abb. 4.7 gezeigt. In vertikaler Richtung wird eine

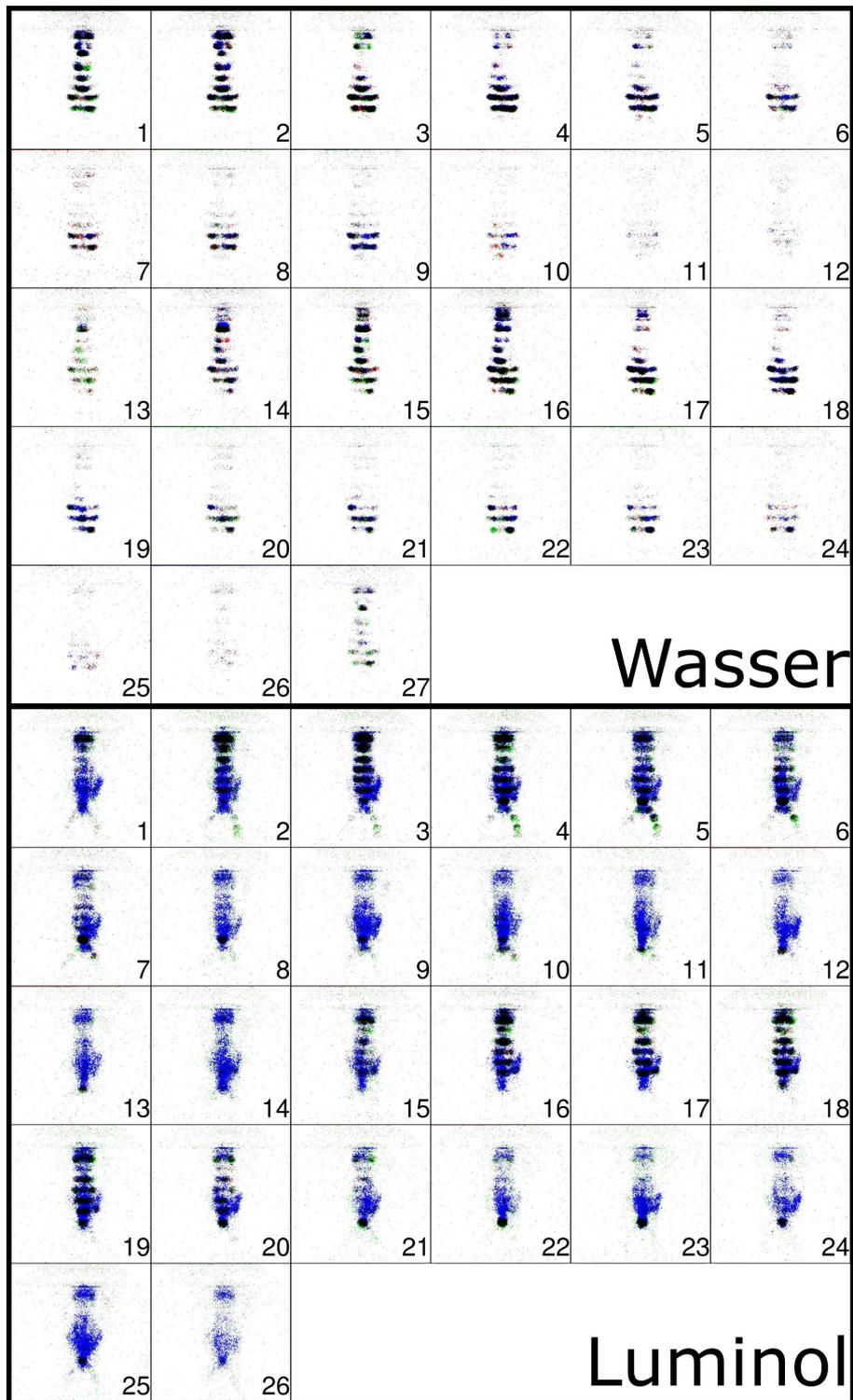


Abbildung 4.6.: Raum- und zeitaufgelöste Farbaufnahme der Sonolumineszenz. Oben: Wasser bei einer Anregungsfrequenz von 363,68 kHz, unten: Luminol bei einer Anregungsfrequenz von 368,94 kHz. Die Spannung beträgt jeweils 140 V. Pro Bild wird ein Zeitbereich von 100 ns der Anregung abgedeckt (Zeitmittelung über $N_B = 293\,000$ Perioden bei Wasser und $N_B = 184\,000$ Perioden bei Luminol). Die Bildbreite beträgt 5 cm.

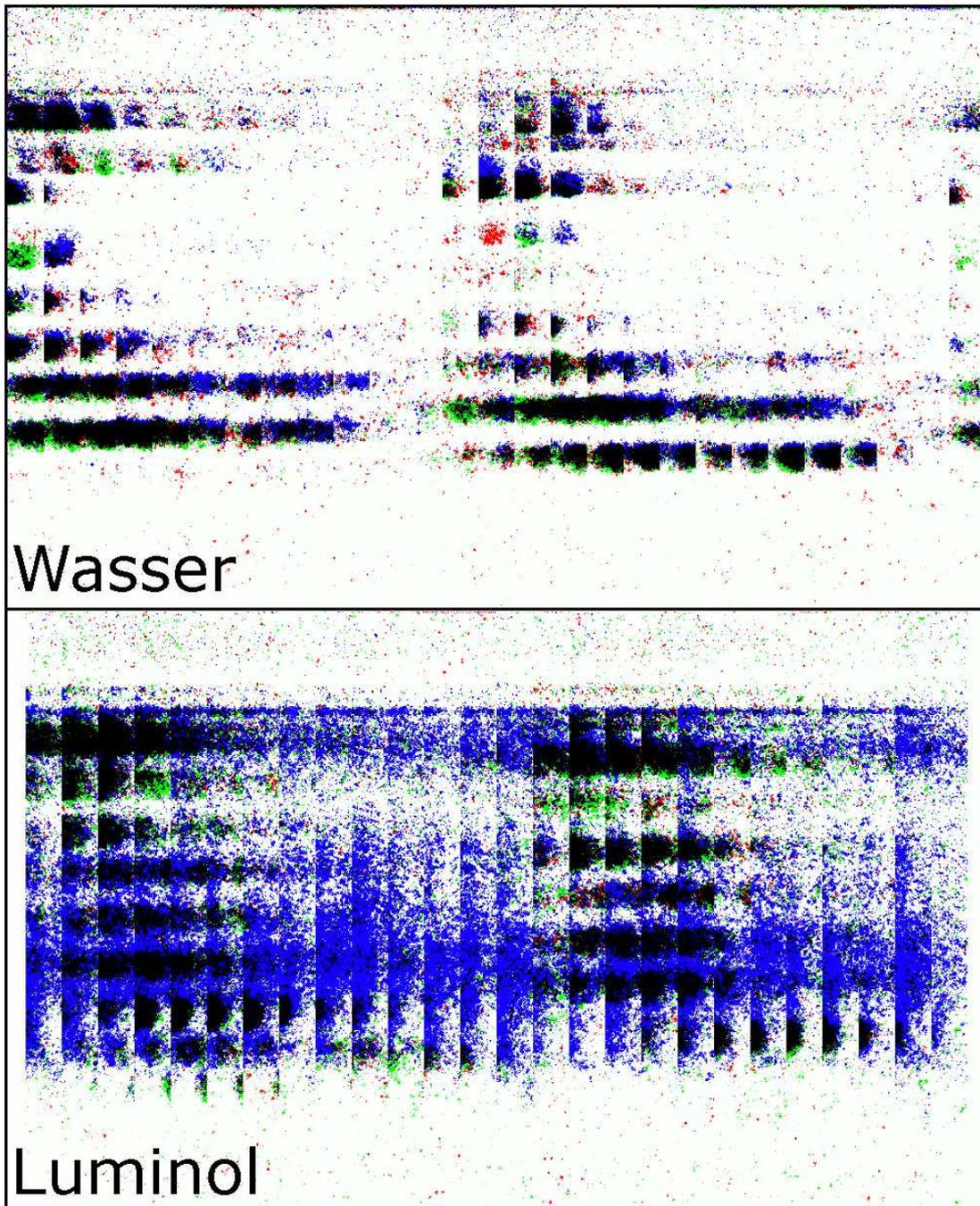


Abbildung 4.7.: Pseudostreaks von Wasser und Luminol. Sie sind aus dem Film in Abb. 4.6 erstellt und zeigen die gesamte Bildhöhe und einen Streifen der Breite von 60 Pixeln aus der Mitte des Bildes. Von links nach rechts ergibt sich so die Zeitachse, die eine akustische Periode abdeckt und in vertikaler Richtung ist die gesamte Küvette zu sehen.

akustische Periode ($= 2,7 \mu\text{s}$) abgedeckt. Für den Pseudostreak von Wasser sind deutlich zwei Zeitbereiche zu erkennen, in denen Licht emittiert wird sowie ebenfalls zwei Zeitbereiche in denen kein Licht zu sehen ist. Die zeitliche Form der Emission ist „zigarrenförmig“, das heißt in der Mitte des Emissionsbereichs fangen die Blasen früher an zu leuchten und hören später auf. Die Blasen am Rand, näher zu den Druckknoten, leuchten nur eine kürzere Zeitspanne. Des Weiteren lässt sich eine leichte Tendenz erkennen, dass jede „Zigarre“ auf der dem Wandler zugewandten Seite mehr grüne Emission und auf der dem Wandler abgewandten Seite mehr blaue Emission zeigt. In dieser Darstellung ist gut zu erkennen, dass die Bereiche, die in der linken Hälfte des Bildes leuchten, anschließend in der rechten Hälfte dunkel bleiben und umgekehrt. Die Bereiche sind also - wie ein Reißverschluss - ineinander greifend. Die Länge der einzelnen Emissionen variiert zwischen 300 ns und 1100 ns. Die längsten Emissionen sind für die unteren Druckbäuche zu sehen. Die Emission bewegt sich dabei mit der Zeit leicht nach oben und geht fast in den zweiten Druckbauch über. Dieses Fortschreiten der Emission spricht für einen höheren Anteil an laufender Welle als im oberen Bereich der Struktur.

Bei dem Luminol-Pseudostreak lässt sich nahezu im gesamten Bereich zwischen oberstem und unterstem Druckbauch sowie zu allen Zeiten eine blaue Emission beobachten. Für den roten und grünen Filterkanal ergeben sich wie bei der Aufnahme von Wasser zwei Zeitbereiche in denen Licht emittiert wird. Die Länge sowie der Beginn und das Ende der zigarrenförmigen Emissionen unterscheiden sich für die unterschiedlichen Druckbäuche nicht so stark wie bei der Wasser-Aufnahme. Bis auf den untersten Druckbauch enden alle anderen Emissionen zur gleichen Zeit und fangen im zweiten Emissionsbereich auch zur gleichen Zeit wieder an. Nur der Beginn im ersten Emissionsbereich variiert für die Druckbäuche. Je näher der Druckbauch am Wandler ist, desto später beginnt er zu leuchten. Die Dauer der Lichtemission in den einzelnen Druckbäuchen liegt im Bereich zwischen 500 ns und 700 ns. Im Unterschied zur Wasser-Aufnahme ergibt sich bei der Luminol-Aufnahme im unteren Bereich der Struktur ein geringerer laufender Wellenanteil.

4.4.5. Globale räumliche Mittel- und Spitzenwerte

Für die einzelnen Bilder des Films kann für jeden Filterkanal eine mittlere räumliche Intensität pro Pixel und Bild sowie der Pixel mit maximaler Intensität pro Bild bestimmt werden. Die Berechnung dieser Zahlen ist im Anhang B zu finden. Das Ergebnis ist in Abb. 4.8 dargestellt. Für Wasser (oben links) ergibt sich für alle drei Filterkanäle der gleiche Verlauf, wobei im roten Kanal die Intensität am

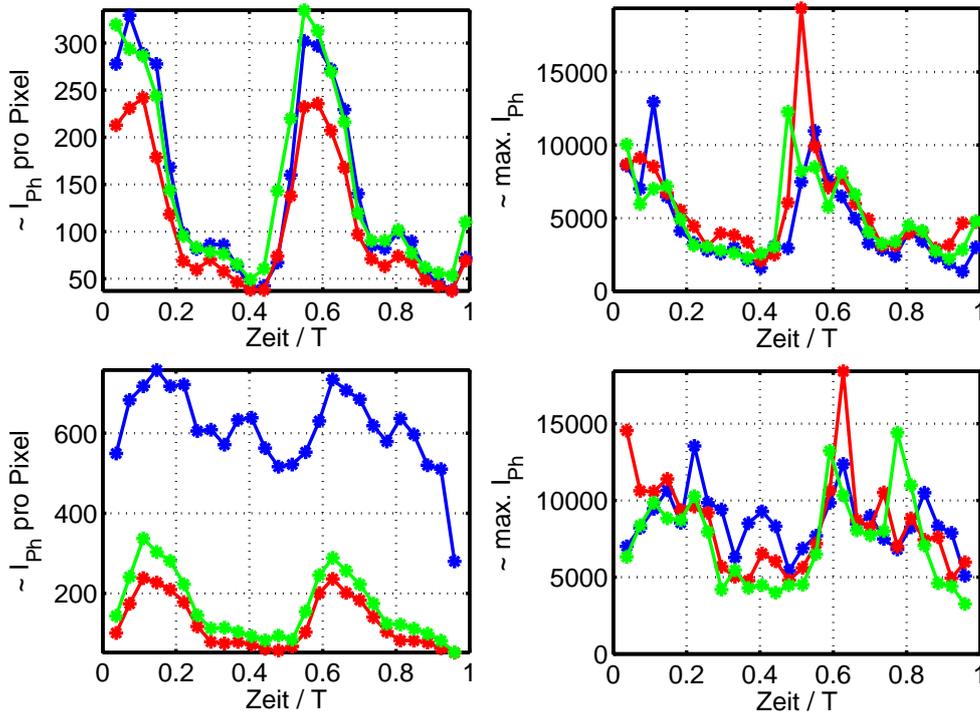


Abbildung 4.8.: Gemittelte Photonenzahl in Counts über die gesamte Struktur (links) und die maximale Intensität (rechts) aufgetragen gegen die mit T normierte Zeit für die drei Filterkanäle. Oben: Wasser, unten: Luminol.

geringsten ist. Der Verlauf der Intensitäten zeigt zwei Maxima, mit einem zusätzlichen kleinen Plateau, bzw. einer „Schulter“, jeweils nach den Maxima. Das erste Maximum liegt bei $0,08T$ und das zweite bei $0,55T$. Die Schultern liegen bei $0,3$ und $0,8T$. Die Differenz zwischen maximalem und minimalem Intensitätswert liegt beim blauen und grünen Filterkanal bei 300 Counts, beim roten bei 220 Counts.

Wird die maximale Intensität pro Bild aufgetragen (oben rechts), so ergibt sich ein ähnlicher Verlauf wie bei der Mittelung über das gesamte Bild. Alle Filterkanäle haben jetzt, bis auf wenige Ausnahmen, noch ähnlichere Werte. Bei $0,1T$ ist die Intensität des blauen Filterkanals deutlich höher als die der anderen beiden Kanäle. Bei $0,48T$ liegt der Wert des grünen Kanals deutlich über den anderen beiden und bei $0,5T$ erreicht der rote Kanal einen fast doppelt so großen Wert.

In der gemittelten Auftragung (unten links) sind bei Luminol ebenfalls zwei Intensitätsmaxima zu erkennen. Der grüne und der rote Filterkanal liegen im

gleichen Intensitätsbereich, wobei der rote Kanal wieder leicht geringere Werte aufweist als der grüne. Der Verlauf des blauen Filterkanals ähnelt dem des roten und grünen, jedoch auf einem Untergrund von 400 bis 500 Counts liegend. Die Differenz von maximalem zu minimalem Intensitätswert liegt in allen drei Kanälen bei etwa 200 Counts. Die Intensitätsmaxima ergeben sich hier bei $0,1$ und $0,65T$. Für den blauen Kanal ergibt sich ein kleinerer Nebenpeak bei $0,4$ und $0,8T$.

In der Auftragung der maximalen Intensitäten (unten rechts) ergibt sich ein anderer Verlauf. Die einzelnen Filterkanäle liegen jetzt wie auch der der Aufnahme von Wasser nah beieinander. Die Intensitätswerte des grünen Kanals liegen bis auf drei Ausnahmen (bei $0,6T$, $0,75T$ und $0,8T$) immer unter den Werten der anderen beiden Kanälen.

Die maximalen Intensitäten für Wasser und Luminol liegen für alle Filterkanäle im selben Wertebereich. Gemessen an einem Pixel sind die Intensitäten der einzelnen Kanäle gleich hell, bei Luminol ist jedoch der emittierende Bereich deutlich größer als bei Wasser. Wahrscheinlich erscheint auch dadurch die Aufnahme von Luminol heller.

4.4.6. Lokaler Signalverlauf

Die räumliche Mittelung der Emissions-Intensität über die gesamte Struktur ist in der Regel nicht identisch mit der Mittelung über kleine lokale Bereiche. In jeder

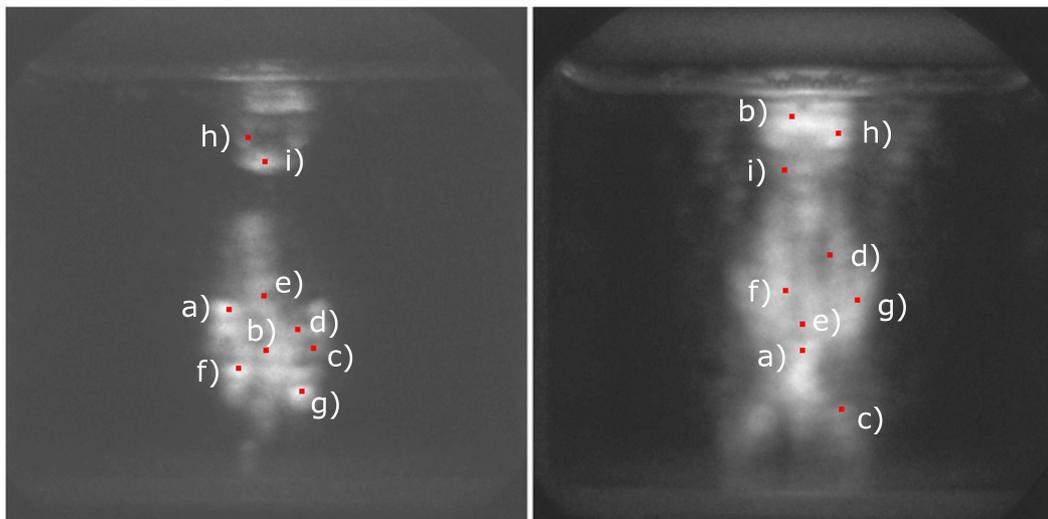


Abbildung 4.9.: Position der lokal gemittelten Bereiche von 10×10 Pixeln in der Struktur in einer zeitgemittelten Aufnahme ohne Filter. Links: Wasser. Rechts: Luminol.

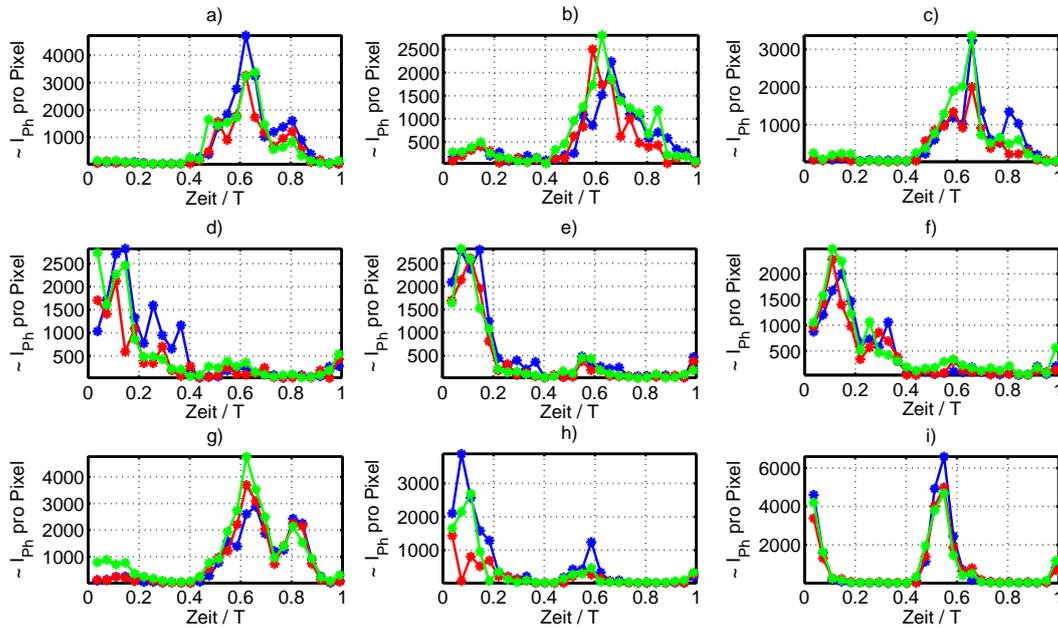


Abbildung 4.10.: Lokal gemittelte räumliche Intensitäten pro Pixel für Wasser in kleinen Bereichen von 10×10 Pixeln aufgetragen gegen die mit T normierte Zeit. Die Position der Bereiche in der Struktur ist in Abb. 4.9 links markiert.

räumlich ausgedehnten Struktur mit mehreren Druckbäuchen gibt es Zonen, die zu unterschiedlichen Zeiten emittieren. In einer Stehwelle schwingen benachbarte Druckbäuche gegenphasig, wodurch sich im zeitlichen Verlauf ein abwechselndes Aufleuchten ergibt. In der räumlichen Mittelung über die gesamte Struktur ergeben sich dann pro Periode zwei Zeitbereiche in denen ein Leuchten auftritt. Werden kleine Zonen betrachtet, kann sich dieser Verlauf ändern. Um diesen Sachverhalt zu demonstrieren und um unterschiedliche Emissionen zu finden, wurden aus der Struktur Bereiche von 10×10 Pixeln (10 Pixel entsprechen $\lambda/8$) ausgewählt, um den lokalen Zeitverlauf der Lumineszenz zu zeigen. Eine Begrenzung auf einen kleineren Bereich würde keine informationsreicheren Ergebnisse liefern, da die Auflösung durch die Größe der MCP begrenzt ist. Eine Auswahl an Verläufen für Wasser ist in Abb. 4.10 gezeigt. Die Positionen der Bereiche sind in Abb. 4.9 links in einer zeitlich gemittelten Aufnahme der Struktur ohne Filter markiert.

Für alle Auftragungen ist die Intensität der einzelnen Filterkanäle ungefähr gleich. Nur in einzelnen Fällen sticht ein Kanal für einzelne Werte heraus. An lokalen Punkten emittieren die unterschiedlichen Wellenlängenbereiche also gleich stark, genau wie in den global gemittelten Auftragungen. In der ersten Zeile sind

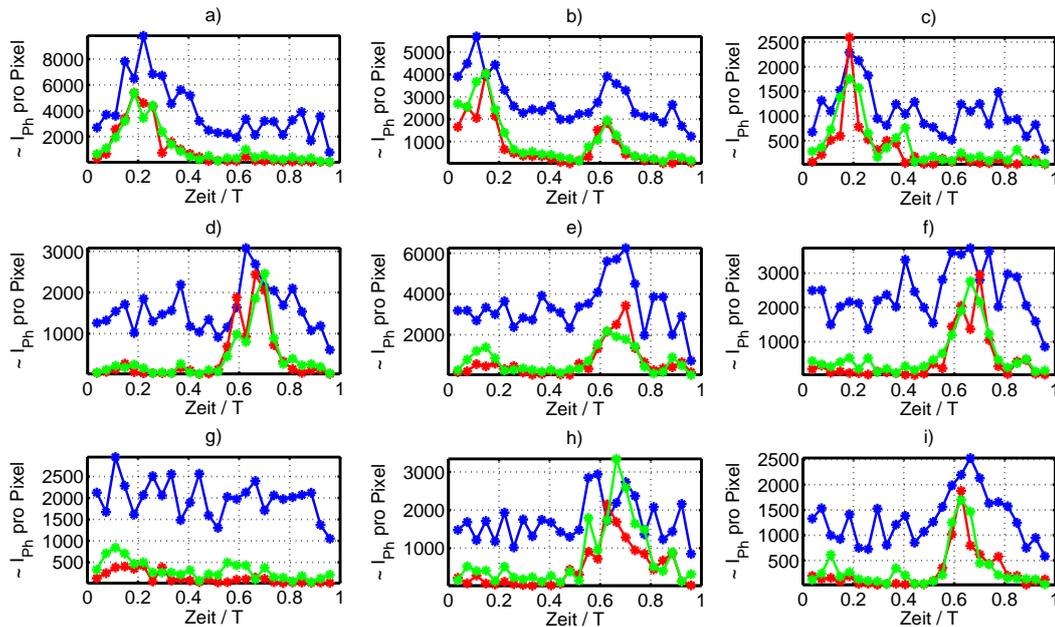


Abbildung 4.11.: Lokal gemittelte räumliche Intensitäten pro Pixel für Luminol in kleinen Bereichen von 10×10 Pixeln aufgetragen gegen die mit T normierte Zeit. Die Position der Bereiche in der Struktur ist in Abb. 4.9 rechts markiert.

Beispiele für in Phase schwingende Druckbäuche gezeigt (Peak bei $0,65 T$). In der zweiten Zeile sind die Intensitätsverläufe aus Druckbäuchen aufgetragen, die eine Phasenverschiebung von π zu den Druckbäuchen in der ersten Zeile aufweisen (Peak bei $0,1 T$). Fast alle Peaks erstrecken sich über die Hälfte der Anregungsperiode, bis auf die Auftragungen e), h) und i). Für einige Auftragungen ist ein Nebenpeak pro Druckknoten zu erkennen (Auftragungen a), c), f) und g)). In den Auftragung h) und i) sind zwei Peaks über den gesamten Verlauf zu erkennen. Das lässt sich dadurch erklären, dass die vertikale Emissionsbreite der Druckbäuche 2 mm beträgt, was $\lambda/2$ entspricht. Zwei benachbarte Druckbäuche verschmieren an den Rändern miteinander. Bei der Betrachtung eines Punktes am Rand des Druckbauches wird auch ein Teil des Signals vom benachbarten Druckbauch mit betrachtet. Der doppelte Peak in den lokalen Mittelungen ist vermutlich durch die Auflösung der Kamera begrenzt. Die maximalen lokal gemittelten Intensitäten schwanken je nach betrachtetem Bereich zwischen 2000 Counts und 6000 Counts.

Eine Auswahl an Verläufen für Luminol ist in Abb. 4.11 zu sehen. Die Orte der lokal gemittelten Bereiche sind in Abb. 4.9 rechts markiert. Bei Luminol sind der Intensitätsverlauf und die Werte für den roten und grünen Filterkanal bis

auf einige Ausnahmen identisch. In der ersten Zeile ist das Intensitätsmaximum bei $0,2T$ zu erkennen, in der zweiten Zeile bei $0,7T$. Weiterhin ist in Auftragung c) und f) ein Nebenpeak bei $0,35T$ bzw. $0,85T$ auszumachen. In Auftragung b) und e) sind zwei Peaks pro Periode zu sehen. Der blaue Filterkanal liegt bei allen Intensitätsverläufen deutlich über dem der anderen beiden Kanäle. Der genaue Abstand zwischen den Verläufen schwankt zwischen 500 Counts und 2000 Counts. Das Signal im blauen Kanal schwankt zu Zeiten geringer Intensitäten stark.

4.4.7. Diskussion

Für Wasser und Luminol ist ein deutlicher Unterschied bei der Sonolumineszenz zu beobachten. Wasser leuchtet abwechselnd lokal in den Druckbäuchen auf und es gibt Phasen, zu denen kein Lichtsignal messbar ist. Das Signal aller drei Filterkanäle ist gleichmäßig stark. Bei Luminol hingegen gibt es zu jeder Phase eine räumlich „verschmierte“ blaue Emission, mit einer zusätzlichen zweimaligen lokalen Aufblinkstruktur in den Druckbäuchen.

Die beim Beschallen von Luminol entstehende verschmierte blaue Emission wird durch Sonochemolumineszenz verursacht. Durch die Reaktion des Luminols mit den beim Blasen kollaps entstehenden OH-Radikalen verändert sich der innere Aufbau des Moleküls und es kann (durch weitere Reaktionen, siehe Abschnitt 2.4) in einen angeregten Zustand übergehen, aus dem es beim Zurückfallen in den Grundzustand ein Photon der Wellenlänge 430 nm (blauer Wellenlängenbereich) aussendet. Diese Reaktion, bzw. Reaktionskette ist viel langsamer als die letzte Phase des Blasen kollapses, bei dem die SL entsteht. Die Zeit zwischen Anregung des Luminols und Emission des Photons liegt im Bereich von Millisekunden. Dies würde erklären, warum das blaue Luminol-Licht zeitlich ständig ausgesandt wird und nicht nur in der kurzen Phase des Kollaps, in der die OH-Radikale entstehen. Wie kommt es aber nun zur räumlichen Verschmierung der blauen Emission? Bei einer maximalen Flüssigkeitsströmung in der Küvette im Bereich von einigen cm/s (siehe hierzu Abschnitt 4.7) kann das angeregte Luminol durch die Strömung die Druckbäuche nicht verlassen (Reichweite $< \frac{\lambda}{10}$). Die Blasen in der Flüssigkeit bewegen sich allerdings deutlich schneller, mit Geschwindigkeiten bis zu einigen m/s (siehe hierzu Abschnitt 4.8). Womöglich werden die angeregten Luminolmoleküle von den Blasen mitgerissen oder haften an deren Oberflächen, wodurch auch eine Emission in den Druckknoten entsteht, wenn sich die Blasen dort hin bewegen und die Leuchtstruktur verschmiert wird.

Luminol wird von einigen Autoren als Tracer für Kavitation verwendet (siehe z. B. [143]). Dieses Kriterium sollte jedoch für niedrigere Frequenzen gelten, bei denen die Wellenlänge größer ist. Nur dann ist ein Verschmieren der Druckbäu-

che mit den Druckknoten gewährleistet. Bei ähnlichen Versuchen, die hier nicht gezeigt sind, konnte in einer anderen Zelle bei 200 kHz kein Verschmieren der Druckknoten festgestellt werden.

4.5. Untersuchungen mit SDS-Lösungen

Es existiert eine Vielzahl an Berichten von beschallten, wässrigen SDS-Lösungen. Ein grundlegender Unterschied zwischen reinem Wasser und SDS-Lösungen in Wasser besteht in der unterschiedlichen Oberflächenspannung. Für 10 mM SDS ist die Oberflächenspannung etwa halb so groß wie die von Wasser. Auf die Blasenoszillationen hat dies zwar nur einen geringen Einfluss (siehe Abschnitt 2.1.5), wohl aber auf die Blasenentstehung und die Blasenzusammenschlüsse und somit auf die vorhandenen Blasenradien. Für die Lumineszenzintensität spielt zudem die Konzentration eine wichtige Rolle. Eine Verwendung von etwa 1 mM ergibt die hellsten Emissionen. Dabei ist eine leichte Abhängigkeit von der Frequenz zu beobachten [144, 145]. Im Vergleich zu Wasser sind die entstehenden Blasen beim Beschallen deutlich kleiner. Eine mögliche Erklärung für diesen Effekt ist die Anlagerung des hydrophoben SDS-Endes an die Blasen. Die negativen, hydrophilen Enden ragen dann in die Flüssigkeit hinein und die Blasen stoßen sich gegenseitig aufgrund der gleichen Oberflächenladung ab, wodurch ein Zusammenschließen zu größeren Blasen verhindert wird [67, 146]. Durch dieses „Entclustern“ wird der Blaskollaps wieder sphärischer und die SL-Intensität steigt. Bei 10 mM ist die kritische Mizellenkonzentration erreicht und dieser Effekt wird durch die weiteren in der Flüssigkeit frei beweglichen SDS-Moleküle wieder aufgehoben. Die Blasenradien steigen wieder an und die SL-Intensität sinkt.

4.5.1. Langzeitaufnahmen mit einer Farbkamera

Bei Zugabe von SDS in die Flüssigkeit können zusätzliche rötliche Lumineszenzbereiche beobachtet werden, die offenbar durch Na^* -Emission entstehen. Die zeitlich gemittelten Aufnahmen mit einer digitalen Spiegelreflexkamera von 1 mM und 10 mM SDS in Wasser sind in Abb. 4.12 gezeigt. Die Lumineszenzstruktur ähnelt der von Wasser und Luminol, mit leicht gebogenen horizontalen Emissionsstreifen, die größtenteils durch dunkle Bereiche getrennt sind. Das Schallfeld wird offensichtlich durch eine Änderung der Oberflächenspannung nicht bedeutend beeinflusst. Am Rande der Struktur lassen sich für beide Konzentrationen orange-rote Emissionen erkennen. Diese Bereiche sind bei 10 mM breiter und stärker getrennt von der weißen Emission in der Mitte der Struktur, als bei 1 mM. Bedingt durch die Geometrie von Küvette und Wandler, sollte das Schallfeld -

und damit die Emissionsstruktur - achsensymmetrisch sein. Wird die Struktur von oben betrachtet, sollte sich ein orange-roter Ring um einen weißen runden Bereich in der Mitte ergeben. Es überrascht daher nicht, dass in der Seitenansicht auch orange-rote Emissionen im weißen Emissionsbereich vorkommen. Während sich die weiße Emission auf die Mitte der Struktur direkt über dem Wandler beschränkt, ist die orange-rote Struktur nicht direkt über dem Wandler, sondern etwas weiter entfernt von der Symmetrieachse zu sehen. Die orange-roten Bereiche sind im äußeren Bereich der Struktur in der Aufnahme besser zu erkennen, da dort ausschließlich orange-rote Emission auftritt. In der Mitte der Struktur wird die orange-rote Emission von der helleren weißen Emission überlagert und kann lediglich an einigen Stellen hervortreten.

