

# Molekulardynamische Untersuchung der Kollapsdynamik von Sonolumineszenzblasen

DANIEL SCHANZ, THOMAS KURZ, BURKHARDT METTEN und WERNER LAUTERBORN

*Drittes Physikalisches Institut, Universität Göttingen*

*Bürgerstr. 42-44, 37073 Göttingen, Germany*

## Einleitung

Beim Kollaps einer Blase in einer Flüssigkeit können durch Komprimierung des enthaltenen Gases extreme Zustände entstehen. Die fokussierte Energie kann unter geeigneten Umständen auch in Form von Licht abgegeben werden - ein als Kavitationslumineszenz oder, bei Schallanregung, als Sonolumineszenz bekannter Effekt. Aufgrund der schwierigen Meßbedingungen (Größe des zu untersuchenden Bereiches von einigen  $\mu\text{m}$ , Zeitskala im  $\mu\text{s}$ -Bereich, Dauer des Lichtblitzes sogar nur einige Dutzend ps) ist über die genauen Abläufe im Inneren der Blase wenig bekannt. Bereits 1993 wurden kontinuumsmechanische Simulationen der Stoßdynamik in Sonolumineszenzblasen von Wu und Roberts durchgeführt [1, 2]. Dieser Ansatz wurde von anderen Wissenschaftlern weitergeführt und das Modell um viele Effekte ergänzt (Wärmeleitung, Dynamik der Flüssigkeit, Einfluss von Wasserdampf und chemischen Reaktionen, Gasmische).

Als alternativer Ansatz wird hier die Molekulardynamik, d.h. die direkte Teilchensimulation kollabierender Blasen verwendet. Durch Burkhardt Metten [3, 4] wurde ein effizientes molekulardynamisches Programm entwickelt, das die Simulation kollabierender Blasen unter verschiedenen Bedingungen erlaubt.

## Modellierung

Die Teilchen in der Blase (vorwiegend Edelgasatome) werden als harte Kugeln angesehen, die elastisch miteinander stoßen. Die Zeitentwicklung des Systems wird mittels eines ereignisgetriebenen Algorithmus [5] berechnet.

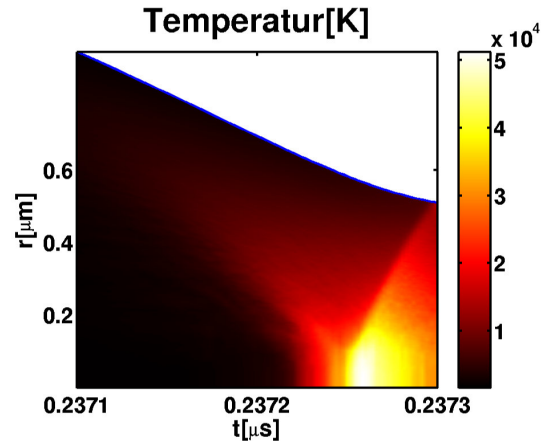
Die Simulation startet bei maximalem Blasenradius, es wird genau ein Kollaps berechnet. Die weniger interessante Aufschwingphase wird durch ein polytropisches Differentialgleichungsmodell bestimmt. Der Blasenrand stellt einen beweglichen Rand dar, dessen Dynamik durch die erweiterte Rayleigh-Plesset-Gleichung beschrieben wird:

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho_W} (P_L - P_\infty) + \frac{R}{\rho_W c_W} (\dot{p}(R, t) - \dot{P}_\infty) \quad (1)$$

Dabei bezeichnet  $R$  den Blasenradius,  $\rho_W$  die Dichte des Wassers ( $996,6 \text{ kg/m}^3$ ),  $P_L$  den Druck der Flüssigkeit an der Blasenwand,  $P_\infty$  den Druck in großer Entfernung zur Blase,  $c_W$  die Schallgeschwindigkeit in Wasser ( $1481 \text{ m/s}$ ) sowie  $p(R, t)$  den Gasdruck am Blasenrand.

