

# Sonolumineszenz: Instabile Diffusion und chemische Reaktionskinetik

JOACHIM HOLZFUSS und MATTHIAS RÜGGERBERG  
Institut für Angewandte Physik, TU Darmstadt,  
Schloßgartenstr. 7, 64289 Darmstadt

*Sonolumineszenz einer mit Ultraschall angeregten Gasblase in Wasser ist im allgemeinen gekennzeichnet durch Langzeitstabilität bezüglich der radialen Schwingungsform. In einem großen Parameterbereich kann jedoch beobachtet werden, dass Diffusion durch die Blasenwand und im Inneren ablaufende chemische Prozesse instabil werden. Durch numerische Simulation ist es möglich, die im Experiment beobachteten, nichtlinearen dynamischen Effekte zu deuten und den Einfluss der chemischen Bestandteile auf die Blasendynamik zu bestimmen.*

## Einleitung

Bei der Einzelblasensonolumineszenz (SBSL) [1, 2] erzeugt eine Gasblase in Wasser, die in einer stehenden Ultraschallwelle levitiert und zu stark nichtlinearen Schwingungen angeregt wird, kurze Lichtpulse. Der Vorgang ist im allgemeinen durch zeitliche und räumliche Stabilität gekennzeichnet. Ein Gleichgewicht liegt vor aus diffusiven Vorgängen, bei denen Gasanteile in die und aus der Blase diffundieren und chemischen Vorgängen, bei denen ein Großteil der chemischen Bestandteile des Gases dissoziiert und durch Bildung schnell löslicher Reaktionsprodukte die Blase verlässt [3, 4]. Die Blase besteht dann größtenteils aus dem chemisch inerten Edelgas Argon.

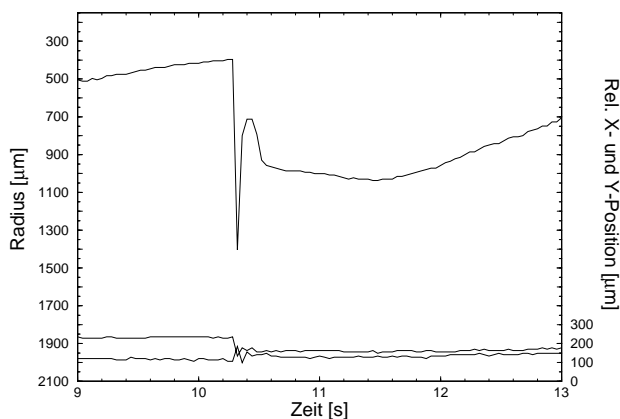


Abb.1: Diffusiv-instabile sonolumineszierende Blase. Gezeigt sind die Zeitabhängigkeit der Größe (oben, proportional zum Ruheradius) und des Entstehungsorts (unten) einer im Kollaps abgestrahlten Stoßwelle relativ zu einer festen Anregungsphase. Der Graph verdeutlicht das Anwachsen und den Zerfall der Blase und ihre horizontalen räumlichen Bewegungen.

In einem großen Parameterbereich kann jedoch beobachtet werden, dass diese Vorgänge zu instabilen Erscheinungen führen:

Der Gleichgewichtsradius der Blase wächst auf langsamer Zeitskala an, bis sich die Blase durch Oberflächeninstabilitäten unter Abspaltung von Mikroblasen schlagartig verkleinert [5, 6], woraufhin sie langsam wieder anwächst. Von besonderem Interesse ist in dieser Arbeit ein charakteristisches Überschwingen, das häufig durch kurzzeitiges Anwachsen des Gleichgewichtsradius unmittelbar nach dem Zerfall der Blase sichtbar ist (Abb. 1, bei 10,4s).

## Numerische Untersuchungen

Die numerische Simulation erfolgt mit dem Blasenmodell nach Gilmore, das radiale Schwingungen einer Blase in kompressiblem Wasser simuliert. Dieses Modell muss in mehrere Richtungen erweitert werden, um eine Erklärung für die experimentellen Daten zu erhalten. Die Erweiterungen beinhalten die Berechnung der zeitgemittelten Diffusion von Gasen ( $Ar$ ,  $N_2$ ,  $O_2$ ) durch die Blasenwand, der chemischen Reaktionskinetik für die beteiligten Gase (Arrhenius) und der translatorischen Bewegungen der Blase im Stehwellenfeld, die u.a. durch Bjerknes- und Auftriebskraft erzeugt werden.

