

Lumineszenz lasererzeugter Kavitationsblasen



Diplomarbeit

vorgelegt von

Bernhard Wolfrum

aus

Bonn

angefertigt im

Dritten Physikalischen Institut
der Georg-August-Universität zu Göttingen

2000

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	9
2	Entstehung laserinduzierter Kavitationsblasen	13
2.1	Der optische Durchbruch	14
2.2	Plasmaausdehnung	15
2.2.1	Aberrationseffekte	16
2.2.2	Moving-breakdown Modell	18
3	Blasendynamik und Lumineszenz	23
3.1	Blasendynamik	23
3.1.1	Besants Modell für eine leere Blase	23
3.1.2	Rayleigh-Plesset-Modell	24
3.1.3	Kollaps einer sphärischen Blase nach Rayleigh	25
3.1.4	Diffusionsstabilität bei SBSL-Blasen	27
3.2	Blasenlumineszenz	30
4	Experimenteller Aufbau	33
4.1	Optimierung der Fokussierungsoptik	33
4.1.1	Auswahl des Linsensystems	34
4.2	Einstellung des Gasgehalts in der Flüssigkeit	36
4.3	Konstruktion der Küvette	38
4.4	Erzeugung der Blasen und Aufnahme des Lumineszenzsignals	38
4.4.1	Bestimmung der Photonenzahl	41
4.5	CCD-Aufnahme lasergenerierter Blasen und des Plasmas	43
5	Blasenlumineszenz in Abhängigkeit des Gasgehalts	45
5.1	Der Einfluß von Edelgas auf SBSL	45
5.2	Edelgaseinfluß bei SCBL	46

5.3	Dissoziationsprodukte beim optischen Durchbruch	48
6	Abhängigkeit der Blasenlumineszenz vom Umgebungsdruck	51
6.1	Auswirkungen des statischen Drucks bei SBSL	51
6.2	Auswirkungen des statischen Drucks bei SCBL	51
7	Blasenlumineszenz in Alkohol und Glycerin	63
7.1	Der Einfluß von Alkohol auf die Blasenlumineszenz	63
7.2	Der Einfluß von Glycerin auf die Blasenlumineszenz	72
8	Zusammenfassung	75
A	Entfaltung der Lumineszenzpulse	77
	Literaturverzeichnis	79
	Danksagung	85

Abbildungsverzeichnis

2.1	Prinzipieller Aufbau zur Erzeugung von transienten Blasen durch Fokussierung von Nd:YAG Laserpulsen in Wasser.	13
2.2	Plasmaleuchten für verschiedene Laserenergien von 1.3 bis 11.8 mJ. Der Laserstrahl kommt von links.	16
2.3	Fokussierung paralleler Strahlen mit einer Einzellinse. Strahlradius: $r = 5.75$ mm, Fokussierungswinkel: $2\Theta = 24^\circ$, Maximale Aberration: $\Delta s = 890$ μm , Brennweite der Linse in Luft: $f_{L_2} = 20.36$ mm.	19
2.4	Fokussierung eines parallelen Lichtbündels mit einer Linsenkombination. Strahlradius: $r = 5.75$ mm, Fokussierungswinkel: $2\Theta = 22^\circ$, Maximale Aberration: $\Delta s = 19.5$ μm . Brennweiten der Einzellinsen in Luft: $f_{L_1} = -105.94$ mm, $f_{L_2} = 20.36$ mm.	19
2.5	Normierte Intensität in Abhängigkeit der axialen Position z und der Zeit t für $P_{max}/P_{th} = 4.7$. Zeit- und Ortsachse sind in willkürlichen Einheiten dargestellt.	21
3.1	CCD-Aufnahmen lasererzeugter Blasen bei einem Umgebungsdruck von 1.3 bar und einer Laserenergie von $E_L = 1.4$ mJ. Die angegebenen Zahlenwerte entsprechen der Zeit nach dem optischen Durchbruch in Mikrosekunden.	28
3.2	Ausdehnung und Kompression von Blasen bei verschiedenen Umgebungsdrücken.	29
4.1	Verwendete Fokussierungsoptik und deren Linsenparameter: Brechungsindex n , Mittendicke d_M , Apertur Φ , und Krümmungsradien r_1, r_2	35
4.2	Aberrationskennlinie der Fokussierungsoptik: r/r_{max} entspricht dem normierten Abstand der Strahlen von der optischen Achse; z beschreibt den Abstand der Schnittpunkte auf der optischen Achse vom Fokus; $r_{max} = 5.75$ mm.	36
4.3	Aufbau zur Ent- und Begasung der Flüssigkeit.	37

4.4	Experimenteller Aufbau zur Aufnahme des Lumineszenzsignals.	39
4.5	Photomultiplier-Signal des Plasma- und Lumineszenzleuchtens.	40
4.6	Impulsantwort des Photomultiplier-Oszilloskop-Systems.	42
4.7	Entfaltetes und nicht entfaltetes Lumineszenzsignal.	42
4.8	Experimenteller Aufbau zur Aufnahme lasergenerierter Blasen.	44
5.1	Anzahl der Photonen gegen die Größe des Blasenradius bei verschiedenen Gaskonzentrationen und 1.0 bar Umgebungsdruck.	47
5.2	Anzahl der Photonen gegen die Größe des Blasenradius bei verschiedenen Gaskonzentrationen und 1.8 bar Umgebungsdruck.	48
6.1	Emittierte Photonenzahl in Abhängigkeit der Kollapszeit der Blase für verschiedene Drücke.	52
6.2	Plasma- und Lumineszenzleuchten bei einer Laserenergie von $E_L = 11.2$ mJ und verschiedenen Umgebungsdrücken. Der zeitliche Abstand der Signale entspricht der doppelten Blaskollapszeit.	53
6.3	CCD-Aufnahmen lasererzeugter Blasen bei einer Laserenergie von $E_L = 6.7$ mJ und einem Umgebungsdruck von $P_0 = 1.3$ bar. Die angegebenen Zahlenwerte entsprechen der Zeit nach dem optischen Durchbruch in Mikrosekunden.	54
6.4	CCD-Aufnahmen lasererzeugter Blasen bei einer Laserenergie von $E_L = 6.7$ mJ und einem Umgebungsdruck von $P_0 = 3.3$ bar.	55
6.5	Anzahl der emittierten Photonen gegen die Größe des Blasenradius bei verschiedenen Drücken.	56
6.6	Anzahl der emittierten Photonen in Abhängigkeit der Laserenergie.	57
6.7	Anzahl der emittierten Photonen in Abhängigkeit des Drucks für drei verschiedene Laserenergien.	58
6.8	Doppelpuls einer kollabierenden Blase bei einer Laserenergie von 12.5 mJ und 4 bar Umgebungsdruck.	60
6.9	Konversion von Laserenergie in mechanische Blasenenergie in Abhängigkeit vom Druck.	61
6.10	Anzahl der Photonen in Abhängigkeit der mechanischen Blasenenergie für verschiedene Drücke.	62
7.1	Auftragung der normierten Lumineszenzenergie in Abhängigkeit der Isopropanolkonzentration in destilliertem Wasser bei $P_0 = 1.0$ bar, $E_L = 9$ mJ und $T = 24^\circ\text{C}$	64

7.2	Logarithmische Auftragung der normierten Lumineszenzintensität gegen die Isopropanolkonzentration in destilliertem Wasser bei $P_0 = 1.0$ bar, $E_L = 9$ mJ und $T = 24^\circ\text{C}$	65
7.3	Lumineszenzpuls einer kollabierenden Blase in Isopropanol bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 4.8$ bar und einer Laserenergie von $E_L = 20.1$ mJ. .	66
7.4	Lumineszenzpuls einer kollabierenden Blase in Isopropanol bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 4.8$ bar und einer Laserenergie von $E_L = 20.1$ mJ. Dieser Nebenpuls tritt zeitlich versetzt zum breiteren Hauptpuls aus Abbildung 7.3 auf.	67
7.5	CCD-Aufnahmen von lasergenerierten Blasen in Isopropanol bei einer Laserenergie von $E_L = 2.5$ mJ und einem Umgebungsdruck von 1 bar. Die Zahlenwerte geben den Zeitpunkt nach der Blasenentstehung in μs an. . . .	71
7.6	Lichtintensität in Abhängigkeit von der Glycerinkonzentration in Wasser. .	72

Kapitel 1

Einleitung

Gas- und Dampfblasen in Flüssigkeiten können Licht emittieren, wenn sie zu einem starken Kollaps angeregt werden. Dieses Phänomen der Lichterzeugung wurde erstmals 1934 von Frenzel und Schultes [1] bei der akustischen Anregung von Blasenfeldern, der sogenannten „multi bubble sonoluminescence“ (MBSL) [2, 3], beobachtet. Die Ursache für die Untersuchung von Schalleinwirkungen auf Flüssigkeiten war damals die Beobachtung von sonochemischen Reaktionen wie z.B. dem Entstehen von Wasserstoffperoxid in Wasser.

1989 gelang es Gaitan erstmals auch eine einzelne Blase in einer wassergefüllten Küvette durch ein stehendes Ultraschallfeld zum Leuchten anzuregen. Das Bemerkenswerte bei diesem Experiment war, daß die Blase über Stunden hinweg stabil oszillieren und periodisch einen kurzen Lichtblitz aussenden konnte [4]. Analog zu der Lichtemission akustisch angeregter Blasenfelder (MBSL) nennt man die Einzelblasen-Lumineszenz auch SBSL („single bubble sonoluminescence“).

Seit Gaitans Entdeckung gab es zahlreiche Experimente zur Untersuchung dieses Phänomens. Der betrachtete Parameterraum wurde dabei durch akustischen und statischen Druck, Gaskonzentrationen innerhalb der Flüssigkeit, Ruhe- und Maximalradius der Blase, Temperatur und die chemische Zusammensetzung der Flüssigkeit bestimmt. Es konnte festgestellt werden, daß sich das Lumineszenzleuchten über einen sehr kurzen Zeitraum von nur 60 - 250 ps [5] erstreckt. Das Maximum der spektralen Leistung liegt im kurzwelligen Bereich, unterhalb der Transmissionsgrenze von Wasser (~ 200 nm), was eine Blasentemperatur von über 10000 K [6] vermuten läßt. Weitere Entdeckungen waren, daß die Lumineszenz eine empfindliche Abhängigkeit von dem in der Flüssigkeit gelösten Edelgasanteil aufzeigt [7] und daß nur geringe Mengen an Alkohol genügen, um die Lichtemission um mehrere Größenordnungen zu verringern [8]. In dem Übersichtsartikel von Barber *et al.* [9] sind viele der experimentellen Beobachtungen zusammengefaßt.

Aufgrund der benötigten Stabilität der Blasenoszillation und ihrer Position innerhalb der Küvette läßt sich nur ein eingeschränkter Bereich des Parameterraums anhand von SBSL-Experimenten untersuchen.

Diese Einschränkung kann teilweise durch die Untersuchung an der Lumineszenz transients Blasen, der sogenannten „single cavitation bubble luminescence“ (SCBL), aufgehoben werden.