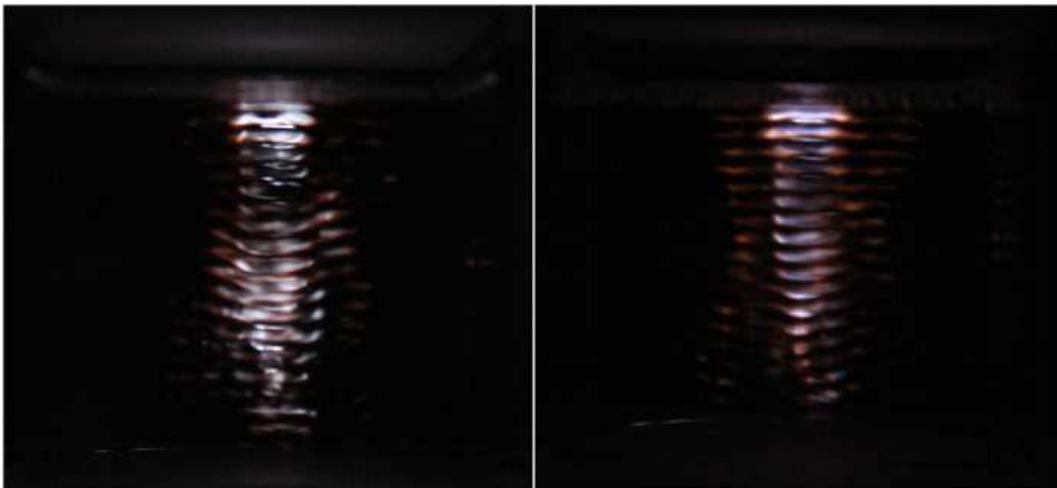


Abbildung 4.12.: Zeitgemittelte Aufnahmen der Sonolumineszenz mit einer digitalen Farb-Spiegelreflexkamera. Die Belichtungszeit beträgt jeweils 5 Minuten und die Bildbreite 5 cm. Links: 1 mM SDS. Rechts: 10 mM SDS.

4.5.2. Zeitgemittelte Aufnahmen in den einzelnen Farben

Die über mehrere Perioden gemittelte Intensitätsverteilung ($N_B = 185\,000$ Perioden für 1 mM SDS und $N_B = 370\,000$ für 10 mM SDS) der Lumineszenz für die drei Filterkanäle ist in Abb. 4.13 gezeigt. Zum Vergleich ist eine Aufnahme ohne Filter dargestellt. Für alle Aufnahmen wird die iXon EMCCD-Kamera verwendet. Für 1 mM SDS (oben) ergibt sich in allen drei Kanälen und ohne Filter die gleiche Lumineszenzform. Für die Intensitäten zeigt sich eine Steigerung der Intensität von rot über grün zu blau, wie es auch bei Wasser zu beobachten ist. Bei

10 mM SDS (unten) ergibt sich für den grünen Filterkanal eine andere Form der Struktur. Während die Form beim roten und blauen Kanal eine schmale Trichterform beschreibt, die auf die Küvettenmitte begrenzt ist, ergibt sich beim grünen Kanal eine deutlich breitere Struktur und ein stärkerer Kontrast. Zu beachten ist aber, dass die Na^{*}-Linien bei diesem Aufbau in den grünen Filterkanal fallen und nicht in den roten. Die gleiche Form ist bei der Aufnahme ohne Filter zu erkennen, bei der die breitere Struktur schwach zu erkennen ist. Der verbreiterte Emissionsbereich, der im grünen Kanal sichtbar ist, wird in der Aufnahme ohne Filter durch die hellere Emission in der Mitte der Struktur im Kontrast geschwächt. Der Verlauf der Intensitäten für 10 mM SDS ergibt sich als Anstieg von rot über blau zu grün.

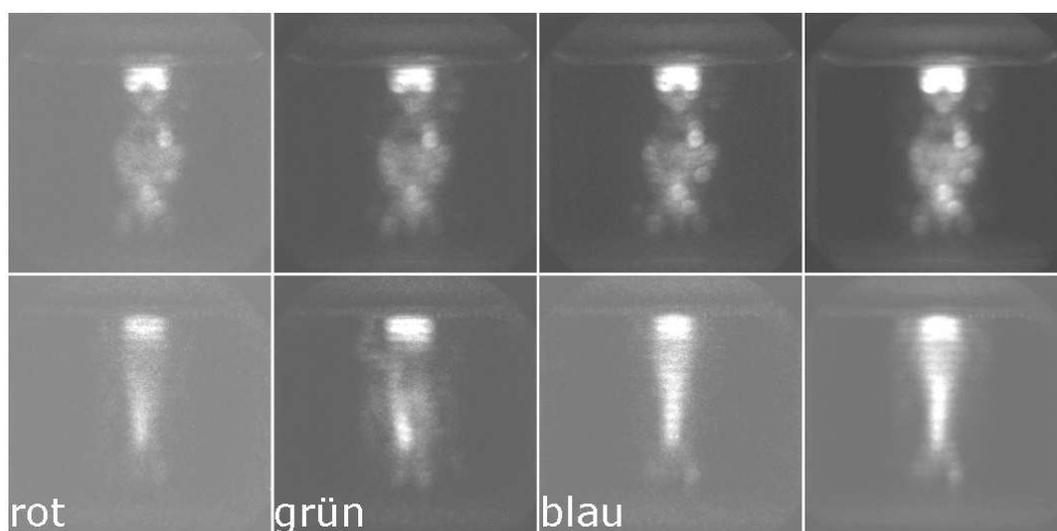


Abbildung 4.13.: Zeitgemittelte EMCCD-Aufnahmen der Sonolumineszenz für die drei Filterkanäle und eine Aufnahme ohne Filter. Oben: 1 mM SDS. Unten: 10 mM SDS. Die Bildbreite beträgt 5 cm und die Belichtungszeit pro Aufnahme 0,5 s für 1 mM SDS und 1 s für 10 mM SDS.

4.5.3. Raum-, zeit- und farbaufgelöste Aufnahmen

Für wässrige 1 mM und 10 mM SDS-Lösung wird die Lichtverteilung der Sonolumineszenz in Raum, Zeit und Farbe aufgelöst aufgenommen. Das Ergebnis ist in Abb. 4.14 gezeigt, wobei die Farbkanäle übereinander gelegt sind. Die 26 Bilder für 1 mM SDS, bzw. 27 Bilder für 10 mM SDS decken jeweils eine akustische Anregungsperiode ab. Bei 1 mM SDS (oben) ist kein Bild zu sehen, in dem kein Licht emittiert wird. Demnach gibt es bei jeder Anre-

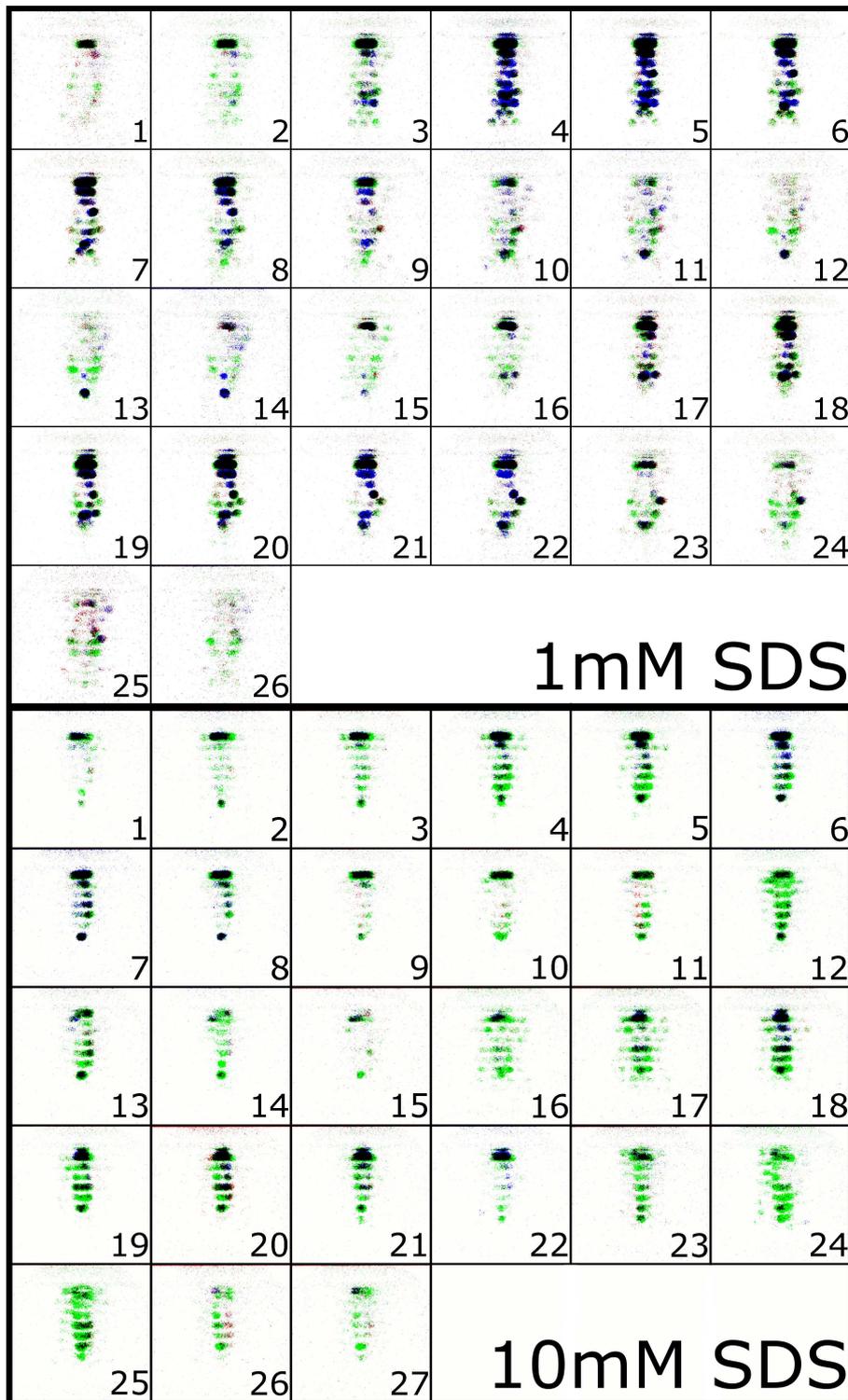


Abbildung 4.14.: Raum- und zeitaufgelöste Farbaufnahmen der Sono-
lumineszenz. Oben: 1 mM SDS bei 369,5 kHz, unten: 10 mM SDS bei
372,38 kHz. Die Spannung beträgt jeweils 140 V. Pro Bild wird ein Zeitbe-
reich von 100 ns der Anregung abgedeckt (Zeitmittelung über $N_B = 554\,000$
Perioden bei 1 mM SDS und $N_B = 372\,000$ bei 10 mM SDS). Die Bildbreite
beträgt 5 cm.

gungsphase ein Lumineszenzsignal. Es lassen sich jedoch zwei zeitliche Bereiche der maximalen Intensität ermitteln. Das erste Maximum ist in Bild 5 und das zweite in Bild 20 zu erkennen. Zwischen diesen Bereichen nimmt die Intensität ab und wieder zu. Die hellste Intensität ist hier im blauen Kanal zu sehen, wohingegen der rote kaum zu sehen ist und der grüne eher schwach verteilt an einzelnen Punkten in den Druckbäuchen emittiert. Von Bild 10 bis 15 leuchtet der unterste Punkt der Struktur, obwohl die anderen Druckbäuche nicht mehr emittieren.

Bei 10 mM SDS (unten) ist der grüne Kanal in allen Bildern dominierend. Auch hier gibt es kein Bild, in dem keine Emission zu sehen ist. Bei dieser Struktur ist ein zweifaches Intensitätsmaximum pro Periode jedoch nicht deutlich zu erkennen. Für den blauen Kanal ergibt sich eine leichte Blinkstruktur mit den Maxima in Bild 7 und 19. Auch der grüne Kanal folgt dieser Intensitätsverteilung, allerdings deutlich schwächer. Der oberste Bereich der Struktur leuchtet während der gesamten Periode. Der rote Kanal ist bei dieser Auftragung fast nicht auszumachen.

4.5.4. Pseudostreaks

Eine „Pseudostreak“-Darstellung für jeweils 1 mM SDS und 10 mM SDS ist in Abb. 4.15 dargestellt. Für 1 mM SDS (oben) ergibt sich bis auf den unteren Teil ein ähnlicher Verlauf wie bei Wasser. Es sind zwei Zeitbereiche in denen Licht emittiert wird zu erkennen. Im unteren Teil der Struktur leuchtet ein Druckbauch einzeln auf, obwohl alle anderen Druckbäuche dunkel bleiben (Beginn bei etwa $\frac{1}{3}T$). Auch in der Streakaufnahme ist die Dominanz des blauen Kanals deutlich zu erkennen. Die Emission im roten Kanal ist fast gar nicht zu sehen, da sie immer nur in den Bereichen auftaucht, in denen auch der blaue Kanal zu sehen ist. Das Signal im grünen Kanal kann hingegen auch an einigen Stellen auftauchen, an denen die anderen beiden Kanäle nicht ausgemacht werden können. In der zweiten Hälfte der Anregungsperiode (rechte Hälfte des Streaks) gibt es einen Druckbauch, in dem nur der grüne und der rote Kanal schwach emittieren. Die Dauer der einzelnen Emissionszonen variiert stark in den einzelnen Druckbäuchen. Die kürzeste Emission ist in der Mitte der Struktur bei 300 ns zu sehen. Die längsten Emissionen dauern 1100 ns, also fast eine halbe Periode.

Bei 10 mM SDS (Abb. 4.15 unten) ergibt sich eine Dominanz im grünen Filterkanal, und wie schon in den Bildern des Hochgeschwindigkeitsfilmes zu sehen war, ergeben sich diesmal nicht so offensichtlich zwei Zeitbereiche maximaler Intensität. Aus den Pseudostreakdarstellungen wird deutlich, dass es ein doppeltes Emissionsmaximum pro Druckbauch gibt, wodurch sich für die gesamte Periode ein vierfaches Aufleuchten ergibt. Dabei ist der Emissionsanteil des blauen Kanals

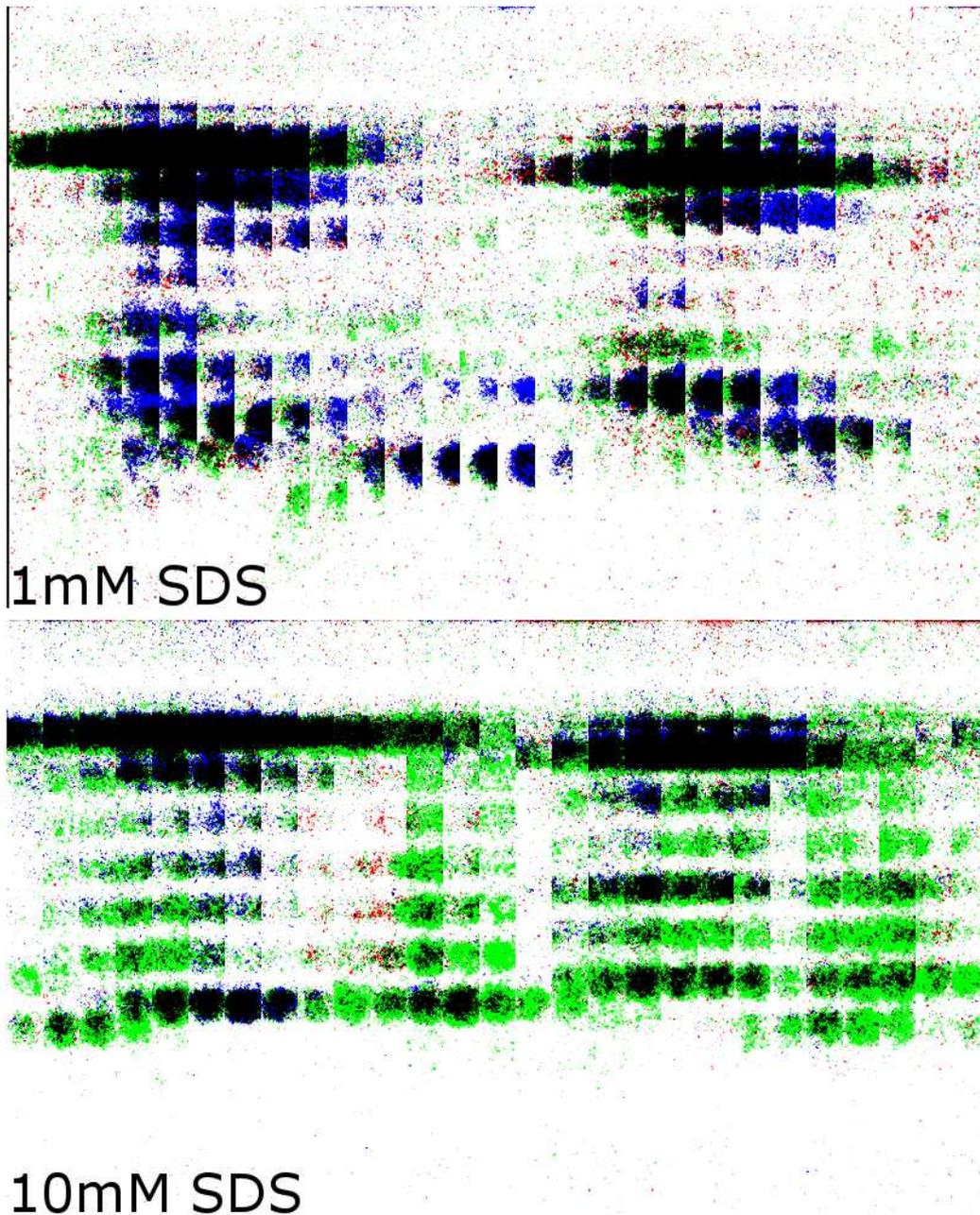


Abbildung 4.15.: Pseudostreaks von 1 mM SDS und 10 mM SDS. Sie sind aus dem Film in Abb. 4.14 mit der gesamten Bildhöhe erstellt und zeigen ein Streifen der Breite von 60 Pixeln aus der Mitte des Bildes. Von links nach rechts ergibt sich so die Zeitachse, die eine akustische Periode abdeckt. In vertikaler Richtung ist ein fester räumlicher Bereich in der Küvette zu sehen.

im zweiten und vierten Intensitätsmaximum deutlich geringer als im ersten und dritten. An dem oberen und am unteren Ende der Struktur geht die Emission vom einen in den anderen Druckbauch über. Hier scheint es (wie bei reinem Wasser) einen größeren Anteil an laufender Welle zu geben. Die zeitliche Länge der einzelnen Emissionszonen lässt sich nur schwer abgrenzen und variiert zwischen 300 und 600 ns.

4.5.5. Globale räumliche Mittel- und Spitzenwerte

Eine Auftragung über die räumlich gemittelte Intensität pro Pixel und Bild sowie der Wert des Pixels mit maximaler Intensität pro Bild ist in Abb. 4.16 gezeigt. Die Berechnung dieser Zahlen ist im Anhang B beschrieben. Für die räumlich gemittelte Intensität von 1 mM SDS (oben links) ergibt sich für alle drei Filterkanäle ein gleichmäßiger Verlauf mit zwei Maxima bei $0,2T$ und $0,7T$. Ein Plateau bzw. eine „Schulter“ ist für den grünen und etwas schwächer für den roten Kanal zwischen $0,3$ und $0,4T$ zu erkennen. Zwischen $0,8$ und $0,9T$ ergibt sich nach dem Intensitätsmaximum ebenfalls eine Schulter. Die Intensität des blauen Kanals ist geringer (im Maximum um ca. 180 Counts) als die vom roten und grünen Kanal, wobei der grüne bis auf sechs Ausnahmen über dem roten liegt. Die Differenz von maximaler und minimaler Intensität liegt beim roten und grünen Kanal bei 700 Counts und beim blauen Kanal bei 500 Counts.

In der Auftragung des Werts der maximalen Intensität pro Bild (oben rechts) ergeben sich die höchsten Werte - bis auf zwei Ausnahmen - für den roten Kanal. Die Werte für den roten und grünen Kanal liegen bis $0,5T$ nah beieinander, danach ist die Intensität für den grünen Kanal etwas geringer. Die Intensität des blauen Kanals liegt auch in dieser Auftragung deutlich unter der der anderen beiden Kanäle.

Für 10 mM SDS ergibt sich ein vierfaches Maximum der räumlich gemittelten Intensität pro Pixel bei $0,2T$, $0,4T$, $0,7T$ und $0,9T$ für den grünen und den roten Kanal. Der blaue Kanal weist nur zwei deutliche Maxima bei $0,2T$ und $0,7T$, bei $0,4T$ und $0,9T$ auf und es ist nur eine leichte Intensitätserhöhung zu erkennen. Die Intensitätsverläufe des roten und des grünen Kanals sind ähnlich, der des blauen ist, bedingt durch das fehlende Doppelmaximum, abweichend. Der grüne Kanal zeigt eine deutlich höhere Intensität als die anderen beiden (im Maximum ca. 250 Counts höher). Die Differenz von maximaler und minimaler Intensität beträgt für den grünen Kanal etwa 200 Counts und für die anderen beiden Kanäle etwa 100 Counts.

In der Auftragung des maximalen Pixelwerts pro Bild (unten rechts) erreicht der grüne Filterkanal - bis auf drei Ausnahmen - die höchsten Intensitäten. Der

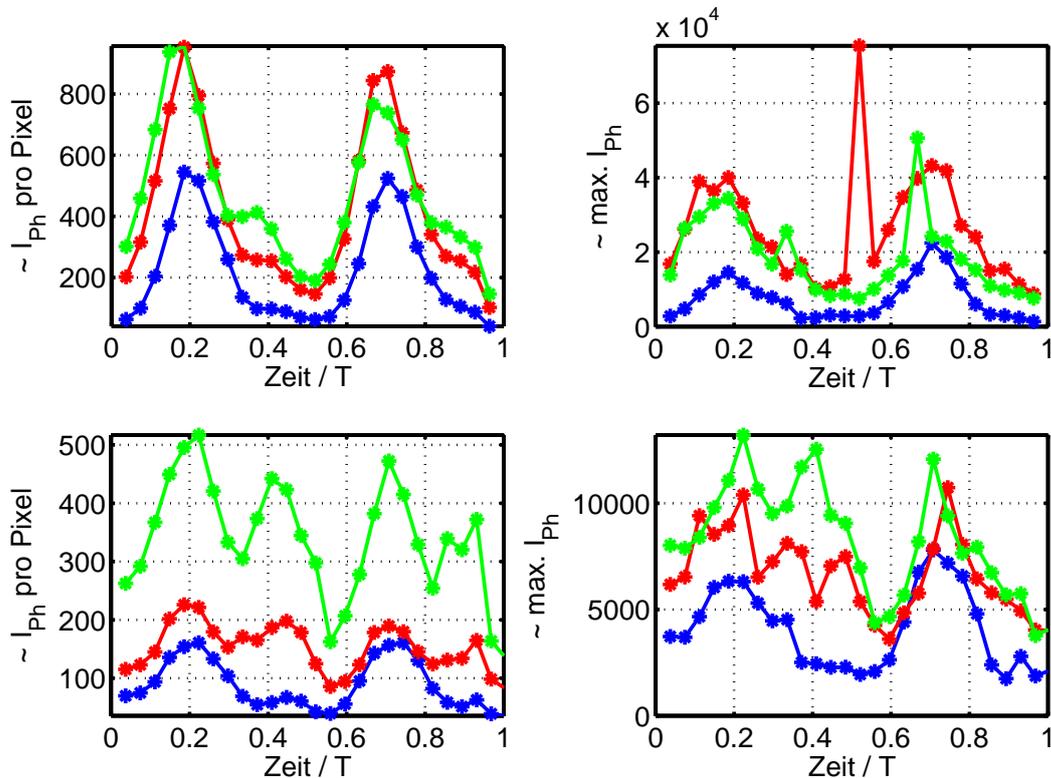


Abbildung 4.16.: Globale räumliche Mittel- (links) und Spitzenwerte (rechts) der Intensität I_{Ph} in Counts aufgetragen gegen die Zeit (normiert mit der Periodendauer T) für die drei Filterkanäle. Oben: 1 mM SDS, unten: 10 mM SDS.

blaue Kanal erreicht - bis auf zwei Ausnahmen - immer niedrigere Werte als der rote. Der Verlauf des blauen Kanals ähnelt mit zwei deutlichen Maxima dem der gemittelten Intensitäten. Für den roten und grünen Kanal ist eine ähnliche Form zu erkennen, bis auf das fehlende vierte Maximum, das bei den maximalen Werten nicht auftritt.

Die Werte des Pixels mit der maximalen Intensität sind für 1 mM SDS etwa 4-mal so hoch als für 10 mM. Die Intensitäten von 10 mM SDS liegen im gleichen Bereich wie die von Wasser und Luminol. Bei 1 mM SDS gibt es demnach Leuchtbereiche, die deutlich heller sind als die der anderen drei betrachteten Fälle. Diese Zonen befinden sich dicht unter der freien Oberfläche (vgl. Abb. 4.17).

Generell stellt sich aus den Ergebnissen der Auftragungen in Abb. 4.16 die Frage, woher überhaupt eine Asymmetrie zwischen dem Verlauf von 0 bis $T/2$ und von $T/2$ bis T kommt (z. B. höhere gemittelte Maxima bei $0,2T$ als bei $0,7T$). Hierbei spielt eine Rolle, dass verschiedene Stehwellen-Druckbäuche unterschied-

lich hell aufleuchten, das Wellenfeld also eine vertikale Modulation aufzuweisen scheint. Außerdem trägt offenbar in der zweiten Halbwelle ein Druckbauch weniger zur Emission bei als in der ersten Halbwelle. Dies wiederum ist Folge der endlichen Küvettenhöhe und des Nahfeldcharakters vor dem Wandler.

4.5.6. Lokaler Signalverlauf

Für die beiden SDS Konzentrationen wurde über kleine räumliche Bereiche von 10×10 Pixeln gemittelt. Die Orte der Mittelungen in der Struktur sind in einer zeitlich und über alle Farben gemittelten Aufnahme in Abb. 4.17 markiert. Die Auftragungen der räumlichen Mittelungen in kleinen Bereichen für 1 mM SDS sind in Abb. 4.18 gezeigt. Die Verläufe sind bei allen drei Filterkanälen bis auf wenige Ausnahmen identisch. Die Auftragungen a) - c) haben alle ein Intensitätshauptmaximum bei $0,2T$ und ein Nebenmaximum bei $0,7T$, dessen Höhe die Hälfte, zwei fünftel bzw. ein viertel der Counts des Hauptmaximums erreicht. Der Zeitpunkt des Nebenmaximums ist bei den Auftragungen a) bis c) im grünen Kanal etwas früher erreicht (ca. $0,05T$) als bei den anderen beiden Filterkanälen. In der zweiten Zeile ist ein deutliches Maximum nur bei $0,7T$ zu erkennen. In der Auftragung d) ist ein Nebenmaximum mit einem sechstel der Intensität des Hauptmaximums bei $0,2T$ zu erkennen. In e) ist ein schwaches zweifaches Maximum mit einem Viertel der Intensität des Hauptmaximums bei $0,2$ und $0,4T$ zu sehen. In Auftragung f) ergibt sich neben dem Hauptmaximum

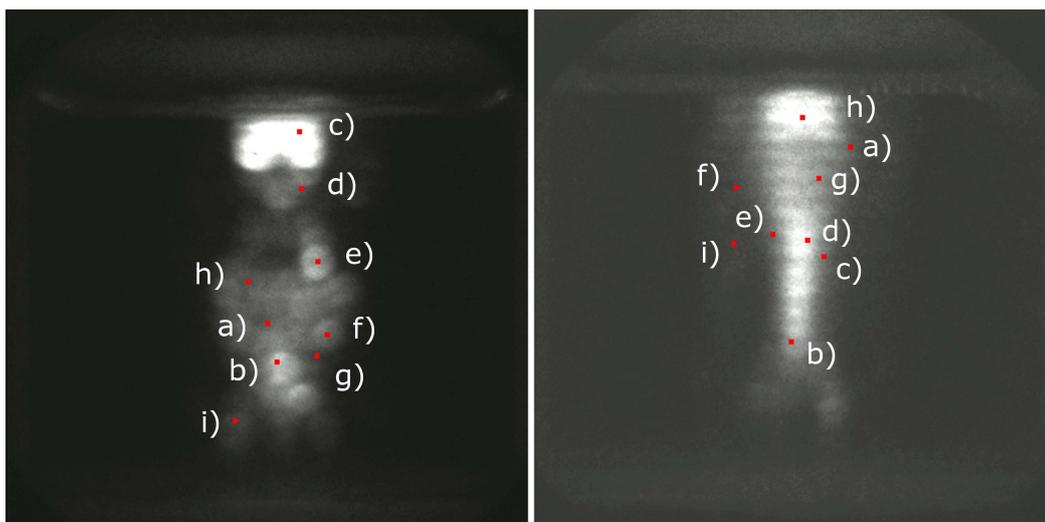


Abbildung 4.17.: Orte der gemittelten räumlichen Bereiche von 10×10 Pixeln in der Struktur in einer zeitgemittelten Aufnahme ohne Filter. Links: 1 mM SDS. Rechts: 10 mM SDS.

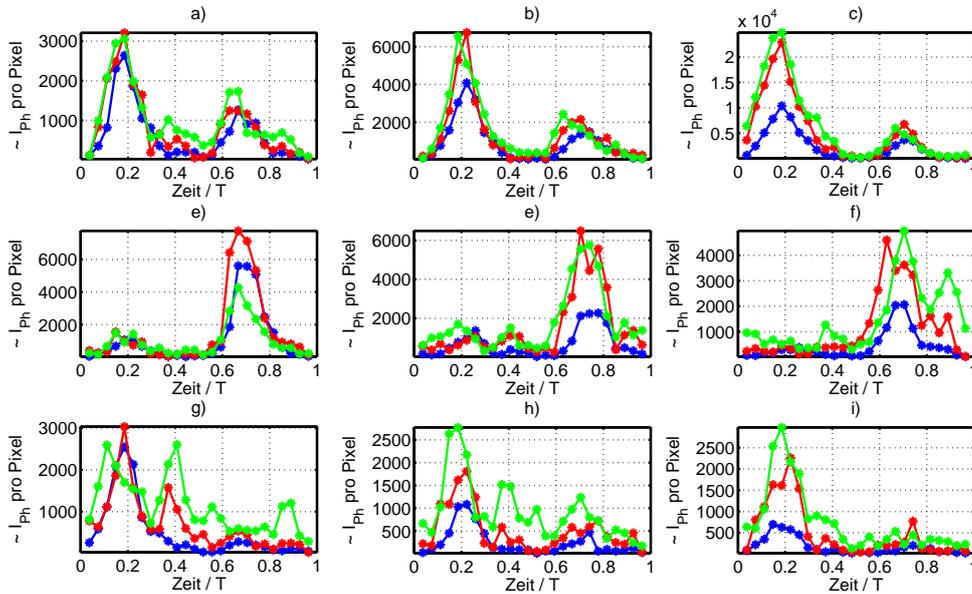


Abbildung 4.18.: Lokal gemittelte Intensität pro Pixel für 1 mM SDS in Bereichen von 10×10 Pixeln aufgetragen gegen die mit T normierte Zeit. Die Positionen in der Struktur sind in Abb. 4.17 markiert.

noch ein Nebenmaximum im roten und grünen Kanal, das bei $0,9 T$ gespalten ist. In der letzten Zeile ergibt sich für alle drei Auftragungen ein Hauptmaximum für den roten und blauen Kanal in der ersten Hälfte bei $0,2 T$. Beim grünen Kanal gibt es in dieser Zeile mehrere Maxima zu unterschiedlichen Zeiten. Die Differenz zwischen maximaler und minimaler Intensität variiert in den Auftragungen zwischen 2500 Counts und 6000 Counts, in der dritten Auftragung beträgt sie 20000 Counts. Die Werte für den blauen Kanal liegen dabei fast überall unter den anderen beiden Kanälen. Es finden sich also Bereiche, in denen im Wesentlichen das Blinken eines Druckbauches abgebildet wird, aber auch solche, in denen ein „Übersprechen“ von benachbarten Druckbäuchen (eventuell auch dahinter liegend) deutlich wird. Nahe am Wandler gibt es auch Punkte mit „verwaschener“ Maxima-Struktur und ohne ausgeprägte Minima, was den laufenden Wellencharakter widerspiegelt.

Eine Auftragung der lokal gemittelten räumlichen Bereiche ist für 10 mM SDS in Abb. 4.19 gezeigt. Hier sind die Signalverläufe der drei Filterkanäle nicht so gleichmäßig, wie sie es in den anderen bereits gezeigten Fällen sind. Die Werte für die Intensität des grünen Kanals dominieren in allen Auftragungen, schwanken jedoch stark. Teilweise ist es schwer, ein gemeinsames Maximum für alle Kanäle zu bestimmen, da die Werte stark schwanken und zu unterschiedlichen Zeitpunkten ihre Maxima erreichen. Die „Schultern“, die bei 1 mM SDS auftreten, erscheinen

größer und bilden zum Teil eigenständige Maxima. Generell scheint das „doppelte Blitzen pro Halbwelle“ stärker ausgeprägt zu sein, und die Intervalle ohne Lichtemission schrumpfen. Die Hauptmaxima erscheinen in den Auftragungen für den grünen Kanal bei $0,2T$, $0,5T$, $0,7T$ und $0,9T$. Nebenmaxima treten in den Auftragungen wie die Hauptmaxima zu unterschiedlichen Zeiten und in unterschiedlicher Anzahl auf. Die beiden anderen Filterkanäle folgen grob dem Verlauf des grünen Kanals, allerdings ohne die vielen Nebenmaxima - bei diesen erscheinen maximal drei Nebenmaxima. Das Verhältnis von maximalem zu minimalem Intensitätswert variiert für 10 mM SDS sehr stark zwischen 800 Counts und 5000 Counts für den grünen, zwischen 500 und 2500 Counts für den roten und zwischen 50 Counts und 4000 Counts für den blauen Kanal. Diese starke Variation existiert einerseits von Auftragung zu Auftragung, andererseits aber auch innerhalb einer einzigen Auftragung.

