

Sonolumineszenz: Aus Schall wird Licht

Sonolumineszenz ist ein faszinierendes Phänomen, das bei der **Kavitation** von Bläschen in Flüssigkeiten (meistens Wasser) beobachtet werden kann. Die schockartige Implosion führt zu einer extrem nichtlinearen Bewegung der Bläschenwand, die einen Lichtpuls und eine Schockwelle aussendet.

Kavitation kann durch Schallfelder hoher Intensität oder gepulste Laser ausgelöst werden. Für kontrollierte Experimente hat sich besonders die Untersuchung der **Einzelblasen-Sonolumineszenz** bewährt. Hierbei werden Gasbläschen in einem stehenden Schallfeld gefangen (Bjerknes-Kraft) und dort über viele Zyklen periodisch komprimiert und dekomprimiert. Die Vielblasensonolumineszenz spielt allerdings eine größere Rolle in der Sonochemie und Materialbearbeitung. Im Verlauf des Vortags wurde die Bjeknes-Kraft in einem Versuchsaufbau demonstriert.

Folien zum Habilitationskolloquium an der RWTH Aachen, 12.11.1999

Sonolumineszenz : Aus Schall wird Licht

- ▶ Schallinduzierte Kavitäten in Wasser
- ▶ Lichtpuls und Schockwelle aus Kollaps

$T_{\max} \approx 25.000 \text{ K}$, $P_{\max} \approx 10.000 \text{ bar}$



L.A. Crum

implodierende Kavität, Jet mit $v \approx 1200 \text{ m/s.}$

Gliederung

- ▶ Kavitation und Ultraschall
- ▶ Dynamik und Instabilität einer Kavität im Schallfeld
- ▶ Theorie
- ▶ Zeitaufgelöste Experimente und Kavitation an Grenzflächen
- ▶ Anwendungen : Kavitation und Sonochemie

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Historisches

1900

Erosion der Propeller an Schnellbooten

Auftrag der Royal Navy an Lord Rayleigh

1934

Vielblasen-Sonolumineszenz

H.Frenzel & H. Schultes, Chemie, Univ. Köln

1989

Einzelblasen-Sonolumineszenz

D.F. Gaitan, L.A. Crum, Univ. of Mississippi

1999

Kavität als Volumenemitter

mit temperaturabhängiger Absorption

S. Hilgenfeldt, S. Grossmann, D.Lohse

[P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium](#)

Arbeitsgruppen in Deutschland:

Dr. B. Gompf, Prof. em. W. Eisenmenger, Stuttgart

Prof. W. Lauterborn, Göttingen

D. Lohse, S. Hilgenfeld, Marburg

(jetzt Harvard und Twente)

J. Holzfuss, M. Rüggeberg, TU-Darmstadt

Prof. em. H. Kuttruff, RWTH Aachen

[P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium](#)

Vielblasen-Sonolumineszenz



Science, Sept. 1991

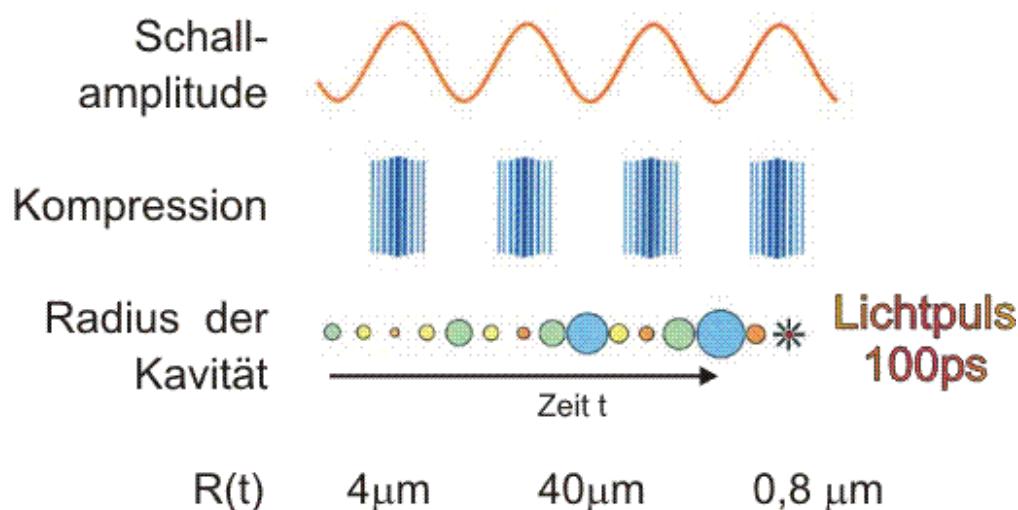
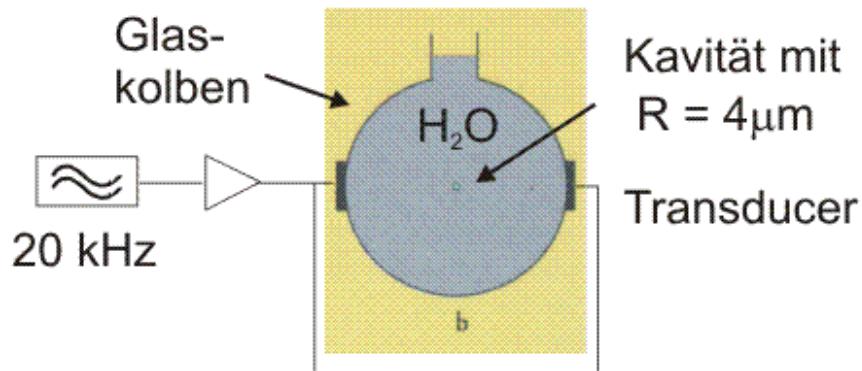
Titan-Stab, $\varnothing=1\text{cm}$, in Wasser
Emissionstemperatur $T_{\text{eff}}=5000\text{K}$

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Einzelblasen-Sonolumineszenz

D.F. Gaitan, Univ. of Mississippi

- ▶ kontrollierte Untersuchungen an einzelnen Bläschen
- ▶ Einfang in einer stehenden Schallwelle



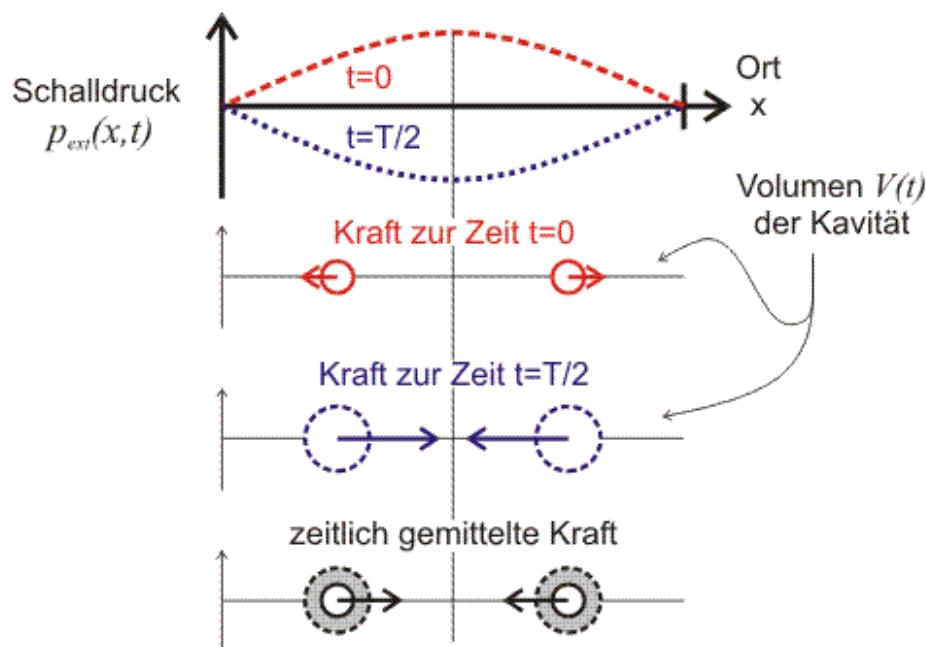
P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Warum schwebt eine Kavität im Schallfeld ?