Kavitationsblasen lassen sich auf verschiedenste Weise generieren. Zu den Erzeugungsmechanismen gehören unter anderem:

- Funkenentladung an Elektroden unter Wasser [10,11]
- Zerstörung evakuierter Glaskugeln in Flüssigkeiten [12]
- Elektrolyse [13]
- Gasinjektion in Strömungsfelder [14]
- Einleiten von Wasserdampf in Wasser [15]
- Laserinduzierte Kavitation [16, 17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 28, 29, 30, 31, 32]

Anfang der 70er Jahre entwickelte Lauterborn die optische Kavitation zur Untersuchung der Blasendynamik in Flüssigkeiten [16]. Das Lumineszenzleuchten lasererzeugter Blasen wurde erstmals 1971 von Buzukov und Teslenko beobachtet [17].

Lasergenerierte Blasen haben den Vorteil, daß sie in ausreichendem Abstand zur Gefäßwand erzeugt werden können, ohne dem direkten Einfluß mechanischer Objekte, wie z.B. Funkenelektroden zu unterliegen. Auch läßt sich die Blasengröße durch Veränderung der Laserleistung problemlos variieren. Aufgrund der für den optischen Durchbruch benötigten minimalen Schwellenenergie sind Blasen, die durch einen Laser mit Pulslängen im Nanosekundenbereich erzeugt werden, deutlich größer als solche, die stabil in SBSL-Experimenten beobachtet werden können. Die Lichtemission steigt mit wachsender Blasengröße und kann bei SCBL-Blasen um mehr als drei Größenordnungen höher sein als bei akustisch angeregten Blasen [29].

In dieser Arbeit wird die Lumineszenz laserinduzierter Kavitationsblasen und der Einfluß verschiedener Parameter auf die Pulsform, Pulslänge und die Intensität der Lichtemission untersucht.

In Kapitel 2 werden die Erzeugung von Kavitationsblasen und die Vorgänge beim optischen Durchbruch beschrieben. Die Form des Plasmavolumens bestimmt im wesentlichen die anfängliche Geometrie der Blase. Sie kann durch die Wahl geeigneten Fokussierungsoptiken optimiert werden.

Kapitel 3 behandelt die Theorie der Blasendynamik und der Lichtemission. Zur Zeit existiert noch kein vollständiges Modell, das alle experimentellen Befunde erklären könnte. Allerdings lassen sich unter der Annahme bestimmter Vereinfachungen zumindest einige Charakteristiken der Blasenlumineszenz beschreiben.

Der experimentelle Aufbau ist in Kapitel 4 beschrieben. Er beinhaltet eine Vorrichtung zur Ent- und Begasung von Flüssigkeiten sowie zur variablen Einstellung des statischen Drucks. Außerdem wurde eine für diese Anwendung optimierte Fokussierungsoptik zur Erzeugung möglichst sphärischer Kavitationsblasen konstruiert.

Kapitel 5, 6 und 7 präsentieren experimentelle Daten, welche die Abhängigkeiten der Lichtemission von dem Edelgasgehalt in der Flüssigkeit, dem statischen Druck und der chemischen Zusammensetzung der Flüssigkeit aufzeigen. Während der Gasgehalt in der Flüssigkeit keine Auswirkungen auf die Lumineszenz lasererzeugter Blasen zu haben scheint, läßt sich eine deutliche Verminderung der Lichtemission bei steigender Alkohol- oder Glycerinkonzentration feststellen. Desweiteren besteht eine starke Abhängigkeit der Lichtemission vom umgebenden Druck. Es läßt sich ein energieabhängiger optimaler Druck einstellen, so daß die Lichtausbeute während des Blasenkollapses maximiert werden kann.

Kapitel 2

Entstehung laserinduzierter Kavitationsblasen

Der prinzipielle Aufbau zur Blasenherzeugung ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Ein Nd:YAG-Laser erzeugt Laserpulse mit einer Zeitdauer von ~ 8 ns. Diese Pulse werden durch eine Fokussierungsoptik in die mit Wasser oder einer anderen transparenten Flüssigkeit gefüllte Küvette fokussiert.

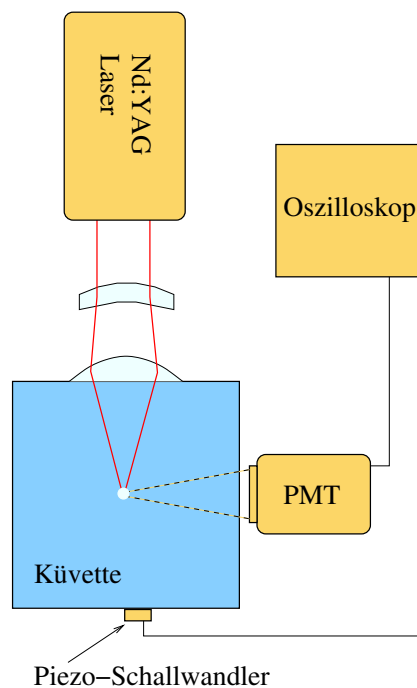


Abbildung 2.1: Prinzipieller Aufbau zur Erzeugung von transienten Blasen durch Fokussierung von Nd:YAG Laserpulsen in Wasser.

Beim Überschreiten der optischen Durchbruchschwelle entsteht im Fokus des Laser-

strahls ein Plasma. In der Plasmaregion herrschen sehr hohe Temperaturen¹ und Drücke, durch welche das umliegende Wasser nach außen beschleunigt wird. Am Plasmarand bildet sich eine Stoßwelle, deren Maximalamplitude 100 kbar überschreiten kann [34]. Das Plasma expandiert und kühlt sich dabei ab, so daß nach Rekombination der Elektronen und Ionen eine mit Wasserdampf und dessen Dissoziationsprodukten gefüllte Blase zurückbleibt. Aufgrund des vom umgebenden Wasser auf sie einwirkenden Drucks fällt die Blase wieder zusammen. Im Kollaps entsteht dabei das Lumineszenzleuchten, welches sich mit einer CCD-Kamera oder einem Photomultiplier (PMT) beobachten läßt. Die beim optischen Durchbruch sowie im Blasenkollaps auftretenden, nach außen laufenden Stoßwellen können mit einem Piezo-Schallwandler registriert werden.

2.1 Der optische Durchbruch

Der optische Durchbruch entsteht bei der Verwendung von Nanosekundenpulsen im wesentlichen durch die Absorption der Laserstrahlung an Verunreinigungen im Wasser. Die Energie der Laserstrahlung wird dabei an den Schmutzpartikeln in Wärmeenergie umgewandelt und führt schließlich zur thermischen Ionisierung der Moleküle. Die bei diesem Prozeß freigesetzten Initialelektronen, sogenannte „lucky electrons“, werden durch weitere Aufnahme von Energie aus der Laserstrahlung beschleunigt. Es tritt also der inverse Effekt zur Bremsstrahlung auf. Sind die Elektronen schnell genug, so können sie durch Stöße mit gebundenen Elektronen diese von ihren Ionen trennen. Für die Dauer des Laserpulses entsteht somit ein lawinenartiger Ionisationsprozeß.

Eine weitere Erklärung für die Plasmabildung wäre die direkte Ionisation der Wassermoleküle durch die Aufnahme von Photonen. Die Ionisierungsenergie der Wassermoleküle oder ihrer Dissoziationsprodukte beträgt mindestens 10 eV [35]. Da die verwendete Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von $\lambda = 1064$ nm bzw. einer Frequenz von $f = 2.82 \cdot 10^{14}$ Hz liegt, besitzt ein einzelnes Photon eine Energie von: $W_{phot} = hf = 1.17$ eV, wobei $h = 6.626 \cdot 10^{-34}$ Js das Plancksche Wirkungsquantum ist. Demnach müßten also mindestens 9 Photonen innerhalb der Anregungszeit absorbiert werden, um zu einer direkten Multiphotonenionisierung zu führen. Die Anregungszeit von Molekülen im Wasser ist jedoch sehr kurz, so daß der optische Durchbruch durch Multiphotonenionisierung erst bei einer Intensität von $\sim 10^{12}$ W/cm² zu erwarten ist. Experimente mit einem Nd:YAG-

¹Die Temperatur des Plasmas für einen 5 ns Nd:YAG-Puls mit einer Energie von 4 mJ beträgt ca. 10000 K [33].

Laser und Pulslängen von einigen Nanosekunden haben gezeigt, daß sich ein optischer Durchbruch schon bei einer Intensität von $166 \cdot 10^9 \text{ W/cm}^2$ [36] erzielen läßt. Es ist daher anzunehmen, daß in diesem Fall die Multiphotonenionisierung keinen oder nur einen sehr geringen Anteil zu der Plasma-Erzeugung beiträgt.

Ein weiterer Aspekt, der für eine Plasmaentstehung aufgrund von Absorption der Laserenergie an Schmutzpartikeln spricht, ist die signifikante Abhängigkeit der Durchbruchschwelle von der Reinheit des Wassers. Bei der Verwendung von Leitungswasser statt destillierten Wassers konnte bei unserem Aufbau eine Erniedrigung der Durchbruchschwelle von 1.0 mJ auf 0.6 mJ beobachtet werden. Die Ursache für diesen Effekt liegt vermutlich in der größeren Anzahl an Schmutzpartikeln und dadurch auch einer stärkeren Absorption der Laserleistung. Desweiteren ist der optische Durchbruch bei gleichbleibender Laserenergie ein statistischer Prozeß, was durch die wechselnde Anzahl von Verunreinigungen im Fokus erklärt werden kann.

Der Anteil der Multiphotonenionisierung bei der Entstehung des Plasmas kann zum einen durch die Verkürzung der Laserpulse bei gleichbleibender Energie und zum anderen durch die Verwendung von kurzwelligerem Licht, also Photonen höherer Energie verstärkt werden.

2.2 Plasmaausdehnung

Wird durch den fokussierten Laserpuls die für den optischen Durchbruch benötigte Leistungsdichte überschritten, so breitet sich im Fokus ein Plasma aus. Der Vorgang der Plasmaausbreitung erfolgt bei dem hier verwendeten Nd:YAG-Laser innerhalb einiger Nanosekunden. Idealerweise erhält man dabei eine sphärische Geometrie des Plasmas. In Abbildung 2.2 ist das Plasma für verschiedene Laserenergien dargestellt.

Wie man sehen kann, ist die Plasmaform besonders bei hohen Laserenergien in axialer Richtung länger als senkrecht dazu. Die Verzerrung der Geometrie des Plasmas in axiale Richtung entsteht im wesentlichen durch zwei Effekte:

1. der longitudinalen sphärischen Aberration des Linsensystems
2. dem Hineinwachsen des Plasmas in das Fokuskegelvolumen, welches durch das „moving-breakdown“ Modell [36] beschrieben werden kann.

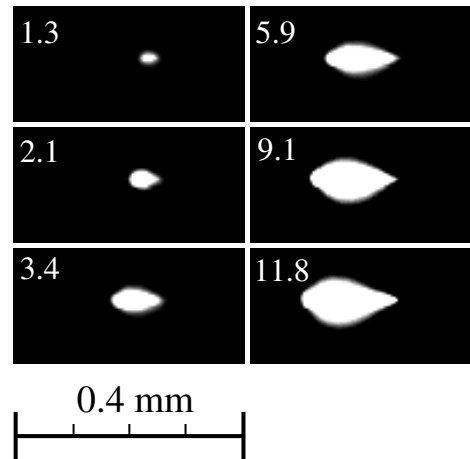


Abbildung 2.2: Plasmaleuchten für verschiedene Laserenergien von 1.3 bis 11.8 mJ. Der Laserstrahl kommt von links.