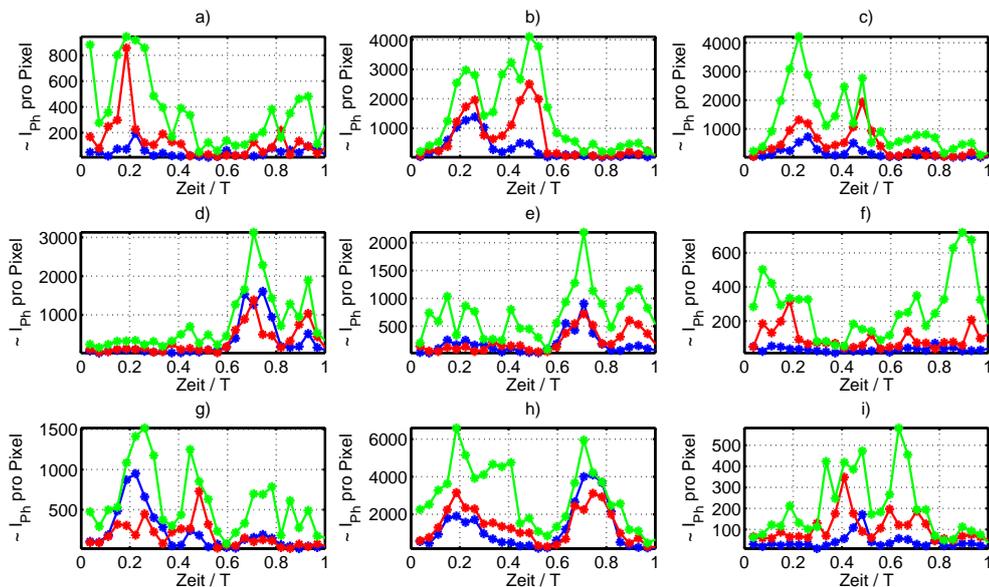


Abbildung 4.19.: Lokal gemittelte Intensität pro Pixel für 10 mM SDS in Bereichen von 10×10 Pixeln aufgetragen gegen die mit T normierte Zeit. Die Positionen in der Struktur sind in Abb. 4.17 markiert.

4.5.7. Diskussion

Die Aufnahmen von 1 mM SDS und 10 mM SDS zeigen deutliche Unterschiede der Emission. Die Emission bei 1 mM SDS ist deutlich heller als bei 10 mM SDS [146]. Allerdings ist der Emissionsanteil des grünen Filterkanals bei 10 mM

dominant. Laut Ashokkumar [144] führt das SDS, das sich an den Blasenoberflächen anlagert, dazu, dass sich die Blasen elektrostatisch abstoßen und so schlechter clustern, wodurch ihr Kollaps sphärischer wird und höhere Temperaturen und damit hellere Emissionen erreicht werden können. Das SDS lagert sich so an den Blasen an, dass der hydrophobe Teil in die Blase hineinreicht und der hydrophile Teil in die Flüssigkeit zeigt. Der hydrophile Teil ist negativ geladen, weshalb sich die Blasen abstoßen. Dieser Effekt des Abstoßens ist am größten bei 1 mM SDS und verliert bei 10 mM SDS seine Wirkung. Bei diesem Wert ist die kritische Mizellenkonzentration erreicht, und die SDS-Moleküle lagern sich nicht mehr nur an den Blasen an, sondern bilden eigene Zusammenschlüsse (Mizellen), um die hydrophoben Enden vom Wasser fernzuhalten. Dadurch wird die elektrostatische Abstoßung der Blasen quasi „kurzgeschlossen“. Die hellere Emission scheint bei 1 mM SDS durch die höhere Sphärizität des Blasen kollaps begünstigt zu sein. Einen geringen Beitrag leistet vermutlich auch die zusätzliche Anregung und Emission des Natriums, da höhere Werte für den grünen Filterkanal gegenüber Wasser gemessen werden konnten. Eine deutlich häufigere Anregung des Natriums konnte in der 10 mM SDS Konzentration festgestellt werden. Dies wurde auch von Sunartio et al. bei der Messung des Spektrums festgestellt [112]. Für 10 mM SDS ist die Natrium-D-Linie deutlich stärker ausgeprägt als bei 1 mM SDS, gleichzeitig ist aber das Kontinuum der SL bei 10 mM eindeutig geringer als bei 1 mM SDS. Das lässt darauf schließen, dass ein sphärischer Kollaps weniger dazu geeignet ist, Natrium anzuregen. Da sich die Blasen in der Flüssigkeit jedoch oft schnell bewegen, ist es schwer vorauszusagen, welche Art des Blasen kollaps (sphärisch oder nicht sphärisch) bei welcher SDS-Konzentration vorherrscht. Die zeitlich gemittelten Aufnahmen lassen darauf schließen, dass die Blasen am Rand der Struktur besser dafür geeignet sind, Natrium-Emission zu erzeugen, als diejenigen Blasen in der Mitte der Struktur.

In der Streakdarstellung und in den Auftragungen für die global gemittelte räumliche Intensität ist für 10 mM SDS ein vierfaches Intensitätsmaximum zu erkennen. Dies lässt sich durch die möglicherweise unterschiedliche Schwingungsform bei 10 mM SDS erklären. Kann die Blasen schwingung der Anregungsfrequenz nicht folgen, sondern schwingt mit einer höheren Periode, so ist es möglich, dass der Zeitpunkt des Kollaps und somit die Lichtemission zu unterschiedlichen Phasen der Anregung erfolgt. Eine weitere Erklärungsmöglichkeit wären zwei unterschiedliche stark schwingende Blasenpopulationen, die aufgrund ihrer unterschiedlichen Radien zu unterschiedlichen Zeiten kollabieren. Leider kann durch den Mittelungsalgorithmus der Aufnahmetechnik nicht geklärt werden, ob die zwei „Blitze“ pro Halbwelle direkt nacheinander durch zwei unterschiedlich kollabierende Blasenpopulationen bzw. Blasen mit Licht emittierendem

Nachschwinger-Kollaps oder ob sie abwechselnd in zwei aufeinander folgenden Anregungsperioden durch periodenverdoppelt schwingende Blasen entstehen.

4.6. Akustisches Spektrum

Das akustische Spektrum von Kavitationsblasensystemen besteht bei hinreichender Wechseldruckamplitude aus einem verrauschten Hintergrund und einzelnen Linien, die eng mit der Anregungsfrequenz f_0 verbunden sind, diese wird auch Fundamentale genannt [147–151]. Die einzelnen Linien bestehen aus den Harmonischen nf_0 ($n = 2, 3, \dots$), den Subharmonischen f_0/m ($m = 2, 3, \dots$) und deren Harmonischen. Die Harmonischen der Subharmonischen werden auch als Ultraharmonische bezeichnet ($\frac{n}{2}f_0$ mit $n = 3, 5, 7, \dots$, $\frac{n}{3}f_0$ mit $n = 4, 7, \dots$ usw.). Die Entstehung der Harmonischen lässt sich auf die Nichtlinearität der Blasenoszillationen zurückführen und das Hintergrundrauschen auf die emittierten Stoßwellen, die beim Blasen kollaps entstehen [151]. Ebenso führen Amplituden- und Phasenschwankungen zu Rauschen [148]. Schwieriger ist hingegen die Erklärung der subharmonischen Linien: Eine Blase in einer Flüssigkeit stellt ein nichtlineares Resonanzsystem dar, das Oszillationen mit der eigenen Resonanzfrequenz f_{res} bei einer Anregungsfrequenz f_0 des Schallfeldes mit $f_{\text{res}} = f_0/m$ ($m = 2, 3, \dots$) ausführen kann. Blasen mit passendem Radius für solche Oszillationen konnten im Experiment von Cramer et al. allerdings nicht gefunden werden [151]. Aus numerischen Simulationen geht allerdings hervor, dass auch bei Blasen, die weit unterhalb ihrer Resonanzfrequenz getrieben werden, Subharmonische im Spektrum entstehen können [152]. Eine Ursache hierfür sind die Periodenverdopplungen bis ins Chaos [153]. Wird das Spektrum für verschiedene Wechseldruckamplituden gemessen, so ergeben sich z. B. mehrere Schwellwerte der Druckamplitude für das Einsetzen der $\frac{1}{2}f_0$ und deren Harmonischen, das Einsetzen der $\frac{1}{3}f_0$ und deren Harmonischen sowie dem Einsetzen von Breitbandrauschen zusammen mit dem Erscheinen von $\frac{1}{4}f_0$ Subharmonischen und deren Harmonischen. Gleichzeitig mit dem Einsetzen des Breitbandrauschens verbreitern sich die spektralen Linien. Diese Veränderung im Spektrum kann als Übergang von „stabil“ zu „instabil“ schwingenden Blasenfeldern betrachtet werden, wobei der Charakter der „Instabilität“ noch zu klären wäre. Die Verbreiterung der Linien ist auf statistische Schwankungen des Kollapszeitpunktes und der Stärke des Kollaps zurückzuführen [151].

4.6.1. Messung des akustischen Spektrums

Mit einem Hydrophon (Reson 3840) und einem Oszilloskop (DPO 7254, Digital Phosphor Oscilloscope, Tektronix) wird das akustische Signal und über eine im Oszilloskop integrierte FFT Funktion das akustische Spektrum gemessen (Abtastrate 40 GS/s, spektrale Breite 5 MHz). Die vier verschiedenen wässrigen Lösungen aus den vorherigen Abschnitten (reines Wasser, 1 mM Luminol in reinem Wasser, 1 mM SDS in reinem Wasser und 10 mM SDS in reinem Wasser) werden bei unterschiedlichen Anregungsspannungen in der ebenfalls vorher verwendeten quaderförmigen Küvette C.1 untersucht. Dafür werden jeweils 100 ml Flüssigkeit mit Xenon gesättigt. Das Hydrophon wird in einer der oberen Ecken der Küvette positioniert, um Blasenbildung am Hydrophon zu minimieren. Das Signal des Hydrophons ist bis zu einer Frequenz von 600 kHz kalibriert, so dass für höhere spektrale Linien nur qualitative Aussagen beim Vergleichen möglich sind. Die Spektren für unterschiedliche Anregungsspannungen sind in den Abb. 4.20 - 4.23 gezeigt. In allen vier Fällen treten gleichzeitig mit der Anhebung des Hinter-

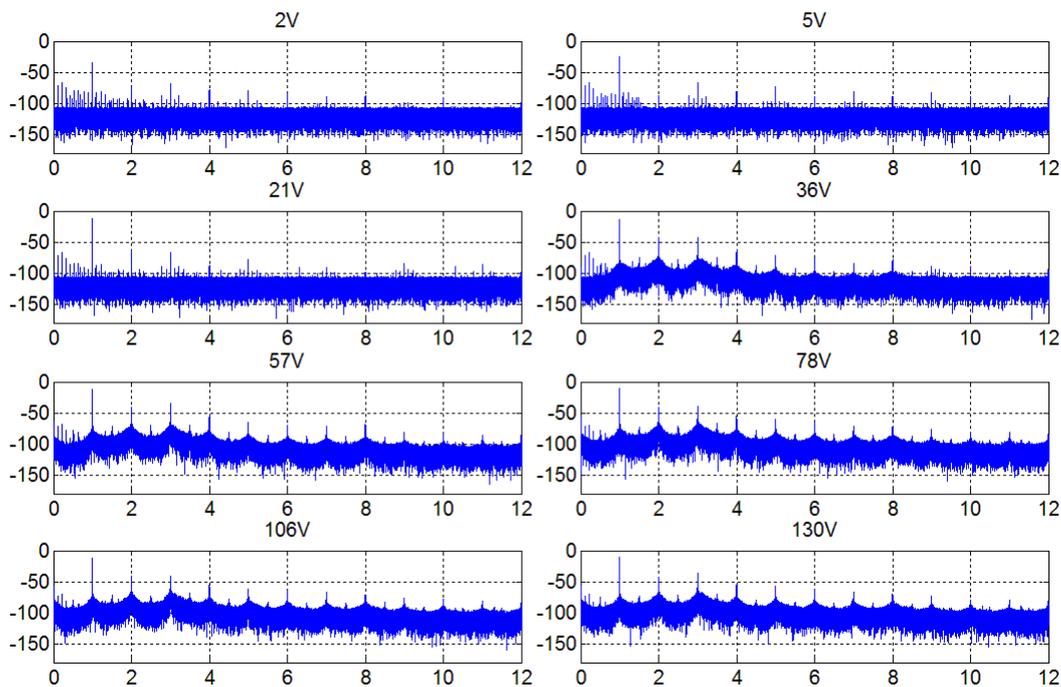


Abbildung 4.20.: Fouriertransformation des Hydrophonsignals für reines Wasser bei verschiedenen Anregungsspannungen. Aufgetragen ist jeweils der dB-Wert gegen die Frequenz, normiert mit der Anregungsfrequenz f/f_0 . Die Anregungsfrequenz f_0 beträgt 366 kHz.

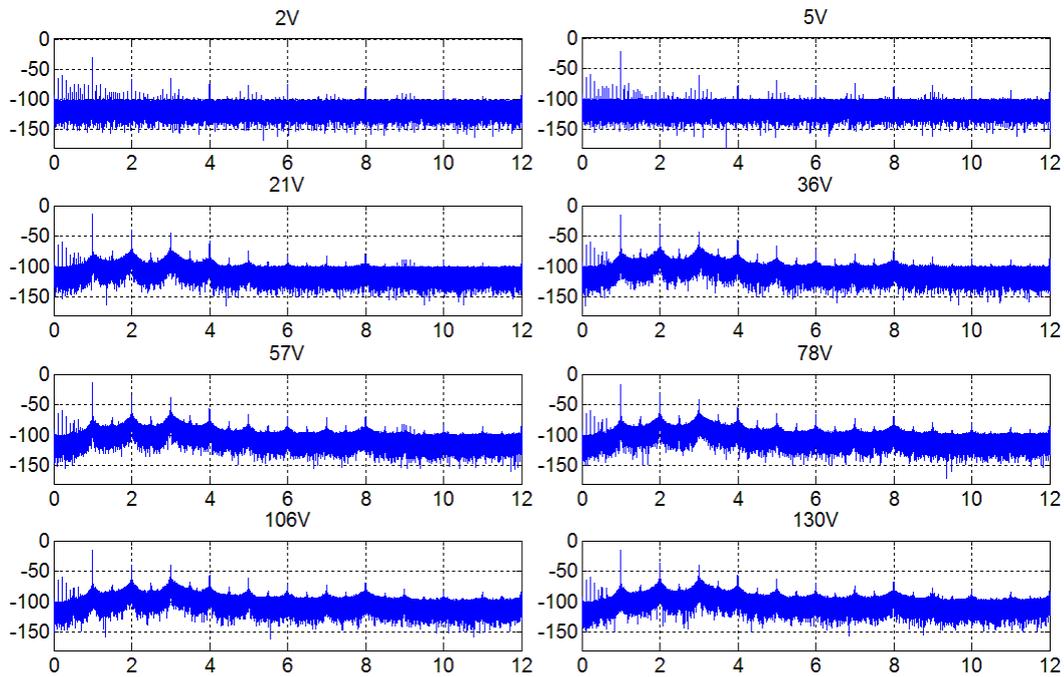


Abbildung 4.21.: Fouriertransformation des Hydrophonsignals für 1 mM Luminol bei verschiedenen Anregungsspannungen. Aufgetragen ist jeweils der dB-Wert gegen die Frequenz, normiert mit der Anregungsfrequenz f/f_0 . Die Anregungsfrequenz f_0 beträgt 368 kHz.

grundrauschens die Ultraharmonischen und die $\frac{1}{2}f_0$ Subharmonische im Spektrum auf. Dieser Sprung, von einem stabil zu instabil oszillierenden Blasenfeld, erfolgt bei Wasser bei 36 V, bei Luminol bei 21 V, bei 1 mM SDS bei 78 V und bei 10 mM SDS bei 57 V der Amplitude der Anregungsspannung am Wandler.

Aus den einzelnen Spektren werden für einige ausgewählte Linien (f_0 , $2f_0$, $11f_0$, $12f_0$, $\frac{1}{2}f_0$, $\frac{3}{2}f_0$, $\frac{5}{2}f_0$) die dB-Werte bestimmt und gegen die Anregungsspannung aufgetragen. Die Werte für die verschiedenen Flüssigkeiten sind in Abb. 4.24 aufgetragen.

Für Wasser ergibt sich der Schwellwert, bei dem die Ultraharmonischen, die Subharmonische sowie das Hintergrundrauschen einsetzen, bei 36 V. Die Fundamentale f_0 steigt nach den ersten drei Spannungserhöhungen stärker und ab 36 V nur noch geringfügig an. Für die zweite Harmonische $2f_0$ sieht der Verlauf ähnlich aus, bis auf die Position des Minimums beim zweiten, anstatt beim ersten Spannungswert. Der Anstieg ist bei niedrigen Spannungen deutlich stärker und ab 36 V erhöht sich der Wert leicht mit einem kleinen Abfall beim letzten Spannungswert. Die Ultraharmonischen $\frac{3}{2}f_0$ und $\frac{5}{2}f_0$ sowie die Subharmonische $\frac{1}{2}f_0$

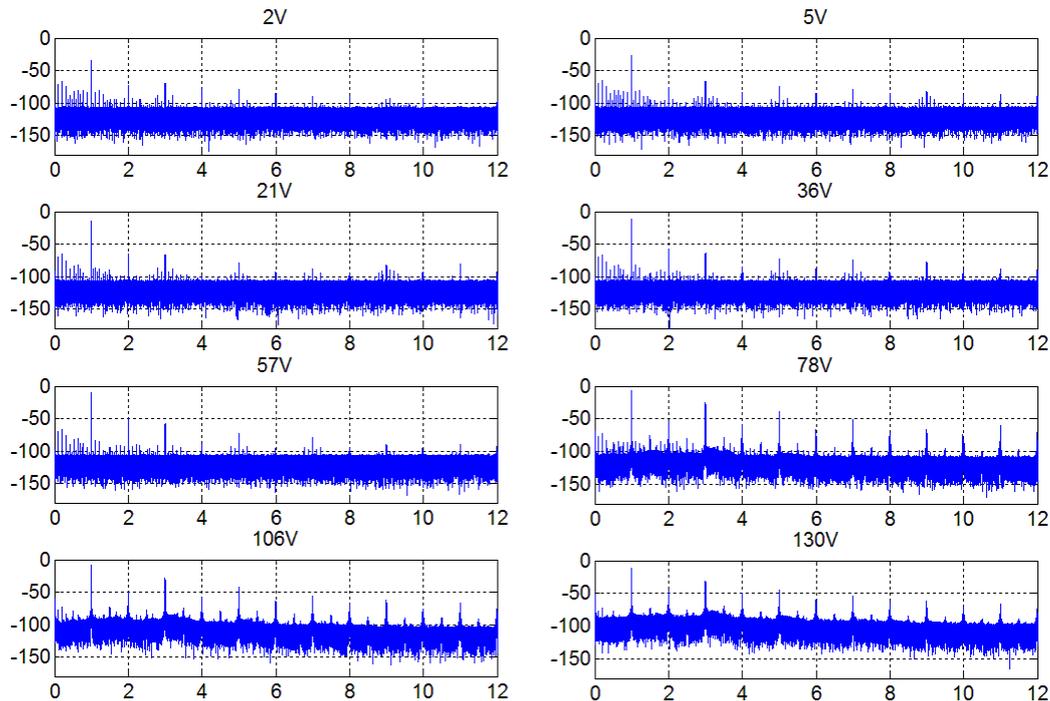


Abbildung 4.22.: Fouriertransformation des Hydrophonsignals für 1 mM SDS bei verschiedenen Anregungsspannungen. Aufgetragen ist jeweils der dB-Wert gegen die Frequenz, normiert mit der Anregungsfrequenz f/f_0 . Die Anregungsfrequenz f_0 beträgt 370 kHz.

bleiben für die ersten drei Spannungen auf einem gleich niedrigen dB-Wert und steigen dann um 35 dB ab 36 V sprunghaft an. Einen maximalen Wert erreichen sie bei 57 V und bleiben dann annähernd konstant. Die höheren Harmonischen $10f_0$ und $11f_0$ erfahren ab 36 V einen leichten Anstieg bis 106 V und sinken dann wieder. Bis 36 V springen die Werte in einem Intervall von 20 dB. Bei der höchsten Spannung von 130 V liegen die Ultraharmonischen, die Subharmonische und die höheren Harmonischen in einem engen Bereich von 15 dB, wobei die Ultraharmonischen die höchsten Werte, die höheren Harmonischen die niedrigsten Werte aufweisen, während die Subharmonische dazwischen liegt. Die zweite Harmonische liegt etwa 30 dB über den Ultraharmonischen und die Fundamentale liegt noch einmal 30 dB über der zweiten Harmonischen.

Bei Luminol tritt der Schwellwert bereits bei 21 V auf (ein Spannungswert früher als bei Wasser). Die erste Harmonische steigt nach den ersten zwei Spannungserhöhungen etwas stärker an und bleibt ab 21 V bei diesem Wert mit einer leicht abfallenden Tendenz. Die zweite Harmonische f_2 steigt bis 21 V ebenfalls stark, bis 78 V leicht an und sinkt bei den höchsten beiden Spannungen wieder

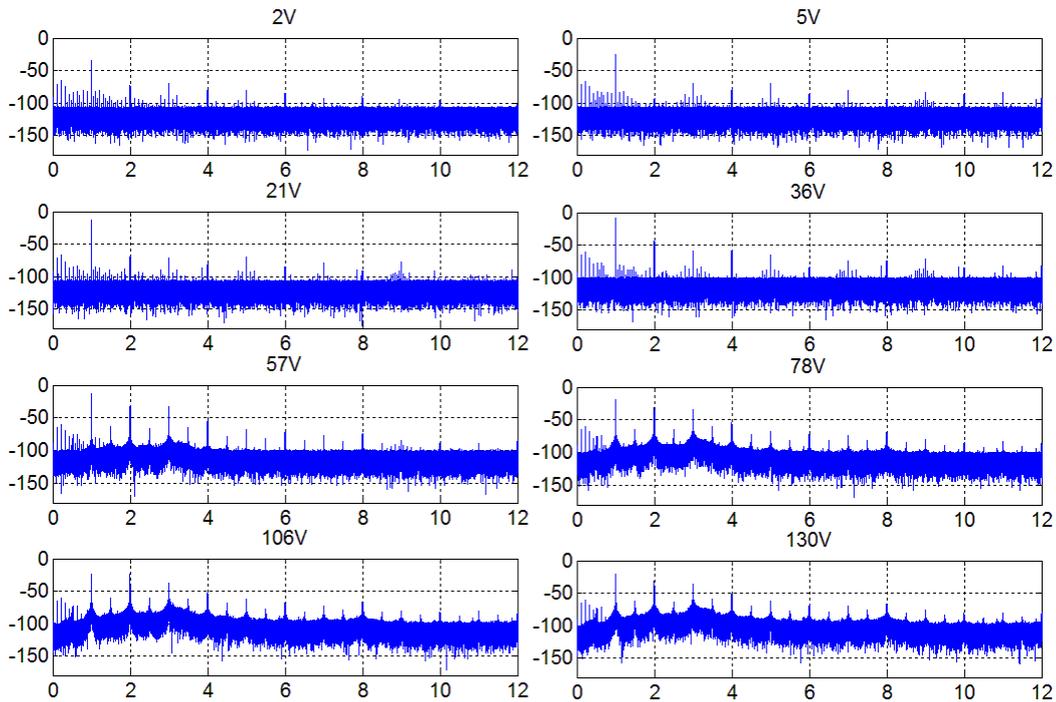


Abbildung 4.23.: Fouriertransformation des Hydrophonsignals für 10 mM SDS bei verschiedenen Anregungsspannungen. Aufgetragen ist jeweils der dB-Wert gegen die Frequenz, normiert mit der Anregungsfrequenz f/f_0 . Die Anregungsfrequenz f_0 beträgt 372 kHz.

leicht ab. Das Minimum wird wie bei Wasser bei dem zweiten Spannungswert erreicht. Die Ultraharmonischen $\frac{3}{2}f_0$ und $\frac{5}{2}f_0$ sowie die Subharmonische $\frac{1}{2}f_0$ liegen ab 36 V auf einem nahezu konstanten Wert. Die Subharmonische erfährt einen leichten Anstieg zu höheren Spannungswerten. Die höheren Harmonischen $10f_0$ und $11f_0$ bleiben für alle Spannungswerte auf einem nahezu konstanten Wert mit einer kleinen Abnahme bei 21 V und einem leichten Anstieg zu den höheren Spannungen. Bei der höchsten Spannung von 130 V liegen die Ultraharmonischen, die höheren Harmonischen und die Subharmonische - wie bei Wasser - in einem Bereich von 15 dB und sind gleich angeordnet. Auch hier liegt die zweite Harmonische etwa 30 dB höher als die Ultraharmonischen, allerdings ist die Fundamentale nur 20 dB über der zweiten Harmonischen.

Bei 1 mM SDS ergibt sich der Schwellwert erst bei 78 V (zwei Spannungswerte später als bei Wasser). Die erste Harmonische f_0 steigt bis 78 V und sinkt schließlich wieder leicht. Für die zweite Harmonische f_2 ergibt sich ein doppelter Anstieg mit einer Abnahme bei 78 V. Die Ultraharmonischen sowie die Subharmonische haben wieder einen ähnlichen Verlauf. Bis 58 V bleiben sie bei einem

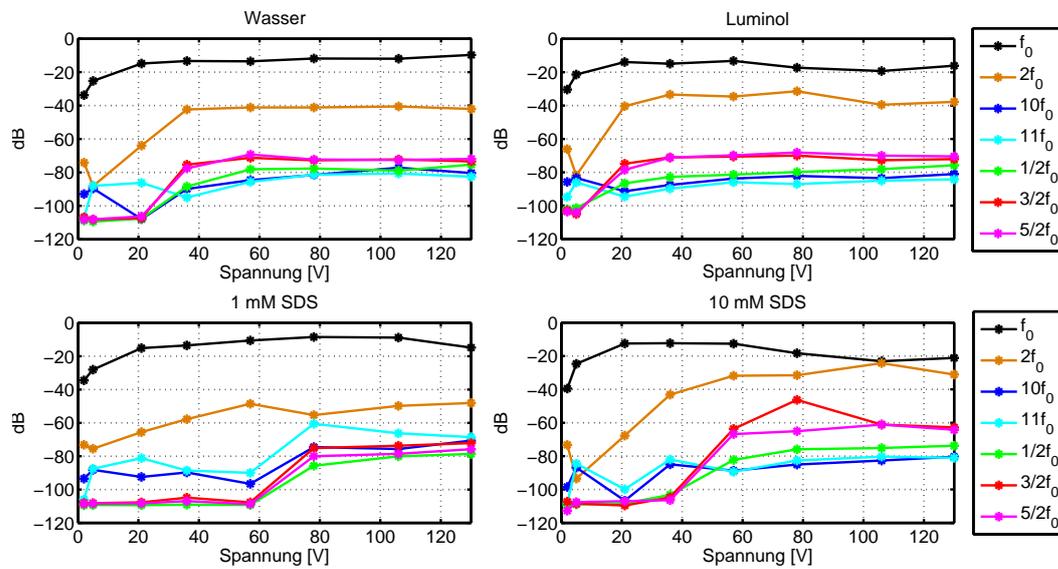


Abbildung 4.24.: Auftragung einiger ausgewählter Frequenzen in dB für die verschiedenen wässrigen Flüssigkeiten gegenüber der Anregungsspannung.

konstanten Wert und springen dann auf einen höheren. Bei noch weiterer Erhöhung der Spannung ergibt sich ein leichter Anstieg der dB-Werte. Die höhere Harmonische $10f_0$ verhält sich ebenfalls wie für die Subharmonischen und Ultraharmonischen beschrieben, der Sprung bei 78 V ist jedoch geringer, da sie von einem höheren Wert startet. Den Wert, den sie erreicht, ist der gleiche wie bei den anderen drei Linien. Die $11f_0$ -Linie verläuft hingegen abweichend von den anderen. Vor dem Schwellwert steigt sie bis 21 V an und sinkt dann wieder ab. Beim Schwellwert springt sie auf einen höheren Wert als die anderen vier Linien und sinkt bei weiterer Erhöhung der Spannung bis auf einen ähnlichen Wert wie die anderen ab. Die sich ergebenden Werte für die höchste Spannung von 130 V sind in diesem Fall anders angeordnet als bei den anderen beiden Flüssigkeiten: Die Ultraharmonischen, die Subharmonische und die höheren Harmonischen sind umgekehrt angeordnet. Der größte Wert ergibt sich für die höheren Harmonischen, gefolgt von den Ultraharmonischen. Der niedrigste Wert ergibt sich hier für die Subharmonische, wobei die anderen Linien in einem Wertebereich von 15 dB liegen. Die zweite Harmonische hat einen um 20 dB höheren Wert als die höheren Harmonischen und die Fundamentale liegt noch einmal 30 dB über der zweiten Harmonischen.

Für 10 mM SDS ergibt sich der Schwellwert bei 57 V, also bei einem Spannungswert höher als bei Wasser. Hierbei liegt der höchste Wert von f_0 bei 21 V

und sinkt für höhere Spannungen ab, mit einem geringen Anstieg beim letzten Spannungswert. Für f_2 ergibt sich bis 58 V ein starker und bis 106 V ein leichter Anstieg. Bei der höchsten Spannung von 130 V fällt die Intensität wieder leicht ab. Bei den Ultraharmonischen und der Subharmonischen erreicht die $\frac{5}{2}f_0$ und die $\frac{1}{2}f_0$ ab 57 V ein Plateau, wobei der Wert der Subharmonischen niedriger ist als der der Ultraharmonischen, und die $\frac{3}{2}f_0$ erfährt einen Anstieg bis 79 V, gefolgt von einem Abfall, bis sie die Werten der $\frac{5}{2}f_0$ erreicht. Die höheren Harmonischen bleiben annähernd bei einem Wert, schwanken aber bis 57 V stark. Für die höchste Anregungsspannung von 130 V ergibt sich hier eine etwas breitere Verteilung der Werte der Ultraharmonischen, höheren Harmonischen und der Subharmonischen um einen Wertebereich von 20 dB. Die dB-Werte sind in der gleichen Reihenfolge wie bei der Beschallung von Wasser und Luminol angeordnet. Die zweite Harmonische liegt 30 dB über den Ultraharmonischen und die Fundamentale wiederum 10 dB über der zweiten Harmonischen.

4.6.2. Diskussion

Die Spektren für höhere Spannungen, bei denen die Anhebung des Hintergrundrauschens sowie das Einsetzen von Subharmonischen und Ultraharmonischen zu sehen ist, ähneln den Aufnahmen von Bohn [148] für Kavitation in (luft-)gesättigtem Wasser bei 1 bar. Dies war auch zu erwarten, da die Flüssigkeiten auch hier gesättigt wurden. Die Sättigung geschah allerdings mit Xenon anstelle von Luft. Bohn hat das Signal von Blasen gemessen, die direkt am Mikrophon anhafteten. Durch weitere Untersuchungen konnten keine großen Unterschiede der Blasenschwingungsform zwischen frei schwingenden Blasen und an Grenzflächen schwingenden Blasen gefunden werden.

Der Schwellwert der Wechseldruckamplitude von einer stabil schwingenden Kavitationsstruktur hin zu einer instabilen, der durch das Auftreten der Subharmonischen, Ultraharmonischen und der Anhebung des Rauschpegels eingeleitet wird, ist für die untersuchten Flüssigkeiten unterschiedlich. Der Schwellwert liegt für Luminol geringfügig niedriger und für SDS im Vergleich mit Wasser zum Teil eindeutig höher. Zusätzlich scheint bei SDS die Konzentration der Lösung den Schwellwert zu beeinflussen: Für 1 mM SDS wird der Schwellwert zu höheren Spannungswerten verschoben gegenüber Wasser als für 10 mM SDS. Bei der Beschallung von 1 mM SDS sind die Blasen in der Küvette deutlich kleiner als bei einer Beschallung von Wasser oder Luminol. Zusätzlich ist die Oberflächenspannung von 1 mM SDS um 1/4 geringer als die von Wasser. Für 10 mM SDS ist die Oberflächenspannung im Vergleich zu Wasser nur halb so groß. Dies führt zu einer Stabilisierung der Blasen bei höheren Wechseldruckamplituden. Von Bohn wurde

beobachtet, dass große Blasen besonders leicht zu subharmonischen Schwingungen angeregt werden können. Diese Beobachtung ist konsistent mit dem späteren Einsetzen der instabilen Kavitation bei kleineren Blasen in SDS, da diese schlechter zu subharmonischen Schwingungen angeregt werden können.

Akustische Spektren, die von Ashokkumar et al. [146] für verschiedene SDS-Konzentrationen und für Wasser sowie für verschiedene Anregungsdruckamplituden gemessen wurden zeigen ähnliche Ergebnisse. Ist bei festem Anregungsdruck bei Wasser eine Anhebung des Rauschpegels sowie das Auftreten von Sub- und Ultraharmonischen zu sehen, so verschwinden unter Zugabe von bis zu 2 mM SDS zum Wasser diese Effekte der instabil schwingenden Blasen und im Spektrum bleiben nur die Linien der Fundamentalen und der Harmonischen erhalten. Für höhere SDS-Konzentrationen tritt schlagartig wieder eine Anhebung des Rauschpegels ein und die Sub- und Ultraharmonischen erreichen dieselben Werte, die zuvor in reinem Wasser gemessen wurden. Die Autoren erklären sich diesen Effekt durch die oberflächenaktiven SDS-Moleküle, die sich auf der Oberfläche der Blase ansammeln und den Blasen eine negative Oberflächenladung verleihen. Dadurch stoßen sich benachbarte Blasen ab, womit sich kleinere Blasenruheradien ergeben, weil sich die Blasen nicht zu größeren Blasen zusammenschließen, sondern nur langsam über gleichgerichtete Diffusion anwachsen können. Zusätzlich beeinflussen sich die Blasen gegenseitig weniger, was zu stabileren Schwingungen führt. Für höhere Konzentrationen über 2 mM wirkt das SDS zusätzlich wie ein Elektrolyt in der Flüssigkeit, wodurch die Abstoßung der Blasen geschwächt und das Wiederauftauchen des Rauschpegels und der Sub- und Ultraharmonischen erklärt wird. Die Messungen im Rahmen dieser Arbeit bestätigen demnach im Wesentlichen die Ergebnisse von Ashokkumar et al. wobei hier hingegen auch bei 1 mM SDS ein Anheben des Rauschpegels auftritt. Dies geschieht allerdings nur bei relativ großen Spannungen.