V.F.K. Bjerknes (1906)

$$\text{Bjerknes-Kraft : } f_B = -\langle V(t) \nabla p_{ext}(t) \rangle_t \propto \langle R^3(t) p_{ext}(t) \rangle_t$$

- ▶ Kraft durch zeitlich gemittelten Druckgradienten



$$\text{Bjerknes-Kraft 2. Ordnung : } f_{B_2} = \pm \frac{\rho}{4\pi d^2} \langle \dot{V}_1(t) \dot{V}_2(t) \rangle_t$$

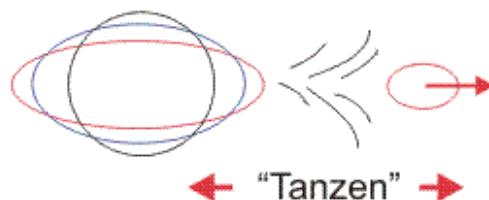
- ▶ anziehende WW. zwischen zwei Kavitäten

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Instabilitäten der Kavität

► **Forminstabilität :**

- asphärische Deformationen, Spaltung

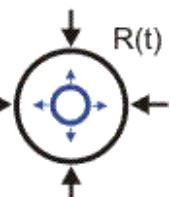


► **diffusive Instabilität :**

- ohne Schallwelle löst sich eine Kavität auf

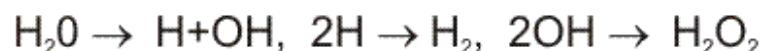
- "gleichgerichtete" Diffusion:

$R(t)$ ist für einen längeren Zeitraum groß
bei kleinem Druck in der Kavität



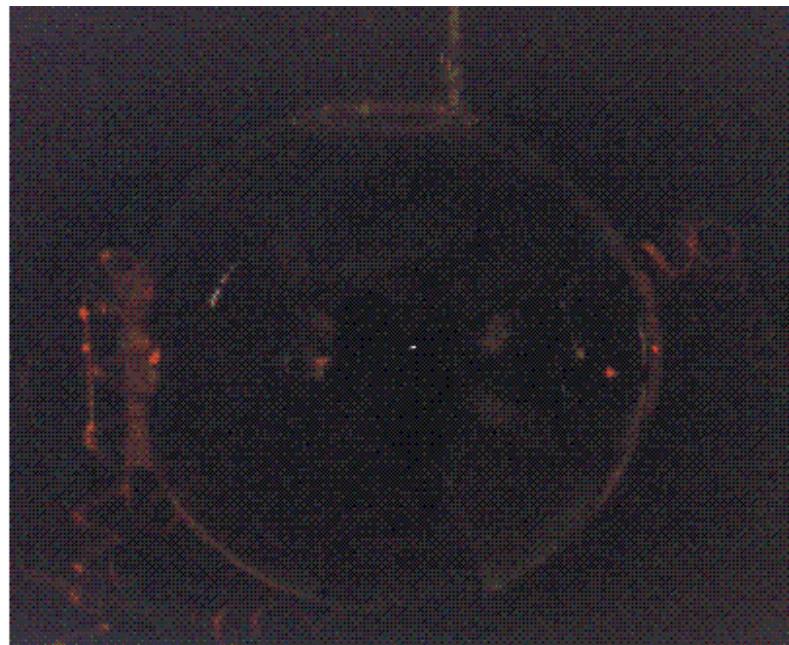
► **chemische Instabilität :**

- Dissoziation von Gasmolekülen



- extrem löslich in Wasser

⇒ Argon reichert sich in der Kavität an

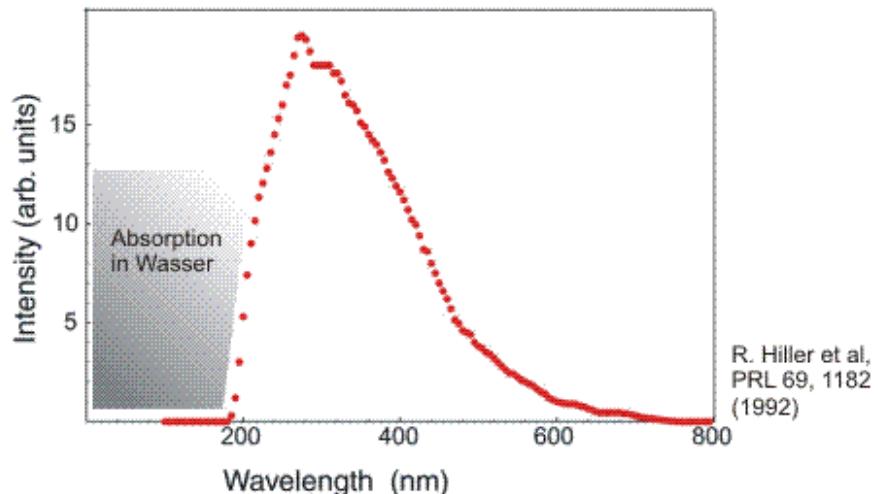


B. Gompf

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Einzelblasen-Sonolumineszenz

- ▶ kontinuierliches Spektrum 0,5 - 3 eV
- ▶ Maximum der Intensität : 200-250nm

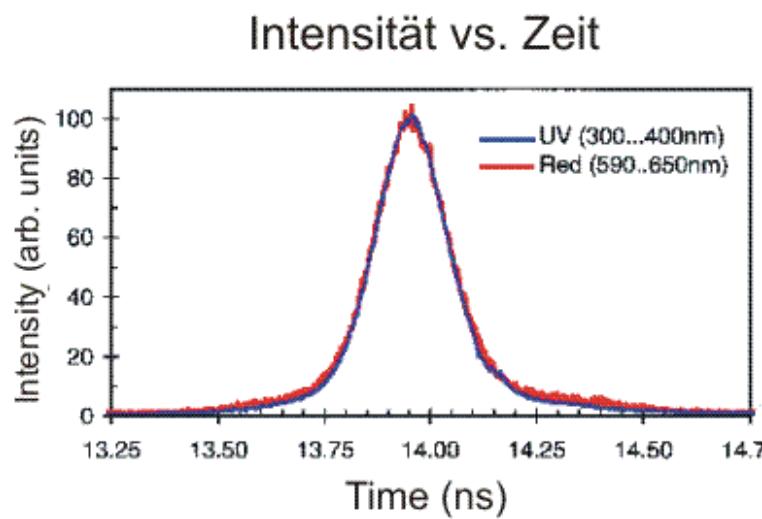


- ▶ Wirkungsgrad : 10^{-3}
- ▶ Intensität $I = 5 \text{ pW} \text{ oder } 10^{-12} \text{ J}$
(Stern 5. Ordnung)
- ▶ Energiefokussierung : $10^{10} - 10^{11}$

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Einzelblasen-Sonolumineszenz

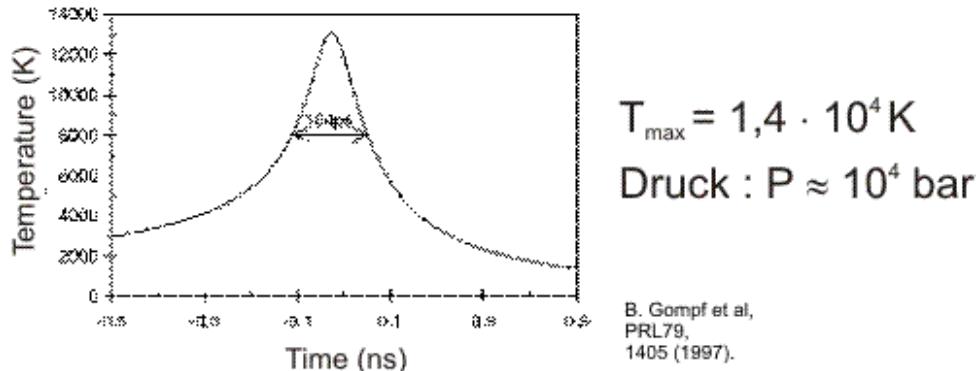
- ▶ Lichtpulsdauer: ca. 100 - 250 ps (10^{-5} von τ)
 - 10^4 - 10^7 Photonen / Puls
 - Pulsform ist unabhängig von der Wellenlänge
 - kein "Nachglühen" nach dem Kollaps