Beim Stoß eines Teilchens mit dieser Wand kann über eine *thermische Randbedingung* Wärme zwischen der Flüssigkeit und dem Gas ausgetauscht werden. Die Oberflächenspannung der Blase wird i.A. berücksichtigt.

Zur Bestimmung der Verhältnisse in der Blase ist die Kenntnis hydrodynamischer und thermodynamischer Größen wie Dichte, Temperatur oder Druck erforderlich. Zu diesem Zweck wird die Blase in symmetrische Zellen (Kugelschalen) gleichen Volumens aufgeteilt. Die interessierenden Größen werden durch Mittelung des Zustandes der in den einzelnen Zellen enthaltenen Teilchen bestimmt. Aufgrund der sphärischen Symmetrien der Blase kann man die erhaltenen Werte einfach gegen den Radius  $r$  auftragen. Durch eine wiederholte Anwendung dieses Verfahrens während der laufenden Simulation lassen sich die hydrodynamischen Größen orts- und zeitaufgelöst ermitteln. Ein Beispiel zur Darstellung ist in Abb. 1 gegeben.



**Abbildung 1:** Zeitliche und räumliche Entwicklung der Temperatur bei einer Blase mit Oberflächenspannung, Wasserdampf und chemischen Reaktionen. Anregungsdruck: 1,3 atm.

Ein wichtiger zu beachtender Effekt ist die Verdampfung von Wasser aus der umgebenden Flüssigkeit in die Blase während des Aufschwingens sowie die Kondensation dieser Wasserdampfmoleküle an der Blasenwand während des Kollapses: Die *Rate der Verdampfung* beim Aufschwingen wird über den Sättigungsdampfdruck von Wasser bei Umgebungstemperatur berechnet. Die Simulation startet mit einem diesem Wert entsprechenden Anteil an Wasserdampfmolekülen. Bei Kollisionen mit der Wand bleiben die Wasserdampfmoleküle mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit an dieser haften. Dadurch wird die Anzahl der Wasserdampfmoleküle während des Kollapses beträchtlich verringert. Dennoch verbleiben genug von ihnen in der Blase zurück, um die Blasendynamik zu beeinflussen.

Durch die hohen Temperaturen gegen Ende des Kollapses dissoziieren die in der Blase verbliebenen Wasserdampfmoleküle. Die entstehenden Spezies reagieren chemisch. Es werden 171 bimolekulare und katalytische Reaktionen zwischen den 10 Spezies  $\text{Ar}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{O}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{H}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}_2$  simuliert.

Die verschiedenen simulierten Effekte lassen sich einzeln zuschalten, um ihren Einfluss auf die Blasenverhältnisse zu untersuchen.

## Ergebnisse

Untersucht wurden Blasen mit einem Ruheradius von  $4,5 \mu\text{m}$ , die mit einem Anregungsdruck von  $1,2 \text{ atm}$  bis  $1,4 \text{ atm}$  und einer Anregungsfrequenz von  $26,5 \text{ kHz}$  angetrieben werden. Die Temperatur des umgebenden Wassers wurde mit  $300 \text{ K}$  festgelegt. Die Teilchenzahl betrug zumeist  $1.000.000$ .

Übereinstimmend mit kontinuumsmechanischen Rechnungen wurden Stoß- und Kompressionswellen in der Blase nachgewiesen, die zu extremen Temperaturen und Drücken führen.

Es wurde der Einfluss der verschiedenen jeweils implementierten Effekte auf die Verhältnisse in der Blase untersucht. Dabei wurden folgende Beobachtungen gemacht: die Oberflächenspannung der Blase hat einen großen Einfluss auf die Blasendynamik, da sie dem Aufschwingen der Blase entgegenwirkt und so den Kollaps abschwächt; ein Gasmisch kann aufgrund der Segregation der Spezies die Stärke des Stoßes mindern oder diesen sogar gänzlich verhindern; das Vorhandensein von Wasserdampf resultiert in einem größeren Aufschwingen, das allerdings nicht zu extre-