Eine Verbesserung der präsentierten akustischen Emissionsmessungen könnte durch eine Auftragung gegen die eingetragene Wirkleistung erzielt werden. Ein entsprechendes Messgerät stand jedoch nicht zur Verfügung.

Bei der Auswertung der akustischen Spektren wurde auf ein Maß für den Rauschpegel verzichtet, da das Rauschen koinzident mit den Ultraharmonischen einsetzte und diese als Rauschindikator angesehen wurden.

4.7. Strömungen in der Küvette

Breitet sich Schall in einer Flüssigkeit aus, so wird durch Reibung und Nichtlinearitäten in der Flüssigkeit eine gerichtete Strömung induziert. Diese wird auch

als „Acoustic Streaming“ bezeichnet (vgl. Abschnitt 2.5). Zusätzlich entsteht eine lokale Bewegung der Flüssigkeitsteilchen aufgrund von sich bewegenden und oszillierenden Blasen. Durch das Acoustic Streaming entsteht eine stationäre Strömung, die von lokalen Störungen und Verwirbelungen angetrieben, von Schwingungen der Kavitationsblasen überlagert wird. Bei der Betrachtung der Orte der Sonochemolumineszenz von Luminol ist es wichtig, die Größenordnung der Strömungsgeschwindigkeit in der Küvette zu kennen, da zwischen der Anregung der Luminol-Moleküle und der Emission eine Zeitspanne von bis zu einigen ms liegen kann. Wird das Luminol im Druckbauch durch die beim Kollaps der Blasen entstehenden OH⁻-Radikale angeregt, so kann es mit der Flüssigkeit vom Ort der Anregung wegtransportiert werden und an Orten emittieren, an denen kein SL-Signal zu sehen ist. Mit Kenntnis der Strömungsgeschwindigkeit der Flüssigkeit lässt sich bestimmen, wie weit sich das Luminol-Molekül vom Ort der Anregung entfernen kann. Dadurch kann die Stärke des Verschmierens der SL-Zonen abgeschätzt werden.

4.7.1. Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit

Eine Abschätzung der Strömungsgeschwindigkeiten in Flüssigkeiten lässt sich zum Beispiel durch das Einbringen und Beobachten von Tracern in die Flüssigkeit erreichen. Dabei ist zu beachten, dass die Tracer so zu wählen sind, dass sie die Geschwindigkeiten richtig abbilden. In der hier verwendeten Messmethode wird die Küvette von der Seite mit einer orangen LED beleuchtet und als Tracer wird blaue Tinte von oben in die Flüssigkeit hinzugegeben. Die Tinte sollte dabei die Strömungsgeschwindigkeiten realistisch abbilden. Als Küvette dient erneut die quaderförmige Küvette aus den vorherigen Abschnitten. Sie wird mit 100 ml Xenon-gesättigtem reinen Wasser gefüllt. Nach Einschalten des Ultraschalls ergibt sich eine Tintenfront, die sich mit der Geschwindigkeit der Strömung in der Küvette bewegt. Dies wird mit einer Digitalkamera (Canon EOS 500 D) bei einer Aufnahmegeschwindigkeit von 30 Bildern pro Sekunde aufgenommen.

Exemplarisch sind einige Bilder aus dem Film für unterschiedliche Zeiten des sich entwickelnden Strömungsfeldes in Abb. 4.25 gezeigt. Im ersten Bild ist die Flüssigkeit in Ruhe, d. h. es wird kein Schall angekoppelt, und ein Tropfen Tinte wird auf die Wasseroberfläche gegeben. Ein Teil der Tinte sinkt auf den Boden ab, während ein Teil an der Wasseroberfläche hängen bleibt. Zwischen Wasseroberfläche und Küvettenboden sind dunklere Tintenstreifen auszumachen. Das zweite Bild zeigt den Zeitpunkt des Einschaltens des Ultraschalls. Im Bereich in der Mitte über dem Wandler sind die geraden Tintenstreifen lokal verwirbelt. Im dritten Bild ist die Verwirbelung der gesamten Tintenstruktur zwischen Wasseroberfläche

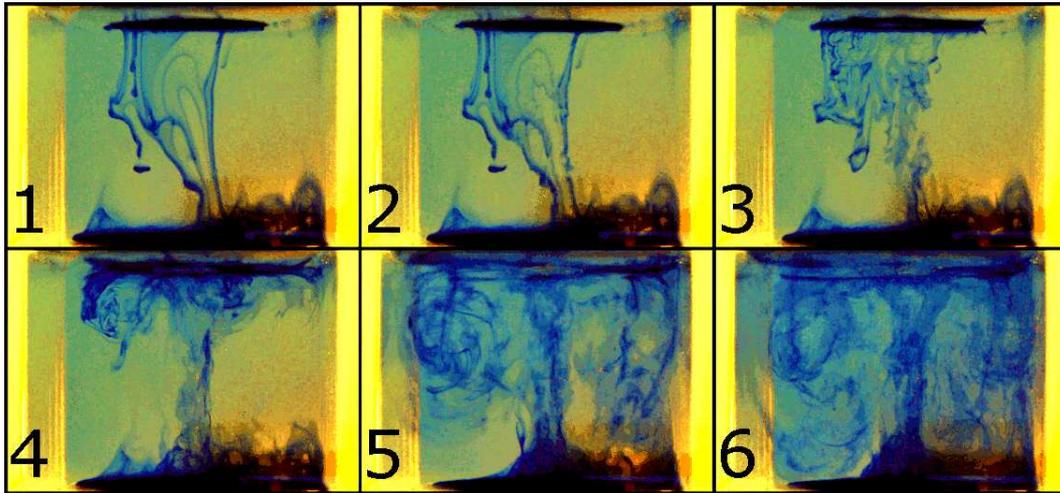


Abbildung 4.25.: Bilder aus einem Film mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 30 Bildern pro Sekunde zur Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit in der Küvette bei einer Anregungsfrequenz von 363,68 kHz und einer Spannung von 140 V. Die Zeitpunkte der Aufnahmen betragen: 0 s, 0,13 s, 0,7 s, 1,77 s, 4,54 s, und 6,66 s. Dabei zeigt 0 s das letzte Bild im Film, bei dem der Ultraschall noch nicht eingekoppelt ist. Die Bildbreite entspricht der Küvettenbreite.

und Boden zu sehen. Weiterhin ist zu erkennen, wie sich das Strömungsfeld in der Küvette ausbildet: Die Tinte über dem Wandler wird nach oben bewegt und an der Wasseroberfläche zu den Seiten (radial) abgelenkt. Trifft sie anschließend auf die Wand, so entstehen Verwirbelungen im oberen Bereich in der Nähe der Küvettenwände. Auch die Tinte, die sich an der Wasseroberfläche befindet, wird von der Strömung zur Seite und anschließend an den Wänden der Küvette nach unten bewegt. Im fünften Bild ist zu erkennen, dass die Wirbel an den Seiten immer größer werden, bis sie im sechsten Bild schließlich den gesamten Bereich, der nicht direkt über der Wandlermitte ist, ausfüllen. Die daraus resultierende Strömung bewegt sich in der Mitte vom Wandler weg, gerade nach oben, wird dort zu den Seiten umgelenkt und geht anschließend in Wirbeln wieder nach unten, wodurch sich der Kreislauf schließt. Nach dem einige Sekunden anhaltenden transienten Anfangsverhalten ergibt sich demnach zwischen den Umlenkbereichen unten am Wandler und oben der Wasseroberfläche das gemäß Eckarts Diskussion erwartete Strömungsfeld [126, 127].

Die Tintenfront und somit ebenfalls in etwa die Geschwindigkeit der Flüssigkeit, erreicht 0,23 s nach Einschalten des Ultraschalls im Bereich direkt über dem Wandler eine maximale Geschwindigkeit von 0,6 cm/s. Nach weiteren 0,67 s,

insgesamt also 0,9 s nach Einschalten des Ultraschalls, ist die Geschwindigkeit auf 2,7 cm/s angestiegen. Ein Höchstwert von 3 cm/s hat sich nach weiteren 4,1 s, insgesamt also 5 s nach Einschalten des Ultraschalls, eingestellt. Dieser Wert bleibt auch bei längerer Beschallung konstant.

4.7.2. Diskussion

Für die maximal erreichbare Geschwindigkeit der Flüssigkeit in der Küvette ergibt sich ein Wert von 3 cm/s. Bei einer solchen Geschwindigkeit kann ein Flüssigkeitsteilchen oder ein sich mit der Flüssigkeit mit bewegendes Molekül in einer akustischen Anregungsperiode ($T = 2,7 \mu\text{s}$ für die Aufnahmen von Luminol) einen Weg von 81 nm zurück legen. Die Zeit zwischen Anregung und Emission eines Luminol-Moleküls liegt im Bereich von Millisekunden. In einer Millisekunde kann das angeregte Luminolmolekül in der Flüssigkeit durch die Flüssigkeitsbewegung eine Strecke von 30 μm zurücklegen. Die Wellenlänge λ bei einer Anregung mit 370 kHz beträgt in Wasser allerdings ungefähr 4 mm. Um ein Emissionssignal vom Luminol in den Knoten zu erhalten, müsste das Luminol eine Strecke in der Größenordnung von 1 mm zurücklegen, um von der Anregung im Druckbauch bis zum nächsten Druckknoten zu gelangen. Dies wird aufgrund der akustisch induzierten Strömung der Flüssigkeit offenbar nicht ermöglicht. Um diesen Weg dennoch zurücklegen zu können, müsste die Strömung in der Größenordnung von m/s liegen. Demnach kann durch die akustisch induzierte Flüssigkeitsströmung die Verbreiterung des Emissionsbereichs bei der Beschallung von Luminol nicht erklärt werden. Allerdings erreichen die Streamerblasen eine in der benötigten Größenordnung von m/s liegenden Geschwindigkeit. Die Geschwindigkeiten der Blasen werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

4.8. Hochgeschwindigkeitsaufnahmen

Wird die Kavitationsstruktur in den verschiedenen wässrigen Flüssigkeiten mit dem bloßen Auge betrachtet, so ergeben sich deutliche Unterschiede in der Blasengröße. Während bei Wasser eine deutliche Aufteilung von großen Blasen in die Druckknoten und ein Schleier von kleinen Blasen, die sich vom Wandler entfernen, zu erkennen ist, lassen sich die Blasen hingegen kaum noch ausmachen, wenn SDS beschallt wird. Auf die Blasengröße hat bei einer Anregungsfrequenz von 370 kHz die Konzentration von SDS im Wasser keinen mit dem Auge sichtbaren Einfluss. Allerdings existiert ein Unterschied der Form der freien Oberfläche der Flüssigkeit: Bei 10 mM SDS bedecken große Blasen die Oberfläche der Flüssigkeit, bei 1 mM sind keine Blasen zu finden. Bei den Blasengrößen in Wasser und Luminol

sind mit dem bloßen Auge keine sichtbaren Unterschiede festzustellen.

Eine nähere Betrachtung der Blasen mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (Fastkam SA5, Photron) und einem Fernfeld-Mikroskop (K2, Infinity) soll einen kleinen Einblick in die Blasendynamik geben. Die Blasenkollapsdynamik lässt sich mit den möglichen Aufnahmegeschwindigkeiten nicht vollständig auflösen, die Geschwindigkeiten der aufsteigenden Streamerblasen hingegen schon. Ein Vergleich der wässrigen Flüssigkeiten untereinander ist ebenfalls schwierig, da immer ein Kompromiss aus Aufnahmegeschwindigkeit und Größe des Aufnahmebereichs gefunden werden muss, so dass oft nur einzelne Blasen auf einer Aufnahme zu sehen sind. Mit dem bloßen Auge scheint die Struktur aus einer Vielzahl an kleinen Blasen zu bestehen. Wird jedoch mit der Kamera nur ein sehr kleiner Raumbereich mit einer geringen Tiefenschärfe und einer hohen Aufnahmegeschwindigkeit betrachtet, so sind nur noch einzelne Blasen vorhanden. Gerade bei beschalltem SDS müssen viele Filme aufgenommen werden, um schließlich die Bewegung einer oder mehrerer Blasen verfolgen zu können.

In den folgenden Abschnitten werden eher phänomenologisch die aufgenommenen Blasendynamiken der Streamerblasen für die unterschiedlichen wässrigen Flüssigkeiten vorgestellt. Wie sich zeigt, beschreiben die Blasen bei einer hohen Aufnahmegeschwindigkeit eine Bewegung, die weniger komplex zu erwarten war. Als einfachste Vorstellung der Blasenbewegung sollten die Blasen sich gerade nach oben bewegen und jedes mal, wenn sie einen Druckbauch passieren, stark kollabieren und Licht emittieren. Die Aufnahmen zeigen hingegen, dass sich die Blasen nicht streng monoton vom Wandler entfernen. Während sich die Blasen nach oben bewegen, schließen sie sich mit anderen Blasen zusammen, verharren an manchen Stellen im Schallfeld oder bewegen sich sogar wieder zurück in Richtung des Wandlers. Diese Bewegung lässt sich allerdings nur bei einer hinreichend großen Aufnahmegeschwindigkeit auflösen. Auf einer größeren Zeitskala bewegen sich die Blasen scheinbar gleichmäßig vom Wandler weg.

Im Folgenden werden für die gleichen Bedingungen wie in den Abschnitten 4.4 und 4.5 die Blasendynamiken nahe eines Druckbauches ungefähr in der Mitte der Küvette beobachtet. Einige repräsentative Aufnahmen werden für die vier Flüssigkeiten reines Wasser, Luminol und 1 mM SDS sowie 10 mM SDS gezeigt.

4.8.1. Reines Wasser

Ein Pseudostreak, für einen schmalen räumlichen Bereich in vertikaler Richtung um eine Blase aus einer Hochgeschwindigkeitsaufnahme mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 7000 Bildern pro Sekunde für reines Wasser, ist in Abb. 4.26 gezeigt. Die größte Blase aus dem Streak hat einen Maximalradius von 19 μm und

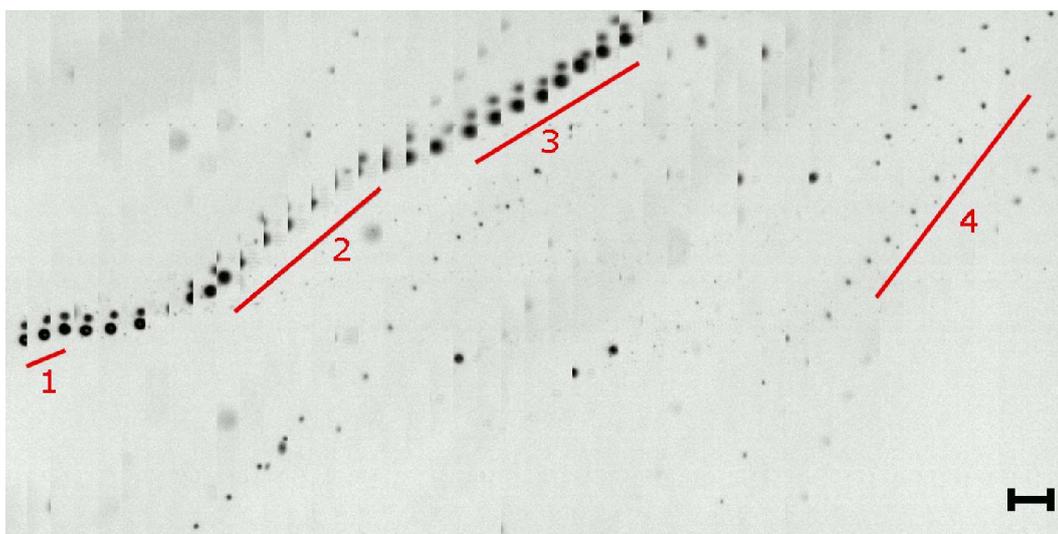


Abbildung 4.26.: Pseudostreak aus einer Hochgeschwindigkeitsaufnahme mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 7 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/101\,000$ s für Wasser. Die Anregungsfrequenz beträgt 363,68 kHz und die Spannung 140 V. Der Maßstab unten rechts beträgt $160\ \mu\text{m}$.

bewegt sich mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten nach oben. Die Geschwindigkeit beträgt am Anfang ungefähr $13\ \text{cm/s}$ (Markierung 1), im mittleren Bereich $38\ \text{cm/s}$ (Markierung 2) und im letzten $32\ \text{cm/s}$ (Markierung 3). Insgesamt ergibt sich für die Blase eine mittlere Geschwindigkeit von $29\ \text{cm/s}$ für die gesamte Zeit, in der sie im Streak zu beobachten ist. Die Blase wird die gesamte Zeit von einer Blase begleitet, die etwa halb so groß wie sie selbst ist. Die Blasen schließen sich dabei jedoch nicht zu einer größeren Blase zusammen. Bei der höchsten Geschwindigkeit (Markierung 2) hat sich die (große) Blase in horizontaler Richtung aus den ausgeschnittenen Streaks herausbewegt, sich also stärker zur Seite bewegt und ist bei Markierung 3 wieder ganz im Bild zu sehen. Zwischenzeitlich hat sich demzufolge die vertikale Position der Blase geändert. Weiterhin sind in der Abbildung deutlich kleinere Blasen mit Maximalradien von $6\ \mu\text{m}$ zu erkennen, deren Geschwindigkeiten höhere Werte erreichen als die der $19\ \mu\text{m}$ großen Blase. Die Blase bei Markierung 4 erreicht eine Geschwindigkeit von ca. $76\ \text{cm/s}$.

Ein weiterer Pseudostreak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit einer höheren Aufnahmegeschwindigkeit ist in Abb. 4.27 dargestellt. Die jeweils nächste Zeile führt dabei die vorherige fort. Die untere der beiden Blasen, die einen maximalen Radius von $16\ \mu\text{m}$ erreicht, hat über den gesamten Streak eine mittlere vertikale Geschwindigkeit von $32\ \text{cm/s}$. Die gemittelte Geschwindigkeit über die

erste Zeile liegt mit 180 cm/s deutlich höher. Die Blasengeschwindigkeiten variieren demnach stark und können in unregelmäßigen Abständen Werte von m/s erreichen. Die untere Blase im Streak schwingt periodisch auf und kollabiert, dabei beträgt die maximal messbare Radiuskompressionsrate (R_{\max}/R_{\min}) 5,6, weshalb anzunehmen ist, dass die Blase Licht emittiert. Die beiden Blasen in der ersten Zeile scheinen sich gegenseitig zu beeinflussen und eventuell auch zu vereinigen. In der Mitte der zweiten Zeile ist wiederum eine Nachbarblase zu erkennen, wobei es sich aber ebenso um die vorherige Blase handeln könnte. Eine gleichmäßigere Aufstiegsbewegung ist nur für kurze Zeiträume bis ca. 10 Perioden zu erkennen. Ansonsten erscheint die vertikale Bewegung moduliert bzw. ändert ihr Vorzeichen.

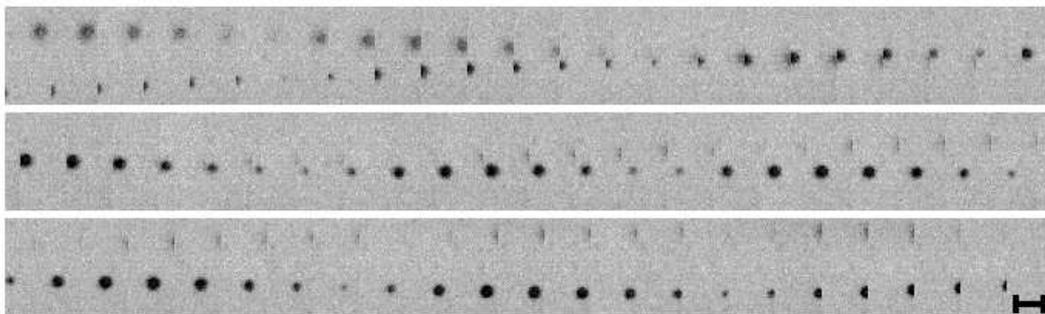


Abbildung 4.27.: Pseudostreak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 420 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/2\,713\,000$ s für Wasser. Die Anregungsfrequenz beträgt 363,68 kHz und die Spannung 140 V. Der Maßstab unten rechts beträgt 80 μm .

4.8.2. Luminol

Die Bewegung einer Streamerblase in 0,01 mM Luminol-Lösung in Wasser ist als Pseudostreak in Abb. 4.28 aus einer Hochgeschwindigkeitsaufnahme mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 420 000 Bildern pro Sekunde dargestellt. Die Blase führt eine gleichmäßige Bewegung nach oben, mit einer Geschwindigkeit von 2,5 m/s über den gesamten Streak, aus. Bei der Bewegung schwingt die Blase auf und führt einen starken Kollaps aus, da sie in regelmäßigen Abständen fast nicht auszumachen ist. Der Maximalradius der Blase beträgt 10 μm , der Minimalradius ungefähr 2 μm . Demnach ergibt sich eine maximal messbare Radiuskompressionsrate von 5.

Ein zweiter Streak aus einem weiteren Film über die Bewegung der Blasen in

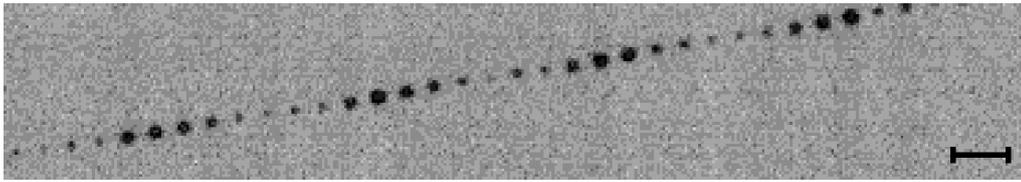


Abbildung 4.28.: Streak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit 420 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/2\,713\,000\text{ s}$ für $0,01\text{ mM}$ Luminol. Die Anregungsfrequenz beträgt $368,94\text{ kHz}$ und die Spannung 140 V . Der Maßstab unten rechts beträgt $100\text{ }\mu\text{m}$.

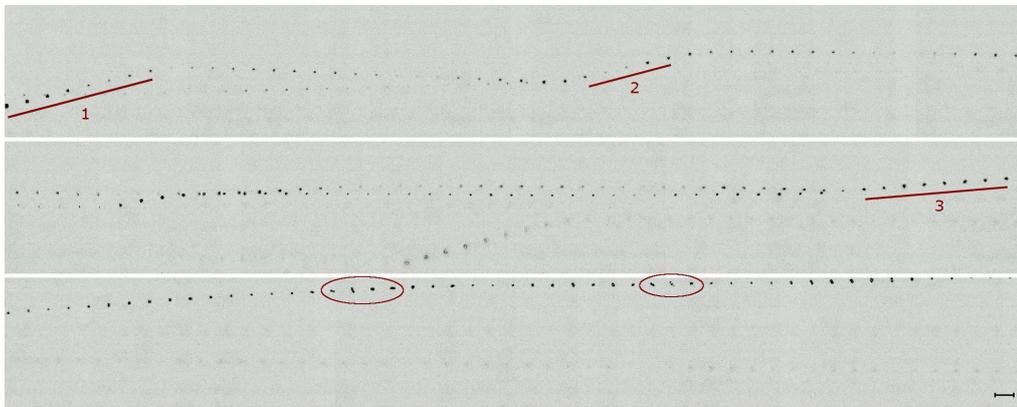


Abbildung 4.29.: Streak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit 75 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/2\,713\,000\text{ s}$ für $0,01\text{ mM}$ Luminol. Die Anregungsfrequenz beträgt $368,94\text{ kHz}$ und die Spannung 140 V . Der Maßstab unten rechts beträgt $150\text{ }\mu\text{m}$.

Luminol, aufgenommen mit einer Geschwindigkeit von 75 000 Bildern pro Sekunde, ist in Abb. 4.29 gezeigt. Die nächste Zeile setzt dabei wieder die vorherige fort. Im ersten Anstieg, bei dem die Blase einen Maximalradius von $16\text{ }\mu\text{m}$ aufweist (Markierung 1), erreicht die Blase eine vertikale Geschwindigkeit von $2,9\text{ m/s}$. Die Radiuskompressionsrate beträgt hier 5. Im zweiten Anstieg, bei dem die Blase einen kleineren Maximalradius von $12\text{ }\mu\text{m}$ erreicht (Markierung 2). Hier liegt die vertikale Geschwindigkeit geringfügig niedriger, nämlich bei $2,6\text{ m/s}$. Die Radiuskompressionsrate beträgt hier ebenfalls 5. Im dritten Anstieg, bei dem die Blase nur noch einen Maximalradius von $10\text{ }\mu\text{m}$ erreicht (Markierung 3), ergibt sich eine deutlich niedrigere vertikale Geschwindigkeit von 88 cm/s . Hier beträgt die Radiuskompressionsrate nur noch 1,3. Gemittelt über den gesamten Streak ergibt sich für die Blase die am Anfang zu sehen ist eine vertikale Geschwindigkeit von 36 cm/s . Auch hier wird die Blase hin und wieder durch andere, ähnlich

große Blasen beeinflusst. Teilweise schließen sich auch Blasen zu einer Blase zusammen. In der letzten Zeile sind starke Oberflächenoszillationen der Blase zu erkennen. Eine ausgeprägte Oberflächenschwingung der Mode $n = 2$ ist zu sehen, bei der sich die Blase selbst in zwei oder mehrere Blasen teilt und im folgenden Bild wieder zu einer Blase vereint (rote Umkreisung).

4.8.3. 1 mM SDS

Die Bewegung einer Streamerblase in 1 mM SDS ist in einem Pseudostreak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 420 000 Bildern pro Sekunde in Abb. 4.30 gezeigt. Die beiden Zeilen zeigen jeweils die Bewegung derselben Blase. Dabei setzt die zweite Zeile die erste nicht fort, sondern zeigt einen in horizontaler Richtung verschobenen Bereich des Films. Aus diesem Grund sind einige Bilder zwischen den beiden Zeilen nicht abgebildet. Dieser Sprung in der Darstellung ist notwendig, da sich die Blase im Hochgeschwindigkeitsfilm von rechts nach links durch das Bild bewegt, wodurch sie bei einem fortlaufenden Streak gar nicht mehr zu sehen wäre. Für die Blase in der ersten Zeile beträgt die mittlere Geschwindigkeit der Blase nach oben 2,2 m/s. Dabei erreicht die Blase einen Maximalradius von 15 μm . Die maximale Radiuskompressionsrate beträgt hier 2,6. Wird nur der Bereich von Markierung 1 betrachtet, so beträgt die Geschwindigkeit der Blase, die hier einen Maximalradius von 12 μm erreicht, 2,7 m/s. In der zweiten Zeile bewegt sich die Blase, die hier einen maximalen Radius von 10 μm erreicht mit einer Geschwindigkeit von 63 cm/s nach unten. Die maximale Radiuskompressionsrate steigt hier auf 3,9.

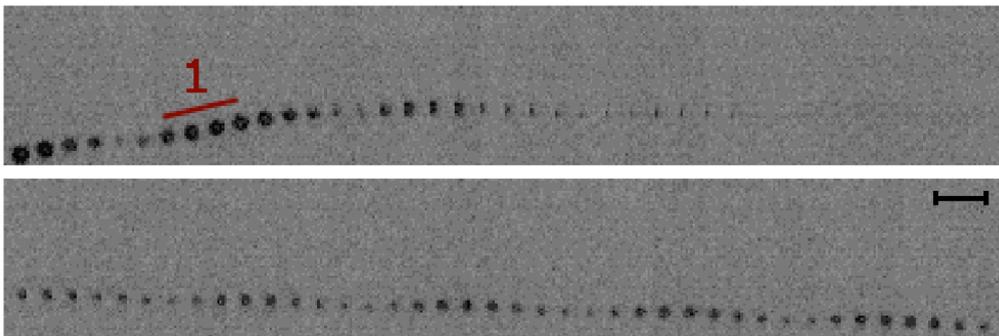


Abbildung 4.30.: Streak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 420 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/2\,713\,000$ s für 1 mM SDS. Die Anregungsfrequenz beträgt 369,5 kHz und die Spannung 140 V. Der Maßstab im unteren Bild rechts beträgt 100 μm .

Die Geschwindigkeit der Blase ist demnach bei der Aufwärtsbewegung deutlich höher als bei der Abwärtsbewegung. Für diese Blase ist keine Beeinflussung durch eine andere Blase zu erkennen. Dennoch entfernt sich die Blase nicht gleichmäßig nach oben vom Wandler weg.

4.8.4. 10 mM SDS

Für die Bewegung einer Streamerblase in 10 mM SDS ist ein Streak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 420 000 Bildern pro Sekunde in Abb. 4.31 gezeigt. Die jeweils nächste Zeile setzt hier die vorherige fort. In den ersten beiden Zeilen beeinflussen sich mehrere Blasen ähnlicher Größe gegenseitig. Sie schließen sich am Ende von Markierung 1 zu einer Blase zusammen. In diesem Bereich ergibt sich für die untere Blase, die einen maximalen Radius von $6\ \mu\text{m}$ erreicht, eine Geschwindigkeit von $1,5\ \text{m/s}$. Die maximale messbare Radiuskompressionsrate beträgt für diese Blase lediglich $3,7$. Die obere Blase sinkt in der dritten Zeile mit einer mittleren Geschwindigkeit von $25\ \text{cm/s}$. Ihr maximaler Radius beträgt $10\ \mu\text{m}$. Im Bereich von Markierung 2 erreicht diese Blase mit $3,2\ \text{m/s}$ die höchste vertikale Geschwindigkeit im Streak. Mit Beginn der Markierung 2 schwingt die Blase größer auf, bis zu einem maximalen Radius von $13\ \mu\text{m}$. Die maximal messbare Radiuskompressionsrate beträgt in diesem Bereich $6,0$.

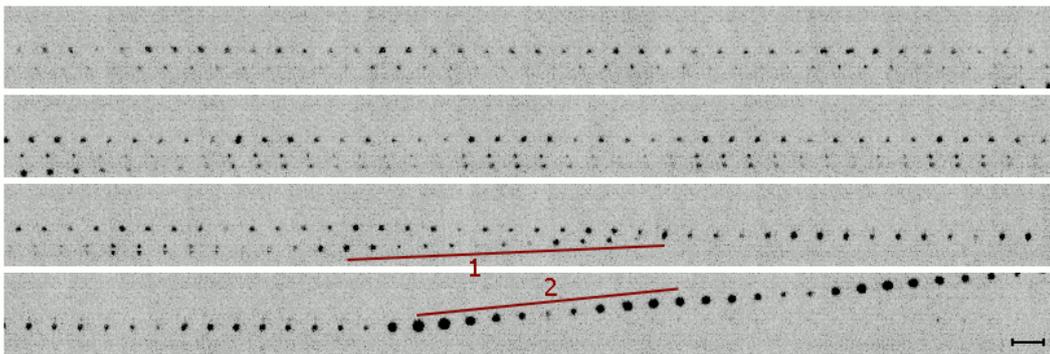


Abbildung 4.31.: Streak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit einer Aufnahmegeschwindigkeit von 420 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/2\ 713\ 000\ \text{s}$ für 10 mM SDS. Die Anregungsfrequenz beträgt $372,38\ \text{kHz}$ und die Spannung $140\ \text{V}$. Der Maßstab unten rechts beträgt $100\ \mu\text{m}$.

4.8.5. Diskussion

Die in den vorangegangenen Unterabschnitten vorgestellten Aufnahmen haben gezeigt, dass sich bei einer Anregungsfrequenz von 370 kHz mit der vorhandenen Hochgeschwindigkeitskamera nicht bestimmen lässt, wie das Kollapsverhalten der Blasen in den unterschiedlichen Flüssigkeiten im Einzelnen aussieht und ob es variiert. Dafür ist die maximale Aufnahmegeschwindigkeit zu gering und der dazugehörige Bildausschnitt der Hochgeschwindigkeitskamera zu klein. Exemplarisch konnten Maximalradien, Radiuskompressionsraten und mittlere Geschwindigkeiten der Blasen ermittelt werden. Außerdem konnten in allen Flüssigkeiten Blasen gefunden werden, die maximale Geschwindigkeiten im Bereich einiger m/s erreichen. Eine Mittelung der Geschwindigkeit über einen längeren Zeitraum ergibt niedrigere Werte im Bereich einiger 10 cm/s. Der Grund dafür liegt in einer nicht gleichmäßigen Bewegung der Blasen vom Wandler weg: Die Blasen können auch für einige Zeit stationär bleiben, sich langsamer bewegen oder sich sogar für eine kurze Strecke wieder zurück in Richtung Wandler bewegen.

Diese hohe Geschwindigkeit der Blasen ist vermutlich bei der SCL für die Ausdehnung des Emissionsbereichs verantwortlich. Die Luminolmoleküle „haften“ an den Blasen und bewegen sich mit ihnen in die Druckknoten, wo das Luminol retardiert zum Blaskollaps emittiert. Bei einer Geschwindigkeit von 1 m/s ist es dem Luminolmolekül möglich, in 1 ms die erforderliche Strecke von 1 mm zurückzulegen, die zwischen Druckbauch und Druckknoten liegt. Wichtig ist bei diesem Vorgang, dass eine Kraft existiert, die die kleinen Streamerblasen in die Druckknoten treibt. Im hier gezeigten Fall ist anzunehmen, dass diese Kraft durch einen laufende Wellenanteil entsteht, da kein reines Stehwellenfeld ausgebildet ist. Ein Nachweis dafür steht allerdings noch aus.