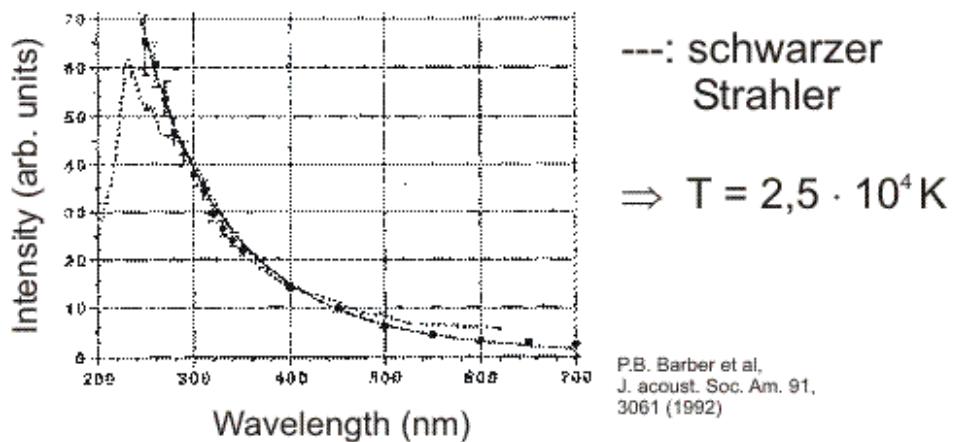
P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Temperatur im Kollaps

Aus R(t) und Zustandsgleichung:



Vergleich mit schwarzem Strahler :



P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Theorie :

► Hydrodynamischer Ansatz für $R(t)$

Die Rayleigh-Plesset Gleichung

► Mechanismus der Lichtemission

Das “hot spot”-Modell

P.Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Die Rayleigh-Plesset Gleichung

Rayleigh (1917), Plesset (1949, 1954), Eller & Crum (1970), Lauterborn (1976), Prosperetti (1977), Lohse (Maier-Leibnitz Preis 1997)

dynamischer Druck der Kavität, Radius $R(t)$

$$\rho_l \left(R \ddot{R} + \frac{3}{2} \dot{R}^2 \right) = \sum P_i$$

äußerer und innerer Druck

Gasdruck:
van der Waals

externer Druck
 $p_{ext} = P_0 + P(t)$

Schall-
dämpfung

Viskosität η
Oberflächen-
spannung σ

$$p_{gas}(R, t) = \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \cdot \left(\frac{R_0^3 - h^3}{R^3(t) - h^3} \right)^{\kappa}$$

$\kappa = 1$ für $R < l_{therm.}$ (isotherm)
 $= c_p/c_v = 5/3$ (adiabatisch)
 und mit $h = R_0/8,86$ für Argon

Linearisierung :

$$R(t) = R_0(1 + x(t))$$

gedämpfte Schwingungsgleichung : $\ddot{x} + 2\eta\dot{x} + \omega_0^2 x = \frac{P(t)}{\rho_l R_0^2}$

mit der Eigenfrequenz : $\omega_0^2 = \frac{3\kappa P_0}{\rho_l R_0^2} + \frac{4\sigma}{\rho_l R_0^3}; \Rightarrow \omega_0 \approx 1 \text{ MHz}$

im Ultraschallfeld :

$$P(t) = -P_0 \cdot p \cos(\omega t)$$

Randbemerkung : Phasenverschiebung zwischen $R(t)$ und $P(t)$
ist möglich und wichtig zum Verständnis des Kollaps



Hinweise zur Herleitung der RP-Gleichung

H. Kuitruff, Physik und Technik des
Ultraschalls

Binnendruck in der Kavität :

$$P_B = P + \frac{2\sigma}{R}$$

Ausdehnung mit Geschwindigkeit : führt zu einer Strömung:

$$\dot{R} = \frac{dR}{dt} \Rightarrow v(r) = \left(\frac{R}{r} \right)^2 \dot{R} \quad \text{quellenfrei!}$$

kinetische Energie :

$$E_{kin} = \frac{\rho_i}{2} \int_R^\infty v(r)^2 \cdot 4\pi r^2 dr = 2\pi \rho_i R^3 \dot{R}$$

Arbeit gegen Druckdifferenz :

$$\frac{dA}{dt} = (P_{gas} - P_i) \cdot 4\pi R^2 \dot{R} = - \frac{dE_{kin}}{dt}$$

Bewegungsgleichung $R(t)$:

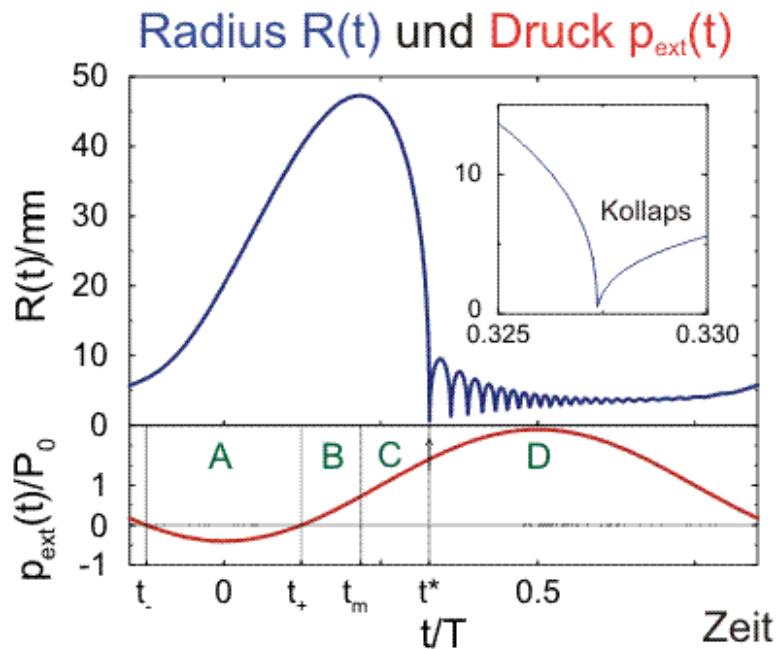
$$\frac{\rho_i}{2} \frac{d}{dt} [R^3 \dot{R}^2] + \left(P + \frac{2\sigma}{R} - P_i \right) R^2 \dot{R} = 0$$

oder auch als Noltingk-Neppiras Gleichung :

$$\rho_i \left(R \ddot{R} + \frac{3}{2} \dot{R}^2 \right) + P + \frac{2\sigma}{R} - P_i = 0$$

Lösungen der Rayleigh-Plesset Gleichung

- zeitliche Entwicklung des Radius $R(t)$

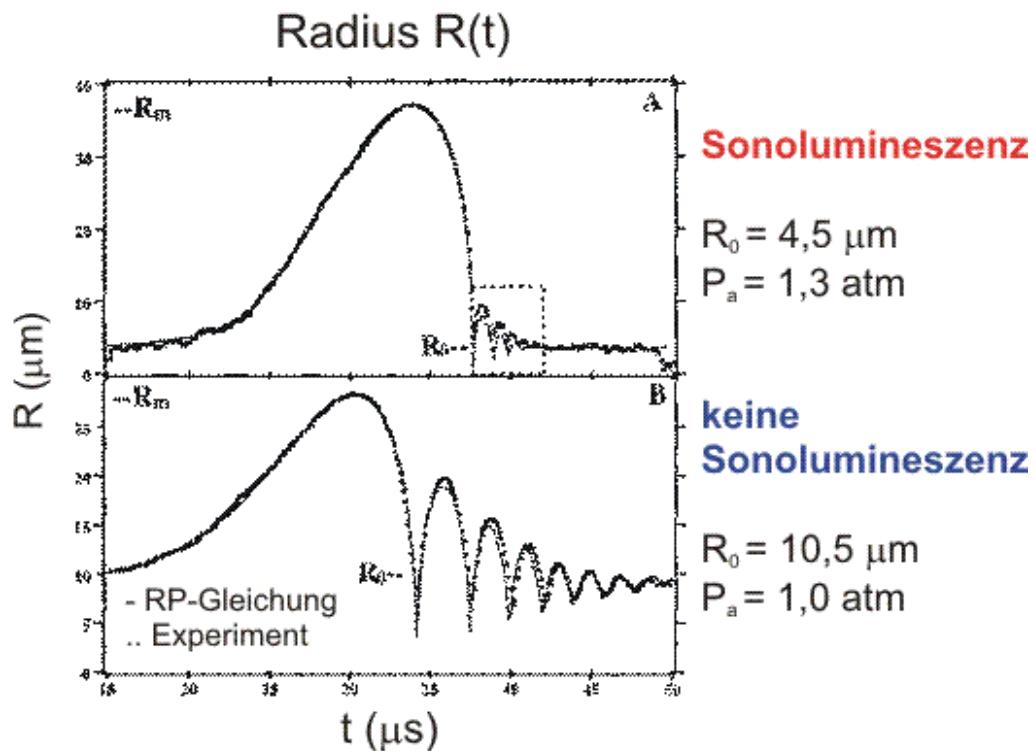


- Vier Phasen :