meren Temperaturen in der Blase führt, da die sich im Zentrum ansammelnden Wassermoleküle Energie absorbieren. Gegen Ende des Kollapses treten ausreichend hohe Temperaturen auf, so dass der gefangene Wasserdampf dissoziiert. Die Fragmente gehen daraufhin diverse chemische Reaktionen ein, die aufgrund ihres endothermen Charakters die Temperatur in der Blase stark herabsetzen (Abb. 1 und 2). Eine Variation des Anregungsdruckes beeinflusst die Blasendynamik sehr erheblich. Ein größerer Anregungsdruck führt zu einem größeren Maximalradius, worauf ein heftigerer Kollaps folgt (Abb. 3 und 4). Im folgenden werden einige Ergebnisse genauer dargestellt.

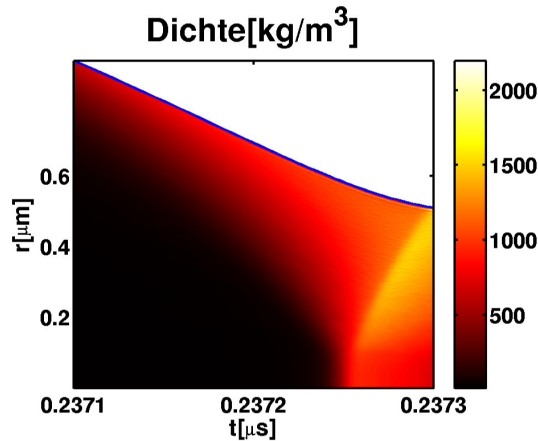


Abbildung 2: Zeitliche und räumliche Entwicklung der Dichte bei einer Blase mit Oberflächenspannung, Wasserdampf und chemischen Reaktionen. Anregungsdruck: 1,3 atm.

Abb. 1 und 2 zeigen die zeitliche und räumliche Entwicklung der Temperatur bzw. der Dichte in einer Blase mit Oberflächenspannung, Wasserdampf und chemischen Reaktionen bei einem Anregungsdruck von 1,3 atm. Es ist eine einlaufende Kompressionswelle zu erkennen, die im Blasenzentrum fokussiert, dort reflektiert wird und unter weiter zunehmender Dichte zurück zum Blasenrand läuft. In der Welle werden Dichten bis  $2100 \text{ kg/m}^3$  erzielt. Ihre Temperatur fällt während des Auslaufens konstant ab. Die maximal erreichte Temperatur von ca.  $50.000 \text{ K}$  liegt deutlich unter den Ergebnissen entsprechender Rechnungen ohne chemische Reaktionen (mit Wasserdampf: ca.  $85.000 \text{ K}$ , ohne Wasserdampf: ca.  $95.000 \text{ K}$ , ohne Oberflächenspannung: ca.  $250.000 \text{ K}$ ).

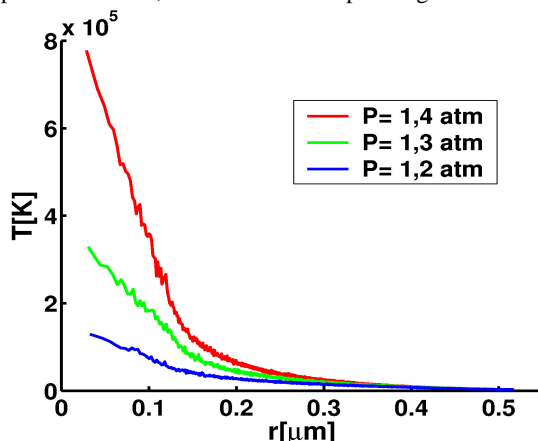


Abbildung 3: Vergleich der maximalen Temperaturen bei verschiedenen Anregungsdrücken