Die gemessenen maximalen Radien liegen bei allen Aufnahmen im Bereich zwischen 6 und 19 μm . Die maximal messbaren Radiuskompressionsraten liegen in allen Fällen, außer bei 1 mM SDS, bei Werten zwischen 5,0 und 6,0. Bei 1 mM SDS konnten ausschließlich geringere Kompressionsraten gemessen werden, die einen maximalen Wert von 3,9 erreichen. Die geringeren Werte sind vermutlich dadurch zu erklären, dass die maximale Auflösung der Kamera bei 1 μm liegt und somit Blasen dieser Größenordnung nur schwer zu erkennen sind. Dadurch wird die Bestimmung der minimalen Radien erschwert und Werte unterhalb der μm -Grenze können nicht aufgelöst werden. Die gemessenen Werte für die Radiuskompressionsraten stellen somit womöglich nur eine untere Grenze dar, was darauf schließen lässt, dass die Blasen stark genug kollabieren, um Licht zu emittieren.

4.9. Xenon-gesättigte Schwefelsäure mit Natriumsulfat

Um eine Korrelation zwischen der Blasendynamik und der Farbe der SL-Emission zu erhalten, ist es vorteilhaft, zu tieferen Frequenzen und zu einem intensiveren Lumineszenzsignal zu wechseln. Der Grund dafür liegt in der besseren Auflösung der Blasendynamik mit der vorhandenen Hochgeschwindigkeitskamera für tiefere Anregungsfrequenzen und der Verkürzung der Belichtungszeiten für die SL-Farbe bei helleren Emissionen.

Eine räumlich getrennte hell emittierende zweifarbige Lumineszenzstruktur wird von Xu et al. [114] beschrieben. In der Arbeit wird 0,1 M Natriumsulfat in 95%-iger Schwefelsäure gelöst und mit Argon gesättigt. Die Beschallung erfolgt mit einer Sonotrode bei etwa 20 kHz. Dabei ergibt sich je nach Leistung eine blaue Emission direkt unter der Sonotrode, die in eine rötliche Emission übergeht, oder bei höheren Leistungen durch einen nicht leuchtenden Bereich getrennt wird.

Der Aufbau von Xu et al. wird hier in ähnlicher Form verwendet. Im Folgenden wird die Leucht- und Blasenstruktur unter einer Titan-Sonotrode (siehe Anhang C.5) in gelöstem 0,1 M Natriumsulfat in mit Xenon gesättigter 95%-iger Schwefelsäure beschrieben. Beschallt werden 100 ml Flüssigkeit in einer quadratischen Hellma Küvette (Kantenlänge 5 cm, genaue Beschreibung siehe Anhang C.1, allerdings hat die hier verwendete Küvette keinen aufgeklebten Piezo). Zum Schutz vor herauspritzender Säure kann die Küvette mit einem Teflondeckel abgedeckt werden, der in der Mitte ein Loch für die Sonotrode aufweist.

4.9.1. Langzeitaufnahmen mit einer Farbkamera

Je nach Frequenz und eingebrachter Energie ergeben sich unterschiedliche Lumineszenzstrukturen unter der Sonotrode in der Küvette. Eine Auswahl an Erscheinungsformen ist in Abb. 4.32 dargestellt. Die Anregungsfrequenz wird für die Aufnahmen im Bereich von 23,05-23,30 kHz variiert und die angelegten Spannungen liegen zwischen 80 und 326 V. Das Auftreten der unterschiedlichen Strukturen ist unter anderem auch von der Dauer der Beschallung abhängig: Zu Beginn der Beschallung scheinen wesentlich mehr rote Bereiche bei niedrigen Spannungen vorhanden zu sein, was vermutlich durch eine Änderung der Temperatur der Flüssigkeit sowie das Entgasen des Xenons aus der Flüssigkeit verursacht wird. Für einige Parameter ergeben sich fast ausschließlich blau-weiße Emissionen (Abb. 4.32 oben rechts und unten links), für andere ist eine deutliche Aufteilung in blau-weiße sowie rot-orangene Bereiche auszumachen (Abb. 4.32 unten Mitte und rechts). Als weitere Erscheinungsform ergeben sich Lumineszenzstreifen,

die näher an der Sonotrode blau-weiß und weiter entfernt rot-orange leuchten (Abb. 4.32 oben links und Mitte). Die Struktur oben rechts entsteht durch die Geometrie der Küvette: An jeder Wandmitte bildet sich das Zentrum einer Streamerstruktur aus, die Licht emittiert. Die anderen gezeigten Strukturen könnten auch in einer größeren Küvette auftreten, da sie durch die Resonanzen der Sonotrode entstehen. Bei der Figur unten links („Mongolfiere“, [154]) hängt die Entstehung und die Größe der Struktur davon ab, wie weit die Sonotrode in die Flüssigkeit eingetaucht wird und ob die Struktur in die Küvette „passt“.

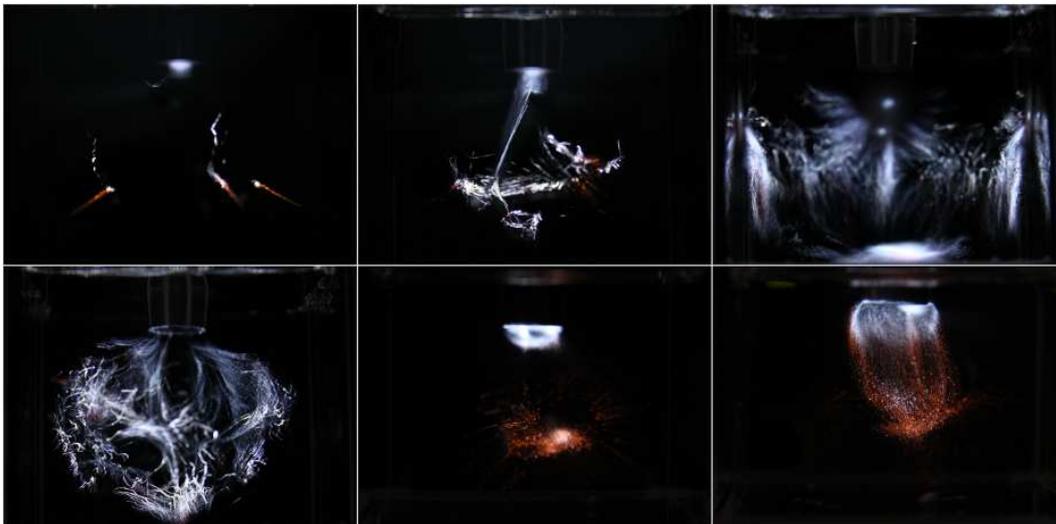


Abbildung 4.32.: Aufnahmen mit einer Canon EOS 500 D zu unterschiedlichen Lumineszenzstrukturen. Die Belichtungszeit beträgt jeweils 2 s. Die Bildbreite entspricht der Küvettenbreite von 5 cm.

4.9.2. Zeitgemittelte Aufnahmen in den einzelnen Farben

Zeitgemittelte Aufnahmen für die drei Filterkanäle und eine Aufnahme ohne Filter sind in Abb. 4.33 gezeigt. Die Aufnahmen zeigen die Struktur einer ähnlichen Form aus Abb. 4.32 unten Mitte. Während der Aufnahme hat sich die Richtung der unteren Kavitationswolke geändert. In den ersten beiden Aufnahmen ist die Wolke nach rechts von der Sonotrode weg gerichtet, in den letzten beiden nach links. In den zeitgemittelten Aufnahmen sind nur geringfügige strukturelle Unterschiede in den einzelnen Farben zu erkennen. Die Aufnahmen sind so präsentiert, wie die Kamera sie aufgenommen hat, Intensitätsunterschiede u. a. durch unterschiedliche Quanteneffizienz und Transmission werden hier nicht berücksichtigt. Nur die γ -Werte werden verändert, um die filigranen Lumineszenzstrukturen bes-

ser sichtbar zu machen. Das Signal des roten Filterkanals beschränkt sich auf einen kleineren räumlichen Bereich als das der anderen beiden Kanäle. Die Intensitätsverteilung im blauen Kanal ähnelt stark derjenigen ohne Filter. Dies kann aber auch dadurch begründet sein, dass sich die untere Wolkenstruktur bei beiden Aufnahmen in die gleiche Richtung bewegt. Der emittierende Bereich unter der Sonotrode ist im grünen und blauen Kanal ähnlich groß, im roten schmaler. Im grünen Kanal sind außer der Wolke im unteren Bereich auch noch filigrane Strukturen zu beobachten, die an ein Feuerwerk erinnern. Diese Strukturen sind beim roten Kanal ganz schwach am rechten Rand der Wolke zu erkennen und auch etwas bei der Aufnahme ohne Filter. Die filigrane Struktur scheint vom Natrium zu kommen, da sie so dominant nur im grünen Kanal auszumachen ist. Zur Erinnerung sei erwähnt, dass die Na^* -Emission im Bild mit der Farbkamera (vgl. Abb. 4.32) rötlich erscheint, bei den Aufnahmen mit der IRO hingegen im grünen Kanal liegt. Bei der Aufnahme ohne Filter wird diese Struktur wahrscheinlich von der deutlich helleren blauen Emission überlagert.

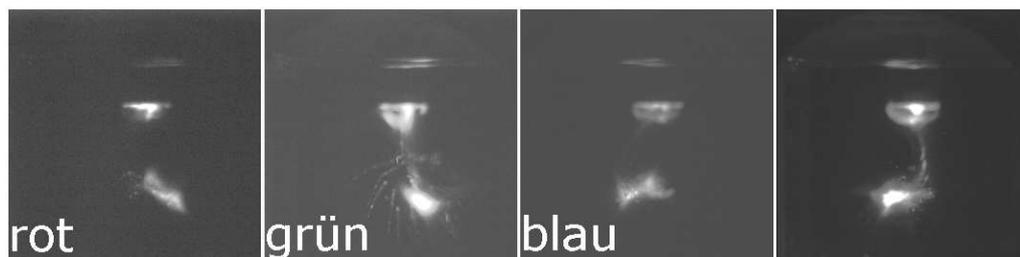


Abbildung 4.33.: Zeitgemittelte Aufnahmen einer ähnlichen Struktur aus Abb. 4.32 unten Mitte, der einzelnen Filterkanäle sowie einer Aufnahme ohne Filter. Die Belichtungszeit beträgt 0,56 s, das Gain der IRO 5, die Anregungsfrequenz 23,139 kHz und die Spannung 160 V. Die Bildbreite entspricht der Küvettenbreite.

4.9.3. Raum-, zeit- und farbaufgelöste Lumineszenzaufnahmen

Raum-, zeit- und farbaufgelöste Lumineszenzaufnahmen unter einer Sonotrode in Wasser oder wässriger Luminol-Lösung ergeben kein signifikantes zeitliches Muster [155]. Bei der Beschallung von Luminol ist zu jeder Zeit ein Signal zu erkennen und bei Wasser wird das Signal einmal pro Periode schwächer, verschwindet aber nie ganz. Zu jedem Zeitpunkt scheinen Blasen zu kollabieren und es entsteht ein fast einheitliches Leuchten unter der Sonotrode. Zusätzlich er-

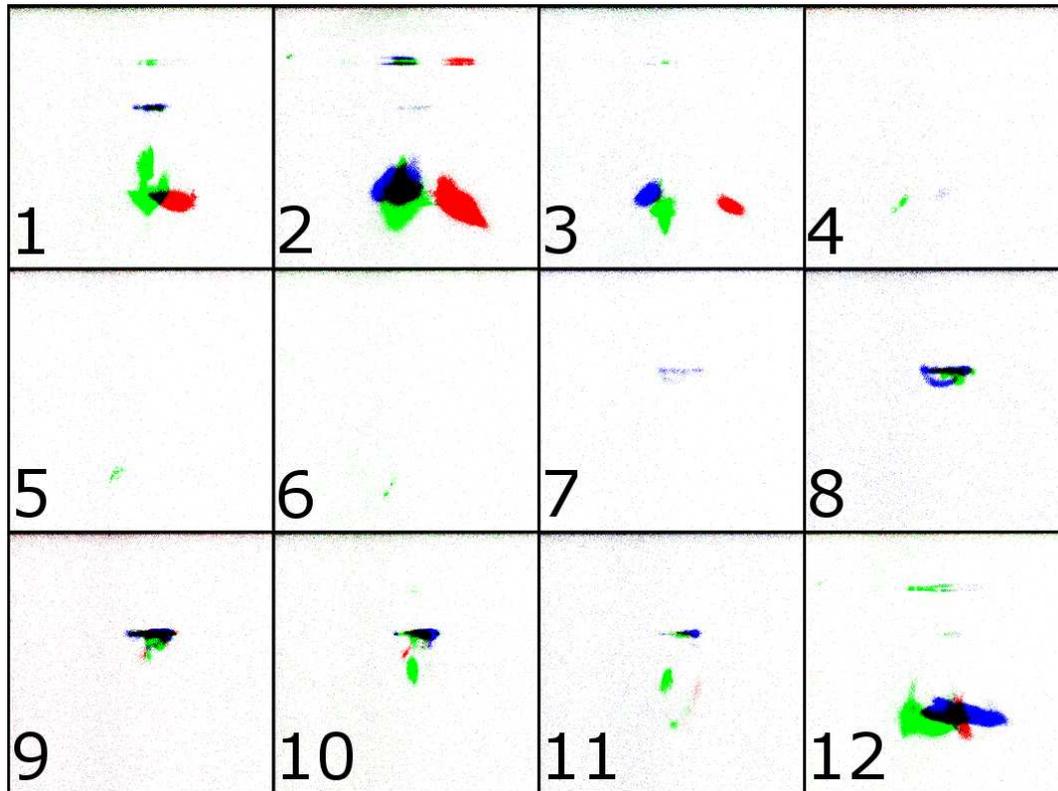


Abbildung 4.34.: Raum- und zeitaufgelöste Farbaufnahmen der Sonolumineszenz einer ähnlichen Struktur aus Abb. 4.32 unten Mitte. Die Zeitfenster sind $4\ \mu\text{s}$ lang bei einer Belichtungszeit von $0,56\ \text{s}$. Die Frequenz beträgt $23,3\ \text{kHz}$ und die Spannung $128\ \text{V}$. Die Bildbreite entspricht der Küvettenbreite.

schwert eine nicht ganz gleichmäßige Blasenwolke unter der Sonotrode eine stabile Struktur. Die selbst gebauten Sonotroden kavitieren nicht immer an der gesamten Spitzenfläche. Zudem variiert die Richtung der Kavitationswolke stark. Ein ähnliches Problem ergibt sich für Schwefelsäure. Jedoch kann eine Kombination aus Frequenz und Spannung gefunden werden, bei der die Struktur minutenlang relativ stabil bleibt und sich nur leicht verändert. Für eine solche Struktur wird die orts-, zeit- und farbaufgelöste SL aufgenommen. Das Ergebnis ist in Abb. 4.34 gezeigt, wobei die Farbkanäle übereinander gelegt sind. Zunächst fällt auf, dass auf den Bildern 4 bis 7 fast kein Signal für die drei Filterkanäle zu erkennen ist, was einen Unterschied zu den Messungen in Wasser und wässriger Luminol-Lösung darstellt [155]. Auf den Bildern 1 bis 3 ist im unteren Bereich in der Küvette ein starkes Signal für den roten und grünen Kanal zu sehen, wobei sich die einzelnen Emissionsbereiche teilweise überschneiden, im Wesentlichen aber

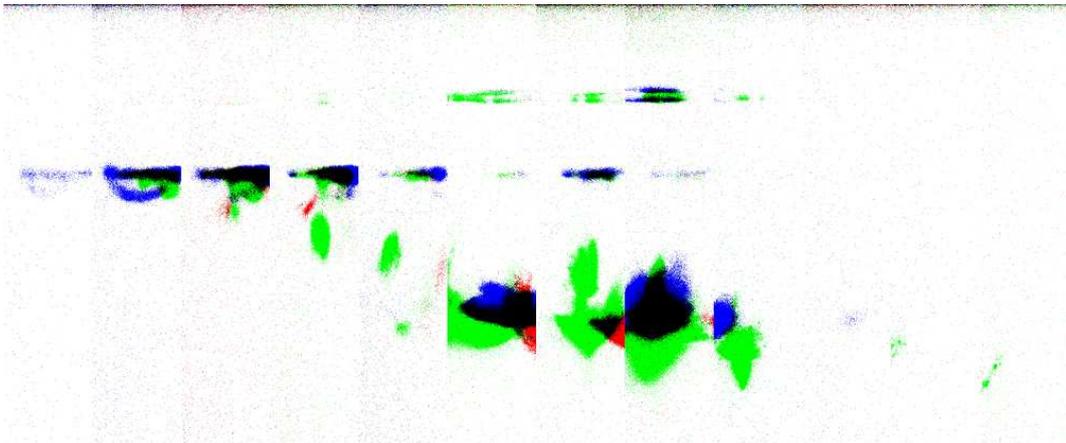


Abbildung 4.35.: Streak aus dem Film in Abb. 4.34 mit jeweils der gesamten Höhe und einer Breite von 130 Pixeln aus der Mitte der Bilder. Dabei beginnt der Streak mit den Bildern 7 bis 12, gefolgt von den Bildern 1 bis 6, so dass die Bilder, auf denen eine Emission zu erkennen ist, nicht durch einen Bereich ohne Emission getrennt werden.

an unterschiedlichen Orten nebeneinander zu finden sind. Auf dem ersten und zweiten Bild ist zusätzlich eine Emission an der Küvettenspitze (Bild 1, blauer Kanal) und an der Wasseroberfläche (Bild 1, grüner Kanal und Bild 2, alle Kanäle) zu bemerken. Dabei liegt im zweiten Bild das Signal des roten Kanals deutlich weiter rechts als das der anderen beiden Kanäle. Ab Bild 7 beginnt eine Emission an der Sonotrodenspitze. Die höchste Intensität und die größte Fläche wird für den blauen Kanal erreicht, gefolgt vom grünen und einer sehr schwachen Emission im roten Kanal. Das Signal des grünen Kanals bewegt sich in den folgenden drei Bildern weg von der Sonotrode in Richtung des unteren Emissionsbereichs, der im letzten Bild (Bild 12) wieder in allen drei Filterkanälen zu sehen ist. Die Bereiche der Emission überdecken sich teilweise. Gleichzeitig beginnt wieder ein schwaches Signal an der Wasseroberfläche. Dies wird vermutlich durch Spiegelungen der hellen Struktur im unteren Bereich der Küvette an der Wasseroberfläche erzeugt. Bei der Emission im unteren Bereich lässt sich nicht ausschließen, dass sich die Richtung der Blasenwolke während der Zeit der Aufnahme verändert. Da aber Verzögerungszeiten existieren, zu denen keine Emission zu beobachten ist, liegt es nahe, dass sich die grobe Form der Struktur nicht wesentlich verändert, sondern eventuell nur der Bereich der unteren Blasenwolke.

Um das Fortschreiten der Emission von der Sonotrode zum unteren Leuchtbereich zu verdeutlichen, ist in Abb. 4.35 ein Pseudostreak aus den orts-, zeit- und farbaufgelösten SL-Aufnahmen dargestellt. Der Streak besteht aus der gesamten

Höhe und zeigt einen Bereich von 130 Pixeln aus der Mitte der Bilder. Dabei werden die Bilder der zweiten Emission aus den SL-Aufnahmen an den Anfang gesetzt, damit die zeitliche Entwicklung des Emissionsbereichs einfacher und ohne Unterbrechung verfolgt werden kann. Dies ist möglich, da die SL-Aufnahmen ungefähr eine akustische Periode abdecken und sich somit das erste Bild der Aufnahmen an das letzte anschließt. In der Streakdarstellung ist hier deutlich zu erkennen, dass sich der Emissionsbereich im grünen Kanal von der Sonotrode weg nach unten bewegt. Dies deutet auf eine ausgeprägte laufende Welle hin. Die Emission im blauen Kanal ist ausschließlich direkt unter der Sonotrode bzw. im unteren Emissionsbereich zu erkennen. Für den roten Kanal ist, wie für den grünen Kanal, eine Bewegung von der Sonotrode weg zu beobachten. Die Emission ist in diesem Bereich allerdings sehr schwach. Die anschließende Emission im unteren Bereich ist hingegen deutlich stärker.

4.9.4. Globale und lokale Mittel- und Spitzenwerte

Eine Auftragung der räumlich gemittelten Intensität für die gesamte Struktur und der Pixel mit der maximalen Intensität pro Bild ist in Abb. 4.36 gezeigt. Bei der Mittelung ergibt sich ein Intensitätsmaximum bei $0,2T$ sowie eine leichte Erhöhung der Intensität im Bereich zwischen $0,7T$ und $0,9T$. Die Intensität ist für den grünen Kanal im ersten Maximum am höchsten und nimmt über rot zu blau hin ab. Bei der leicht steigenden Intensität im zweiten Teil der Periode ist die Intensität des roten Kanals am stärksten, gefolgt vom grünen Kanal und noch

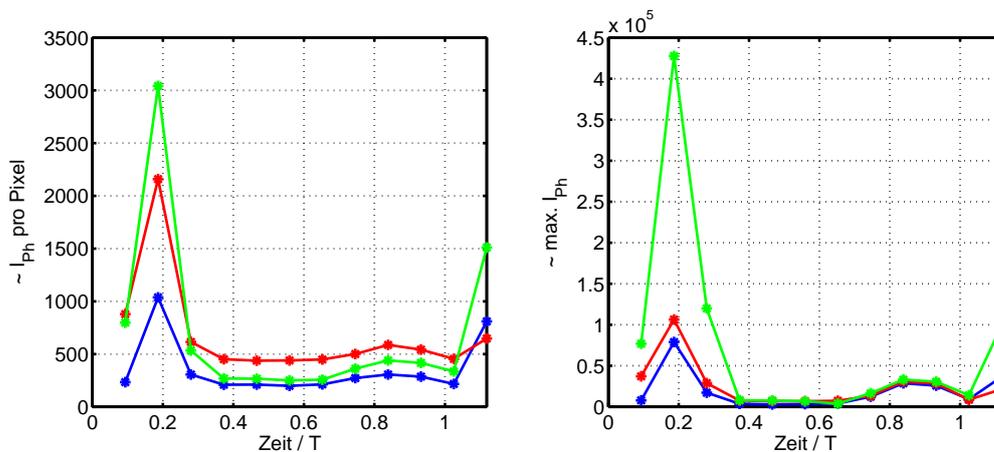


Abbildung 4.36.: Gemittelte räumliche Intensität über die gesamte Struktur (links) und maximale Intensität (rechts) pro Bild aufgetragen gegen die Zeit normiert mit der Periode T .

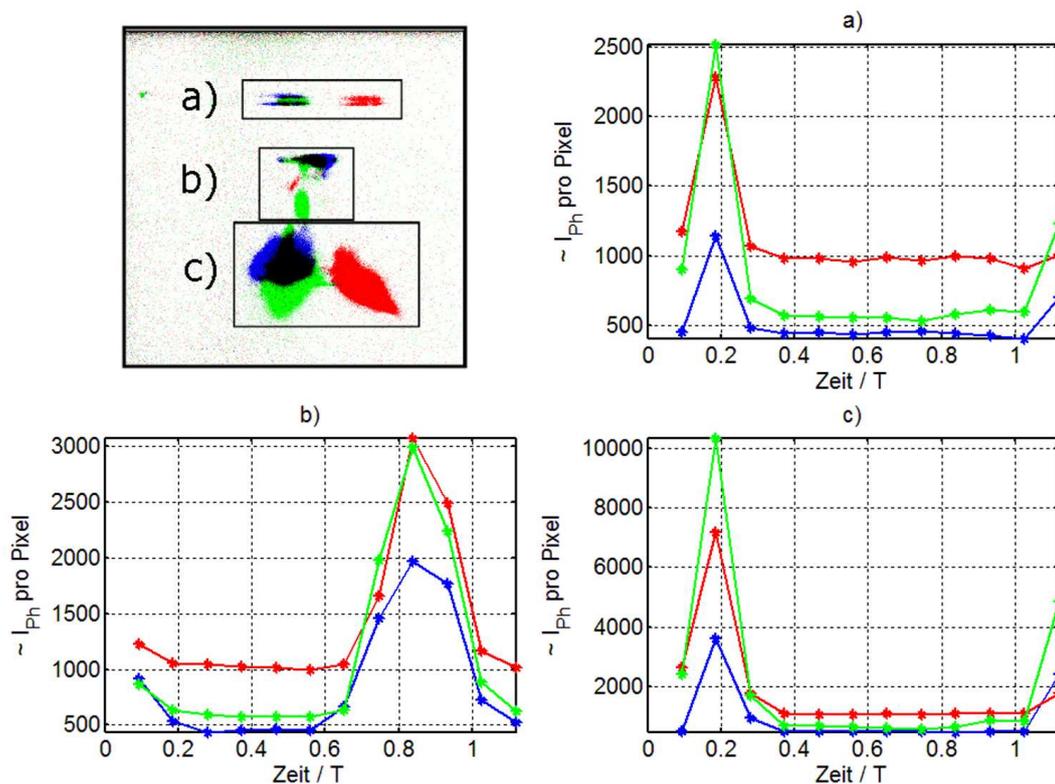


Abbildung 4.37.: Lokal gemittelte räumliche Intensitäten in verschiedenen Bereichen in der Küvette. Oben links: Markierung der unterschiedlichen Bereiche in einer Überlagerung der Bilder 2 und 10 der orts-, zeit- und farbaufgelösten SL-Aufnahmen aus Abb. 4.34. a) Bereich der Wasseroberfläche, b) Bereich zwischen Spitze und unterem Emissionsbereich und c) unterer Emissionsbereich.

schwächer im blauen. Insgesamt wird durch die Aufnahmen etwas mehr als eine Anregungsperiode abgedeckt, so dass die letzten zwei Werte teilweise die gleichen Zeitbereiche zeigen wie die ersten zwei Werte. Die Differenz zwischen maximalem und minimalem Intensitätswert beträgt 2700 Counts für den grünen, 1600 Counts für den roten und 750 Counts für den blauen Filterkanal.

Bei der Auftragung des hellsten Pixels pro Bild ergibt sich ein ähnlicher Verlauf. Die höchste Intensität erreicht hier allerdings zu allen Zeiten der grüne Kanal. Die Werte für den roten und blauen Kanal liegen in einem ähnlichen Wertebereich.

Eine Mittelung über einzelne leuchtende Bereiche ist in Abb. 4.37 gezeigt. Das Bild oben links markiert die gemittelten Bereiche der Struktur. Auftragung a) zeigt den Bereich an der Wasseroberfläche, Auftragung b) den Bereich zwischen

Sonotrode und unterem Leuchtbereich und Auftragung c) den unteren Leuchtbereich. Der Verlauf der Auftragungen a) und c) ist sehr ähnlich, die Intensität in Auftragung c) hingegen deutlich höher. Eine Reflexion des unteren Leuchtbereichs an der Wasseroberfläche ist daher nicht auszuschließen. Diese Vermutung wird zusätzlich durch die gleiche vertikale Position der Leuchtbereiche in Bild 2 aus Abb. 4.34 unterstützt.

Im unteren Leuchtbereich der Struktur (Auftragung c) in Abb. 4.37) beträgt die Differenz zwischen maximaler und minimaler Intensität für den grünen Kanal 10 000 Counts, für den roten Kanal 6000 Counts und für den blauen Kanal 3600 Counts. Die Differenz zwischen maximaler und minimaler Intensität für den Bereich der Wasseroberfläche ist etwa um ein viertel geringer, mit Werten für den grünen Kanal von 2500 Counts, für den roten von 1250 Counts und für den blauen von 7000 Counts. An der Spitze der Sonotrode in Auftragung b) ergibt sich ein Intensitätsmaximum bei $0,85 T$. Dieses Maximum ist mit einer Dauer von $0,35 T$ breiter als das im unteren Bereich in Auftragung c), das nur für $0,2 T$ anhält. Zudem ist die Intensität geringer. Hier ergibt sich eine Differenz zwischen maximaler und minimaler Intensität von 2400 Counts für den grünen Kanal, 2000 Counts für den roten und 1500 Counts für den blauen Kanal.

4.9.5. Hochgeschwindigkeitsaufnahmen

Für unterschiedliche Bereiche unter der Sonotrode werden mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (Fastkam SA5, Photron) die Blasenstrukturen und Blasendynamiken aufgenommen. Bei einer Frequenz von 23,3 kHz und einer mittleren Spannung von 136 V entsteht nur in einem schmalen Bereich unter der Sonotrode eine dichte Blasenwolke und eine intensive, überwiegend blaue Emission.

In Abb. 4.38 ist eine Übersicht der Kavitationsstruktur gezeigt. Direkt unter der Sonotrode ist ein nahezu schwarzer Bereich zu erkennen, der sich aus einer Vielzahl kleiner Blasen zusammensetzt. In einiger Entfernung von der Spitze ist die Blasendichte geringer und es können einzelne Blasen in der Wolke ausgemacht werden. Generell ist hier unter der Sonotrode keine homogene Kavitation zu erkennen. Die Kavitationswolke ist an der linken Seite der Spitze stärker ausgeprägt. Bei einer ebenfalls möglichen gleichmäßigen Kavitation unter der gesamten Sonotrodenspitze, ist die Bewegung, der aus kleinen Blasen bestehenden Blasenwolke, meistens nach unten, von der Sonotrode weg gerichtet. Große Blasen bewegen sich hingegen auf die Sonotrode zu [24, 76, 77]. Hier entsteht Kavitation jedoch nur an einem Teil unter der Sonotrode, wodurch sich Verwirbelungen der Blasenwolke unter der Sonotrode entwickeln, die eine einheitliche nach unten gerichtete Bewegungsrichtung der Blasenwolke offenbar verhindern. Die Blasenwolke bewegt

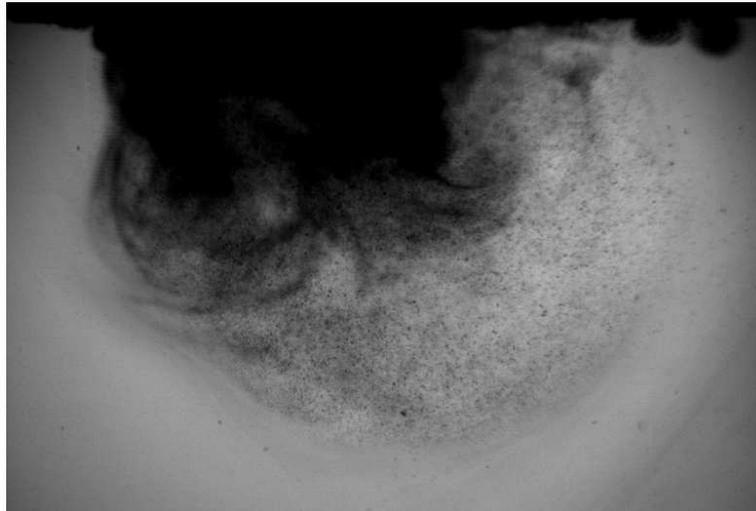


Abbildung 4.38.: Übersichtsbild der Kavitationswolke unter der Sonotrode aus einem Film mit 7 000 Bildern pro Sekunde, einer Belichtungszeit von $1/83\,000$ s, bei einer Frequenz von 23,3 kHz und einer Spannung von 136 V. Die Bildbreite beträgt 10 mm und zeigt die gesamte Breite der Sonotrodenspitze.

sich hier deutlich nach links und leicht nach unten.

Wird die Spannung bei einer leichten Verringerung der Frequenz (jetzt 23,2 kHz) auf 326 V erhöht, so entsteht Kavitation auch weiter entfernt von der Sonotrodenspitze. Die Emissionsfarbe teilt sich in einen blau emittierenden Bereich direkt unter der Sonotrode und einen rot emittierenden Bereich weiter von der Sonotrode entfernt (siehe Abb. 4.32 unten rechts). Dabei lassen sich die zu beobachtenden Blasen in drei Populationen aufteilen: Die erste Population besteht aus einer Vielzahl an kleinen Blasen mit einem maximalen Radius bis $40\ \mu\text{m}$, die sich in dichten Wolken aufhalten und nur langsam bewegen. Die größeren Blasen der Population können teilweise einzeln beobachtet werden. Sie schwingen weit auf, kollabieren stark und sind ausschließlich im oberen blau emittierenden Bereich der Struktur zu finden. Die zweite Blasenpopulation besteht aus mittelgroßen Blasen, die einen maximalen Radius zwischen 40 und $90\ \mu\text{m}$ aufweisen. Diese Population zeigt starke Oberflächenschwingungen und kollabiert ebenfalls stark. Diese Blasen sind nicht so häufig zu sehen und befinden sich in beiden Emissionsbereichen. Im oberen Bereich gehen sie aus Zusammenschlüssen kleinerer Blasen hervor. Sobald sie durch Zusammenschlüsse von Blasen der ersten Population einen kritischen Radius erreicht haben, bilden sich Oberflächenschwingungen aus. Die dritte Population besteht aus noch größeren Blasen mit einem

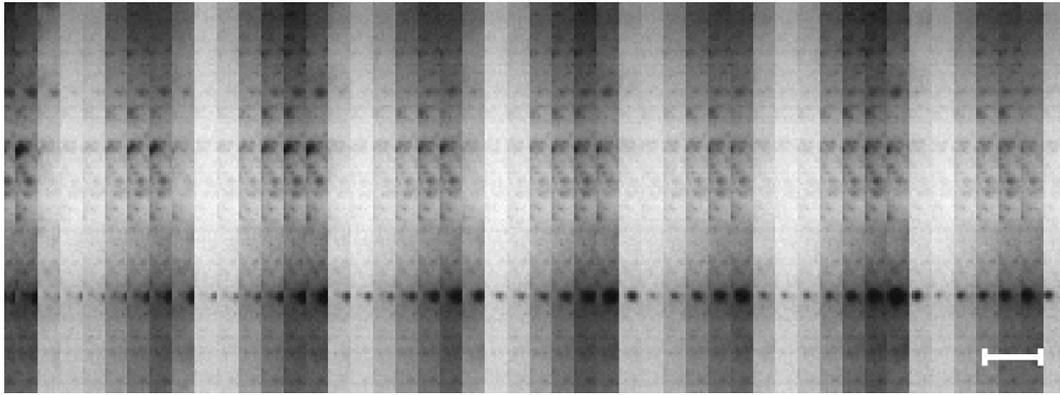


Abbildung 4.39.: Pseudostreak aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm aus dem unteren Bereich der Struktur aus Abb. 4.38. Die Aufnahmegeschwindigkeit beträgt 150 000 Bilder pro Sekunde und die Belichtungszeit 1 μs . Der Maßstab unten rechts beträgt 30 μm .

maximalen Radius zwischen 90 und 170 μm , die sehr stark kollabieren und jetteten. Dabei bewegen sie sich im Kollaps sprungartig meistens nach unten, von der Sonotrode weg. Sie ziehen eine Spur von sehr kleinen Blasen hinter sich her, die ebenfalls schwingen und sich über längere Zeit nicht auflösen. Die dritte Population ist ausschließlich im unteren rot emittierenden Bereich zu finden. Die jettenden Blasen können auch zu Blasen der zweiten Population werden: Vermutlich verlieren sie durch den starken Kollaps und das Abscheiden von kleinen Blasen an Volumen und beginnen ab einem kritischen kleineren Radius Oberflächenschwingungen auszubilden. Dies dämpft den Kollaps und die Blasen bleiben räumlich stationärer, bis sie wieder genug Gas aufgenommen haben, um wieder zu Blasen der dritten Population anzuwachsen, und erneut beginnen stark zu kollabieren sowie im Kollaps zu springen.