Hilgenfeldt & Lohse, Marburg

- A** - "Aufatmen" - R wächst bei negativem p_{ext}
- B** - Trägheit führt zum Weiterwachsen
- C** - Kollaps \Rightarrow Schockwelle
- D** - Oszillationen (Resonanzfreq. der Kavität)

Vergleich mit dem Experiment



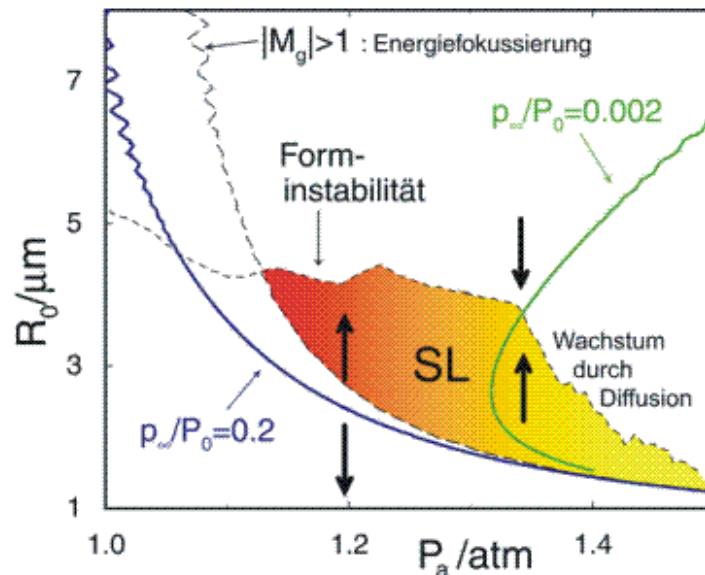
B.P. Barber, S.J. Puttermann,
PRL69, 3839 (1992)

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Der Phasenraum der stabilen SL

- ▶ Energiefokussierung : $M_g = \dot{R}/v_g > 1$
- ▶ Formstabilität
- ▶ diffusive Stabilität
(Partialdruck Argon p_∞/P_0)

Radius vs. Schallamplitude



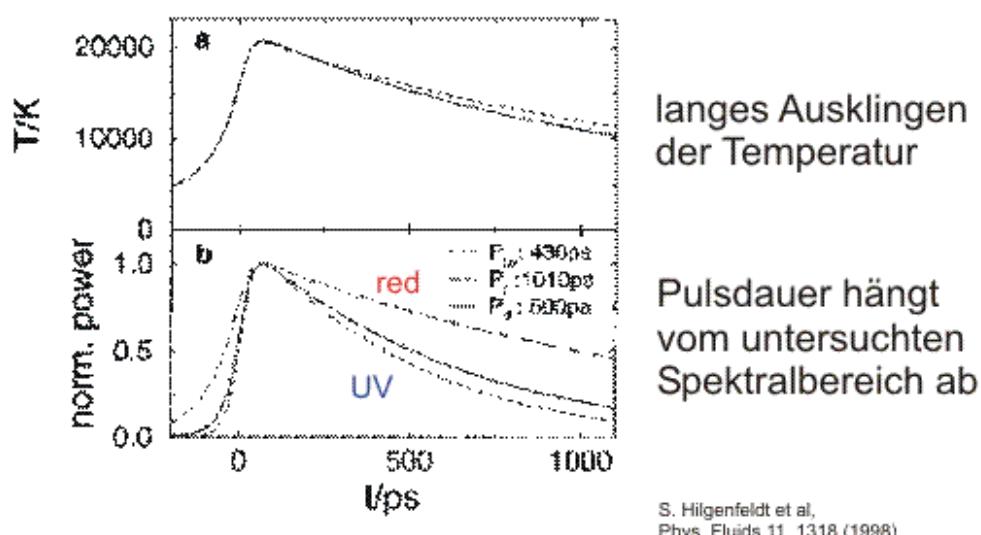
Hilgenfeldt & Lohse, Marburg

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Der Mechanismus der Einzelblasen-Sonolumineszenz

- ▶ thermische Emission : “hot spot”-Modell
- ▶ Ionisierung $\alpha \propto \exp(-E_{\text{ion}}/2k_B T)$ ist klein
($E_{\text{ion}} \approx 16 \text{ eV}$ für Argon)
- ▶ Kavität ist transparent \neq schwarzer Strahler

Planck'scher schwarzer Strahler



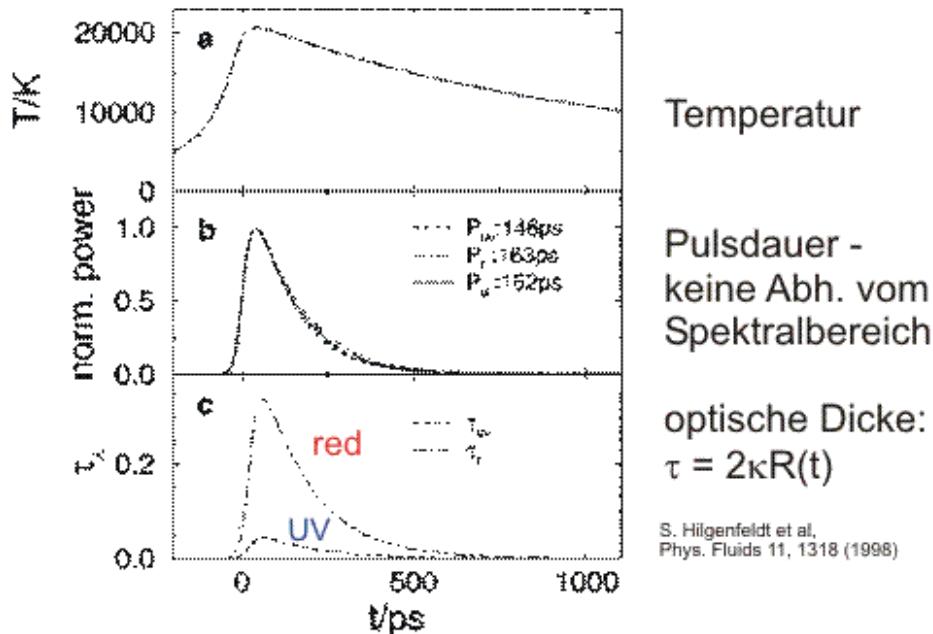
P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Effekte endlicher Absorption

$$\kappa_\lambda(T) = \kappa(T)_{\text{bremsstr}} + \kappa(T)_{\text{neutral}} + \kappa(T)_{\text{ionization}}$$

$$I_\lambda(s, t) = I_\lambda^{\text{Planck}} (1 - e^{-\kappa s}), \quad 0 < s < 2R$$

$$P_\lambda(t)d\lambda = 4\pi^2 R^2 I_\lambda^{\text{Planck}} \times \left(1 + \frac{\exp(-2\kappa R)}{\kappa R} + \frac{\exp(-2\kappa R) - 1}{2\kappa^2 R^2} \right) d\lambda$$



- ▶ stärkere Absorption im “roten” Spektralbereich
- ▶ $\exp(-2\kappa R)$ führt zu einem schnellen Schalten des Lichts im Vergleich zur Temperaturrentwicklung

Experimente zu Kavitation und Sonolumineszenz :