2.2.1 Aberrationseffekte

Zur genauen Bestimmung der Eigenschaften eines optischen Systems läßt sich der geometrische Verlauf der Strahlen eines Bündels an jeder optischen Grenzfläche nach dem Brechungsgesetz von Snellius errechnen:

$$\frac{n_1}{n_2} = \frac{\sin(\phi_2)}{\sin(\phi_1)} \quad (2.1)$$

Hierbei sind n_1 und n_2 die Brechungsindizes des ersten und zweiten Mediums und ϕ_1 und ϕ_2 die Winkel zwischen den Lichtstrahlen und der Lotgeraden.

Diese Strahlverfolgung wird in der Regel an Computern durchgeführt. Sie eignet sich jedoch nicht zur schnellen Charakterisierung einzelner optischer Komponenten.

Zur Vereinfachung setzt man daher in der Taylor-Näherung 1. Ordnung den Sinus mit seinem Argument gleich:

$$\sin(\phi) = \phi - \frac{\phi^3}{3!} + \frac{\phi^5}{5!} - \frac{\phi^7}{7!} + \frac{\phi^9}{9!} - \dots \approx \phi \quad (2.2)$$

Mit dieser sogenannte paraxialen Näherung lassen sich die Descartesschen Formeln herleiten, die eine einfache Charakterisierung optischer Komponenten mit sphärischer Oberfläche ermöglichen. Die Descartessche Formel für dünne Linsen lautet

$$\frac{1}{f} = (n_2 - n_1) \left(\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2} \right) \quad (2.3)$$

wobei r_1 und r_2 die Krümmungsradien der Linsenoberfläche sind. Während Gleichung (2.3) für kleine Winkel noch relativ gut erfüllt ist, verliert sie für große Winkel durch die paraxiale Näherung (2.2) an Genauigkeit. Die Abweichungen von der Linsengleichung bezeichnet man als Aberration.

Aberrationseffekte treten demnach bei jeder Fokussierung mit einer sphärischen Einzellinse auf. Sie sind um so stärker, je größer die Brechkraft der Linse also je größer der Fokussierungswinkel ist.

1860 betrachtete Seidel Aberrationen, die aufgrund des Terms 3. Ordnung $\frac{\phi^3}{3!}$ in der paraxialen Näherung entstehen und unterteilte sie zur Vereinfachung in verschiedene Klassen:

- Longitudinale und laterale sphärische Aberration
- Astigmatismus
- Koma
- Bildfeldwölbung
- Verzeichnung
- Chromatische Aberration

Astigmatismus, Koma, Bildfeldwölbung und Verzeichnung sind nur für die Abbildung von Bildpunkten abseits der optischen Achse von Bedeutung, weshalb ihr Einfluß auf die Fokussierung eines relativ zentralen Laserstrahls vernachlässigbar ist. Die Chromatische Aberration kommt durch die Dispersionseigenschaften des Linsenmaterials zustande und hat bei der Verwendung eines nahezu monochromatischen Nd:YAG-Lasers ($\lambda = 1064 \text{ nm}$) keine Bedeutung.

Für die Geometrie des Fokusvolumens und die damit verbundene Plasmaausdehnung ist vor allem die longitudinale sphärische Aberration von Bedeutung, welche im folgenden beschrieben werden soll.

Fällt ein paralleles Lichtbündel auf ein aberrationsbehaftetes Linsensystem, so treffen sich achsenferne Strahlen nicht, wie nach den Linsengleichungen erwartet, im Fokus. Liegt der Schnittpunkt in Strahlrichtung vor dem Fokus, so spricht man von positiver und im umgekehrten Fall von negativer Aberration.

Die Effekte der Aberrationen lassen sich durch die Verwendung eines geeigneten Linsensystems begrenzen. Im einfachsten Fall verwendet man für die Minimierung der sphärischen Aberration zwei Linsen, wobei die eine Linse eine positive und die andere eine negative Brennweite besitzt.

Abbildung 2.3 zeigt die Fokussierungseigenschaften einer plan-konvexen Einzellinse. In der Vergrößerung ist zu sehen, daß die Aberration der Linse starken Einfluß auf die Geometrie des Fokus nimmt. Wie bei einer Linse mit positiver Brennweite zu erwarten, treffen sich achsenferne Strahlen vor dem eigentlichen Fokus, welcher durch die vertikale Linie in der Vergrößerung dargestellt ist.

In Abbildung 2.4 ist zur Minimierung der Aberration vor die plan-konvexe Linse eine konkav-konvexe Linse mit negativer Brennweite in den Strahlengang eingebracht worden. Die Vergrößerung zeigt hier, daß diese Linsenkombination deutlich besser als die Einzellinse fokussiert, ohne dabei den Öffnungswinkel wesentlich zu reduzieren.

Die Strahlverfolgung wurde mit einer Wellenlänge des Lichts im nahen infraroten Bereich ($\lambda = 1064\text{nm}$) und den zugehörigen Brechungsindizes berechnet. Rechts von der letzten brechenden Fläche wurde Wasser als Medium angenommen.

Die in Abbildung 2.4 dargestellte Linsenkombination wurde auch im Experiment eingesetzt und ist in Abschnitt 4.1.1 ausführlich beschrieben.

Eine andere Möglichkeit zur Minimierung der Aberration besteht in der Verwendung asphärisch geschliffener Linsen. Diese sind jedoch aufgrund des komplizierteren Herstellungsverfahrens teurer als sphärische Linsen und erreichen im Allgemeinen nicht dieselbe Qualität.

2.2.2 Moving-breakdown Modell

Selbst bei einer völlig aberrationsfreien Fokussierung des Lasers beobachtet man eine Verzerrung des Plasmas in länglicher Richtung. Dieser Effekt wird durch das „moving-breakdown Modell“ [36] erklärt, welches die Ausbreitung des Plasmas durch voneinander unabhängig auftretende optische Durchbrüche im Medium beschreibt. Die Voraussetzung für den Durchbruch ist erfüllt, wenn die lokale Intensität eine gewisse Schwellenintensität $I_{th} \sim 166 \text{ GW/cm}^2$ überschreitet. Letztere hängt unter anderem von der Anzahl der Verunreinigungen im jeweils betrachteten Volumen ab.

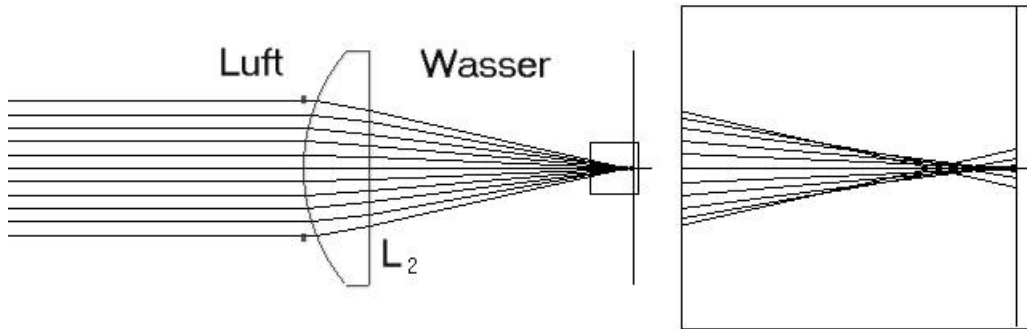


Abbildung 2.3: Fokussierung paralleler Strahlen mit einer Einzellinse. Strahlradius: $r = 5.75$ mm, Fokussierungswinkel: $2\Theta = 24^\circ$, Maximale Aberration: $\Delta s = 890$ μm , Brennweite der Linse in Luft: $f_{L_2} = 20.36$ mm.

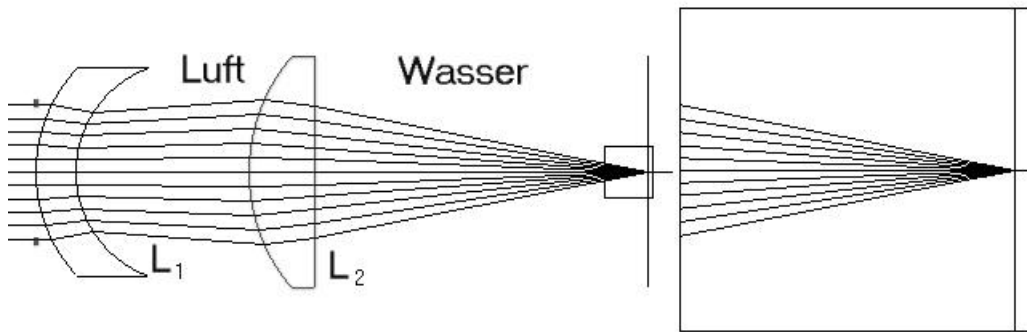


Abbildung 2.4: Fokussierung eines parallelen Lichtbündels mit einer Linsenkomination. Strahlradius: $r = 5.75$ mm, Fokussierungswinkel: $2\Theta = 22^\circ$, Maximale Aberration: $\Delta s = 19.5$ μm . Brennweiten der Einzellinsen in Luft: $f_{L_1} = -105.94$ mm, $f_{L_2} = 20.36$ mm.

Die längliche Plasmaform, welche besonders bei höheren Laserenergien auftritt, wird durch die Intensitätsverteilung im Fokus bestimmt. Für größere Energien wächst das Plasma in Richtung des Laserstrahls kegelförmig aus dem Fokus heraus und verändert dadurch die Geometrie des Plasmavolumens [36]. Im folgenden soll nun die axiale Plasmaausbreitung in Abhängigkeit der Laserenergie beschrieben werden.

Betrachtet sei die Fokussierung eines gaußförmigen Pulses mit der Leistung:

$$P(t) = P_{max} \cdot e^{-2t^2/a^2} \quad . \quad (2.4)$$

Der zeitliche Nullpunkt fällt hierbei auf den Maximalwert der Leistung P_{max} , und die Halbwertsbreite des Pulses ist durch $T_{1/2} = \sqrt{\frac{\ln(2)}{2}}a$ gegeben.

Der Strahlradius $w(z)$ ist durch den Wert definiert, an dem die Intensität senkrecht zur optischen Achse z auf $1/e^2$ abfällt. Wird nun vereinfachend angenommen, die Leistung verteile sich gleichmäßig über den beleuchteten Querschnitt, so ergibt sich für die Leistungsdichte zur Zeit t am Ort z :

$$I(z, t) = \frac{P(t)}{\pi w^2(z)} = \frac{P_{max}}{\pi w^2(z)} \cdot e^{-2t^2/a^2} \quad . \quad (2.5)$$

Der Radius ist nach dem Gauß'schen Strahlengesetz durch

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{\lambda^2 z^2}{\pi^2 w_0^4}} \quad (2.6)$$

gegeben, wobei λ die Wellenlänge und $w_0 = w(0)$ den minimalen Strahlradius im Fokus darstellt. In Gleichung (2.5) eingesetzt erhalten wir für die Intensität somit:

$$I(z, t) = \frac{P_{max}}{\pi w_0^2 + \frac{\lambda^2 z^2}{\pi w_0^2}} \cdot e^{-2t^2/a^2} \quad . \quad (2.7)$$

Um die Fokusslänge in Abhängigkeit der Laserenergie zu ermitteln, ist es notwendig den lokalen Intensitätsverlauf während des Laserpulses zu betrachten.