Um das Schwingungsverhalten der Blasen der ersten Population zu verdeutlichen und um zu klären, ob auch die Blasen der dichten Blasenwolke kollabieren, ist ein Pseudostreak in Abb. 4.39 gezeigt. Der Streak ist aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm erstellt, der einen Bereich unter der Sonotrode zeigt, in dem gleichzeitig einzelne Blasen und die Blasenwolke zu erkennen sind. Der dunkle, periodisch wiederkehrende Hintergrund im oberen Teil des Streaks, wird von der Abschattung der aufgeschwungenen dichten Blasenwolke verursacht. Im Streak sind ebenso einzelne, periodisch oszillierende Blasen zu sehen, die in Phase mit dem dunkler werdenden Hintergrund schwingen: Ist der Hintergrund dunkel und die einzelnen Blasen in der Blasenwolke aufgeschwungen, so sind auch die einzeln auszumachenden Blasen maximal aufgeschwungen. Ist der Hintergrund hingegen

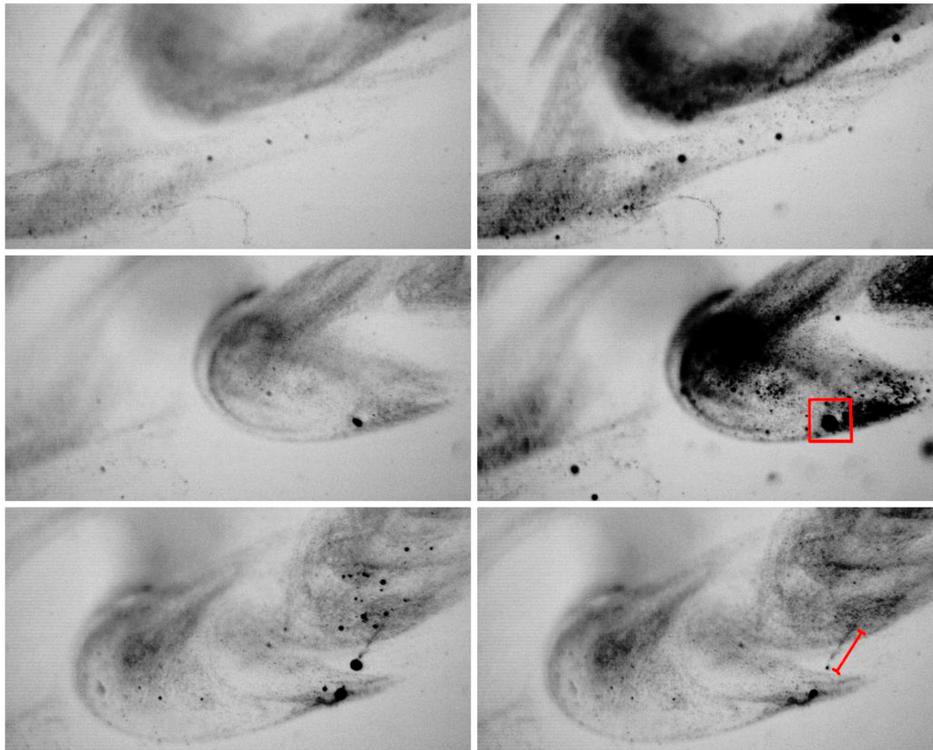


Abbildung 4.40.: Beispielhafte Bilder aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit 50 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1\ \mu\text{s}$. Pro Zeile sind aufeinander folgende Bilder des Films gezeigt. Die Anregungsfrequenz beträgt $23,21\ \text{kHz}$, die Spannung $326\ \text{V}$ und die Bildbreite $7,2\ \text{mm}$.

hell, die Blasen in der Blasenwolke also nahe der Kollapsphase, so sind auch die einzelnen Blasen klein. Lediglich die stark schwingende Blase im unteren drittel des Streaks kollabiert ein Bild später als die übrigen Blasen. Dies ist auf ein stärkeres Aufziehen auf einen größeren Maximalradius und somit auf ein späteres Kollabieren zurückzuführen. Durch die zu geringe Aufnahmegeschwindigkeit kann nicht abschließend geklärt werden, wie stark die Blasenwolke kollabiert, da pro Anregungsperiode nur etwa sechs Bilder aufgenommen werden und pro Bild über $1/42$ der Anregungsperiode gemittelt wird. Durch die großen Helligkeitsunterschiede der Wolke ist ein starker Kollaps und somit eine Lichtemission jedoch anzunehmen.

Für den Bereich der blauen Emission sind beispielhaft sechs Bilder aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit 50 000 Bildern pro Sekunde in Abb. 4.40 gezeigt. Die Bilder in einer Zeile sind dabei aufeinander folgende Bilder des Films mit einem zeitlichen Abstand von $20\ \mu\text{s}$. Die zeitlichen Abstände zwischen den Zeilen

sind deutlich größer. Zu sehen ist, ähnlich wie bei der geringeren Spannung in Abb. 4.38, eine teilweise dichte Blasenwolke, die sich von rechts nach links durch die Aufnahme bewegt. In der ersten Zeile ist die Blasenwolke nahe des Kollapszeitpunktes (erstes Bild) und zur Zeit des maximalen Aufschwingens der Blasen (zweites Bild) gezeigt. Dabei sind in der Blasenwolke einzelne Blasen (maximale Radien zwischen 15 und 40 μm , zweites Bild) zu erkennen, die im ersten Bild nur undeutlich zu sehen sind. Demnach führen alle Blasen einen starken Kollaps aus und emittieren höchstwahrscheinlich auch Licht. Die Größe der Blasen in der dichten Blasenwolke lässt sich nicht ermitteln; sie liegt vermutlich unter der Auflösungsgrenze der Kamera (1 Pixel entspricht hier 14,44 μm). Die gesamte Blasenwolke bewegt sich mit einer mittleren Geschwindigkeit von 19 cm/s durch das Bild.

In der zweiten Zeile in Abb. 4.40 ist eine Blase der zweiten Population in der Blasenwolke zu erkennen (markiert durch einen roten Kasten, Maximalradius 125 μm) Diese führt Oberflächenschwingungen aus und kollabiert ebenfalls stark. Eine Vergrößerung dieser Blase und die Dynamik der Oszillation sind weiter unten gezeigt.

In der dritten Zeile hat sich diese größere Blase nach unten links bewegt und eine weitere Blase aus der zweiten Population ist im Bild zu erkennen. Diese hat sich bereits aus der Blasenwolke hinaus auf die erste Blase zu bewegt und zieht dabei eine Spur von kleinen Blasen hinter sich her. In dem Bereich der rot markierten Strecke im Bild unten rechts erreicht die Blase eine mittlere Geschwindigkeit von 38 cm/s. Ob die Spur von kleinen Blasen von der schwingenden Blase abgeschieden bzw. erzeugt werden oder die kleinen Blasen aus der Wolke nur der größeren Blase folgen, kann durch die zu geringe Aufnahmegeschwindigkeit nicht abschließend geklärt werden.

Für eine Blase der zweiten Population, die in der Blasenwolke Oberflächenoszillationen ausführt, ist in Abb. 4.41 eine längere Sequenz aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit 50 000 Bildern pro Sekunde gezeigt. In der Vergrößerung sind die Oberflächendeformationen sowie die Größenunterschiede der Blase zu unterschiedlichen Zeiten gut zu erkennen, was auf einen starken Kollaps schließen lässt. Dabei bewegt sich die Blase mit einer mittleren Geschwindigkeit von 8,4 cm/s (etwa halb so schnell wie die Blasenwolke) durch das Bild. Die Radiuskompressionsrate $R_{\text{max}}/R_{\text{min}}$ beträgt mindestens 7,0 (in der Sequenz in Zeile 7 durch einen blauen Pfeil markiert). Der Maximalradius der Blase beträgt 117 μm . Im Hintergrund ist noch ein Schleier aus vielen deutlich kleineren Blasen zu sehen, die ebenfalls aufschwingen und kollabieren (sichtbar durch den abwechselnd mal helleren, mal dunkleren Hintergrund), deren Größe jedoch unter der Auflösung der Kamera liegt. Auf einigen Bildern in der vorletzten und letzten Zeile

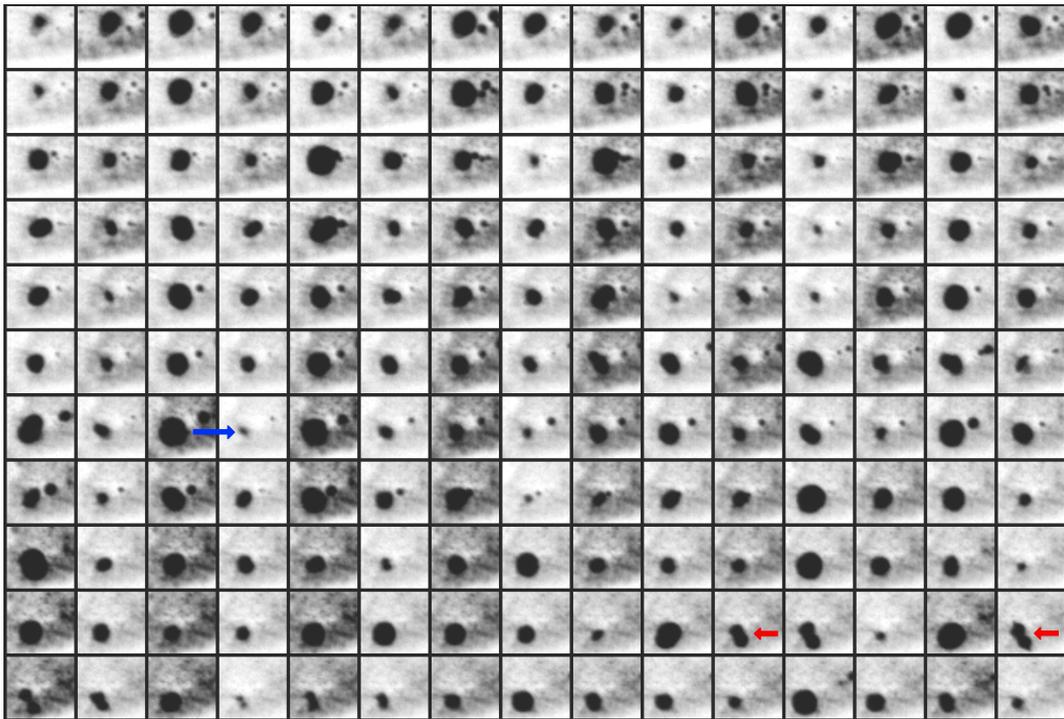


Abbildung 4.41.: Bilder aus einer Hochgeschwindigkeitsaufnahme mit 50 000 Bildern pro Sekunde für eine Blase der zweiten Population. Die Aufnahme stammt aus dem oberen Bereich vor der Sonotrode. Die Anregungsfrequenz beträgt 23,21 kHz, die Spannung 326 V und die Bildbreite 550 μm .

hat die Blase die Form einer Hantel, also eine starke Einschnürung in der Mitte (markiert durch rote Pfeile) angenommen. Durch die Oberflächenoszillationen könnten Tröpfchen in das Innere der Blase gelangen, wodurch eventuell das enthaltene Natrium angeregt wird.

In diesem oberen überwiegend blau emittierenden Bereich (vereinzelt sind in einer Vergrößerung der Farbaufnahme kleine schwach emittierende rote Bereiche zu erkennen) ist die Anregung von Natrium nicht dominant. Das Licht wird vermutlich hauptsächlich durch die stark kollabierenden kleineren Blasen in den Blasenwolken verursacht, deren Form durch die hohe Oberflächenspannung recht kugelförmig angenommen werden kann.

Die Bewegung zweier Blasen der dritten Population im unteren Teil der Struktur im Bereich der roten Emission ist in Abb. 4.42 gezeigt. Die obere Blase, die sich von oben nach unten durch das Bild bewegt, zieht einen „Schwanz“ von kleinen Blasen hinter sich her. Die Blase bewegt sich nur im Kollaps sprunghaft nach unten. Die Geschwindigkeiten beim Sprung beträgt zwischen 5,7 und

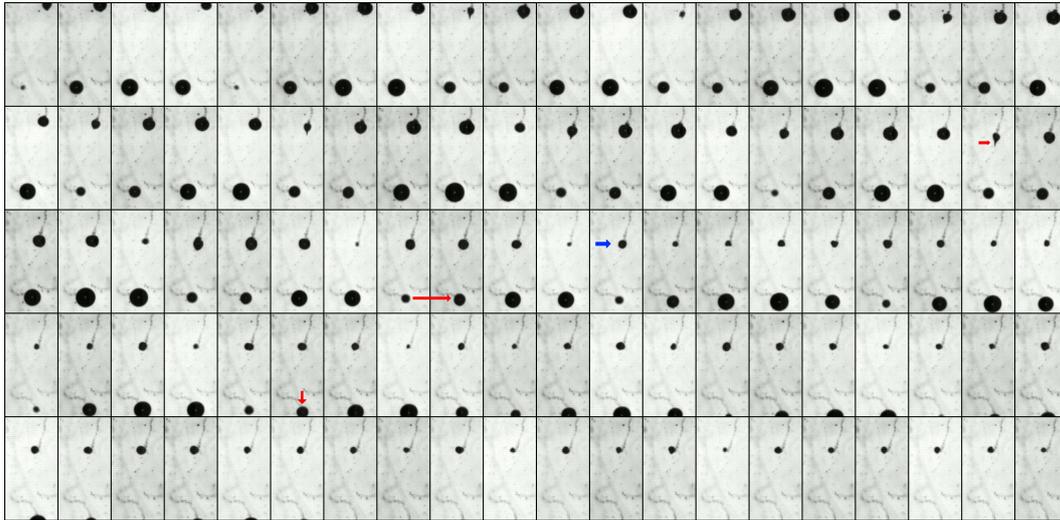


Abbildung 4.42.: Bilder aus einer Hochgeschwindigkeitsaufnahme mit 100 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/517\,000$ s. Die Aufnahme stammt aus dem unteren rot emittierenden Bereich. Die Anregungsfrequenz beträgt 23,21 kHz, die Spannung 326 V und die Bildbreite $1135\ \mu\text{m}$.

8,2 m/s. Die Blase bleibt während der Aufschwingphase stationär, was dem Kollapsverhalten einer Blase nahe einer harten Wand [58] ähnelt. Ihr Maximalradius beträgt $166\ \mu\text{m}$. Die Länge des Jets beträgt bis zu $137\ \mu\text{m}$ (am Ende der zweiten Zeile durch einen roten Pfeil markiert). Der „Blasenschwanz“ folgt der Blase mit einer Geschwindigkeit von 20 cm/s. Ab etwa der Hälfte der gezeigten Sequenz bleibt die Blase stationär und jettet nicht mehr (Mitte der dritten Zeile gekennzeichnet durch einen roten Pfeil). Ihr durchschnittlicher maximaler Radius beträgt jetzt $76\ \mu\text{m}$. Die Blase führt nur noch Oberflächenoszillationen ohne Translation aus. Die untere Blase hat sich in den ersten beiden Zeilen geringfügig nach schräg rechts unten mit einer mittleren Geschwindigkeit von 55,6 cm/s bewegt. Sie führt starke Volumenoszillationen mit maximalen Radiuskompressionsraten von 4,4 aus. Ab etwa der Mitte der vierten Zeile (markiert durch einen roten Pfeil) beginnt sich die Blase beim Kollaps mit einer Geschwindigkeiten zwischen 4,11 und 5,33 m/s nach unten zu bewegen. Die Radiuskompressionsrate sinkt dabei auf 2,4 ab. Ein Jetten der Blase ist nicht zu erkennen. Durch den „Blasenschwanz“ der großen oszillierenden Blasen kann der Weg verfolgt werden, den die Blasen zurückgelegt haben. Die obere Blase hat einen leicht nach schräg unten gerichteten geraden Verlauf, während sich die untere Blase in einem Bogen nach unten bewegt hat.

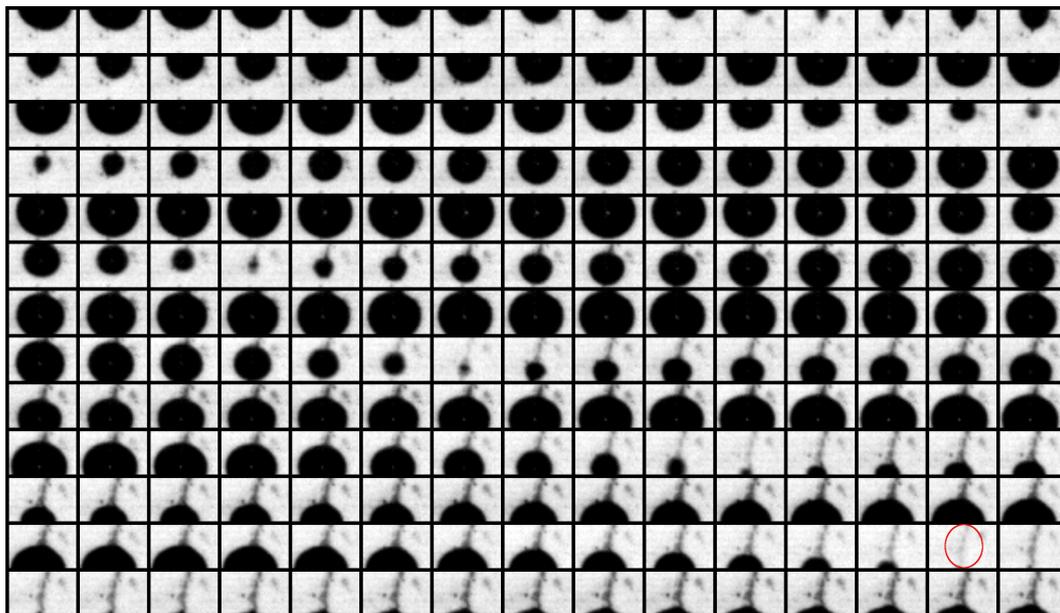


Abbildung 4.43.: Bilder aus einer Hochgeschwindigkeitsaufnahme mit 775 000 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit von $1/775\,000$ s. Die Aufnahme stammt aus dem Bereich der rot/orangen Emission. Die Anregungsfrequenz beträgt 23,21 kHz, die Spannung 326 V und die Bildbreite $420\ \mu\text{m}$.

Für eine höhere Aufnahmerate ist eine Sequenz aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm mit 775 000 Bildern pro Sekunde, ebenfalls für den unteren rot emittierenden Bereich, in Abb. 4.43 gezeigt. Hierbei ist deutlich zu erkennen, wie die Blase aufschwingt und im Kollaps nach unten springt. Die kleinen Blasen, die von der großen Blase hinterher gezogen werden, kollabieren ebenfalls. Das ist zum Beispiel im vorletzten Bild der vorletzten Zeile zu sehen (rot markiert). Dort ist der Blasenschwanz fast verschwunden. Die Radiuskompressionsrate der großen Blase beträgt hier 8,0, der Maximalradius $170\ \mu\text{m}$. Im Kollaps erreicht die Blase eine Geschwindigkeit von bis zu 44 m/s.

Aus der Hochgeschwindigkeitsaufnahme aus Abb. 4.43 kann für jedes Bild der Radius der Blase sowie die Position des Schwerpunkts durch Zählen der Pixel bestimmt werden. Eine Auftragung der gemessenen Radien und der Schwerpunkte gegen die Zeit ist in Abb. 4.44 gezeigt. Für die gemessenen Werte kann durch Anpassen von Ruheradius und Anregungsdruck eine Theoriekurve gefunden werden, die die Messwerte gut beschreibt. Für die Berechnung des Radius wird das Modell von Doinikov für eine Blase mit $N = 1$ verwendet (siehe Anhang A) sowie die Bewegung in einer Dimension mit einer sinusförmigen Anregung von

$P_a = -\hat{P}_a \sin(\omega t) \cos(kx)$ angenommen, wobei der Startpunkt der Blase nahe des Ursprungs gewählt wird. Die Werte für Ruheradius und Anregungsdruckamplitude werden durch Ausprobieren ermittelt. In der Auftragung ist die Theoriekurve für einen Ruheradius von $29 \mu\text{m}$ und einen Anregungsdruck von 3 bar gezeigt. Beim Aufschwingen der Blase zeigen sich leichte Unterschiede zwischen Theoriekurve und Messwerten, der grobe Verlauf wird durch diese Werte jedoch gut dargestellt. Die theoretischen Sprungweiten beim Kollaps stimmen bis auf den ersten Sprung gut mit den gemessenen überein.

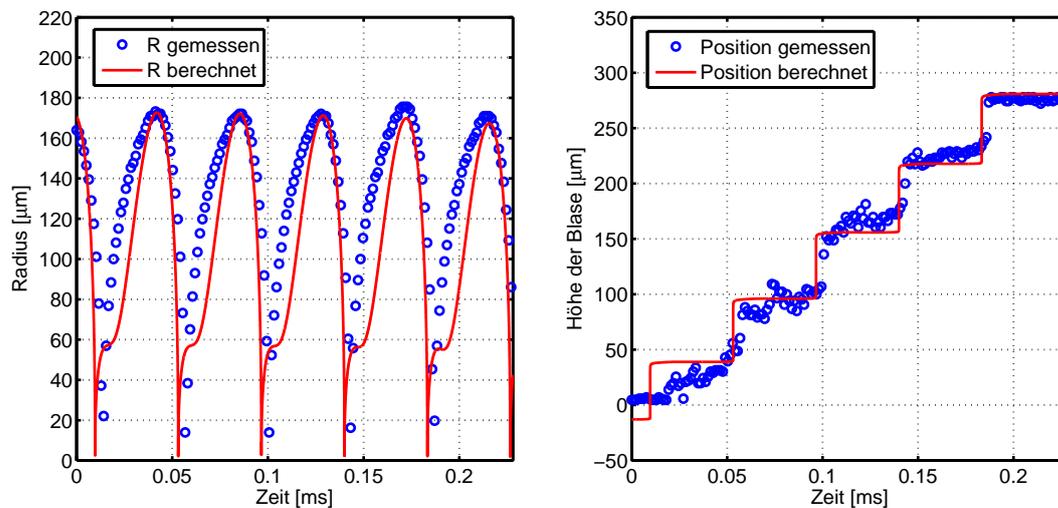


Abbildung 4.44.: Oszillation und Translation der Blase aus Abb. 4.43. Links: Auftragung der Radius-Zeit-Kurve für gemessene und berechnete Werte. Rechts: Auftragung der Schwerpunktposition gegen die Zeit für gemessene und berechnete Werte.

4.9.6. Optisches Emissions-Spektrum

Im Folgenden werden für die Struktur aus Abb. 4.32 unten rechts die optischen Spektren für die beiden unterschiedlichen Leuchtbereiche aufgenommen. Dazu wird ein bildgebender Monochromator (Acton Research, Spectra Pro 275, Gitterabstand: $1200/\text{mm}$) zusammen mit einem Photomultiplier (PMT, Sens-Tech, P25232), der am Ausgangspalt angebracht ist, verwendet. Die Küvette wird jeweils so positioniert, dass sich die Leuchtstruktur möglichst nah vor dem Monochromatoreingang befindet. Dabei wird der jeweils andere Leuchtemissionsbereich abgeschirmt. Die Spaltbreite von Ein- und Ausgang des Monochromators beträgt jeweils $0,75 \text{ mm}$. Für einen Wellenlängenbereich zwischen 400 und 800 nm wird

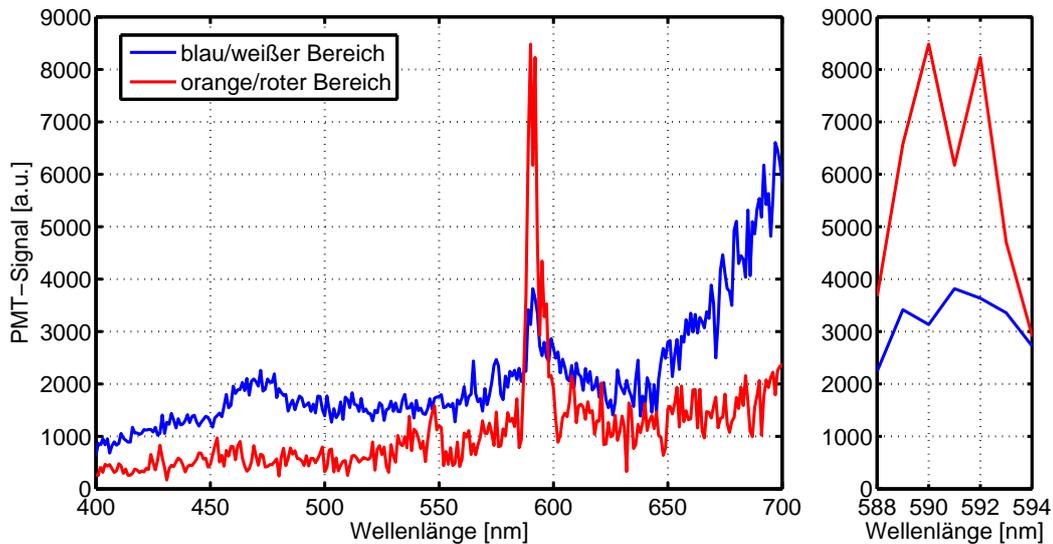


Abbildung 4.45.: Links: Gemessenes optisches Emissions-Spektrum des blauen und roten Bereichs der Leuchtstruktur unter der Sonotrode. Rechts: Ausschnittsvergrößerung des Spektrums im Bereich der Natrium-Emission.

das Spektrum mit einer Schrittweite von 1 nm abgetastet und pro Wellenlängenwert über drei Messungen mit jeweils 250 ms Belichtungszeit gemittelt. Um das Signal vom Dunkelrauschen des PMT zu trennen, wird der Wellenlängenbereich einmal in völliger Dunkelheit abgetastet und von den weiteren Messungen subtrahiert. Für das Signal des PMT wird außerdem die Quanteneffizienz der Photokathode berücksichtigt.

Das Spektrum der beiden Leuchtbereiche ist in Abb. 4.45 links aufgetragen. Das Kontinuum des Spektrums des blauen Bereichs liegt deutlich über dem des roten Bereichs. Bei ungefähr 590 nm ist im Spektrum des roten Bereichs ein dominanter Peak zu erkennen, die Natrium-D-Linie (eigentlich Natrium-D-Doppel-Linie). In der Vergrößerung des spektralen Bereichs um die Natrium-Emission, die in Abb. 4.45 rechts gezeigt ist, kann der Doppelpack erkannt werden. Dieser Peak ist auch beim Spektrum des blauen Bereichs zu sehen, jedoch hier weniger dominant. In der Vergrößerung ist der Doppelpack schwächer ausgeprägt und zu geringfügig tieferen Wellenlängen verschoben. Ab 650 nm steigt das Spektrum bei beiden Kurven deutlich an. In diesem Bereich ist die Quantenausbeute (QE, quantum efficiency) des Photomultipliers sehr gering (4 % bei 650 nm, 2 % bei 700 nm), wodurch das Signal vermutlich stark verrauscht ist. Zusätzlich kann durch eine bei der Messung der Spektren möglicherweise entstandene Erwärmung der Photokathode gegenüber der Referenzmessung ein höheres Dunkel-Signal vorhanden

sein, das durch die Korrektur für die QE anschließend verstärkt wird. Daher ist der Anstieg zu großen Wellenlängen eventuell ein Artefakt.

4.9.7. Diskussion

Die zeitlich gemittelten Aufnahmen der SL in Xenon-gesättigter Schwefelsäure mit gelöstem Natriumsulfat zeigen für einige Frequenzen und Spannungen eine Trennung von blauen und roten Emissionsbereichen. Diese können komplett räumlich voneinander getrennt sein, über einen breiten Bereich ineinander oder auf einer Linie von einer blauen zu einer roten Emission übergehen. In einigen Strukturen ist gar keine rote Emission zu erkennen.

Die zeitlich gemittelten Aufnahmen in den einzelnen Filterkanälen zeigen einen deutlichen Unterschied bei der Emission im grünen Kanal (die Natrium-Emission liegt in diesem Bereich), im Vergleich zum roten und blauen Kanal. Filigrane Strukturen konnten hier ausgemacht werden, die so in den anderen Kanälen nicht auftraten. Das lässt auf eine Linienemission oder auf die Emission in einem Band, das schmäler als 100 nm ist, schließen - vermutlich die Natrium-Emission.

Die orts-, zeit- und farbaufgelösten Aufnahmen konnten zeigen, dass es Zeitbereiche gibt, zu denen kein Signal gemessen werden konnte. Die Emission, die an der Sonotrodenspitze in allen Farbkanälen beginnt, bewegt sich im grünen Kanal nach unten von der Spitze weg, was ein Hinweis auf einen laufende Wellenanteil ist. Im unteren Emissionsbereich sind wieder alle Kanäle zu sehen. Daraus lässt sich schließen, dass im Bereich der laufenden Welle das Natrium besser bzw. vorrangig angeregt werden kann, woraus sich eine bessere Anregung bei asphärischen Blasen ergibt.

Darüber hinaus konnte kein weiteres deutliches Signal von unterschiedlichen Farben an unterschiedlichen Orten beobachtet werden. Für andere Strukturen, bei denen in den Farbaufnahmen eine Teilung der Emissionsfarbe zu sehen ist, und für die höheren Spannungen bei den Hochgeschwindigkeitsaufnahmen sollte eine deutliche Trennung der Orte in den Farbkanälen aufzunehmen sein. Bei einer erneuten Durchführung des Experiments sollte dies kein Problem darstellen.

Auf den Aufnahmen des optischen Spektrums konnte in beiden Emissionsbereichen die Natriumlinie beobachtet werden, die im unteren rot emittierenden Bereich deutlich stärker ausgeprägt war als im oberen blauen Emissionsbereich. Die Kollaps-Temperatur im blauen Bereich ist vermutlich höher als die im roten Bereich, was sich aus dem höheren Kontinuum im Spektrum ergibt. Die Spektren von Xu et al. [114] zeigen keine Natrium-Linie im oberen Emissionsbereich. Dies kann aber durch die Art der Aufnahme des Spektrums bedingt sein, da bei ihren Messungen das Spektrum nur über einen kleinen Bereich von 1 mm

räumlich gemittelt wurde und nicht wie hier über den gesamten oberen Emissionsbereich. Auch bei Xu et al. ist die Temperatur im oberen Bereich deutlich höher als im unteren Bereich. Der dort gemessene leichte Abfall des Spektrums zu hohen Wellenlängen zeigt sich allerdings in Abb. 4.45 nicht. Womöglich ist dies auf eine ungenügende zeitliche Mittelung und/oder auf die Instabilität der Kavitationsstruktur zurückzuführen.

Ein Vergleich der aufgenommenen Blasengrößen und -dynamiken aus den Hochgeschwindigkeitsfilmen in den verschiedenen Emissionsbereichen lässt darauf schließen, dass vermutlich die kleinen Blasen der ersten Population (bis 40 μm Maximalradius) starke sphärische Volumenzillationen ausführen und hauptsächlich für die blaue Emission im oberen Teil verantwortlich sind. Die Blasen, die für die rote Emission verantwortlich sind, gehören der zweiten Population (etwas größere Blasen, mit Oberflächenoszillationen) und der dritten Population (noch größer aufschwingende Blasen mit Jet im Kollaps) an, die hauptsächlich im unteren, rot emittierenden Bereich gefunden wurden. Diese Aufnahmen lassen, wie von Xu et al. [114] bereits vermutet, darauf schließen, dass der Anregungsmechanismus von Natrium durch das „injected-droplet“-Modell erklärt werden kann und nicht durch das „heated-shell“-Modell: Die Blasenpopulation, bei der eine starke Natriumlinie zu beobachten ist, besteht offenbar ausschließlich aus nichtsphärischen Blasen, die Instabilitäten der Oberfläche aufweisen bzw. aus Blasen mit Jetbildung im Kollaps. Da auch der Verlauf des Spektrums nahe legt, dass die rote Emission „kälter“ ist, sollte im oberen Teil der blauen, „heißeren“ Blasen erst recht Natrium-Emission entstehen, wenn das heated-shell-Modell zutreffend wäre - was aber nicht der dominante Fall ist.