Die Parameter für die Berechnungen sind dem Experiment [5] angepasst. Die Anregungsfrequenz beträgt  $23.5kHz$ , die Mode des Stehwellenfelds hat eine halbierte Wellenzahl, der Gasdruck im Wasser ist 50% des Gleichgewichtsdrucks unter Normalbedingungen. Es wird ein Van-der-Waals Gas angenommen, dessen Schwingungen in der Ausdehnungsphase isotherm sind und in der Kompressionsphase stetig auf adiabatisch umgeschaltet werden.

Weiterhin wird angenommen, dass beim Zerfall einer großen Argonblase eine Argonblase mit  $2\mu m$  Gleichgewichtsradius übrigbleibt, die durch Rückstoß beim Zerfall  $7mm$  vom Zentrum des Druckbauchs der Stehwelle entfernt wurde.

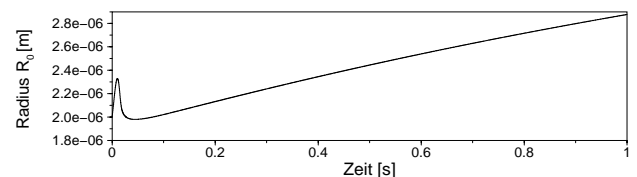


Abb.2: Numerische Simulation einer diffusiv-instabilen sonolumineszierenden Blase. Der Gleichgewichtsradius als Funktion der Zeit zeigt ein Überschwingen und anschließendes langsames Anwachsen.

# Ergebnisse

Abb. 2 zeigt, dass mit unserem Ansatz eine Modellierung des nichtlinearen, dynamischen Vorgangs möglich ist. Sowohl das Überschwingen des Gleichgewichtsradius als auch das anschliessende Anwachsen werden wiedergegeben. Es zeigt sich, dass für das anfängliche schnelle Anwachsen die starke einwärtsgerichtete Diffusion von  $N_2$  und  $O_2$  und das Fehlen der Dissoziation durch zu geringe Temperaturen in der Blase verantwortlich sind. Ab ca. 7500K Blaseninnentemperatur überwiegt die Dissoziation und der Gleichgewichtsradius der Blase schrumpft. Er wächst erst wieder an, nachdem der Großteil der nicht inerten Moleküle verschwunden ist. Durch die gleichgerichtete Diffusion des Argon in die Blase wächst diese an. Nach dem Abspalten von Mikroblasen kann der Vorgang von vorn beginnen.

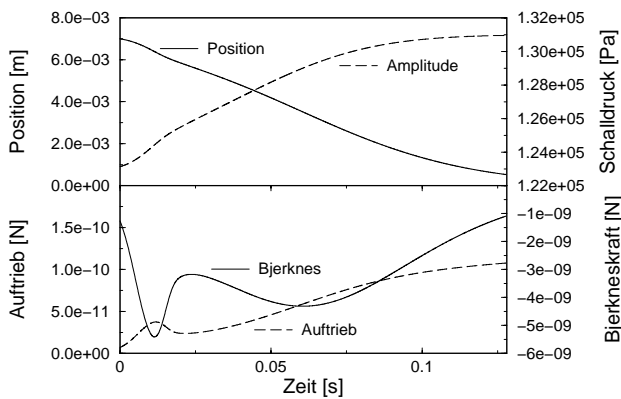


Abb.3: oben: Momentane Blasenposition und Anregungsamplitude, unten: Bjerknes- und Auftriebskraft. Die Blase wird vom Druckbauch angezogen, die Anregungsamplitude ändert sich gemäss der Druckverteilung in der Stehwelle.