Wie in Abbildung 2.5 zu sehen ist, erfolgt der erste optische Durchbruch zur Zeit t_0 , wenn die Leistungsdichte im Fokus gerade der Schwellenintensität (I_{th}) für den Durchbruch entspricht:

$$I_{th} = \frac{P_{th}}{\pi w_0^2} \quad . \quad (2.8)$$

Wir können die Schwellenintensität als Bedingung in Gleichung (2.7) einsetzen und erhalten damit eine Beziehung zwischen dem Ort und der zugehörigen Zeit des Durchbruchs:

$$\frac{P_{th}}{\pi w_0^2} = \frac{P_{max}}{\pi w_0^2 + \frac{\lambda^2 z^2}{\pi w_0^2}} \cdot e^{-2t^2/a^2} \quad . \quad (2.9)$$

Gleichung (2.9), nach z aufgelöst, liefert uns den jeweiligen Ort des Durchbruchs in Abhängigkeit von der Zeit und der Laserleistung:

$$z = \pm \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \sqrt{\frac{P_{max}}{P_{th}} - 1} \cdot e^{-2t^2/a^2} \quad . \quad (2.10)$$

Aus einer rein geometrischen Betrachtung (Gleichung 2.10) müßte sich das Plasma in beide Richtungen auf der optischen Achse symmetrisch ausbreiten. Aufgrund des „plasma-shielding“ Effekts beobachtet man jedoch im realen Experiment nur eine Plasmaausbreitung zum Laser hin. Die anfängliche Entstehung des Plasmas im Fokus führt dazu, daß die

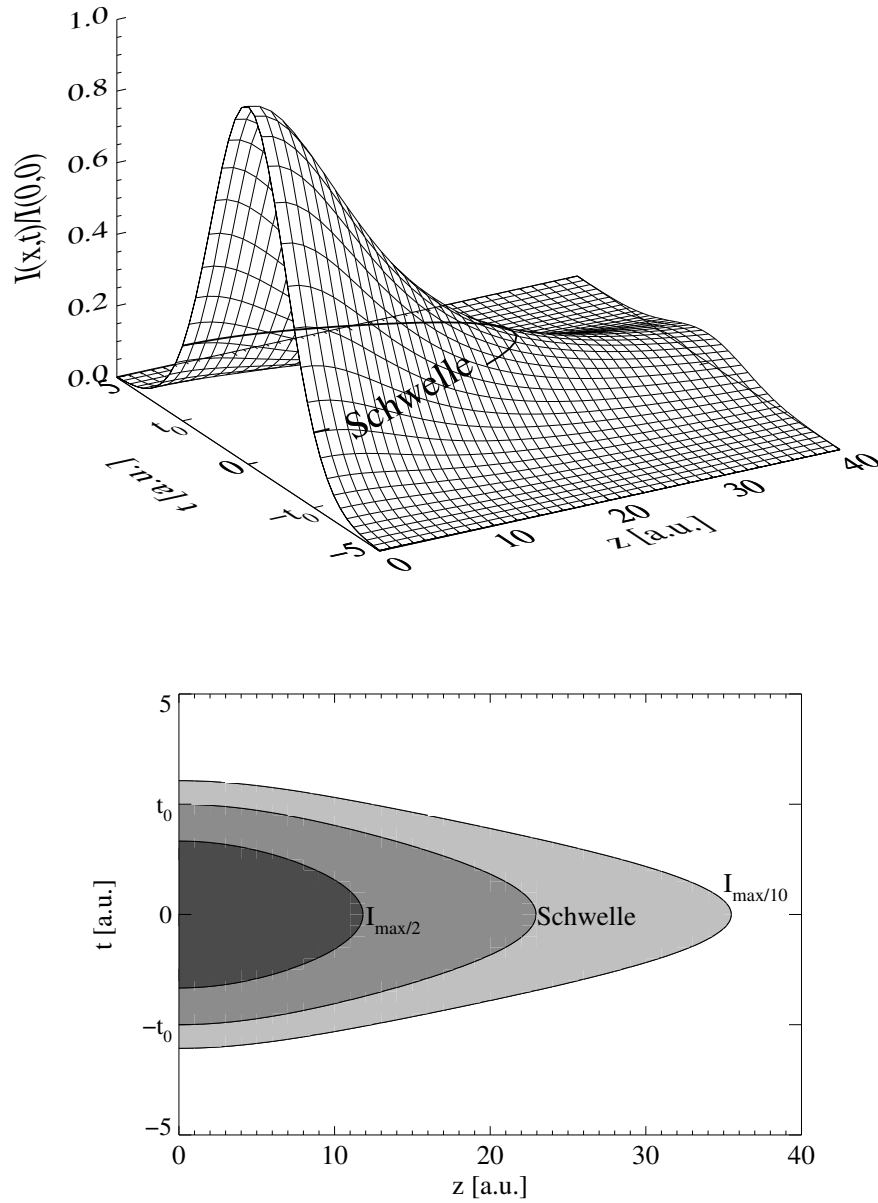


Abbildung 2.5: Normierte Intensität in Abhängigkeit der axialen Position z und der Zeit t für $P_{\max}/P_{th} = 4.7$. Zeit- und Ortsachse sind in willkürlichen Einheiten dargestellt.

weitere Strahlung aus Sicht des Lasers nach hinten abgeschirmt wird. Eine Ausbreitung

des Plasmas in dieser Richtung wird daher unterbunden.

Zur Zeit maximaler Leistung ($t = 0$) entspricht z aus Gleichung (2.10) gerade der maximalen Plasmalänge und wir erhalten

$$z_{max} = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \sqrt{\beta - 1} \quad , \quad (2.11)$$

wobei $\beta = \frac{P_{max}}{P_{th}}$ das Verhältnis zwischen der maximalen und der für den Durchbruch benötigten Schwellenleistung ist.

Die Plasmalänge wächst also für $\beta \gg 1$ mit der Wurzel der Laserleistung an. Desweiteren besteht eine direkte Proportionalität der Plasmalänge zum Quadrat des Strahltailenradius, welcher über

$$w_0 \sim \frac{\lambda}{\pi \tan(\Theta)} \quad (2.12)$$

mit dem Öffnungswinkel der Laserfokussierung zusammenhängt. Um also die Plasmalänge klein zu halten, benötigt man einen möglichst großen Öffnungswinkel (hohe numerische Apertur), was bei der Konstruktion der Fokussierungsoptik berücksichtigt werden muß.

Kapitel 3

Blasendynamik und Lumineszenz

3.1 Blasendynamik

Um die lichtemittierenden Vorgänge innerhalb der Blase zu verstehen, ist es notwendig die Zustände zu kennen, welche in der Blase während des Kollapses herrschen. Diese Zustände werden im wesentlichen von der Blasendynamik, also dem Verhalten der Grenzfläche zwischen Wasser und Dampf- bzw. Gasphase, bestimmt.

3.1.1 Besants Modell für eine leere Blase

Einen ersten Ansatz zur Modellierung schwingender Blasen in Flüssigkeiten lieferte Besant 1859 [37]. Er ging dabei von einer leeren Blase sphärischer Geometrie in einer inkompressiblen Flüssigkeit aus. Sei \dot{R} die Geschwindigkeit der Blasenwand und u die radiale Geschwindigkeit der Flüssigkeit am Ort r , so gilt für eine inkompressible Flüssigkeit:

$$u = \frac{R^2 \dot{R}}{r^2} \quad , \quad R \leq r < \infty \quad . \quad (3.1)$$

Für das Geschwindigkeitspotential Φ der Flüssigkeit ergibt sich demnach durch Integration:

$$\Phi = - \int_r^\infty u dr' = - \frac{R^2 \dot{R}}{r} \quad . \quad (3.2)$$

Unter Verwendung von Bernoullis Theorem erhält man damit eine Beziehung zwischen der Radialgeschwindigkeit der Flüssigkeit am Ort r und dem zugehörigen Druck P :

$$\frac{P - P_\infty}{\rho} = - \frac{\partial \Phi}{\partial t} - \frac{1}{2} u^2 = \frac{2R\dot{R}^2 + R^2\ddot{R}}{r} - \frac{1}{2} \frac{R^4 \dot{R}^2}{r^4} \quad . \quad (3.3)$$

P_∞ und ρ stellen hierbei den Umgebungsdruck bzw. die Dichte des Wassers dar. Setzt man in Gleichung (3.3) für den Ort r den Blasenradius R ein, so ergibt sich Besant's Formel:

$$\frac{P - P_\infty}{\rho} = R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 \quad . \quad (3.4)$$

3.1.2 Rayleigh-Plesset-Modell

In einer Erweiterung des Modells von Besant [38] berücksichtigt man, daß die Blase nicht leer, sondern mit einem Gas gefüllt ist, welches sich im einfachsten Fall durch die ideale Gasgleichung beschreiben läßt:

$$P_g \left(\frac{4\pi R^3}{3} \right) = nk_B T \quad . \quad (3.5)$$

Der Druck P_g im Inneren der Blase wird zum einen durch den Umgebungsdruck der Flüssigkeit P_0 und zum anderen durch die Oberflächenspannung σ der Blase bestimmt. Geht man im weiteren davon aus, daß die Blasendynamik adiabatisch verläuft, also daß $P_g(4\pi R^3/3)^\gamma$ konstant ist, so ergibt sich für den Druck im Inneren der Blase:

$$P + \frac{2\sigma}{R} = P_g = \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} \quad . \quad (3.6)$$

Hierbei ist γ der Adiabatenkoeffizient und R_0 der Gleichgewichtsradius, welcher sich bei einem Druck P_0 innerhalb der Flüssigkeit direkt an der Blasenwand einstellt. Wird diese Beziehung in Gleichung (3.4) eingesetzt, so erhält man:

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho} \left[\left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} - \frac{2\sigma}{R} - P_\infty \right] \quad . \quad (3.7)$$

Gleichung (3.7) wurde 1950 von Noltingk und Neppiras [39, 40] hergeleitet. Sie wurde später von Poritsky [41] um einen Term erweitert, der die Energiedissipation an der Blasenoberfläche aufgrund der Viskosität μ des Wassers berücksichtigt und erhielt den Namen Rayleigh-Plesset-Gleichung:

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho} \left[\left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0} \right) \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu\dot{R}}{R} - P_\infty \right] \quad . \quad (3.8)$$

Die Rayleigh-Plesset-Gleichung beruht auf folgenden Annahmen:

- Die Blase behält über die ganze Zeit eine sphärische Geometrie.