Weiterhin konnte gezeigt werden, dass die jettenden Blasen eine Spur von deutlich kleineren Blasen hinter sich herziehen. Dass dieser „Schwanz“ tatsächlich aus Blasen besteht, wird mit der letzten gezeigten Hochgeschwindigkeitssequenz (vgl. Abb. 4.43) motiviert. Auf der Aufnahme ist klar zu erkennen, wie der „Schwanz“ verschwindet und wieder sichtbar wird. Die einzelnen Bestandteile des Schwanzes erfahren demnach eine Volumenänderung, was nur für Blasen möglich ist und nicht für einen chemisch entstandenen Feststoff. Der Blasenschwanz besteht vermutlich aus den Blasen eines Counterjets, die durch die hohe Viskosität der Schwefelsäure stabilisiert werden. Dass der Counterjet tatsächlich aus kleinen einzelnen Blasen besteht, wurde von Lindau et al. mit Aufnahmen von lasererzeugten Blasen in der Nähe einer festen Grenzschicht gezeigt [62].

Die Frage, wie die Tröpfchen der Flüssigkeit genau in die Blase gelangen, kann nicht abschließend geklärt werden. Es gibt jedoch einige mögliche Vorgänge. Eine denkbare Möglichkeit besteht in einer Instabilität der Oberfläche der jettenden Blase. Bei Laserblasen, die in der Nähe einer Oberfläche erzeugt werden, kann

beobachtet werden, dass Blasen mit einem $\Gamma < 1$, die also torusförmig kollabieren und „splashen“, Oberflächeninstabilitäten ausbilden können, bevor die Blase kollabiert [72]. Auch beim anschließenden Wiederaufschwingen bleiben diese Instabilitäten für eine gewisse Zeitspanne erhalten. In einer weiteren Untersuchung zu Laserblasen, die in der Nähe der Küvetten-Ecke erzeugt werden, wird beobachtet, dass diese jettenden Blasen nach dem Aufschwingen eine Reihe von kleinen Blasen um sich herum bilden können [156]. Wenn durch den Kollaps kleine Blasen abgeschnürt werden, so sollten umgekehrt ebenso Flüssigkeitstropfen in die Blase gelangen können.

Aus numerischen Simulationen kann die Entstehung des Flüssigkeitsjets sowie das „Splashen“ gut dargestellt werden. Viele Berechnungen enden jedoch mit dem Auftreffen des Jets auf die gegenüberliegende Blasenwand, da für die Berechnungen die Flüssigkeit als rotationsfrei angenommen wird, was beim Auftreffen des Jets nicht mehr gültig ist. Durch einige mathematische Tricks bzw. Vernachlässigungen kann dies allerdings umgangen werden. Als Beispiel sei hier auf die Berechnungen von Tong et al. [61] verwiesen, die sich auf „splashende“ Blasen fokussiert haben. Bei diesen Blasen bilden sich kleine Flüssigkeits„ohren“ in die Blase hinein, die je nach Stärke der Ausprägung sowie nach Länge, Teile der Blase abspalten oder Flüssigkeitstropfen in die Blase einbringen können. Von Blasen mit starken Oberflächenschwingungen ist bekannt, dass sie bei sehr starker Schwingung in kleinere Blasen zerfallen können oder kleinere Blasen abspalten. Der umgekehrte Fall sollte ebenso möglich sein: Werden Blasen abgespalten, so sollten auch Tröpfchen in die Blase gelangen können. Weiterhin ist nicht klar, ob der Flüssigkeitsjet, der durch die Blasen hindurchgeht, eine glatte Form hat. Ebenso ist eine Instabilität der Grenze zwischen Jet und Blaseninnerem denkbar.

Die Geschwindigkeiten, die beim Sprung erreicht werden, liegen im gleichen Bereich wie die der lasererzeugten Blasen, die von Lauterborn et al. in der Nähe einer harten Grenzschicht gemessen werden [58]. Dort werden Geschwindigkeiten von bis zu 35 m/s für den Blasenschwerpunkt und bis zu 120 m/s für die Jetspitze gemessen. Bei Aufnahmen schneller Dynamiken ergibt sich eine scheinbare Abhängigkeit der Geschwindigkeit von der Aufnahme rate: Je höher die Aufnahme rate, desto höher die Geschwindigkeit der Blase, zumindest bei einer zu geringen Abtastrate bei einem starken Anstieg der Geschwindigkeit. Dieses Problem tritt vermutlich ebenfalls bei den hier gezeigten Aufnahmen auf. Bei einer Aufnahme rate von 100 000 Bildern pro Sekunde liegt die maximale Geschwindigkeit im Bereich von 5 m/s, für eine höhere Aufnahme rate von 775 000 Bildern pro Sekunde erreicht die gemessene Geschwindigkeit Werte über 40 m/s. Zudem ist es auch möglich, dass die Blase im schneller aufgenommenen Film tatsächlich schneller ist, da die gleiche Bewegungsgeschwindigkeit der Blasen in unterschiedlichen Auf-

nahmen nicht gegeben ist.

Letztendlich lässt sich festhalten, dass die schnelle Translation der Blasen ein Jetten induzieren kann, welches wiederum die Na*-Emission begünstigt. Offenbar führen die Bedingungen im „jettenden Kollaps“ der Blasen zur Einmischung der Flüssigkeit in das Blaseninnere und somit potentiell zur Anregung oder Pyrolyse von nichtflüchtigen Substanzen.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Im ersten experimentellen Kapitel dieser Arbeit wurden Kavitationsstrukturen untersucht. Für das Beispiel der in Stehwellenfeldern nahe der Druckknoten auftretenden „Miller-Struktur“ wurde eine ähnliche Skalierung über den weiten Frequenzbereich von 40 kHz bis 1 MHz gefunden. Diese Ähnlichkeit ist gültig, obwohl die Strukturen in verschiedenen Geometrien und bei unterschiedlichen maximalen Anregungsdruckamplituden aufgenommen wurden. Dies lässt darauf schließen, dass die für die Strukturbildung verantwortlichen Mechanismen bei allen Frequenzen auf dieselbe Art wirken. Eine vollständige theoretische Beschreibung des Blasenverhaltens bei der Miller-Struktur steht allerdings noch aus. Ebenso bleibt noch zu klären, ob eine obere Grenze der Frequenz für das Auftreten der Struktur existiert und in welchem Bereich diese liegt. Um die Blasen bei noch höheren Frequenzen unterhalb der optischen Auflösung sichtbar zu machen, müsste allerdings ein geeignetes Verfahren zur Beobachtung gefunden werden. Eine Möglichkeit, dies zu erreichen, sollte in der Applikation von Stoßwellen mit anschließenden Zugwellen bestehen.

Weiterhin wurde die Oberflächenreinigung durch Kavitationsblasen untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass verschiedene Blasen-Populationen durch potentiell verschiedene Mechanismen zur Reinigung von Oberflächen beitragen können: Zum einen wurden an der zu reinigenden Fläche anhaftende, eventuell kollabierende und Oberflächenschwingungen ausführende Blasen beobachtet, wobei die Blasenwand vermutlich jeden abzulösenden Partikel überstreichen muss. Zum anderen wurde Reinigung durch vorbeiströmende Blasen dokumentiert, die durch Fernwirkung einen breiteren Bereich an Partikeln ablösen können, die sie aber nicht unmittelbar berührt haben. Um den genauen Abreinigungsmechanismus zu klären, könnte bei einer geringeren Frequenz und/oder unter einem Mikroskop die Abreinigung beobachtet werden.

Im zweiten experimentellen Kapitel wurde ein Aufbau für orts-, zeit- und farbaufgelöste Sonolumineszenzaufnahmen vorgestellt, der Zeitfenster von bis zu 100 ns der Anregung für Anregungsfrequenzen bis in den MHz-Bereich auflösen

kann. Zur spektralen Auflösung wurden im sichtbaren Bereich drei Filter mit je 100 nm Breite verwendet. Eine höhere spektrale Auflösung ist problematisch, da bei der hohen zeitlichen Auflösung von 100 ns die Belichtungszeiten entsprechend erhöht werden müssten. Kavitationsstrukturen, die mit einer größeren Belichtungszeit aufgenommen werden, bergen dann das Risiko, dass sie sich während der Aufnahme durch eine Erhöhung der Temperatur oder durch Entgasen der Flüssigkeit verändern.

Mit dem vorgestellten Aufbau wurden verschiedene wässrige Lösungen bei einer Anregungsfrequenz von 370 kHz untersucht. Für das SL-Signal ergab sich keine starke räumliche oder zeitliche Aufteilung der einzelnen spektralen Filterkanäle für beschalltes Wasser. Bei beschallter Luminol-Lösung ergab sich eine stärkere Emission im blauen Filterkanal, was durch die zusätzliche Sonochemolumineszenz im blauen Spektralbereich verursacht wurde. Ferner ergab sich auch eine schwache Emission an den Orten der Druckknoten, in denen keine stark kollabierenden Blasen vorzufinden sind. Dies ist offenbar auf ein verzögertes Chemolumineszenzleuchten zurückzuführen. Die angeregten Luminolmoleküle können vom Ort der Anregung wegtransportiert werden und an einem Ort emittieren, an dem keine Blasen kollabieren und entsprechend kein SL-Signal zu sehen ist. Dieser Transport scheint nicht durch die Strömung der Flüssigkeit verursacht zu werden, da diese dafür zu langsam ist, sondern von den Kavitationsblasen selbst, die die Luminolmoleküle bei ihrer schnellen Bewegung durch die Flüssigkeit eventuell mitreißen. Diese schnelle Bewegung führt die Blasen durch Zonen niedrigen Anregungsdrucks. Der Einsatz von Luminol zur Charakterisierung der aktiven Bereiche im Schallfeld ist demnach besser für niedrige Frequenzen und Strukturen geeignet, bei denen die Geschwindigkeit der Blasen nicht zu groß wird. Weiterhin wurde für beschallte wässrige SDS-Lösungen bei einer Konzentration von 1 mM mehr Licht im roten und grünen und für 10 mM deutlich mehr Licht im grünen Filterkanal (die Natrium-D-Linie liegt in diesem Filter) detektiert. Durch die Ergebnisse wird bestätigt, dass hohe SDS Konzentrationen (> 2 mM) zu einer generellen Abnahme der Sonolumineszenz führen, die Emission des nichtflüchtigen Natriums aber ausgeprägter wird. Ursache könnte sein, dass der Kollaps der Blasen mit abnehmender Oberflächenspannung zunehmend asymmetrischer wird, was zu einer niedrigeren Kollapstemperatur führt, gleichzeitig aber mehr flüssiges Material in die kollabierende Blase, z. B. durch Jetbildung, mischt.

Weiterhin ermöglicht es der Aufbau, das Schallfeld in Bezug auf Steh- und Laufwellencharakter zu untersuchen. Andere Küvettenformen und Frequenzen könnten in Zukunft untersucht werden, um zu überprüfen, ob die gefundenen Ergebnisse allgemeiner gültig sind und ob Geometrie- und Frequenzabhängigkeiten existieren.

Abschließend wurde bei den Untersuchungen von Schwefelsäure mit gelöstem Natriumsulfat versucht, eine Korrelation zwischen Blasendynamik und SL-Emissionsfarbe herzustellen. Dabei wurde festgestellt, dass das nicht-flüchtige Natrium (rötliche Farbe) insbesondere durch oberflächeninstabile Blasen angeregt werden kann. Vermutlich gelangen hier Flüssigkeitströpfchen durch die Instabilitäten der Blasenwand in die Blase und werden dort im Kollaps verdampft und angeregt (Pyrolyse). Diese Oberflächeninstabilitäten finden sich einerseits bei Blasen mit starken Oberflächenschwingungen, andererseits bei jettenden Blasen. Eine genauere Untersuchung von levitierten Einzelblasen könnte tiefere Einblicke in den genauen Mechanismus der Tröpfcheneinbringung und der Natrium-Anregung liefern. Ebenso könnten andere Flüssigkeiten mit hoher Viskosität verwendet werden, um von den Säuren zu einfacher handhabbaren Flüssigkeiten zu gelangen. Hierbei ist zu beachten, dass vermutlich sowohl hohe Viskosität als auch niedriger Dampfdruck zu der starken Emission in Schwefelsäure beitragen. Alternative Flüssigkeiten sollten ähnliche Eigenschaften aufweisen, wie z. B. „ionische Flüssigkeiten“.

Anhang A

Numerische Simulationen

Für ein System von N Blasen wurde folgende Radius-Oszillationsgleichung für die n -te Blase (nach Doinikov [157]) benutzt:

$$\left(1 - \frac{\dot{R}_n}{c}\right) \dot{R}_n \ddot{R}_n + \left(\frac{3}{2} - \frac{\dot{R}_n}{2c}\right) \dot{R}_n^2 - \frac{P_n}{\rho} \left(1 + \frac{\dot{R}_n}{c}\right) - \frac{R_n}{\rho c} \frac{dP_n}{dt} = \frac{\dot{\mathbf{x}}_n^2}{4} - \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq n}}^N \left\{ \frac{R_l^2 \ddot{R}_l + 2R_l \dot{R}_l^2}{d_{nl}} + \frac{R_l^2}{2d_{nl}^3} (\mathbf{x}_n - \mathbf{x}_l) \left(R_l \ddot{\mathbf{x}}_l + \dot{R}_l \dot{\mathbf{x}}_n + 5\dot{R}_l \dot{\mathbf{x}}_l \right) \right\}, \quad (\text{A.1})$$

mit:

$$P_n = \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_{n0}} \right) \left(\frac{R_{n0}}{R_n} \right)^{3\eta} - \frac{2\sigma}{R_n} - \frac{4\mu \dot{R}_n}{R_n} - P_0 - P_{\text{ex}}(\mathbf{x}_n). \quad (\text{A.2})$$

Für die Translationsbewegung der n -ten Blase wurde die folgende Gleichung verwendet (ebenfalls nach Doinikov):

$$\begin{aligned} & \frac{1}{3} R_n \ddot{\mathbf{x}}_n + \dot{R}_n \dot{\mathbf{x}}_n \\ &= \frac{\mathbf{F}_n}{2\pi\rho R_n^2} + \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq n}}^N \left\{ \frac{\mathbf{x}_n - \mathbf{x}_l}{d_{nl}^3} \left(R_n R_l^2 \ddot{R}_l + 2R_n R_l \dot{R}_l^2 + \dot{R}_n \dot{R}_l R_l^2 \right) \right\}, \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

wobei \mathbf{F}_n die Summe der externen Kräfte bezeichnet:

$$\begin{aligned}
\mathbf{F}_n &= \mathbf{F}_{\text{Bj}1n} + \mathbf{F}_{\text{dn}} \\
&= -\frac{4}{3}\pi R_n \nabla P_{\text{ex}}(\mathbf{x}_n) - 12\pi\mu R_n \left(\dot{\mathbf{x}}_n - \mathbf{v}_{\text{ex}}(\mathbf{x}_n) - \sum_{\substack{r,l=1 \\ l \neq n}}^N \mathbf{v}_{ln} \right), \quad (\text{A.4})
\end{aligned}$$

wobei $\mathbf{F}_{\text{Bj}1n}$ die primäre Bjerkneskraft, \mathbf{F}_{dn} die Reibungskraft und \mathbf{v}_{ex} die Geschwindigkeit der Flüssigkeit, die vom Schallfeld im Mittelpunkt der n -ten Blase erzeugt wird bezeichnet. Für die Geschwindigkeiten gilt:

$$\mathbf{v}_{ln} = \frac{R_l^2 \dot{R}_l (\mathbf{x}_n - \mathbf{x}_l)}{d_{nl}^3}. \quad (\text{A.5})$$

Wird bei den numerischen Simulationen die Diffusion berücksichtigt, so wird der Polytropenexponent η (nach Eller [158]) angepaßt, wenn sich der Ruheradius ändert:

$$\eta = \gamma(1 + b_t^2)^{-1} \left[1 + \frac{3(\gamma - 1)}{X} \left(\frac{\sinh(X) - \sin(X)}{\cosh(X) - \cos(X)} \right) \right]^{-1}, \quad (\text{A.6})$$

wobei

$$b_t = 3(\gamma - 1) \left(\frac{X(\sinh(X) + \sin(X)) - 2(\cosh(X) - \cos(X))}{X^2(\cosh(X) - \cos(X)) + 3(\gamma - 1)X(\sinh(X) - \sin(X))} \right) \quad (\text{A.7})$$

und $X = R_0 \sqrt{2\omega/D_1}$ gilt. γ ist das Verhältnis der spezifischen Wärmen und $D_1 = K_1/\rho C_{p1}$, wobei K_1 die Wärmeleitfähigkeit, ρ die Dichte und C_{p1} die spezifische Wärme bei konstantem Druck des Gases in der Blase ist.

Die in den numerischen Simulationen verwendeten Werte für die Parameter sind in der folgenden Tabelle in SI-Einheiten angegeben:

Parameter	Wert	Einheit
c (Wasser)	1500	m/s
c (10 mM SDS)	1500	m/s

Parameter	Wert	Einheit
c (Schwefelsäure)	1350	m/s
C_{p1} (Luft)	918	J/(kg·K)
C_{p1} (Xenon)	160	J/(kg·K)
C_0 (Luft)	1,3	mol/m ³
C_0 (Xenon)	4,3	mol/m ³
D (Luft)	2,4 e-9	m ² /s
D (Xenon)	1,47 e-9	m ² /s
K_1 (Luft)	0,024	W/(m·K)
K_1 (Xenon)	0,005	W/(m·K)
P_0	101,3	Pa
μ (Wasser)	0,001	kg/(m·s)
μ (10 mM SDS)	0,001	kg/(m·s)
μ (Schwefelsäure)	0,0267	kg/(m·s)
ρ (Luft)	1,204	kg/m ³
ρ (Xenon)	5,898	kg/m ³
ρ_1 (Wasser)	998	kg/m ³
ρ_1 (10 mM SDS)	1001	kg/m ³
ρ_1 (Schwefelsäure 95%)	1836	kg/m ³
σ (Wasser)	0,0725	N/m
σ (10 mM SDS)	0,038	N/m
σ (Schwefelsäure 95%)	0,058	N/m
Θ	293	K

Anhang B

Bearbeitungsverfahren

Um quantitative Aussagen über die Lichtintensität bzw. die wirkliche Photonenzahl in den verschiedenen Filterkanälen machen zu können, wurden mehrere Anpassungen an die Werte, die die EMCCD-Kamera (Aufnahmen wurden im Counting Modus gemacht) liefert, vorgenommen. Berücksichtigt wurden für die EMCCD Kamera die unterschiedlichen Belichtungszeiten S_i und Gain-Werte F_i , $i = (\text{rot, grün, blau})$. Die Quanteneffizienz (QE) des Kamerasensors musste nicht gesondert berücksichtigt werden, da nur die Photonen der Phosphorschicht bei der Kamera ankommen. Die entsprechenden Werte für das Kamera-Gain und die QE wurden der Kameraanleitung entnommen.

Für die IRO wurde die Empfindlichkeit der Phosphorschicht gemäß der Quanteneffizienz aus der Bedienungsanleitung berücksichtigt, wobei die folgenden Werte gelten: Rot: $QP_{\text{rot}} = 3,96\%$, Grün: $QP_{\text{grün}} = 6,74\%$ und Blau: $QP_{\text{blau}} = 11,38\%$.

Für die Bandpassfilter wurden gemäß der mitgelieferten Transmissionskurven die folgenden Faktoren, gemäß der maximalen Transmission im Durchlassbereich, bestimmt: Rot: $BP_{\text{rot}} = 0,9$, Grün: $BP_{\text{grün}} = 0,9$ und Blau: $BP_{\text{blau}} = 0,8$. Werden alle genannten Faktoren berücksichtigt, so ergibt sich ein Skalierungsfaktor F , der die Countzahl der EMCCD-Kamera in einen Wert proportional zur tatsächlich emittierten Photonenzahl umwandelt:

$$1/F_i = S_i \cdot F_i \cdot QP_i \cdot BP_i, \quad (\text{B.1})$$

wobei F_i mit $i = (\text{rot, grün, blau})$ für die jeweiligen Filter gelten.

Um die wirkliche Photonenzahl zu erhalten, müssen die erhaltenen Werte noch mit dem Multiplikationsfaktor der IRO für ein eintreffendes Photon multipliziert werden. Um eine Anzahl der insgesamt emittierten Photonen in der Struktur zu erhalten, müsste noch der Raumwinkel des aufgenommenen Emissionslichts berücksichtigt werden.

Anhang C

Verwendete Küvetten

C.1. 5 cm×5 cm×5 cm Quarzquader

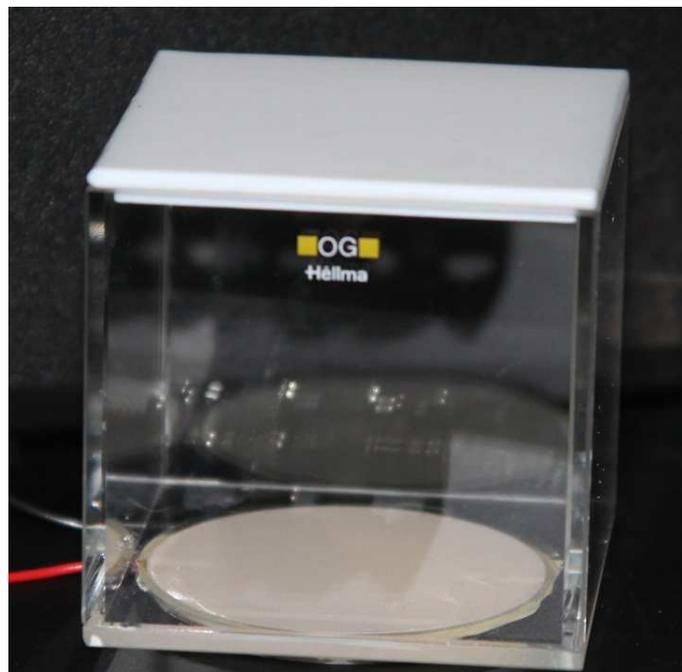


Abbildung C.1.: 5 cm×5 cm×5 cm Quarzküvette von Hellma.

Die Innenkantenlänge der quaderförmigen Küvette der Firma Hellma beträgt 5 cm und besteht aus 2,5 mm dicken Quarzwänden. An den Boden wurde mit Zweikomponentenkleber (UHU Endfest 100) ein Scheibenpiezo befestigt. Der Durchmesser des Piezos beträgt 4,5 cm und die Dicke 2 mm. Die Kontaktierungen des Piezos können auf einer Seite vorgenommen werden, da die Elektrode der einen Seite auf die andere umgeschlagen („wrapped“) ist. Die Küvette kann mit einem Teflondeckel abgedeckt werden.

C.2. Großes Becken

Als Küvette wurde ein Aquarium (Maße: B 30 cm \times T 20 cm \times H 20 cm) benutzt. Für die Messungen wurde die Küvette mit Leitungswasser bis zu einer Höhe von 15 cm befüllt. Um das Wasser mit Luft zu sättigen wurde aus der Leitung Wasser über einen Schlauch, der am Ende bis auf ein kleines Loch verschlossen war, in das Becken geleitet. Durch den am Loch entstehenden Unterdruck entstand eine Vielzahl an kleinen Blasen, die die Flüssigkeit begasen. Zur Schalleinkopplung wurde in der Mitte des Beckens am Boden ein Breitband-Sandwichtransducer mit Zweikomponentenkleber (UHU Endfest 100) angebracht.

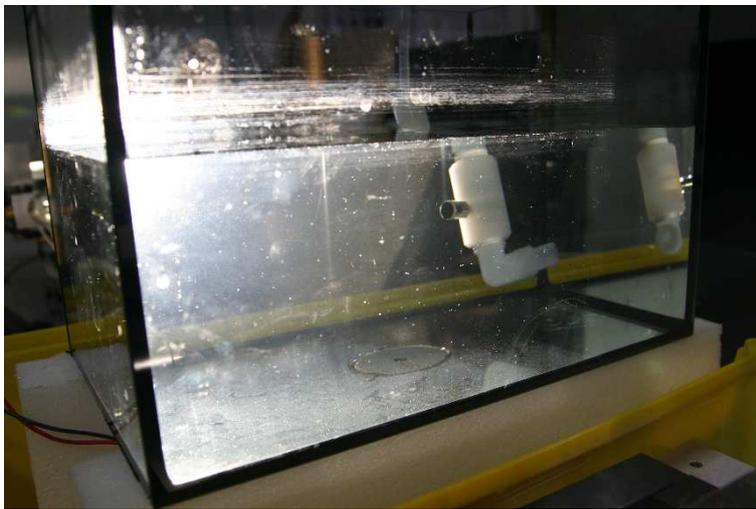


Abbildung C.2.: Foto der mit Wasser gefüllten Küvette. Der Wandler ist in der Mitte des Beckens am Boden zu sehen.

C.3. Wandlerblock

Der Wandler besteht aus einem rechteckigen Aluminiumblock (Maße in cm: B \times H \times T 9,5 \times 5 \times 4) mit einem auf der Oberseite mit Zweikomponentenkleber (UHU Endfest 100) aufgeklebtem rechteckigen Piezowandler (Maße in cm: L \times B \times H, 7 \times 2,5 \times 0,1). Die Unterseite des Blocks ist mit dreieckigen Rillen versehen. Die Höhe der Dreiecke beträgt 1 mm und der Winkel zwischen benachbarten Flächen 30°. Unter dem Wandler wurde für unterschiedliche Abstände ein Objektträger angebracht, um ein Stehwellenfeld zu erzeugen. Für verschiedene Frequenzen wurde die Miller-Struktur zufällig beobachtet. In Abb. C.3 sind zwei Fotos des Wandlers zu sehen.

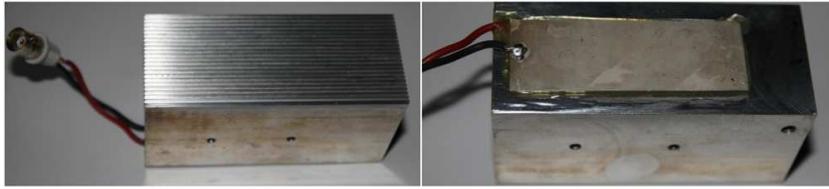


Abbildung C.3.: Fotos des Wandlerblocks. Links: von schräg unten, rechts: von schräg oben.

C.4. PMMA-Küvette

Die rechteckige Küvette besteht aus unterschiedlich dicken PMMA-Wänden, die ineinander verschraubt sind. Ein Foto der Küvette ist in Abb. C.4 gezeigt. Die linke Wand im Bild hat eine Dicke von 1,5 cm. In diese ist eine Quarzscheibe eingepasst, auf die ein ringförmiger Piezowandler geklebt ist. Der äußere Radius des Wandlers beträgt 1,1 cm und der innere 0,6 cm, mit einer Dicke von 3 mm. Die gegenüberliegende Wand (rechts im Bild) hat eine Dicke von 2,5 cm, mit einem eingelassenen Quarzreflektor. Der Durchmesser des Reflektors beträgt 4,5 cm. Die Mittelpunkte von Ringwandler und Quarzreflektor sind auf einer Höhe. Die Verbindungswände zwischen der Wandler- und der Reflektorwand haben eine Dicke von 0,8 cm. Die Innenmaße der Küvette betragen $B\ 5,3\text{ cm} \times T\ 9\text{ cm} \times H\ 7,3\text{ cm}$.

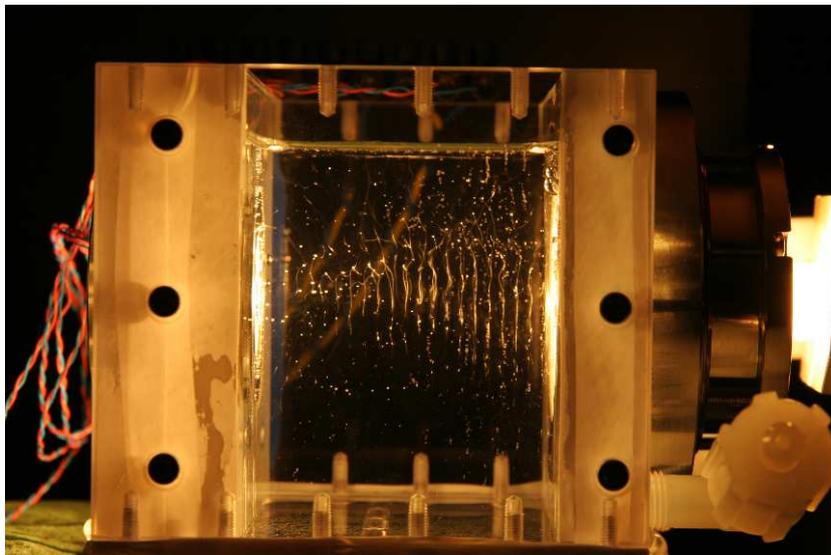


Abbildung C.4.: Foto der PMMA-Küvette.

C.5. Titan-Sonotrode

Die verwendete Titan-Sonotrode wurde von Till Nowak nach Kuttruff, Sindyihbura und Mason [159–161] berechnet und in der Institutswerkstatt gebaut. Ein Foto der Sonotrode ist in Abb. C.5 gezeigt. Der Durchmesser verjüngt sich exponentiell von 1,9 cm auf 1 cm auf einer Länge von 18 cm. Die Rückmasse besteht ebenfalls aus Titan und hat einen Durchmesser von 1,9 cm und eine Dicke von 1 cm. Zwei gegeneinander gespannte Ringpiezos mit einer Dicke von 6 mm und einem Durchmesser von 38 mm treiben die Sonotrode.

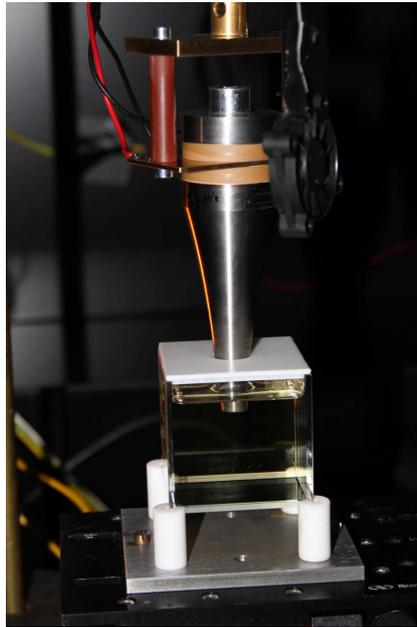


Abbildung C.5.: Foto der Titan-Sonotrode im Aufbau für Schwefelsäure. Ein Teflondeckel schützt vor Spritzern aus der Flüssigkeit.

Symbolverzeichnis

a_n^m	Vorfaktor der Kugelflächenfunktionen der Ordnung m und vom Grad n
c	Schallgeschwindigkeit in der Flüssigkeit am Ort der Blasenwand
c_D	Reibungskoeffizient
f	Anregungsfrequenz
f_{res}	lineare Resonanzfrequenz / Minnaert Frequenz
\mathbf{k}	Wellenvektor
t	Zeit
\mathbf{x}	Ortsvektor des Blasenmittelpunktes
C	Schallgeschwindigkeit in der Flüssigkeit
C_0	Sättigungskonzentration des gelösten Gases in der Flüssigkeit
C_i	Konzentration des gelösten Gases in der Flüssigkeit
D	Diffusionskonstante
\mathbf{F}_{Bj1}	Primäre Bjerknes-Kraft
\mathbf{F}_{Bj2}	Sekundäre Bjerknes-Kraft
\mathbf{F}_D	Reibungskraft
\mathbf{F}_{ext}	Summe der externen Kräfte
\mathbf{F}_H	History Force
\mathbf{F}_M	Trägheitskraft
F_n	Floquet Übergangsmatrix für Mode n
P_0	Druck in der Flüssigkeit
P_∞	Druck in der Flüssigkeit weit weg von den Blasen
\hat{P}_a	Anregungsdruckamplitude
P_a	Anregungsdruck
P_g	Gasdruck in der Blase
P_L	Differenz zwischen Druck in der Blase und an der Blasenwand
P_{stat}	statischer Druck
R	Radius der Blase
R_0	Ruheradius der Blase
R_g	Gaskonstante
R_{res}	linearer Resonanzradius / Minnaert Radius

Re	Reynoldszahl
T	Schwingungsdauer
U	Relativgeschwindigkeit zwischen Blasenwand und Flüssigkeit
U_a	Geschwindigkeit der Flüssigkeit
V	Volumen der Blase
Y_n^m	Kugelflächenfunktion der Ordnung m und Grad n
α	Vorfaktor der Reibungskraft
η	Polytropenexponent
γ	Verhältnis der spezifischen Wärmen
μ	dynamische Viskosität der Flüssigkeit
ρ	Dichte des Gases in der Blase
ρ_l	Dichte der Flüssigkeit
σ	Oberflächenspannung
Θ	absolute Temperatur
Φ	Phase
ω	Kreisfrequenz
Γ	Abstandsparameter

Literaturverzeichnis

- [1] Y. WU, E. C. UNGER, T. P. MCCREERY, R. H. SWEITZER, D. SHEN, G. WU und M. D. VIELHAUER: *Binding and lysing of blood clots using MRX-408*. Invest. Radiol. **33**, 880–885, 1998.
- [2] K. KAWABATA und S. UMEMURA: *Effect of second-harmonic superimposition on efficient induction of sonochemical effect*. Ultrasonics Sonochemistry **3**, 1–5, 1996.
- [3] B. B. GOLDBERG, J.-B. LIU und F. FORSBERG: *Ultrasound contrast agents - a review*. Ultrasound Med. Biol. **20**, 319–333, 1994.
- [4] T. J. MASON: *Advances in Sonochemistry*, Band 1. JAI PRESS LTD, Stamford, Connecticut, 1990.
- [5] M. A. MARGULIS: *Sonochemistry and Cavitation*. Gordon and Breach Publishers, Luxemburg, 1995.
- [6] L. A. CRUM, T. M. MASON, J. L. REISSE und K. S. SUSLICK: *Sonochemistry and Sonoluminescence*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 1999.
- [7] T. J. MASON: *Advances in Sonochemistry*, Band 5. JAI PRESS LTD, Stamford, Connecticut, 1999.
- [8] J. OLAF: *Oberflächenreinigung mit Ultraschall*. Acustica **7**(5), 253–263, 1957.
- [9] F. R. YOUNG: *Cavitation*. McGraw-Hill Book Company, London, 1989.
- [10] W. LAUTERBORN: *Cavitation and Inhomogeneities in Underwater Acoustics*, Band 4 der Reihe *Springer Series in Electrophysics*. Springer Verlag, Heidelberg, 1980.
- [11] R. T. KNAPP, J. W. DAILY und F. G. HAMMITT: *Cavitation*. McGraw-Hill Book Company, New York, 1970.