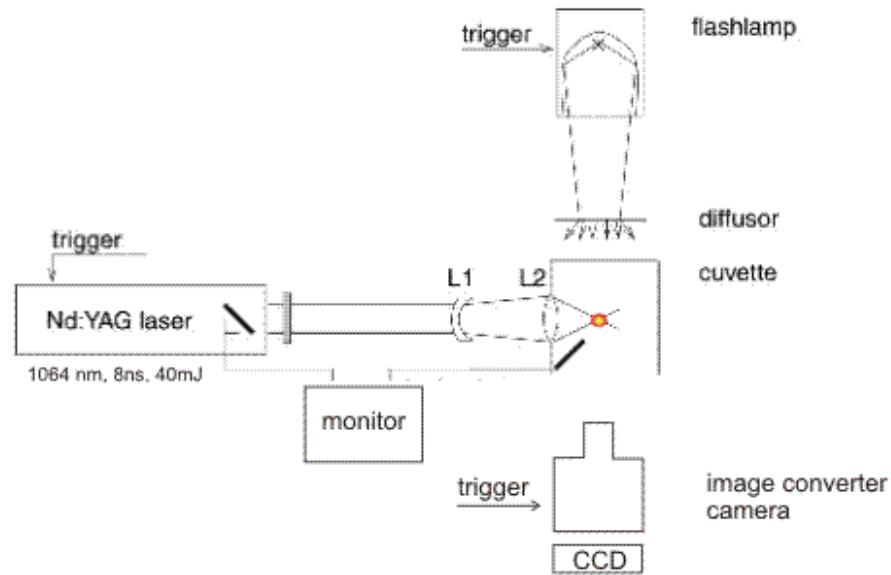
- ▶ Hochgeschwindigkeitsphotographie
- ▶ Materialwissenschaften
- ▶ Sonochemie

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Zeitaufgelöste Untersuchungen von Kavitation an Grenzflächen

C.-D. Ohl, A. Philipp und W. Lauterborn, Göttingen

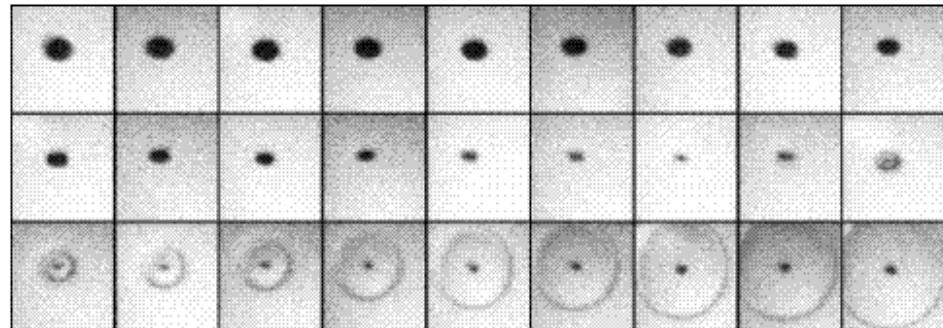
- ▶ Erzeugung der Kavität mit gepulsten Lasern



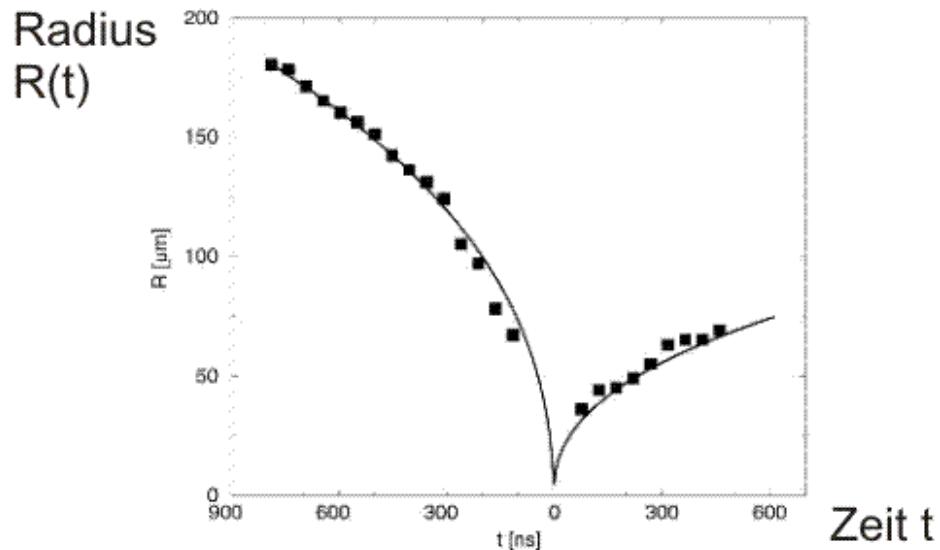
P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Kollaps in freier Flüssigkeit

C.-D. Ohl, A. Philipp und W. Lauterborn, Göttingen



$20.8 \cdot 10^6$ frames/s, $R_{max} = 1.1$ mm 99.5 μ s before exposure, $\text{laserwidth} 1$ mm

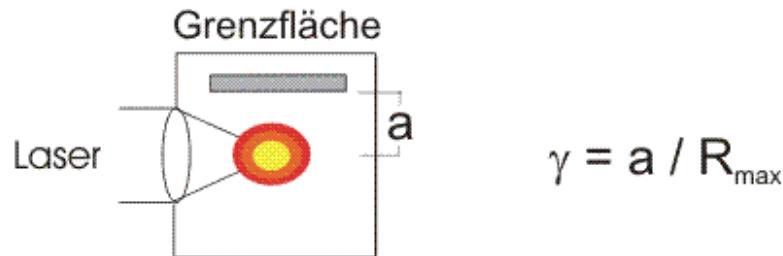


P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

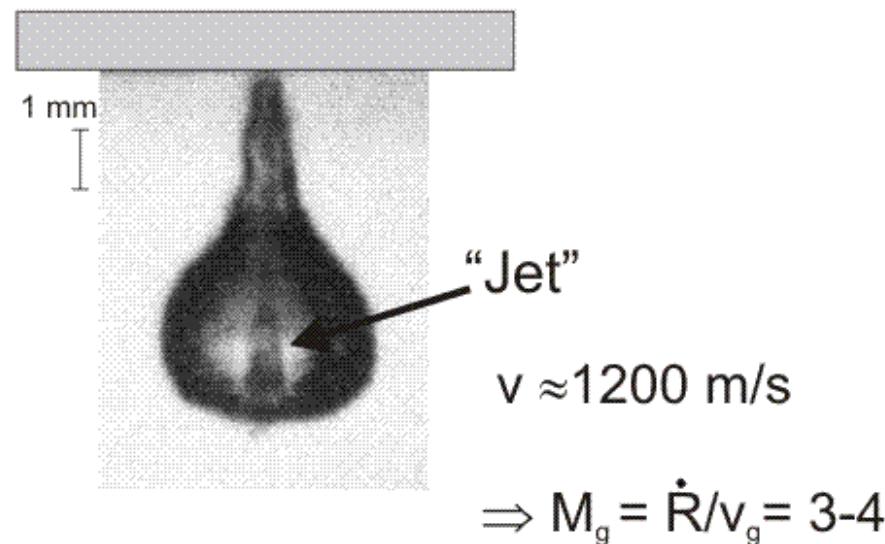
Kollaps an Grenzflächen

C.-D. Ohl, A. Philipp und W. Lauterborn, Göttingen

experimenteller Aufbau :



Kavität nach dem ersten Kollaps : $\gamma = 2,5$



P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Impakt des Jets

C.-D. Ohl, A. Philipp und W. Lauterborn, Göttingen

Reinaluminium

a) $\gamma=1,8$



1 mm

b) $\gamma=1,2$



1 mm

c) $\gamma=0,3$



1 mm

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Kavitation und Sonochemie

1) Schockwelle nach dem Kollaps

- ▶ Ultraschallreinigung, -schneiden, -schweißen
- ▶ Herstellung und Homogenisierung von Emulsionen, Dispersionen
(Teilchenkollisionen in der Flüssigkeit)