- Die translativen Kräfte wie zum Beispiel der Auftrieb der Blase sind vernachlässigbar gering.
- Die Blasendynamik verläuft adiabatisch.
- Die Blase ist im Inneren bezüglich Druck und Temperatur homogen.
- Die Dichte der Flüssigkeit ist groß und ihre Kompressibilität klein gegenüber dem Gas innerhalb der Blase.
- Es finden keine Diffusionsprozesse statt.
- Der Dampfdruck innerhalb der Blase ist vernachlässigbar.
- Es finden keine chemischen Reaktionen innerhalb der Blase statt.

Die Blasenmodelle wurden in den letzten Jahren hinsichtlich vieler Aspekte erweitert. Zu den berücksichtigten Aspekten zählen im Wesentlichen: Kompressibilität der Flüssigkeit [42], Entstehung von Stoßwellen [43, 44, 45], Übergang vom isothermen zum adiabatischen Kollaps [46], Verdampfung, Kondensation [47], Diffusion [48] und chemische Reaktionen [49, 47]. Alle Modelle liefern relativ gute Voraussagen für die langsame Phase des Aufschwingens und der anfänglichen Kompression. Die für die Lichtemission relevanten Vorgänge spielen sich jedoch während der letzten Phase des Kollapses ab. Aufgrund der hohen Geschwindigkeiten und kleinen räumlichen Ausdehnung der Blase im Kollaps ist es schwierig, die Modelle hinsichtlich dieser Phase experimentell zu überprüfen. Auch das Wiederaufschwingen der Blase wird meist ungenauer wiedergegeben, da die Verlustmechanismen im Kollaps nicht perfekt erfaßt werden.

3.1.3 Kollaps einer sphärischen Blase nach Rayleigh

Rayleigh lieferte ein einfaches Modell einer kollabierenden sphärischen Blase [50], aus dem sich eine Beziehung zwischen der Kollapszeit und dem Maximalradius der Blase herleiten läßt:

Wie Besant geht Rayleigh dabei von einem radialsymmetrischen Kollaps in einer inkompressiblen Flüssigkeit aus, so daß die Geschwindigkeit der Flüssigkeit durch Gleichung (3.1) beschrieben wird. Die kinetische Energie innerhalb der Flüssigkeit bestimmt das Verhalten beim Kollaps. Sie ist durch

$$E_{kin} = \frac{1}{2}\rho \int_R^\infty u^2 4\pi r^2 dr = 2\pi\rho\dot{R}^2 R^3 \quad (3.9)$$

gegeben und wird vom Verlust der potentiellen Energie beim Kollaps der Blase aufgebracht:

$$\Delta E_{pot} = \frac{4}{3}\pi P_0(R_{max}^3 - R^3) \quad . \quad (3.10)$$

Gleichsetzen von Gleichung (3.9) und (3.10) liefert:

$$\dot{R}^2 = \frac{2P_0}{3\rho} \left(\frac{R_{max}^3}{R^3} - 1 \right) \quad . \quad (3.11)$$

Diese Differentialgleichung kann nach dt aufgelöst werden und ergibt dann:

$$dt = \pm dR \sqrt{\frac{3\rho}{2P_0} \left(\frac{R^3}{R_{max}^3 - R^3} \right)} \quad , \quad (3.12)$$

wobei das Vorzeichen davon abhängt, ob man eine aufschwingende oder kollabierende Blase betrachtet. Durch Integration erhält man aus Gleichung (3.12):

$$t = \sqrt{\frac{3\rho}{2P_0}} \int_R^{R_{max}} \frac{R^{3/2}}{(R_{max}^3 - R^3)^{1/2}} dR = R_{max} \sqrt{\frac{3\rho}{2P_0}} \int_\beta^1 \frac{\beta^{3/2}}{(1 - \beta^3)^{1/2}} d\beta \quad , \quad (3.13)$$

mit $\beta = \frac{R}{R_{max}}$ als Verhältnis zwischen instantanem und ursprünglichem Radius der Blase. Der totale Kollaps $t = T_C$ wird erreicht, wenn der Radius R und damit auch β auf Null abfällt. Geht man idealerweise von einem totalen Kollaps aus und substituiert in Gleichung (3.13) β^3 mit Z , so ergibt sich:

$$T_C = R_{max} \sqrt{\frac{\rho}{6P_0}} \int_0^1 Z^{-1/6} (1 - Z)^{-1/2} dZ \quad . \quad (3.14)$$

Das Integral aus Gleichung (3.14) läßt sich als Gammafunktion darstellen. Wir erhalten demnach eine einfache Beziehung zwischen der Kollapszeit T_C und dem maximalen Blasenradius R_{max} , die sogenannte Rayleigh Gleichung:

$$T_C = 0.915 \sqrt{\frac{\rho}{P_0}} \cdot R_{max} \quad . \quad (3.15)$$

Unter Berücksichtigung des Dampfdrucks P_D innerhalb der Blase ergibt sich:

$$T_C = 0.915 \sqrt{\frac{\rho}{P_0 - P_D}} \cdot R_{max} \quad . \quad (3.16)$$

Die Grenzen dieses einfachen Modell werden offensichtlich, wenn man die Geschwindigkeit der Blasenwand für sehr kleine Radien betrachtet. Nach Gleichung (3.11) würde die Radialgeschwindigkeit \dot{R} im Kollaps, also für $R = 0$, unendlich werden.

In einer genaueren Betrachtung von Gilmore [42] wird unter anderem die Kompressibilität der Flüssigkeit berücksichtigt. Dies führt dazu, daß der weitere Anstieg der Radialgeschwindigkeit für Werte deutlich oberhalb der Schallgeschwindigkeit stark verlangsamt wird. Es hat sich jedoch herausgestellt, daß dieses ausführlichere Modell zumindest bei lasererzeugten Blasen keine wesentliche Abweichung von der einfachen Beziehung zwischen Kollapszeit und Maximalradius aus Gleichung (3.16) voraussagt [30].

Ein Modell von Akhatov *et al.* [51] wurde speziell für die Dynamik lasererzeugter Blasen aufgestellt. Es berücksichtigt dabei die Wärmeleitfähigkeit der Flüssigkeit und des Gases, Verdampfungs- und Kondensationseffekte, Gasdifusion aus der Flüssigkeit in die Blase und Kompressibilität der Flüssigkeit. Numerische Simulationen lieferten gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment.

Abbildung 3.1 zeigt die Aufnahme lasererzeugter Blasen zu unterschiedlichen Zeiten nach dem optischen Durchbruch bei einem Umgebungsdruck von 1.3 bar. Der helle Fleck im Blasenmittelpunkt kommt durch das Plasmaleuchten während des optischen Durchbruchs zustande.

Die Blase schwingt zunächst auf und erreicht ihren Maximalradius von $R_{max} = 0.53$ mm ungefähr $43 \mu s$ nach der Blasenentstehung. Danach fällt sie wieder in sich zusammen, wobei die letzte Phase der Kompression sehr schnell geschieht. Nach dem Kollaps schwingt die Blase erneut auf. Sie erreicht dabei jedoch nur etwa ein Fünftel ihres ursprünglichen Radius und verliert im allgemeinen auch ihre sphärische Form. Aus Abbildung 3.1 läßt sich entnehmen, daß die Kollapszeit ungefähr $T_{C,exp} \sim 43 \mu s$ beträgt, was mit dem aus Gleichung (3.16) berechneten Wert $T_{C,theo} = 43 \mu s$ übereinstimmt. Für die Rechnung wurde der experimentell bestimmte Maximalradius verwendet.

3.1.4 Diffusionsstabilität bei SBSL-Blasen

Eine der wesentlichen Eigenschaften akustisch angeregter Einzelblasen ist, daß sie trotz der starken Oszillationen über Stunden hinweg stabil bleiben können. Normalerweise lösen sich ruhende Gasblasen in einer Flüssigkeit mit der Zeit auf. Der Grund dafür ist, daß durch die Oberflächenspannung innerhalb der Blase ein größerer Druck herrscht als in der umgebenden Flüssigkeit. Nach dem Gesetz von Laplace beträgt die Druckdifferenz für eine sphärische Blase:

$$P_{\sigma} = \frac{2\sigma}{R} \quad , \quad (3.17)$$

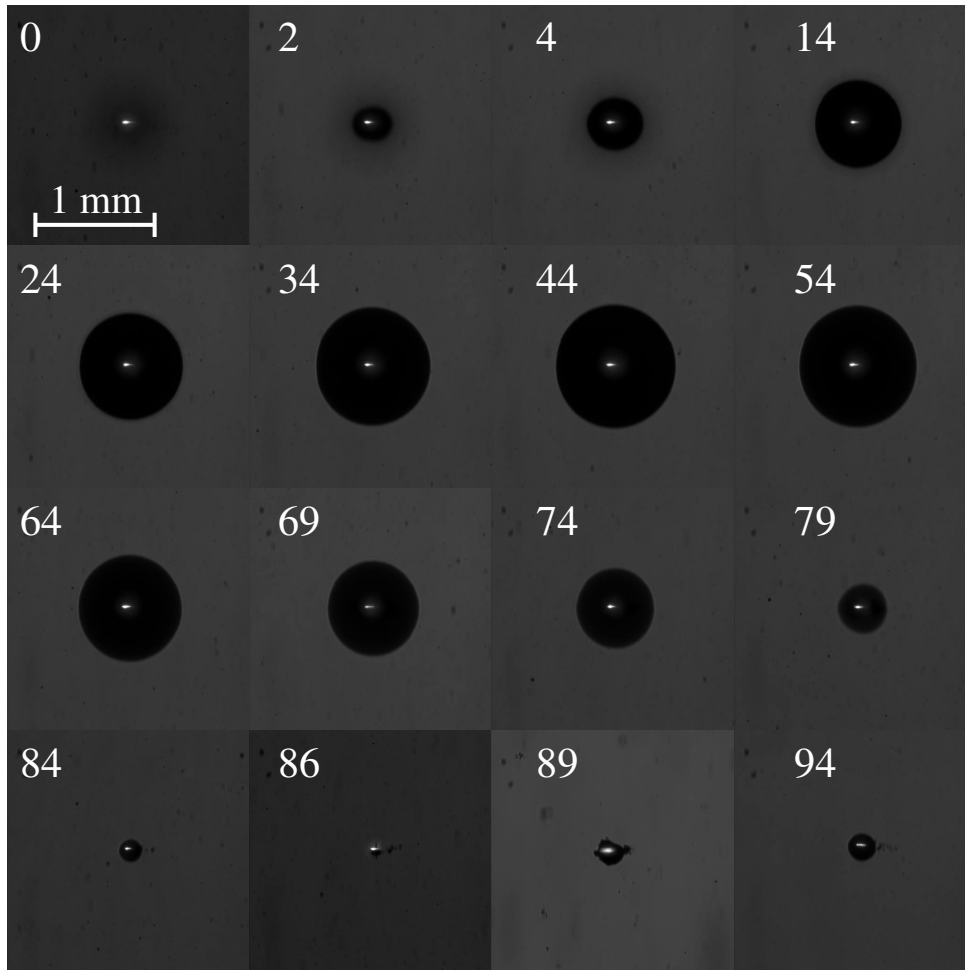


Abbildung 3.1: CCD-Aufnahmen lasererzeugter Blasen bei einem Umgebungsdruck von 1.3 bar und einer Laserenergie von $E_L = 1.4$ mJ. Die angegebenen Zahlenwerte entsprechen der Zeit nach dem optischen Durchbruch in Mikrosekunden.

wobei R der Blasenradius und σ die Oberflächenspannung ist. Diese Druckdifferenz führt dazu, daß unterhalb der Sättigungskonzentration der Flüssigkeit ein Nettostrom von Gas aus der Blase in die Flüssigkeit diffundiert und sich die Blase mit der Zeit auflöst.