-
- [12] T. G. LEIGHTON: *The Acoustic Bubble*. Academic Press, London, 1994.
- [13] C. E. BRENNEN: *Cavitation and Bubble Dynamics*, Band 44 der Reihe *Oxford Engineering Science*. Oxford University Press, New York, 1995.
- [14] E. A. NEPPIRAS: *Acoustic cavitation*. *Physics Reports* **61**(3), 159–251, 1980.
- [15] W. LAUTERBORN und T. KURZ: *Physics of bubble oscillations*. *Rep. Prog. Phys* **73**, 106501 (88 pp), 2010.
- [16] E. N. HARVEY, D. K. BARNES, W. D. MCELROY, A. H. WHITELY, D. C. PEASE und K. W. COOPER: *Bubble Formation in Animals. I. Physical factors*. *J. Cell. Comp. Physiol.* **24**, 1–22, 1944.
- [17] J. B. KELLER und M. MIKSIS: *Bubble oscillations of large amplitude*. *J. Acoust. Soc. Am.* **68**(2), 628–633, 1980.
- [18] A. PROSPERETTI und A. LEZZI: *Bubble dynamics in a compressible liquid. Part 1. First-order theory*. *J. Fluid Mech.* **168**, 457–478, 1986.
- [19] A. PROSPERETTI und A. LEZZI: *Bubble dynamics in a compressible liquid. Part 2. Second-order theory*. *J. Fluid Mech.* **185**, 289–321, 1987.
- [20] F. R. GILMORE: *The growth or collapse of a spherical bubble in a viscous compressible liquid*. Technischer Bericht 26-4, Hydrodynamics Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena California, USA, 1952.
- [21] M. MINNAERT: *On musical air-bubbles and the sounds of running water*. *Phil. Mag. Ser.* **16**(7), 235–248, 1933.
- [22] F. R. YOUNG: *Sonoluminescence from water containing dissolved gases*. *J. Acoust. Soc. Am.* **60**(1), 100–104, 1976.
- [23] V. F. K. BJERKNES: *Fields of Force*. Columbia University Press, New York, 1906.
- [24] R. METTIN: *From a single bubble to bubble structures in acoustic cavitation*. In: T. KURZ, U. PARLITZ und U. KAATZE (Herausgeber): *Oscillations, Waves and Interactions*, Seiten 171–198. Universitätsverlag Göttingen, Göttingen, 2007.
- [25] Y. A. ILINSKII, M. F. HAMILTON und E. A. ZABOLOTSKAYA: *Bubble interaction dynamics in Lagrangian and Hamiltonian mechanics*. *J. Acoust. Soc. Am.* **121**(2), 786–795, 2007.

- [26] D. KREFTING, R. METTIN und W. LAUTERBORN: *Translationsdynamik levitierter Einzelblasen*. In: O. v. ESTORFF (Herausgeber): *Fortschritte der Akustik - DAGA 2001*, DEGA: Oldenburg, 2001.
- [27] A. J. REDDY und A. J. SZERI: *Coupled dynamics of translation and collapse of acoustically driven microbubbles*. *J. Acoust. Soc. Am.* **112**(4), 1346–1352, 2002.
- [28] R. METTIN und A. DOINIKOV: *Translational instability of a spherical bubble in a standing ultrasound wave*. *J. Acoust. Soc. Am.* **60**(5), 1203–1212, 2009.
- [29] L. D. LANDAU und E. M. LIFSCHITZ: *Hydrodynamik*, Band 6 der Reihe *Lehrbuch der Theoretischen Physik*. Akademie Verlag, Berlin, 5. Auflage, 1991.
- [30] G. K. BATCHELOR: *An Introduction to Fluid Dynamics*. Cambridge University Press, New York, 2000.
- [31] G. LEVICH: *Physicochemical Hydrodynamics*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, 1962.
- [32] J. MAGNAUDET und D. LEGENDRE: *The viscous drag force on a spherical bubble with a time-dependent radius*. *Phys. Fluids* **10**(3), 550–554, 1998.
- [33] D. KREFTING, R. METTIN, U. PARLITZ und W. LAUTERBORN: *Akustische und räumliche Strukturbildung in Ultraschall-Kavitationsfeldern*. In: G. K. BEHLER (Herausgeber): *Fortschritte der Akustik - DAGA '03*, Seiten 832–833, DEGA: Oldenburg, 2003.
- [34] A. I. ELLER und H. G. FLYNN: *Rectified diffusion during nonlinear pulsations of cavitation bubbles*. *J. Acoust. Soc. Am.* **37**(3), 493–503, 1965.
- [35] L. A. CRUM: *Rectified diffusion*. *Ultrasonics* **22**, 215–223, 1984.
- [36] H. LAMB: *Hydrodynamics*. Cambridge University Press, Cambridge, 6. Auflage, 1932.
- [37] M. KORNFELD und L. SUVOROV: *On the destructive action of cavitation*. *J. Appl. Phys.* **15**, 495–506, 1944.
- [38] M. S. PLESSET: *On the stability of fluid flows with spherical symmetry*. *J. Appl. Phys.* **25**(1), 96–98, 1954.

- [39] M. STRASBERG und T. B. BENJAMIN: *Excitation of oscillations in the shape of pulsating bubbles - experimental work*. J. Acoust. Soc. Am. **30**, 697, 1958.
- [40] L. A. CRUM und A. I. ELLER: *Motion of bubbles in a stationary sound field*. J. Acoust. Soc. Am. **48**(1), 181–189, 1970.
- [41] P. G. SAFFMAN: *The self-propulsion of a deformable body in a perfect fluid*. J. Fluid Mech. **28**(2), 385–389, 1967.
- [42] T. B. BENJAMIN und A. T. ELLIS: *Self-propulsion of asymmetrically vibrating bubbles*. J. Fluid Mech. **212**, 65–80, 1990.
- [43] C. C. MEI und X. ZHOU: *Parametric resonance of a spherical bubble*. J. Fluid Mech. **229**, 29–50, 1991.
- [44] Z. C. FENG und L. G. LEAL: *Translational instability of a bubble undergoing shape oscillations*. Phys. Fluids **7**(6), 1325–1336, 1995.
- [45] A. J. REDDY und A. J. SZERI: *Shape stability of unsteadily translating bubbles*. Phys. Fluids **14**(7), 2216–2224, 2002.
- [46] A. O. MAKSIMOV: *On the subharmonic emission of gas bubbles under two-frequency excitation*. Ultrasonics **35**(1), 79–86, 1997.
- [47] J. HOLZFUSS: *Surface-wave instabilities, period doubling, and an approximate universal boundary of bubble stability at the upper threshold of sonoluminescence*. Phys. Rev. E **77**, 066309 (10 pp), 2008.
- [48] H. W. STRUBE: *Numerische Untersuchungen zur Stabilität nichtsphärisch schwingender Blasen*. Acustica **25**(5), 289–303, 1971.
- [49] S. HILGENFELDT, M. P. BRENNER, S. GROSSMANN und D. LOHSE: *Analysis of Rayleigh-Plesset dynamics for sonoluminescing bubbles*. J. Fluid Mech. **365**, 171–204, 1998.
- [50] G. I. TAYLOR: *The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. I*. Proc. R. Soc. London, Ser. A **201**(1065), 192–196, 1950.
- [51] D. J. LEWIS: *The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. II*. Proc. R. Soc. London, Ser. A **202**(1068), 81–96, 1950.

- [52] M. FARADAY: *On a peculiar class of acoustical figures; and on certain forms assumed by groups of particles upon vibrating elastic surfaces*. Phil. Trans. R. Soc. Lond (121), 299–340, 1831.
- [53] L. RAYLEIGH: VII. *On the crispations of fluid resting upon a vibrating support*. Phil. M. Ser. 5 **97**(16), 50–58, 1883.
- [54] M. P. BRENNER, S. HILGENFELDT und D. LOHSE: *Single-bubble sonoluminescence*. Rev. Modern Phys. **74**(2), 425–484, 2002.
- [55] I. N. BRONSTEIN, K. A. SEMENDJAJEW, G. MUSIOL und H. MÜHLIG: *Taschenbuch der Mathematik*. Verlag Harri Deutsch, Frankfurt am Main, 2008.
- [56] J. R. BLAKE und D. C. GIBSON: *Cavitation bubbles near boundaries*. Ann. Rev. Fluid Mech. **19**, 99–123, 1987.
- [57] W. LAUTERBORN, T. KURZ, R. METTIN und C.-D. OHL: *Experimental and Theoretical Bubble Dynamics*. In: I. PRIGOGINE und S. A. RICE (Herausgeber): *Advances in Chemical Physics*, Band 110, Seiten 295–380. John Wiley & Sons, Hoboken, USA, 1999.
- [58] W. LAUTERBORN und H. BOLLE: *Experimental investigations of cavitation-bubble collapse in the neighbourhood of a solid boundary*. J. Fluid Mech. **72**(2), 391–399, 1975.
- [59] W. LAUTERBORN: *Cavitation*. In: M. J. CROCKER (Herausgeber): *Encyclopedia of Acoustics*. John Wiley & Sons, Hoboken, USA, 1997.
- [60] C.-D. OHL, O. LINDAU und W. LAUTERBORN: *Aspherical bubble collapse and sonoluminescence*. In: L. A. CRUM, T. J. MASON, J. L. REISSE und K. S. SUSLICK (Herausgeber): *Sonochemistry and Sonoluminescence*, Seiten 183–190, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 1999.
- [61] R. P. TONG, W. P. SCHIFFERS, S. J. SHAW, J. R. BLAKE und D. C. EMMONY: *The role of „splashing“ in the collapse of a laser-generated cavity near a rigid boundary*. J. Fluid Mech. **380**, 339–361, 1999.
- [62] O. LINDAU und W. LAUTERBORN: *Cinematographic observation of the collapse and rebound of a laser-produced cavitation bubble near a wall*. J. Fluid Mech. **479**, 237–348, 2003.

- [63] C.-D. OHL, T. KURZ, R. GEISLER, O. LINDAU und W. LAUTERBORN: *Bubble dynamics, shock waves and sonoluminescence*. Phil. Trans R. Soc. Lond. A **357**, 269–294, 2009.
- [64] M. S. PLESSET: *Effect of dissolved gas on cavitation in liquids*. Z. Flugwiss. **19**(3), 120–121, 1971.
- [65] K. SATO, Y. TOMITA und A. SHIMA: *Numerical analysis of a gas bubble near a rigid boundary in an oscillatory pressure field*. J. Acoust. Soc. Am. **95**, 2416–2424, 1994.
- [66] J. R. BLAKE, G. S. KEEN, R. P. TONG und M. WILSON: *Acoustic bubble cavitation: the fluid dynamics of non-spherical bubbles*. Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **357**, 251–267, 1999.
- [67] M. LEE, E. KLASEBOER und B. C. KHOO: *On the boundary integral method for the rebounding bubble*. J. Fluid Mech. **570**, 407–429, 2007.
- [68] M. L. CALVISI, J. I. ILORETA und A. J. SZERI: *Dynamics of bubbles near a rigid surface subjected to a lithotripter shock wave. Part II. Reflected shock intensifies nonspherical cavitation collapse*. J. Fluid Mech. **616**, 63–97, 2008.
- [69] S. MÜLLER, M. BACHMANN, D. KRÖNINGER, T. KURZ und P. HELLUY: *Comparison and validation of compressible flow simulations of laser-induced cavitation bubbles*. Computers & Fluids **38**, 1850–1862, 2009.
- [70] M. S. PLESSET und R. B. CHAPMAN: *Collapse of an initially spherical vapour cavity in the neighbourhood of a solid boundary*. J. Fluid Mech. **47**(2), 283–290, 1971.
- [71] W. LAUTERBORN und C.-D. OHL: *Cavitation bubble dynamics*. Ultrasonics **4**, 65–75, 1997.
- [72] D. KRÖNINGER, K. KÖHLER, T. KURZ und W. LAUTERBORN: *Particle tracking velocimetry of the flow field around a collapsing cavitation bubble*. Exp. Fluids **48**, 395–408, 2010.
- [73] T. B. BENJAMIN und A. T. ELLIS: *The collapse of cavitation bubbles and the pressure thereby produced against solid boundaries*. Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A **260**, 221–240, 1966.
- [74] D. C. GIBSON: *Cavitation adjacent to plane boundaries*. In: *Proc. Aust. Conf. Hydraul. and Fluid Mech.*, Seiten 210–214, Sydney, 1968.

- [75] J. P. DEAR und J. E. FIELD: *A study of the collapse of arrays of cavities*. J. Fluid Mech. **190**, 409–425, 1988.
- [76] R. METTIN und T. NOWAK: *Experimentelle Beobachtung der sprunghaften Blasenbewegung in Kavitationsfeldern*. In: U. JEKOSCH und R. HOFFMANN (Herausgeber): *Fortschritte der Akustik - DAGA 2008*, Seiten 469–470, Berlin: DEGA, 2008.
- [77] T. NOWAK, R. METTIN und W. LAUTERBORN: *Bubble motion and jetting at sonotrodes*. In: M. M. BOONE und T. U. DELFT (Herausgeber): *NAG/DAGA 2009, International Conference on Acoustics, Rotterdam*, Seiten 712–714, 2009.
- [78] Q. X. WANG und J. R. BLAKE: *Non-spherical bubble dynamics in a compressible liquid. Part 1. Travelling acoustic wave*. J. Fluid Mech. **659**, 191–224, 2010.
- [79] R. METTIN, I. AKHATOV, U. PARLITZ, C.-D. OHL und W. LAUTERBORN: *Bjerknes forces between small cavitation bubbles in a strong acoustic field*. Phys. Rev. E **56**(3), 2924–2931, 1997.
- [80] R. METTIN, C.-D. OHL und W. LAUTERBORN: *Particle approach to structure formation in acoustic cavitation*. In: L. A. CRUM, T. J. MASON, J. L. REISSE und K. S. SUSLICK (Herausgeber): *Sonochemistry and Sonoluminescence, Proceedings of the NATO Advanced Study Institute*, Seiten 138–144, Dordrecht, The Netherlands, 1999.
- [81] P. KOCH, D. KREFTING, T. TERVO, R. METTIN und W. LAUTERBORN: *Bubble path simulations in standing and traveling acoustic waves*. In: *18th International Congress on Acoustics, Kyoto, Japan, 2004*.
- [82] R. METTIN: *Bubble structures in acoustic cavitation*. In: A. DOINIKOV (Herausgeber): *Bubble and Particle Dynamics in Acoustic Fields: Modern Trends and Applications*, Seiten 1–36. Research Signpost, Kerala, India, 2005.
- [83] R. METTIN, P. KOCH, W. LAUTERBORN und D. KREFTING: *Modeling acoustic cavitation with bubble redistribution*. In: *6th International Symposium on Cavitation, CAV2006*, Wageningen, The Netherlands, 2006.
- [84] M. MARINESCO und J. J. TRILLAT: *Action des ultrasons sur les plaques photographiques*. C. R. Acad. Sci. Paris **196**, 858–860, 1933.

- [85] H. FRENZEL und H. SCHULTES: *Lumineszenz in ultraschallbeschicktem Wasser*. Z. Phys. Chem. B **27**, 421–424, 1934.
- [86] B. E. NOLTINGK und E. A. NEPPIRAS: *Cavitation produced by ultrasonics*. Proc. Phys. Soc. B **63**, 674–685, 1950.
- [87] D. J. FLANNIGAN und K. S. SUSLICK: *Plasma formation and temperature measurement during single-bubble cavitation*. Nature **434**, 52–55, 2005.
- [88] N. C. EDDINGSAAS und K. S. SUSLICK: *Evidence for a plasma core during multibubble sonoluminescence in sulfuric acid*. J. Am. Chem. Soc **129**, 3838–3839, 2007.
- [89] F. LEPOINT-MULLIE, D. DE PAUW, T. LEPOINT, P. SUPIOT und R. AVNI: *Nature of the „extreme conditions“ in single sonoluminescing bubbles*. J. Phys. Chem. **100**, 12138–12141, 1996.
- [90] C. C. WU und P. H. ROBERTS: *Shock-wave propagation in a sonoluminescing gas bubble*. Phys. Rev. Lett. **70**, 3424–3427, 1993.
- [91] S. J. PUTTERMAN und K. R. WENINGER: *Sonoluminescence: how bubbles turn sound into light*. Annual Rev. Fluid Mech. **32**, 445–476, 2000.
- [92] V. GRIFFING: *The chemical effects of ultrasonics*. J. Chem. Phys. **20**(6), 939–942, 1952.
- [93] D. F. GAITAN, L. A. CRUM, C. C. CHURCH und R. A. ROY: *Sonoluminescence and bubble dynamics for a single, stable, cavitation bubble*. J. Acoust. Soc. Am. **91**, 3166–3183, 1992.
- [94] R. A. HILLER und B. P. BARBER: *Producing light from a bubble of air*. Sci. Am. **272**, 78–81, 1995.
- [95] L. A. CRUM: *Measurements of the growth of air bubbles by rectified diffusion*. J. Acoust. Soc. Am. **68**(1), 203–211, 1980.
- [96] R. G. HOLT und D. F. GAITAN: *Observation of stability boundaries in the parameter space of single bubble sonoluminescence*. Phys. Rev. Lett. **77**(18), 3791–3794, 1996.
- [97] B. P. BARBER, R. A. HILLER, R. LÖFSTEDT, S. J. PUTTERMAN und K. R. WENINGER: *Defining the unknowns of sonoluminescence*. Physics Reports **281**, 65–143, 1997.

- [98] T. J. MATULA: *Inertial cavitation and single-bubble sonoluminescence*. Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **357**, 225–249, 1999.
- [99] D. J. FLANNIGAN und K. S. SUSLICK: *Emission from electronically excited metal atoms during single-bubble sonoluminescence*. Phys. Rev. Lett. **99**, 134301 (4 pp), 2007.
- [100] H. KUTTRUF: *Über den Zusammenhang zwischen der Sonolumineszenz und der Schwingungskavitation in Flüssigkeiten*. Acustica **12**, 230–254, 1962.
- [101] B. GOMPF, R. GÜNTHER, G. NICK, R. PECHA und W. EISENMENGER: *Resolving sonoluminescence pulse widths with time-correlated single photon counting*. Phys. Rev. Lett. **79**, 1405–1408, 1997.
- [102] R. A. HILLER, S. J. PUTTERMAN und K. R. WENINGER: *Time-resolved spectra of sonoluminescence*. Phys. Rev. Lett. **80**, 1090–1093, 1998.
- [103] B. P. BARBER, C. C. WU, P. H. ROBERTS, R. LÖFSTEDT und S. J. PUTTERMAN: *Sensitivity of sonoluminescence to experimental parameters*. Phys. Rev. Lett. **72**, 1380–1383, 1994.
- [104] R. A. HILLER, S. J. PUTTERMANN und B. P. BARBER: *Spectrum of synchronous picosecond sonoluminescence*. Phys. Rev. Lett. **69**, 1182–1184, 1992.
- [105] K. YASUI: *Single-bubble and multibubble sonoluminescence*. Phys. Rev. Lett. **83**, 4297–4300, 1999.
- [106] S. HILGENFELDT, S. GROSSMANN und D. LOHSE: *A simple explanation of light emission in sonoluminescence*. Nature **398**, 402–405, 1999.
- [107] W. B. MCNAMARA, Y. T. DIDENKO und K. S. SUSLICK: *Sonoluminescence temperatures during multi-bubble cavitation*. Nature **401**, 772–775, 1999.
- [108] Y. T. DIDENKO, W. B. MCNAMARA und K. S. SUSLICK: *Molecular emission from single-bubble sonoluminescence*. Nature **407**, 877–879, 2000.
- [109] M. L. CALVISI, O. LINDAU, J. R. BLAKE und A. J. SZERI: *Shape stability and violent collapse of microbubbles in acoustic travelling waves*. Phys. Fluids **19**, 047101 (15 pp), 2007.
- [110] K. J. TAYLOR und P. D. JARMAN: *The spectra of sonoluminescence*. Aust. J. Phys. **23**, 319–334, 1970.

- [111] F. LEPOINT-MULLIE, N. VOGLET, T. LEPOINT und R. AVNI: *Evidence for the emission of ‘alkali-metal-nobel-gas’ van der Waals molecules from cavitation bubbles*. *Ultrasonics Sonochemistry* **8**, 151–158, 2001.
- [112] D. SUNARTIO, K. YASUI, T. TUZIUTI, T. KOZUKA, Y. IIDA, M. ASHOK-KUMAR und F. GRIESER: *Correlation between Na^* emission and “chemically active” acoustic cavitation bubbles*. *ChemPhysChem* **8**, 2331–2335, 2007.
- [113] H. JING, S. J. HE, W. FANG und S. J. MIN: *Cavitation luminescence of argon-saturated alkali-metal solutions from a conical bubble*. *J. Phys. B: At. Mol. opt. Phys* **41**, 195402 (4 pp), 2008.
- [114] H. XU, N. C. EDDINGSAAS und K. S. SUSLICK: *Spatial separation of cavitating bubble populations: the nanodroplet injection model*. *J. Am. Chem. Soc* **131**, 6060–6061, 2009.
- [115] N. V. DEZHKUNOV, A. FRANCESCUTTO, P. CIUTI, T. J. MASON, G. IERNETTI und A. I. KULAK: *Enhancement of sonoluminescence emission from a multibubble cavitation zone*. *Ultrasonics Sonochemistry* **7**, 19–24, 2000.
- [116] K. YASUI: *Effect of liquid temperature on sonoluminescence*. *Phys. Rev. E* **64**, 016310 (10 pp), 2001.
- [117] D. F. GAITAN, R. A. TESSIEN, R. A. HILLER, J. GUTIERREZ, C. SCOTT, T. J. MATULA, A. CRUM, R. G. HOLT, C. C. CHURCH und J. L. RAYMOND: *Transient cavitation in high-quality-factor resonators at high static pressures*. *J. Acoust. Soc. Am.* **127**(6), 3456–3465, 2010.
- [118] A. TROIA, D. MADONNA RIPA, S. LAGO und R. SPAGNOLO: *Moving single bubble sonoluminescence in phosphoric acid and sulphuric acid solutions*. *Ultrasonics Sonochemistry* **13**, 278–282, 2006.
- [119] R. URTEAGA, D. H. DELLAVALE, G. F. PUENTE und F. J. BONETTO: *Positional stability as the light emission limit in sonoluminescence with sulfuric acid*. *Phys. Rev. E* **76**, 056317 (5 pp), 2007.
- [120] R. URTEAGA und F. J. BONETTO: *Trapping an intensely bright, stable sonoluminescing bubble*. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 074302 (4 pp), 2008.
- [121] A. MOSHAI, K. IMANI und M. SILATANI: *Sonoluminescence radiation from different concentrations of sulfuric acid*. *Phys. Rev. E* (80), 046325 (7 pp), 2009.

- [122] G. J. PRICE, M. ASHOKKUMAR und F. GRIESER: *Sonoluminescence quenching of organic compounds in aqueous solution: Frequency effects and implications for sonochemistry*. J. Am. Chem. Soc **6126**, 2755–2762, 2004.
- [123] K. S. SUSLICK und D. J. FLANNIGAN: *Inside a collapsing bubble: Sonoluminescence and the conditions during cavitation*. Annu. Rev. Phys. Chem. **59**, 659–683, 2008.
- [124] S. ZÜRICH: www.stadt-zuerich.ch/internet/pd/stp/wd/home/die_spuren/luminol.html 2007.
- [125] H. N. MCMURRAY und B. P. WILSON: *Mechanistic and spatial study of ultrasonically induced luminol chemiluminescence*. J. Phys. Chem. A **103**, 3955–3962, 1999.
- [126] C. ECKART: *Vortices and streams caused by sound waves*. Phys. Rev. **73**, 68–76, 1948.
- [127] W. L. NYBORG: *Acoustic streaming near a boundary*. J. Acoust. Soc. Am. **30**(4), 329–339, 1958.
- [128] L. K. ZAREMBO: *High-Intensity Ultrasonic Fields*, Kapitel Acoustic streaming. Plenum Press, New York, 1971.
- [129] J. LIGHTHILL: *Acoustic streaming*. Journal of Sound and Vibration **61**(3), 391–418, 1978.
- [130] H. MITOME, T. KOZUKA und T. TUZIUTI: *Measurement of the establishment process of acoustic streaming using laser doppler velocimetry*. Ultrasonics **34**, 527–530, 1996.
- [131] D. L. MILLER: *Instrument for microscopical observation of the biophysical effects of ultrasound*. J. Acoust. Soc. Am. **60**(5), 1203–1212, 1976.
- [132] D. L. MILLER: *Stable arrays of resonant bubbles in a 1-MHz standing-wave acoustic field*. J. Acoust. Soc. Am. **62**(1), 12–19, 1977.
- [133] E. A. ZABOLOTSKAYA: *Interaction of gas bubbles in a sound field*. Sov. Phys.-Acoust. **30**(5), 365–368, 1984.
- [134] M. IDA: *Alternative interpretation of the sign reversal of secondary Bjerknes force acting between two pulsating bubbles*. Phys. Rev. E **67**, 056617 (8 pp), 2003.

- [135] M. IDA: *Phase properties and interaction force of acoustically interacting bubbles: A complementary study of the transition frequency*. Phys. Fluids **17**, 097107 (13 pp), 2005.
- [136] A. THIEMANN, T. NOWAK, R. METTIN, F. HOLSTEYNS und A. LIPPERT: *Characterization of an acoustic bubble structure at 230 kHz*. Ultrasonics Sonochemistry **18**, 595–600, 2011.
- [137] A. A. DOINIKOV: *Modeling of the acoustic response from contrast agent microbubbles near a rigid wall*. Ultrasonics **42**(2), 195–201, 2009.
- [138] C.-D. OHL, M. ARORA, R. DIJKINK, V. JANVE und D. LOHSE: *Surface cleaning from laser-induced cavitation bubbles*. Phys. Lett. A **89**, 074102 (3 pp), 2006.
- [139] W. KIM, T.-H. KIM, J. CHOI und H.-Y. KIM: *Mechanism of particle removal by megasonic waves*. Appl. Phys. Lett. **94**(8), 081908 (3 pp), 2009.
- [140] W. CHEN, W. HUANG, Y. LIANG, X. GAO und W. CUI: *Time-resolved spectra of single-bubble sonoluminescence in sulfuric acid with a streak camera*. Phys. Rev. E **78**, 035301 (4 pp), 2008.
- [141] W. HUANG, W. CHEN und W. CUI: *Resolving the shape of a sonoluminescence pulse in sulfuric acid by the use of streak camera*. J. Acoust. Soc. Am. **125**(6), 3597–3600, 2009.
- [142] C.-D. OHL, H. C. NÄGERL, R. BLATT und W. LAUTERBORN: *Kurzzeitphotographie der Vielblasensonolumineszenz*. In: T. PORTELE und P. HESS (Herausgeber): *Fortschritte der Akustik - DAGA 96*, Seiten 418–419, Oldenburg: DEGA e. V., 1996.
- [143] K. NEGISHI: *Experimental studies on sonoluminescence and ultrasonic cavitation*. J. Phys. Soc. Jap. **16**(7), 1450–1465, 1961.
- [144] M. ASHOKKUMAR, R. HALL, P. MULVANEY und F. GRIESER: *Sonoluminescence from aqueous alcohol and surfactant solutions*. J. Phys. Chem. B **101**, 10845–10850, 1997.
- [145] S. WU, T. LEONG, S. KENTISH und M. ASHOKKUMAR: *Frequency effects during acoustic cavitation in surfactant solutions*. J. Phys. Chem. B **113**, 16568–16573, 2009.

- [146] M. ASHOKKUMAR, M. HODNETT, B. ZEQRIRI, F. GRIESER und G. J. PRICE: *Acoustic emission spectra from 515 kHz cavitation in aqueous solutions containing surface-active solutes*. J. Am. Chem. Soc **129**, 2250–2258, 2007.
- [147] R. ESCHE: *Untersuchung der Schwingungskavitation in Flüssigkeiten*. Acustica **2**, AB 208–218, 1952.
- [148] L. BOHN: *Schalldruckverlauf und Spektren bei der Schwingungskavitation*. Acustica **7**, 201–216, 1957.
- [149] E. CRAMER und W. LAUTERBORN: *Zur Dynamik und Schallabstrahlung kugelförmiger Kavitationsblasen in einem Schallfeld*. Acustica **49**, 226–238, 1981.
- [150] W. LAUTERBORN und E. CRAMER: *On the dynamics of acoustic cavitation noise spectra*. Acustica **49**, 280–287, 1981.
- [151] E. CRAMER und W. LAUTERBORN: *Acoustic cavitation noise spectra*. Applied Scientific Research **38**, 209–214, 1982.
- [152] W. LAUTERBORN: *Numerical investigations of nonlinear oscillations of gas bubbles in liquids*. J. Acoust. Soc. Am. **59**(2), 283–293, 1976.
- [153] H. G. SCHUSTER und W. JUST: *Deterministic Chaos*, Band 4. WILEY-VCH Verlag, Weinheim, 2005.
- [154] T. LEPOINT, F. LEPOINT-MULLIE, S. LABOURET, J. FROHLY, C. PETRIER, M. COMET und H. FRUZELLIER: *Multibubble sonoluminescence: a symbiosis between chemistry and physics*. In: *Proc. ESS8 Conf.*, Seiten 9a–9c, Villassimius, Italy, 2002.
- [155] A. OTTO: *Experimentelle Aktivitätsbestimmung in akustischen Kavitationsstrukturen*. Diplomarbeit, Drittes Physikalisches Institut der Georg-August-Universität Göttingen, 2007.
- [156] W. LAUTERBORN: *Hochfrequenzkinematographie Laser erzeugter Hohlräume in Flüssigkeiten*. In: *Actes du X^{ème} Congrès Internationale de Cinematographie ultra rapide*, Seiten 306–309, Nice, 1972.
- [157] A. A. DOINIKOV: *Mathematical model for collective bubble dynamics in strong ultrasound fields*. J. Acoust. Soc. Am. **116**(2), 821–827, 2004.
- [158] A. I. ELLER: *Damping constants of pulsating bubbles*. J. Acoust. Soc. Am. **47**(5), 1469–1470, 1970.

-
- [159] H. KUTTRUFF: *Physik und Technik des Ultraschalls*. S. Hirzel Verlag, Stuttgart, 1988.
- [160] D. SINDAYIHEBURA, L. BOLLE, A. CORNET und L. JOHANNES: *Theoretical and experimental study of transducers aimed at low-frequency ultrasonic atomization of liquids*. J. Acoust. Soc. Am. **103**(3), 1442–1448, 1998.
- [161] W. P. MASON: *Piezoelectric Crystals and their Application to Ultrasonics*, Band 4. D. Van Nostrand Company Inc., New Jersey, 1959.

Danksagung

Bedanken möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Christoph F. Schmidt für die Ermöglichung dieser Arbeit.

Bei Prof. Dr. Werner Lauterborn möchte ich mich für die Übernahme des Korreferats bedanken und dafür, dass er immer ein offenes Ohr hatte.

Dr. Robert Mettin möchte ich für die Betreuung und die Durchsicht der Arbeit sowie die stete Anregung zu neuen Experimenten und Simulationen danken.

Den Mitgliedern des CD-Labors sowie der NLD-Gruppe möchte ich für die schöne Zeit am Institut, auf Konferenzen und Review-Meetings danken. Ebenso für die vielen, manchmal auch nicht-fachlichen, Gespräche, die den Alltag abwechslungsreicher gestaltet haben. Dabei möchte ich ganz besonders Till Nowak danken.

Bei Dr. Frank Holsteyns und Alexander Lippert möchte ich mich für die Unterstützung jeglicher Art, der Anregung zu neuen Experimenten, den langen fachlichen und nichtfachlichen Gesprächen und für die zahlreichen gemeinsamen Abendessen bedanken.

Bei Steffi Kramer möchte ich mich für die immer freundliche Hilfe bei anfallenden chemischen Fragen und bei Dr. Bernd Müller ebenfalls für die freundliche Hilfe bei chemischen Fragen und Computerproblemen bedanken.

Den Herren Thomas Geiling, Dr. Hans-Werner Strube und Gerhard König möchte ich für die ständige Verbesserung und Wartung der IT-Infrastruktur danken.

Des Weiteren möchte ich den Werkstätten des Instituts für die stets freundliche und schnelle Bearbeitung anfallender Aufträge danken. Als Vertreter seien hier Herr Dr. Karl Lautscham für die Elektronik-Werkstatt und Herr Dieter Hille für die Feinmechanik-Werkstatt genannt.

Meinen Eltern und meinem Opa möchte ich für ihre Unterstützung während der gesamten Zeit des Studiums danken.

Bei den Sekretärinnen Elke Zech, Nicole Rehbein und Ursula Hahn-Wörgötter möchte ich mich für die schnelle Hilfe bei formalen Dingen bedanken.

Ein großer Dank geht an Rebekka Harting, für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Mein ganz besonderer Dank gilt meinem Mann für die kritische Korrekturlesung und die Geduld, die er gerade in den letzten Wochen der Fertigstellung der Arbeit aufgebracht hat.

Lebenslauf

Name Andrea Thiemann geb. Otto

Geburtstag 03.08.1982

Geburtsort Göttingen

Nationalität deutsch

1989-1993 Grundschule Bovenden

1993-1995 Orientierungsstufe Bovenden

1995-2002 Otto-Hahn-Gymnasium Göttingen

2002 Abschluss mit der Allgemeinen Hochschulreife

2002-2007 Studiengang Physik an der Georg-August-Universität Göttingen

September 2007 Erwerb des Hochschulgrades Diplom-Physikerin

Oktober 2007 Beginn der Promotion an der Georg-August-Universität Göttingen