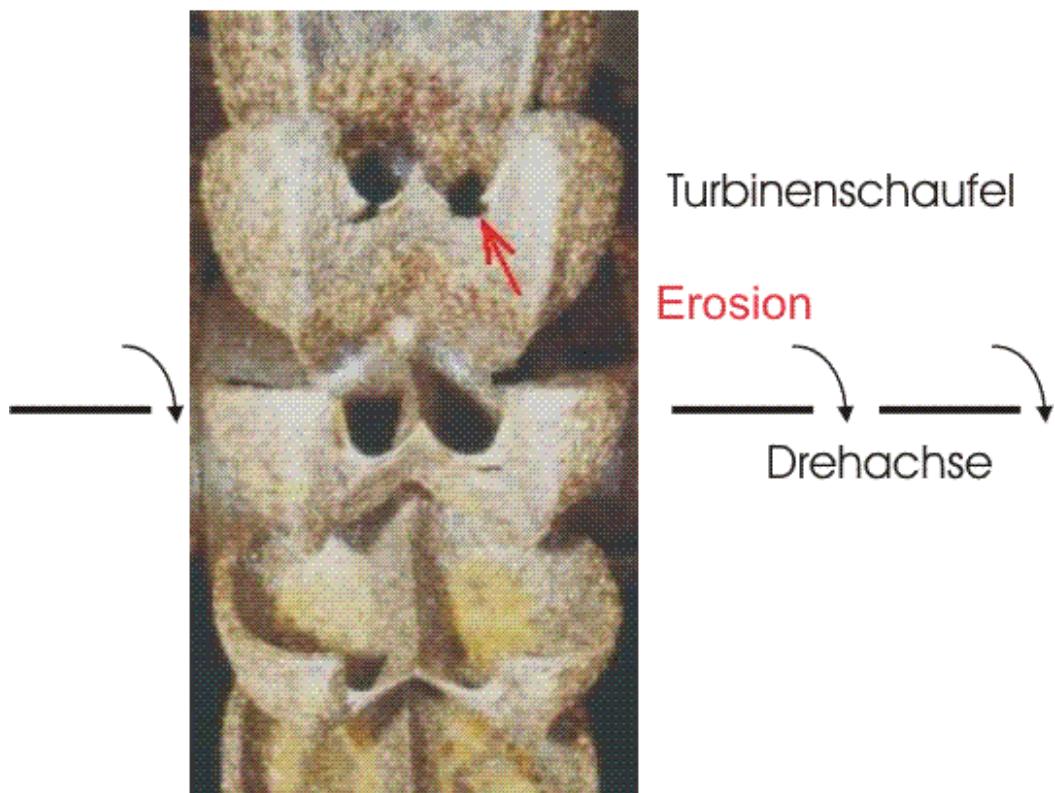
2) Extreme Bedingungen (T , p) im Kollaps

- ▶ Schall-induzierte Interkalation und Zersetzung
 - Erhöhung der Reaktivität, maximal 10^5
 - $T_{\text{eff}} = 4000 - 6000\text{K}$
 - Heiz- und Abkühlraten 10^9 K/sec

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Erosion durch turbulente Strömungen

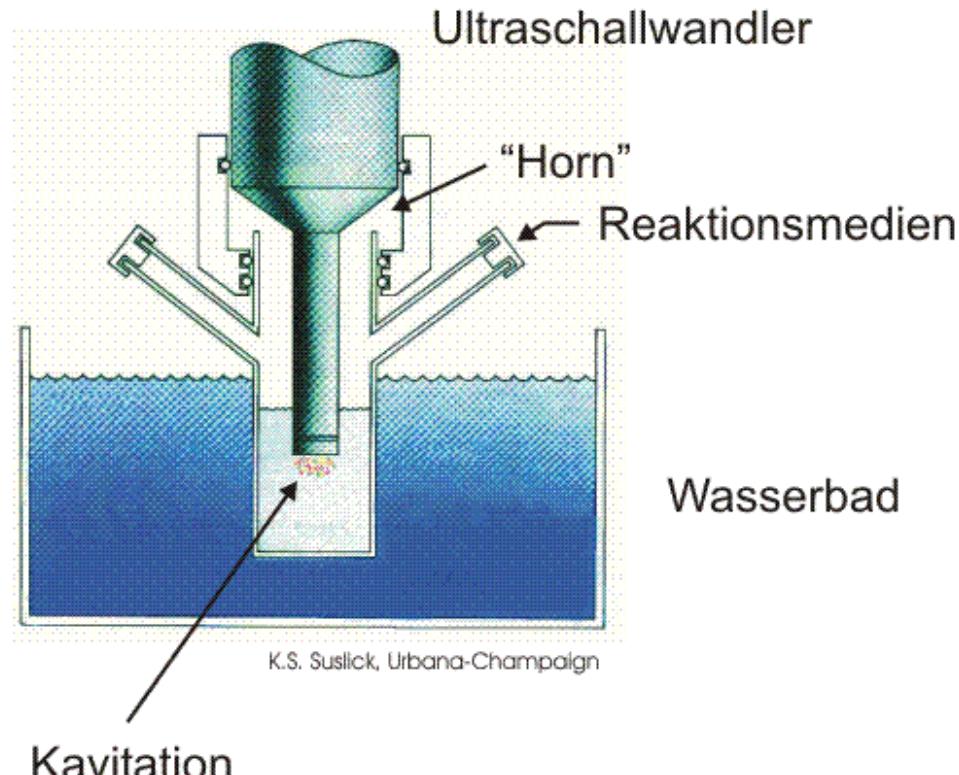
Radialturbine



R. Geisler, Göttingen

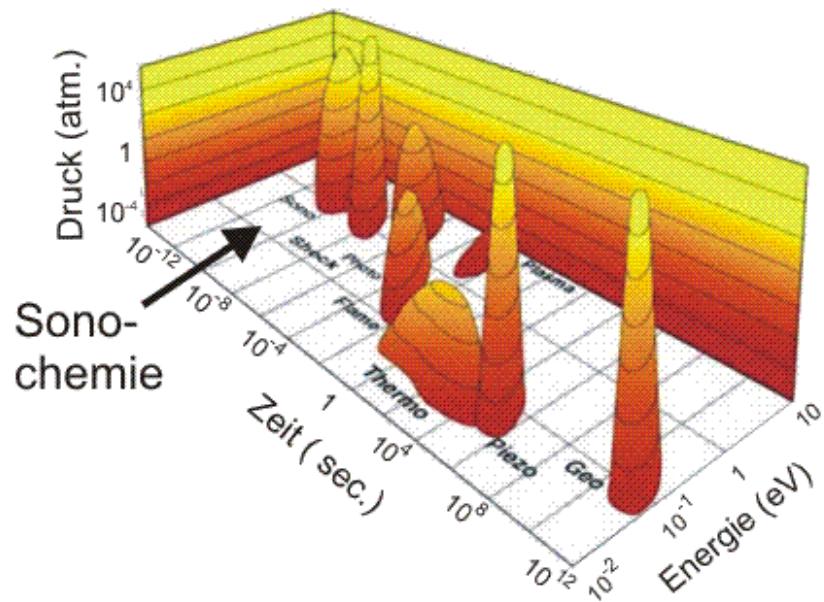
P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Reaktor für Kavitationsexperimente und Sonochemie



P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Sonochemie und Energieskalen



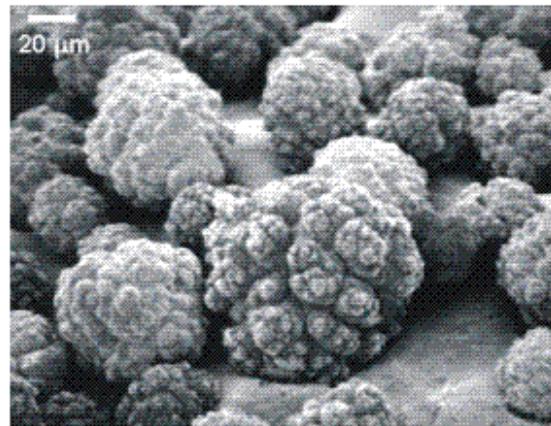
P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Heterogene Katalyse

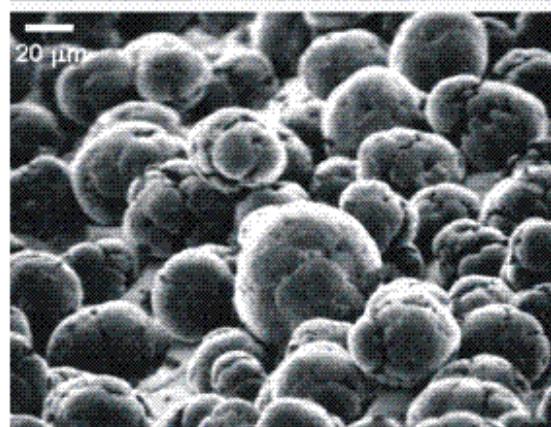
- ▶ Modifikation von Morphologie und Oberflächen durch Ultraschall