Durch Anlegen eines akustischen Feldes wird die Blase aufgrund der Druckschwankungen periodisch zusammengedrückt und auseinandergezogen. Innerhalb der Blase erhöht bzw. erniedrigt sich dabei der Partialdruck des Gases P_g abwechselnd, während die Gaskonzentration C_g in der Flüssigkeit wegen der vernachlässigbar geringen Kompressibilität konstant bleibt. Sofern keine chemischen Reaktionen stattfinden, sind der Partialdruck ei-

nes Gases und die Gaskonzentration in der Flüssigkeit im Gleichgewicht durch das Henry-Dalton-Gesetz verknüpft:

$$C_g = H \cdot P_g \quad , \quad (3.18)$$

wobei H die Löslichkeitskonstante darstellt. Sinkt während der Expansionsphase der Partialdruck innerhalb der Blase unter den durch die Gaskonzentration bestimmten Gleichgewichtswert, so dreht sich der Diffusionsstrom um, und Gas strömt in die Blase ein (Abbildung 3.2).

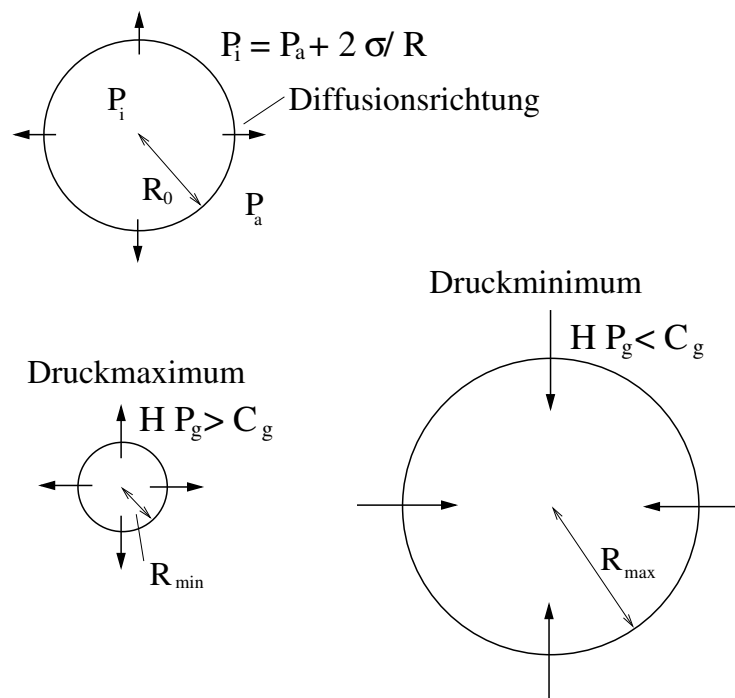


Abbildung 3.2: Ausdehnung und Kompression von Blasen bei verschiedenen Umgebungsdrücken.

Der Diffusionsstrom hängt neben dem Partialdruck auch noch von der Oberfläche der Blase ab. Da die Oberfläche im ausgedehnten Zustand größer als während der Kompression ist, kann es über längere Zeit zu einem Diffusionsstrom in die Blase kommen, der den auswärtsgerichteten Strom aufgrund der Oberflächenspannung kompensiert [52]. In diesem Fall ist die Blase stabil und kann über Stunden hinweg zu periodischer Lichtemission angeregt werden [4].

Stabilitätskriterien für akustisch angeregte Einzelblasen hängen von dem akustischen und statischen Druck, der Anregungsfrequenz und dem Gasgehalt in der Flüssigkeit ab.

Sie sind der beschränkende Faktor in der Untersuchung des Parameterraums von SBSL-Blasen.

3.2 Blasenlumineszenz

Die Schwierigkeit in der Modellierung und Betrachtung der Blasen während der letzten Phase des Kollapses ließ eine Menge Freiheit für die Erstellung von Theorien über die lichterzeugenden Mechanismen kollabierender Blasen. Verschiedene Erklärungsversuche betrachten unter anderem thermische Effekte aufgrund adiabatischer Kompression [53, 54] oder einwärts laufender Stoßwellen [43, 55, 45, 56], flexoelektrische Effekte [57, 58] oder Quanten-Vakuumstrahlung [59] als mögliche Ursache der Lichterzeugung für SBSL.

Die zur Zeit am weitesten akzeptierte Theorie geht davon aus, daß die Entstehung eines Plasmas aufgrund adiabatischer Erhitzung [60] und eventueller Kompression durch Stoßwellen [53] die wesentliche Quelle für die Einzelblasenlumineszenz ist. Zur Lichtemission tragen im Rahmen dieser Theorie drei Effekte bei, die durch die Anzahl der freien Elektronen innerhalb der Blase beeinflusst werden:

- Bremsstrahlung freier Elektronen im Ionenfeld
- Bremsstrahlung durch Zusammenstöße freier Elektronen mit neutralen Teilchen
- Strahlung durch Rekombination von Ionen und Elektronen

Die Anzahl der freien Elektronen wird durch den Ionisationsgrad $\frac{n_i}{n_0}$ innerhalb der Blase bestimmt und kann mit Hilfe der Saha-Gleichung berechnet werden

$$\frac{n_i}{n_0} = \frac{(2\pi m k_B T)^{3/4}}{n_0^{1/2} h^{3/2}} \cdot e^{-E_{ion}/2k_B T} \quad , \quad (3.19)$$

sofern die Temperatur T und die Ionisierungsenergie E_{ion} der Teilchen bekannt ist.

Für edelgasgefüllte SBSL-Blasen ist der Ionisationsgrad innerhalb der Blase unter der Annahme von Temperaturen um 20000 K relativ gering (1% für Argon) [61], so daß die mittlere freie Weglänge der Photonen größer als der Blasenradius ist. Die Blase ist somit ein transparenter Strahler und emittiert Photonen nicht wie ein schwarzer Strahler ausschließlich von der Oberfläche, sondern auch aus dem Inneren der Blase. Im Falle eines schwarzen Strahlers wäre zu erwarten gewesen, daß die Pulslängen im roten länger

als im ultravioletten Spektralbereich sind. Experimentelle Befunde zeigen jedoch keine signifikante Abhängigkeit der Pulslänge vom Spektralbereich [9], was als Indiz gegen die Theorie eines reinen schwarzen Strahlers gewertet werden muß.

Einige Modelle gehen davon aus, daß die für die Lichtemission verantwortlichen hohen Drücke und Temperaturen innerhalb der Blase durch eine nach innen laufende Stoßwelle erzeugt werden. Die Stoßwelle entsteht, wenn die Geschwindigkeit der Blasenwand die Schallgeschwindigkeit überschreitet. Während der Kompressionsphase löst sich die Stoßwelle von der Blasenwand ab und verdichtet dabei den Blaseninhalt. Im Zentrum wird die nach innen laufende Stoßwelle anschließend reflektiert. Die Temperaturen und Drücke könnten dann durch die divergierende Stoßwelle sehr schnell wieder abnehmen, was die bei SBSL beobachteten kurzen Lichtpulse ($T_{1/2} \leq 250$ ps) erklären würde.

Es ist noch nicht einwandfrei geklärt, ob der lichterzeugende Mechanismus für SBSL und SCBL-Blasen der gleiche ist. Bei der Übertragung von Modellen muß darauf geachtet werden, daß sich bei akustisch angeregten Blasen über viele Schwingungszyklen ein Diffusionsgleichgewicht einstellen kann, während dies bei lasererzeugten Blasen nicht der Fall ist. Desweiteren besteht ein wesentlicher Unterschied in der Entstehung der Blasen. Beim optischen Durchbruch wird die Flüssigkeit im Fokusbereich verdampft, zersetzt und ionisiert. Möglicherweise nehmen chemische Reaktionen dabei Einfluß auf die weitere Entwicklung der Zustände innerhalb der Blase. Außerdem ist zu beachten, daß im Falle der akustischen Anregung der maximale Blasenradius um ungefähr eine Größenordnung kleiner ist als bei den in dieser Arbeit betrachteten SCBL-Blasen, was sich in der Bedeutung verschiedener Parameter wie z.B. Oberflächenspannung [62], Massen- und Energietransport bemerkbar machen kann.

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau

In dieser Arbeit wird der Einfluß des Edelgasgehalts und des statischen Drucks in der Flüssigkeit auf die Lumineszenz lasererzeugter Blasen untersucht. Aus diesem Grund beinhaltet der experimentelle Aufbau neben der Fokussierungsoptik für den Laser und einer geschlossenen Küvette zusätzlich eine Apparatur zur Be- und Entgasung der Flüssigkeit.

4.1 Optimierung der Fokussierungsoptik

Für die Erzeugung laserinduzierter Kavitationsblasen soll eine Optik erstellt werden, welche die Pulse eines Nd:YAG-Lasers in eine mit Flüssigkeit gefüllte Küvette fokussiert. Zunächst einmal ist darauf zu achten, daß alle verwendeten Bauteile unempfindlich gegen die hohen Leistungsdichten der Kurzzeitpulse (~ 8 ns) mit einer Maximalenergie von 750 mJ sind. Auch sollte die Transmission der einzelnen Bauteile im nahen Infrarotbereich (1064nm) möglichst groß sein, um unnötige Reflexion oder Absorption zu vermeiden. Da der Fokus bei diesem Experiment in einer Flüssigkeit liegt, muß der Aufbau ein Fenster oder eine Linse an der Grenzschicht besitzen, welches gegenüber der Flüssigkeit chemisch stabil ist.

Es hat sich herausgestellt, daß die Lumineszenz eine möglichst sphärische Blasengeometrie voraussetzt. Aus diesem Grund ist es notwendig, die Optik dermaßen zu konzipieren, daß ein möglichst kugelförmiges Fokusvolumen erzeugt wird. Die Bedingungen dafür sind in Abschnitt 2.2 erläutert. Die Fokussierungsoptik sollte aberrationsminimiert sein und einen möglichst großen Fokussierungswinkel erzeugen. Desweiteren soll der Fokus einen Mindestabstand von $d_{min} = 2$ cm zur nächsten Grenzfläche besitzen. Dieser Abstand ist notwendig, da zu dicht gelegene Grenzflächen die Blasendynamik beeinflussen und so zu einer Verzerrung der sphärischen Geometrie führen [27].