In Abb. 3 und 4 ist der Einfluss des Anregungsdruckes auf die Blasentemperatur dargestellt. Abbildung 3 enthält Ergebnisse für eine Blase ohne Oberflächenspannung und Wasserdampf. Gezeigt wird jeweils ein Temperaturprofil zum Zeitpunkt der maximalen Zentraltemperatur für Werte des Anregungsdruckes von 1,2, 1,3 sowie 1,4 atm. Es ist deutlich zu erkennen, dass eine Erhöhung des An-

regungsdruckes starke Auswirkungen auf die maximal erreichten Temperaturen hat: bei 1,4 atm werden bis zu  $800.000 \text{ K}$  erreicht. Abb. 4 zeigt dieselben Parameter für eine Blase mit Oberflächenspannung und Wasserdampf. Es sind deutliche Unterschiede zu erkennen: Die bei 1,4 atm maximal erreichten Temperaturen sind mit ca.  $120.000 \text{ K}$  deutlich niedriger. Dies lässt sich durch das geringere Aufschwingen der Blase (Oberflächenspannung) sowie durch die kompensatorische Wirkung der leichten Wasserdampfmoleküle begründen. Diese sammeln sich im Zentrum der Blase und setzen die dortige Temperatur herunter, da Energie in Freiheitsgrade der Rotation ausweichen kann. Desweiteren lässt sich erkennen, dass die Temperaturen in der zweiten Rechnung bei Erhöhung des Anregungsdruckes nicht beliebig größer werden: Der Übergang von 1,2 atm zu 1,3 atm zeigt einen mit Rechnung 1 vergleichbaren Sprung der Temperaturen. Bei weiterer Steigerung auf 1,4 atm erhöht sich die Temperatur, im Gegensatz zur Rechnung 1 kaum noch.

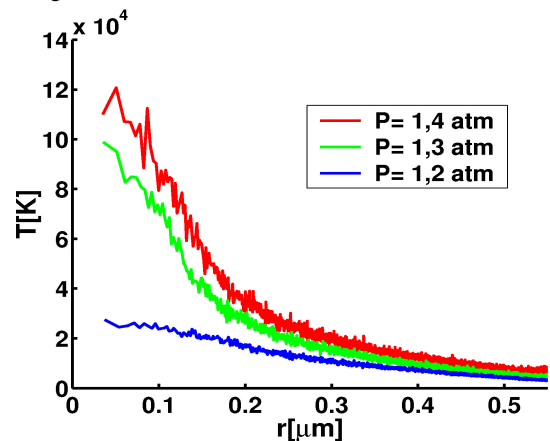


Abbildung 4: Vergleich der maximalen Temperaturen bei verschiedenen Anregungsdrücken unter Berücksichtigung von Oberflächenspannung und Wasserdampf

## Zusammenfassung und Ausblick

Bei den Simulationen konnten experimentelle Ergebnisse bestätigt sowie Einblicke in die Verhältnisse in der Blase gewonnen werden. Das Modell eignet sich gut zur Ermittlung von Trends bei Veränderung der Blasenparameter, wenngleich die Temperaturen wahrscheinlich noch stark überschätzt werden. Die gefundenen Ergebnisse stehen qualitativ im Einklang mit [6], wo ebenfalls Molekulardynamiksimulation der Sonolumineszenz durchgeführt wurde.

## Literatur

- [1] C.C. Wu and P.H. Roberts. Shock-wave propagation in a sonoluminescing bubble. *Phys. Rev. Lett.*, 70:3424–3427, 1993.
- [2] C.C. Wu and P.H. Roberts. A model of sonoluminescence. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 455:323–349, 1994.
- [3] Burkhard Metten. *Molekulardynamik-Simulation zur Sonolumineszenz*. Dissertation, Universität Göttingen, 2001.
- [4] B. Metten and W. Lauterborn. Molecular dynamics approach to single-bubble sonoluminescence. *ISNA 15*, pages 429–432, 1999.
- [5] D.C. Rapaport. *The Art of Molecular Dynamics Simulation*. Cambridge University Press, 1995.
- [6] S.J. Ruuth, S. Putterman, and B. Merriman. Molecular dynamics simulation of the response of a gas to a spherical piston: Implications for sonoluminescence. *Phys. Rev. E*, 66:036310, 2002.