Nickel-Teilchen
- Kollision mit $v=10^3$ m/sec

vor der
Bestrahlung



nach der
Bestrahlung

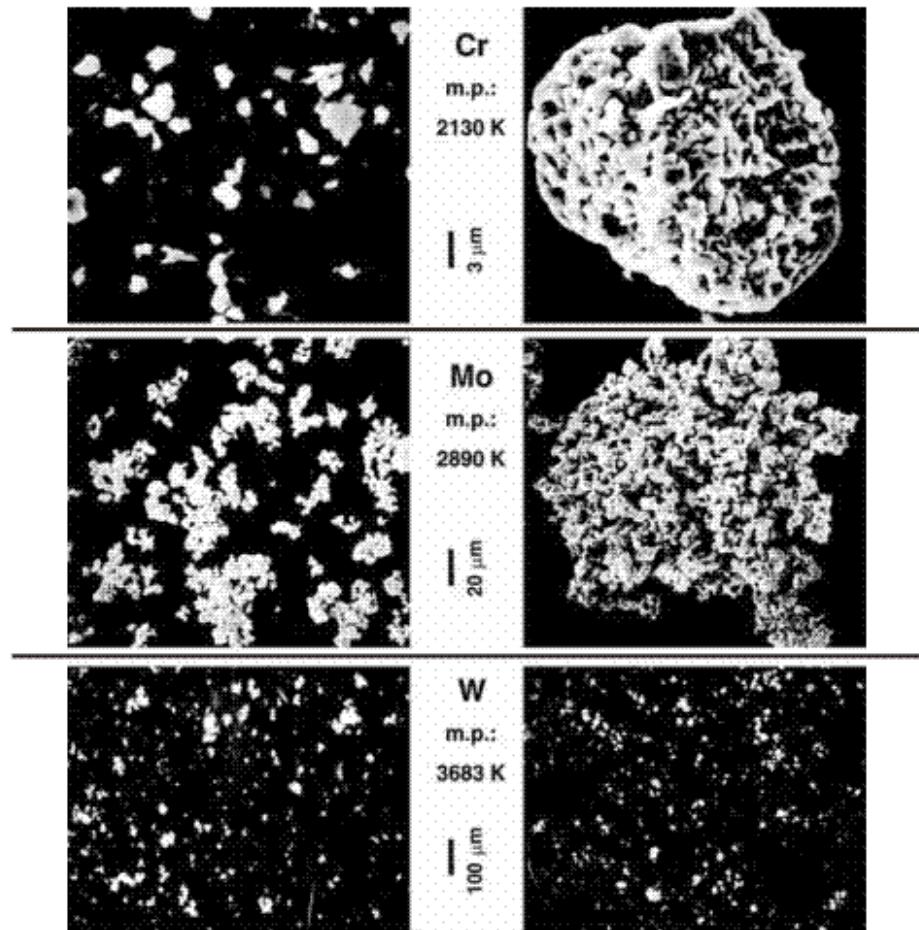


K.S. Suslick, Urbana-Champaign

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Agglomeration von verschiedenen Übergangsmetall-Partikeln

vor der Bestrahlung nach der Bestrahlung



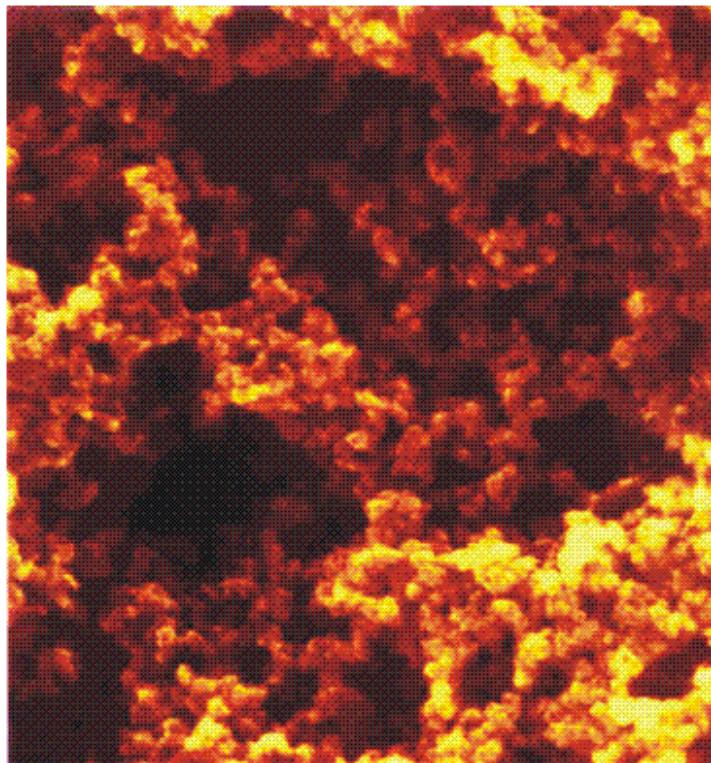
- ▶ Bestimmung der effektiven Temperatur während der Kavitation : $T_{\text{eff}} \leq 4 \cdot 10^3 \text{ K}$

K.S. Suslick, Urbana-Champaign

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Schall-induzierte Erzeugung amorpher Partikel

Amorphe Eisen-Partikel mit Nanometer-Klustern aus einer Eisen-Carbonyl Lösung : $\text{Fe}(\text{CO})_5$



K.S. Suslick, Urbana-Champaign

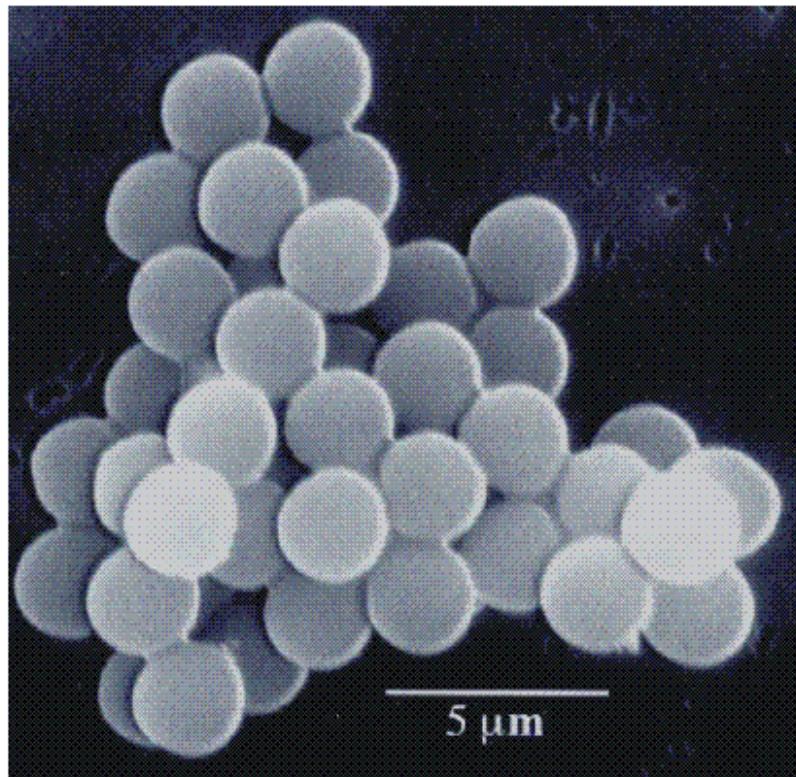
- ▶ Anwendung als extrem weichmagnetischer Werkstoff in der Elektrotechnik,
z.B. Datenspeicherung
- ▶ nanokristalline Fe/Co-Legierungen

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Herstellung von Mikrokavitäten

Ultraschall-Bestrahlung von Albumin-Lösungen:

Protein-Kugeln gefüllt mit Hydrokarbon-Dodekan



K.S. Suslick, Urbana-Champaign

- ▶ Anwendungen in der Diagnostik und Medizin
(Kontrastmittel für Ultraschall- und MR-Abbild.,
Medikation,)

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Ausblick

- ▶ besseres Verständnis :
 - Lichtemission
 - Kohärenzvolumen des Emitters
 - Dynamik in der Endphase des Kollaps
- ▶ Erhöhung des Wirkungsgrads :
 - Multimode-Anregung
experimentell : 300%J. Holzfuss et al,
PRL81, 1961
(1999)
 - tiefere Frequenzen - größeres R_{\max}
nach Theorie : 10^4 %S. Hilgenfeldt et al,
PRL82, 1036 (1999)

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Danksagung

B. Gompf, Physikalisches Institut, Stuttgart

C.-D. Ohl, Dept. of Fluid Dynamics, Twente

R. Geisler, Prof. W. Lauterborn, 3. Phys. Inst., Göttingen

Prof. em. H. Kuttruff, Inst. Techn. Ak. RWTH Aachen

M. Grove, M. Fischer, M. Heitkamp, P.v. Loosdrecht
H. Vonberg, K. Schäfer, D. Schulte, W. Peterssen

Prof. W. Sander und Prof. G. Güntherodt,

2. Physikalisches Institut RWTH Aachen

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Sonoluminescence

And there was light!