4.1.1 Auswahl des Linsensystems

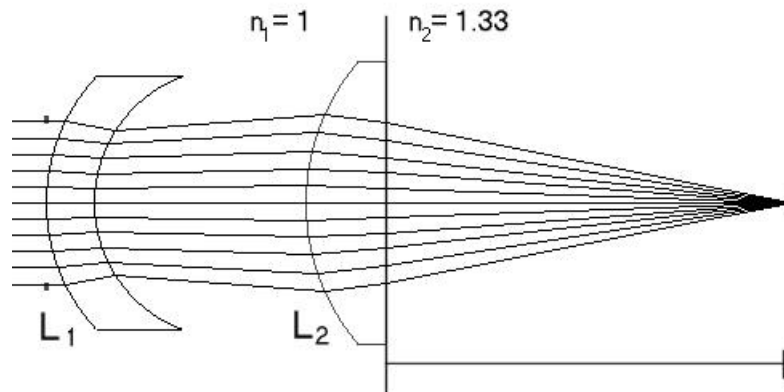
Bei der Erstellung der Fokussierungsoptik zur Erzeugung sphärischer Blasen wurden folgende Kriterien berücksichtigt:

1. Unempfindlichkeit gegen hohe Laser-Intensitäten ($\sim 90 \text{ MW/cm}^2$)
2. Verträglichkeit mit Wasser (Säuren und Laugen)
3. Hohe Transmission für $\lambda = 1064 \text{ nm}$
4. Geringe sphärische Längenaberration ($\Delta s \leq 40 \mu\text{m}$)
5. Möglichst großer Fokuskegelwinkel ($2\Theta \geq 20^\circ$)
6. Kein Einfluß von Grenzflächen ($d_{\min} \geq 20 \text{ mm}$)
7. Leichte Justierbarkeit
8. Möglichst geringe Kosten in der Anfertigung

Die verwendete Linsenkombination zur Fokussierung des Lasers ist in Abbildung 4.1 dargestellt. Sie besteht aus einer konvex-konkaven Linse aus BK-7 Glas und einer plankonvexen Saphirlinse, wobei letztere direkt in die Küvettenwand eingebaut ist.

Es wurden bei diesem Aufbau nur zwei Linsen verwendet, um die Kosten gering zu halten und eine einfache Justierung zu ermöglichen. Für die Erzeugung eines großen Fokussierungswinkels muß, aufgrund des hohen Brechungsindex von Wasser ($n_{1064\text{nm}} = 1.33$), die in die Küvette eingebaute Linse (L_2) eine starke Brechkraft besitzen. Von den herkömmlich verwendeten Linsenmaterialien mit hohem Brechungsindex kamen nur Saphir ($n_{1064\text{nm}} = 1.755$) und LaSF N9 ($n_{1064\text{nm}} = 1.823$) in Frage. In diesem Aufbau wurde eine Saphirlinse ausgewählt, da Saphir chemisch sehr stabil ist und somit die Verwendung verschiedener Flüssigkeiten, insbesondere auch Säuren und Laugen, ermöglicht. Ein weiterer Vorteil der Saphirlinse ist, daß sie in der gewünschten Größe als Kataloglinse zur Verfügung steht und dadurch preiswerter als eine Sonderanfertigung einer LaSF N9 Linse ist.

Saphir ist in vielen Aspekten anderen Gläsern überlegen. Neben der chemischen Stabilität (selbst Flußsäure kann Saphir unterhalb von 300°C nicht angreifen) besitzt Saphir eine extreme Härte. Nur sehr wenige Materialien, wie z.B. Diamanten oder Boron-Nitrid sind



Linse	Material	n	d_M [mm]	Φ [mm]	r_1 [mm]	r_2 [mm]
L1	BK7	1.51	3.2	18	13.05	9.58
L2	Saphir (Al_2O_3)	1.75	5.7	20	15.36	0

Abbildung 4.1: Verwendete Fokussierungsoptik und deren Linsenparameter: Brechungsindex n , Mittendicke d_M , Apertur Φ , und Krümmungsradien r_1 , r_2 .

in der Lage, eine Saphir-Oberfläche zu zerkratzen. Die Transmission eines 1 mm dicken Saphir-Fensters liegt für ein breites Spektrum (300 nm - 2000 nm) konstant bei $\sim 85\%$.

Saphir ist ein Einkristall aus Aluminiumoxid (Al_2O_3). Aufgrund der hexagonalen Kristallstruktur zeigen Saphirlinsen anisotrope Eigenschaften. Der Brechungsindex unterscheidet sich um $\Delta n = 0.008$ für Licht, welches sich entlang der optischen Achse oder senkrecht dazu bewegt. Beim Einbau der Linse muß aufgrund der Doppelbrechung von Saphir darauf geachtet werden, daß die Polarisationsrichtung des Lasers mit einer der Hauptachsen zusammenfällt. Ist dies nicht der Fall, so führt der Unterschied im Brechungsindex zu der Entstehung eines Doppelfokus.

Ein Nachteil bei der Verwendung von Saphirlinsen ist, daß wegen der Härte des Materials die Auftragung einer Antireflexionsbeschichtung für hohe Laserintensitäten Probleme bereitet. Für unsere Anwendung sind die Transmissionseigenschaften der Saphirlinse jedoch ausreichend, so daß auf eine Antireflexionsschicht verzichtet werden kann.

Die vordere Linse (L_1) dient im wesentlichen zur Minimierung der Aberration. Sie besteht aus BK7 Glas und ist mit einer Antireflexionsschicht von Spindler & Hoyer (AR-HS 1064) beschichtet.

Bildabstand zur letzten brechenden Fläche s :	28.7 mm
Öffnungswinkel 2Θ :	23°
Maximale Aberration Δs :	$20 \mu\text{m}$

Tabelle 4.1: Charakteristika der Fokussierungsoptik bei einer Wellenlänge von $\lambda = 1064 \text{ nm}$. Der Strahldurchmesser beträgt $\Phi = 11.5 \text{ mm}$.

Die Charakteristika der Linsenkombination für eine mit Wasser gefüllte Küvette bei einer Lichtwellenlänge von $\lambda = 1064 \text{ nm}$ sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Abbildung 4.2 zeigt die Aberrationskennlinie der Fokussierungsoptik. Sie gibt die Orte an, in denen sich parallel einfallende Laserstrahlen gleichen Abstandes r von der optischen Achse im Bildraum treffen. Diese Schnittpunkte befinden sich aufgrund der vorliegenden Symmetrie alle auf der optischen Achse. Für größere Strahlradien r rücken sie jedoch näher an die Fokussierungsoptik heran, wie in Abbildung 4.2 zu sehen ist.

Alle Daten wurde mit Hilfe eines Strahlverfolgungsprogramm von Spindler & Hoyer [63] berechnet.

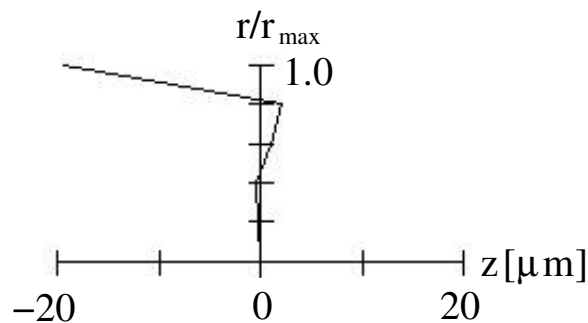


Abbildung 4.2: Aberrationskennlinie der Fokussierungsoptik: r/r_{max} entspricht dem normierten Abstand der Strahlen von der optischen Achse; z beschreibt den Abstand der Schnittpunkte auf der optischen Achse vom Fokus; $r_{max} = 5.75 \text{ mm}$.

4.2 Einstellung des Gasgehalts in der Flüssigkeit

Der experimentelle Aufbau zur Einstellung des Gasgehalts in der Flüssigkeit ist in Abbildung 4.3 dargestellt.

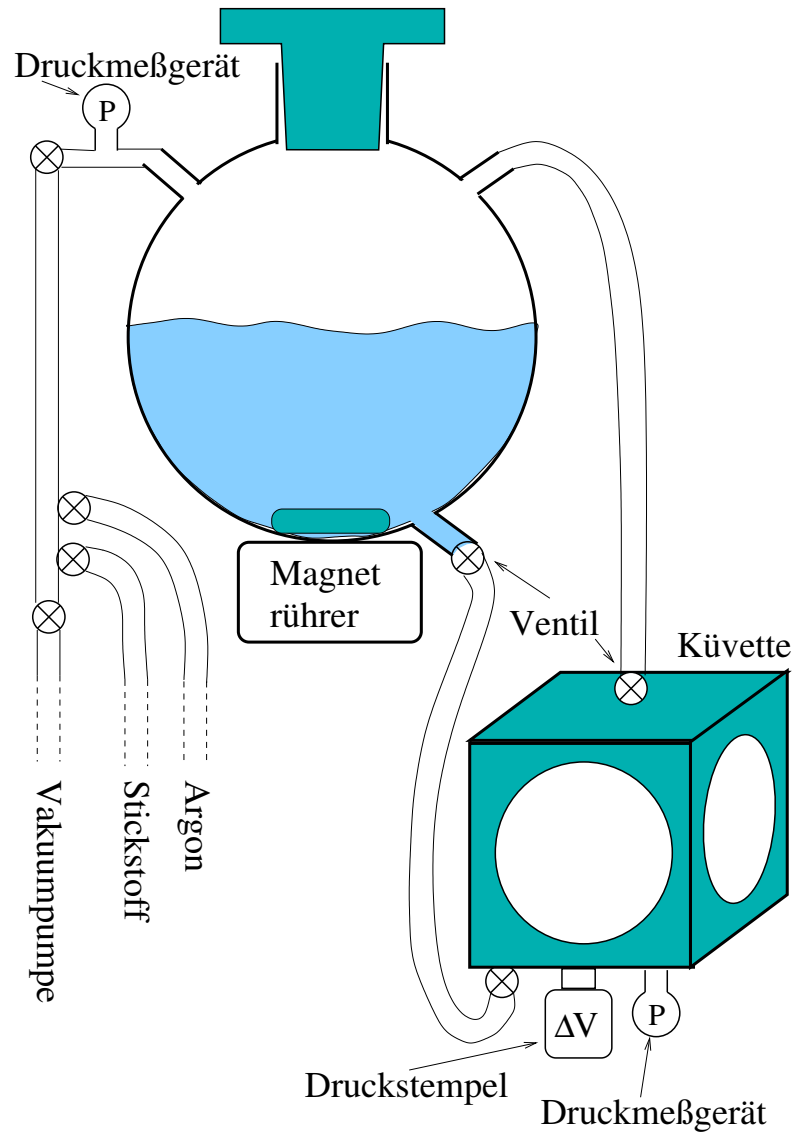


Abbildung 4.3: Aufbau zur Ent- und Begasung der Flüssigkeit.