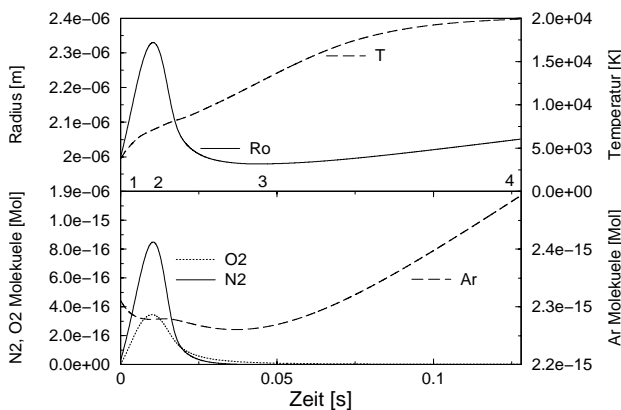


Abb.4: oben: Gleichgewichtsradius und Temperatur in der Blase, unten: Molvolumina der Bestandteile der Blase ( $Ar$ ,  $N_2$ ,  $O_2$ ). Der Gleichgewichtsradius nimmt zu Beginn stark zu, da die Anteile an  $N_2$  und  $O_2$  sich wegen noch nicht wirksamer Dissoziation und nach innen gerichteter Diffusion stark erhöhen. Bei zunehmender Dissoziation nimmt der Gleichgewichtsradius zunächst schnell ab, um dann durch zunehmende Diffusion des Argons in die Blase endgültig anzusteigen.

Das Phasendiagramm (Abb. 5) zeigt den Weg der Blase (1-5, s. Abb. 4, oben). Anfänglich befindet sie sich im Gebiet diffusiven Anwachsens, übertritt die Schwelle zur Dissoziation und wächst dann durch die Diffusion des Argon an.

Die Grösse des Überschwingens hängt davon ab, wieviel Stickstoff und Sauerstoff sich in der Blase ansammeln können, bis die Dissoziation überwiegt. Je grösser der Anteil dieser beiden Bestandteile, desto später erfolgt auch die Dissoziation, zu sehen in der verschobenen Lage der Kurve C zur Kurve B (Abb. 5).

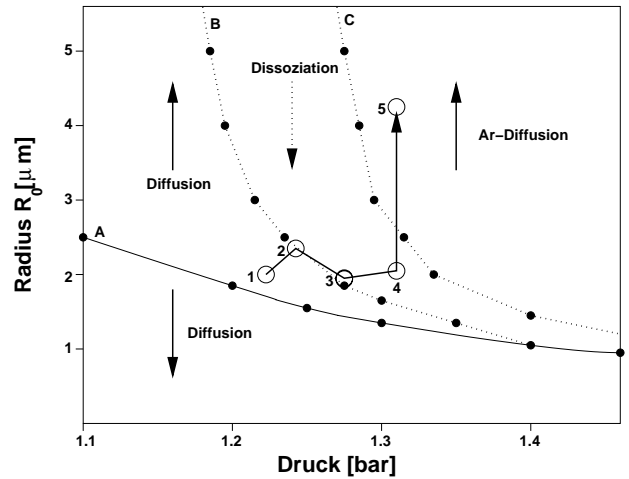


Abb.5: Bewegung (1-5) einer diffusiv-instabilen SBSL-Blase im Phasendiagramm. Kurve A trennt den Phasenraum in Gebiete für diffusiv anwachsende und schrumpfende Luftblasen. Die gepunkteten Kurven B und C markieren den Übergang in Gebiete für durch Dissoziation schrumpfende Blasen. Ihre Lage bestimmt der jeweilige Gasanteil, Kurve B: 65,6%Ar, 24,4% $N_2$ , 10% $O_2$ , Kurve C: Luft.

## Literatur

- [1] Gaitan, D.F., Crum, L.A., Church, C.C. und Roy R.A., *J. Acoust. Soc. Am.* **91**, 3166-3183 (1992)
- [2] Barber, B.P., Hiller, R.A., Löfstedt, R., Putterman, S.J. und Weninger, K.R., *Phys. Rep.* **281**, 65-143 (1997)
- [3] Holt, R.G. und Gaitan, D.F., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3791-3794 (1996)
- [4] Lohse, D., Brenner, M., Dupont, T., Hilgenfeldt, S. und Johnston, B., *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1359-1362 (1997)
- [5] Holzfuss, J., Rüggeberg, M. und Billo, A., *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5434-5437 (1998)
- [6] Rüggeberg, M., Holzfuss, J., und Holt, R. Glynn, Effects of shock-excited harmonic modes on bubble levitation, stability and SL, *J. Acoust. Soc. Am.* 104, No. 3, Pt. 2 (1998) p. 1771.