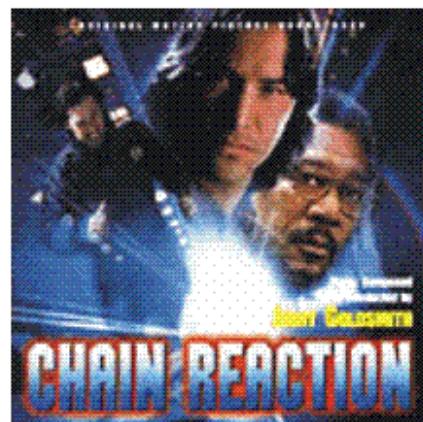
Robert Apfel

It took ten years, but on page 402 of this issue Hilgenfeldt et al are able to explain the tiny dot of light, first observed by Felipe Gaitan in 1989.

Is this new physics, as Putterman originally thought? The answer from Hilgenfeldt et al is no.

Why increase the internal bubble temperature? Could it reach the conditions that would allow for nuclear (hot) fusion inside the bubble ?

No one can say for sure



20th Century Fox (1996)

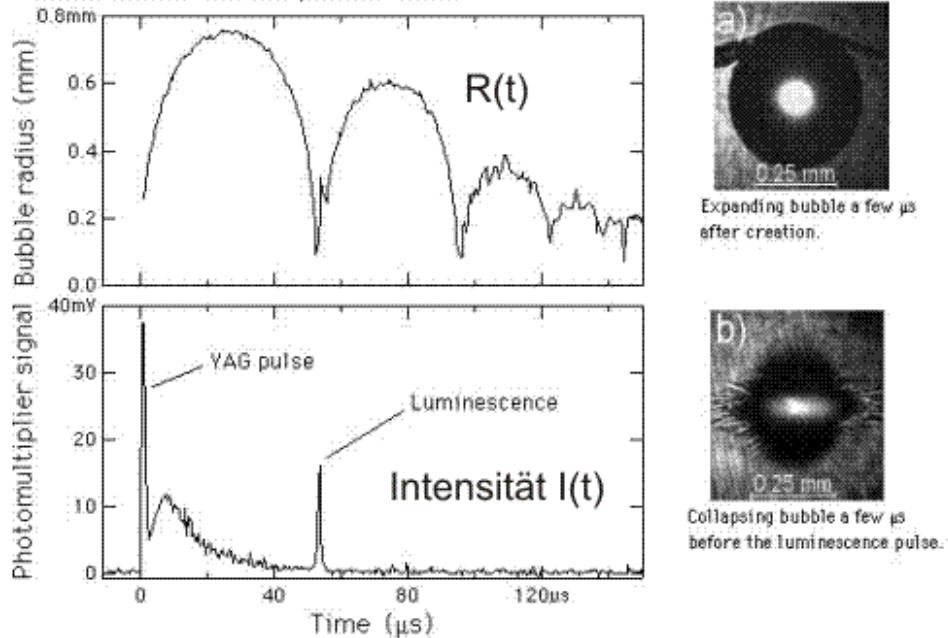
P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Weitere ergänzende Folien:

Sonolumineszenz in flüssigem Stickstoff

T=66K, p=5,8 bar

Bubbles created in liquid nitrogen (T=66 K, p=5.8 bar) with a focused Nd:YAG laser pulse at t=0.



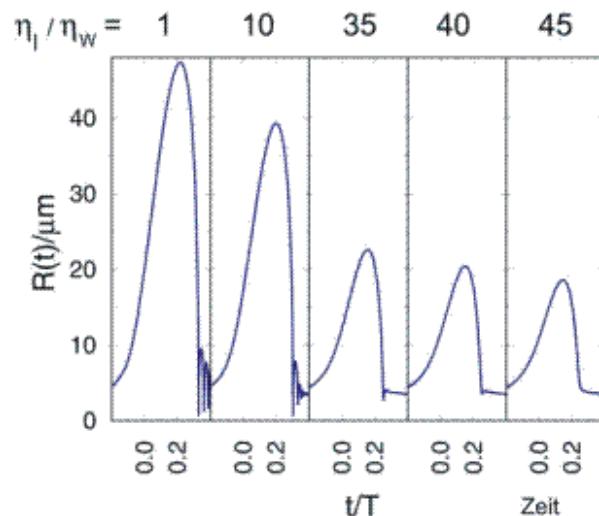
O. Baghdassarian, B. Tabbert,
and G. A. Williams, PhysicaB.

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Warum beobachtet man Sonolumineszenz in Wasser ?

Wassertemperatur	2,5°C	33°C
Viskosität η_w [10 ⁻⁶ m ² /s]	1,66	0,75
Dampfdruck p_D [kPa]	0,73	5,0
$\sigma_{\text{Oberfläche}}$ [g/s ²]	75	70

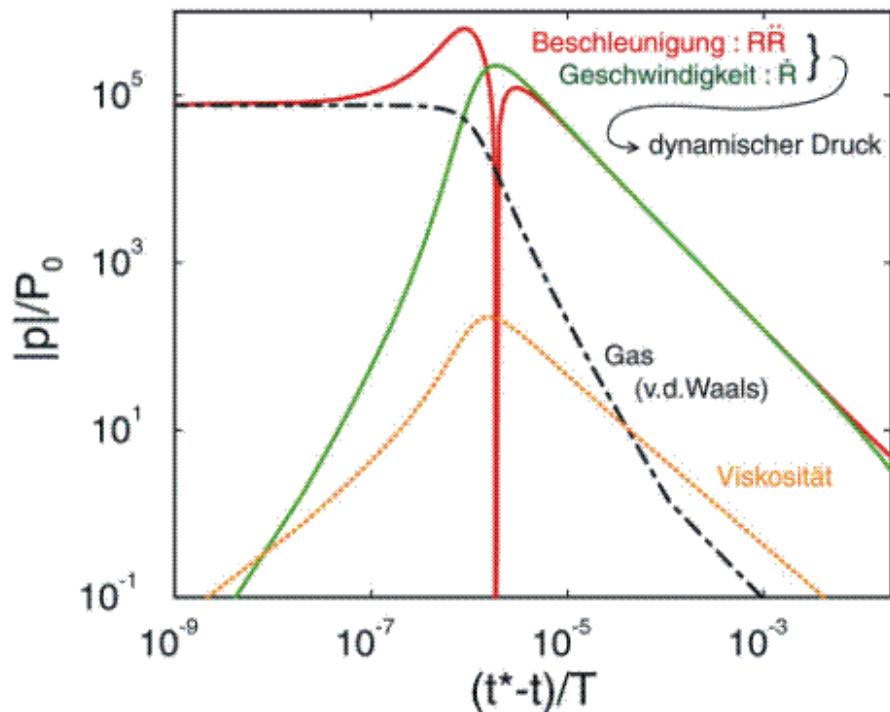
- ▶ Einfluß der Viskosität η_l der Flüssigkeit auf den Kollaps



Hilgenfeldt & Lohse, Marburg

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

Entwicklung der Druckbeiträge in der Kavität



t^* : Kollaps

Hilgenfeldt & Lohse, Marburg

P. Lemmens, Aachen, Habilitationskolloquium

... und genau 45 min. später:



A. Ionescu, N.v. Eldik, M. Grove. P. Lemmens, 12.11.1999.



Diese Seite stellt keine Meinungsäußerung der RWTH Aachen dar.

peter.lemmens@physik.rwth-aachen.de, letzte Änderung: 22.12.2000