Zunächst wird die Flüssigkeit entgast. Dazu füllt man sie in einen Kolben, der an eine Vakuumpumpe angeschlossen ist. Die Vakuumpumpe erzeugt im Kolben einen Unterdruck und verändert dadurch das Gleichgewicht zwischen dem in der Flüssigkeit gelösten Gas und dessen Partialdruck oberhalb der Lösung. Das System verhält sich nach dem Prinzip des kleinsten Zwanges von Le Chatelier, und das Gas entweicht aus der Flüssigkeit. Der Kolben ist dabei über einen Vakuumschlauch mit der Küvette verbunden, so daß in dem gesamten System dieselben Bedingungen herrschen. Zur Beschleunigung der Entgastung kann die Flüssigkeit erhitzt und durch einen Magnetrührer in Bewegung gehalten

werden. Die Entgasung kann nur bis zum Dampfdruck der jeweiligen Flüssigkeit durchgeführt werden. Bei einer Temperatur von $T = 24^\circ \text{C}$ beträgt der Dampfdruck von Wasser beispielsweise $P_D = 2.34 \text{ kPa}$ und der von Isopropanol $P_D = 4.25 \text{ kPa}$. Nachdem die Flüssigkeit entgast wurde, stellt man den gewünschten Partialdruck von Argon oder Stickstoff im System ein und wartet, bis sich das Gas in der Flüssigkeit gelöst hat. Hiernach leitet man die Flüssigkeit über einen Schlauch in die Küvette, welche sich durch Ventile vom restlichen System isolieren läßt.

4.3 Konstruktion der Küvette

Die in diesem Aufbau verwendete Küvette ist eine Stahlkonstruktion mit der Innenabmessung $(60 \times 60 \times 60) \text{ mm}^3$. An der Unter- und Oberseite der Küvette befinden sich Ventile mit einem Innenquerschnitt von 8 mm für den Ein- bzw. Auslaß der Flüssigkeit. Wie schon in Abschnitt 4.1 erwähnt, ist das Eintrittsfenster für den Laserpuls eine plan-konvexe Saphirlinse, die gleichzeitig zur Fokussierung dient. In die restlichen drei Seiten der Küvette sind Quarzfenster (Dicke 8 mm, Durchmesser 52 mm) eingefügt, durch welche die Beobachtung der Vorgänge innerhalb der Küvette erfolgt. Der Vorteil von Quarz gegenüber gewöhnlichem BK7-Glas liegt in der größeren Transmissionsbandbreite im UV-Bereich¹. An der Unterseite der Küvette befinden sich neben dem Einlaßventil noch ein Druckmeßgerät und ein Messingstempel, durch den der statische Druck innerhalb der Küvette eingestellt werden kann. Ein Piezoelement an der Außenseite einer der Quarzscheiben registriert auftretende Druckwellen und wandelt sie in ein elektrisches Signal um.

4.4 Erzeugung der Blasen und Aufnahme des Lumineszenzsignals

Der Aufbau zur Erzeugung der Kavitationsblasen und Aufnahme des Lumineszenzsignals mit einem Photomultiplier (PMT) ist in Abbildung 4.4 dargestellt.

Ein Nd:YAG Laser (HY 750, Lumonics Ltd.) erzeugt Kurzzeitpulse mit 8 ns Halbwertsbreite und einer Maximalenergie von 750 mJ. Ein kleiner Teil des Lichts wird dabei

¹Die untere Grenzwellenlänge (Transmission 50%) für 10 mm dickes Quarzglas liegt mit $\sim 180 \text{ nm}$ unterhalb der von BK7-Glas ($\sim 320 \text{ nm}$) [63].

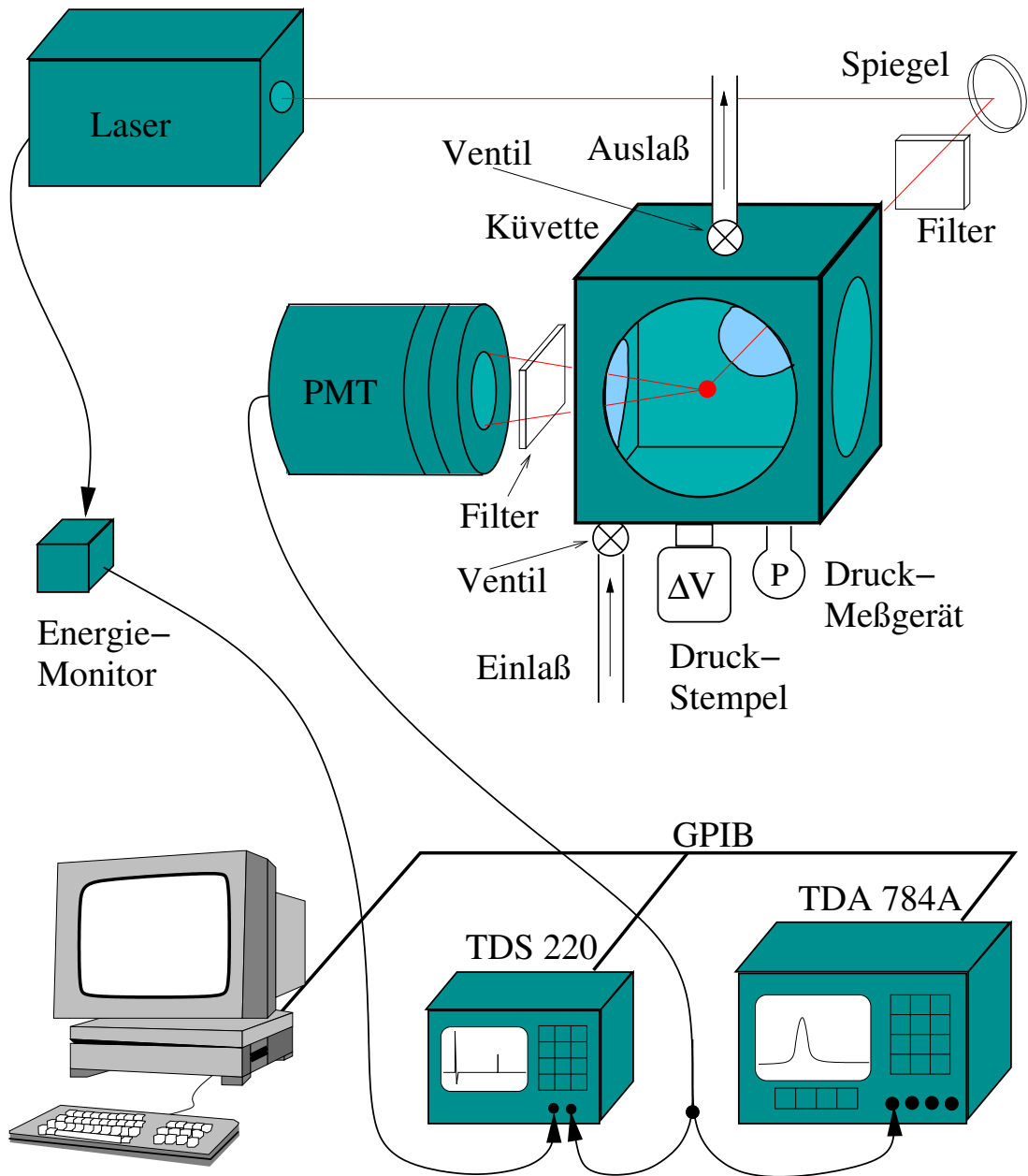


Abbildung 4.4: Experimenteller Aufbau zur Aufnahme des Lumineszenzsignals.

über einen Strahlteiler ausgekoppelt und auf eine Photodiode gelenkt, welche mit einer zugehörigen Schaltung als Monitor für die Energie der einzelnen Laserpulse dient. Das Signal des Energiemonitors kann durch ein Oszilloskop ausgelesen werden. Die Eichung des Monitors erfolgte durch Messungen der Pulsenergien mit einem Energiemeßgerät (Field Master GS, Coherent) mit integriertem thermischen Meßkopf (LM10). Der Laser wird aus

Stabilitätsgründen mit relativ hoher Leistung betrieben und durch Infrarotfilter auf die gewünschte Pulsenergie von 1 bis 30 mJ abgeschwächt. Der Laserpuls trifft zunächst auf einen Nd:YAG Spiegel und wird dann durch die in Abschnitt 4.1 beschriebene aberrationsminimierte 2-Linsen-Optik in die mit Wasser gefüllte Küvette fokussiert. Sowohl das beim optischen Durchbruch erzeugte Plasmaleuchten, als auch die Lumineszenz der kollabierenden Blase werden durch einen Graufilter (Transmission: 10%) abgeschwächt und von einem Photomultiplier (Hamamatsu R5600U06) aufgenommen. Bei allen Experimenten war die Temperatur relativ konstant bei $24^\circ \pm 1^\circ\text{C}$.

Das Signal des Photomultipliers wird von zwei Oszilloskopen (TDS 220 und TDA 784A, Tektronix) ausgelesen. Die Ansteuerung der Oszilloskope und die anschließende Datenverarbeitung werden von einem Programm durchgeführt, welches eigens für diesen experimentellen Aufbau geschrieben wurde. Das erste Oszilloskop (TDS 220) dient dazu, das Plasma- und Lumineszenzsignal gemeinsam auf einer groben Zeitskala aufzunehmen, wodurch sich der zeitliche Abstand der beiden Signale bestimmen läßt. Abbildung 4.5 zeigt die zeitliche Differenz zwischen Kollaps und Lumineszenzleuchten bei einem Druck von $P_0 = 1.3$ bar und einer Laserenergie von $E_L = 8$ mJ innerhalb der Küvette.

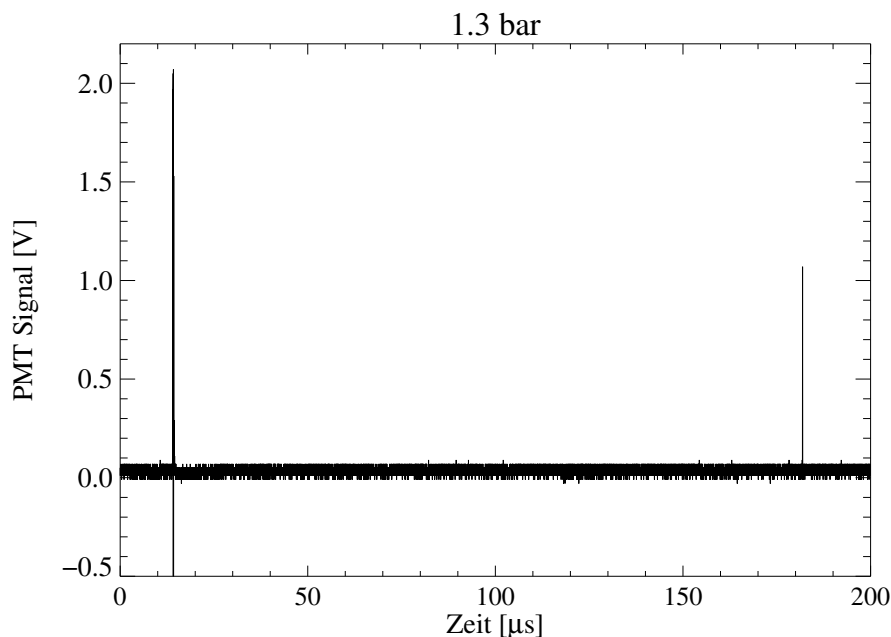


Abbildung 4.5: Photomultiplier-Signal des Plasma- und Lumineszenzleuchtens.

Da das Lumineszenzleuchten unmittelbar im Kollaps geschieht, entspricht dieser Ab-

stand gerade der zeitlichen Differenz der Stoßwellen, die beim optischen Durchbruch und beim Kollaps der Blase erzeugt werden. Dieser Zusammenhang bestätigt sich beim Vergleich der zeitlichen Differenz der Lichtsignale und der akustischen Signale, welche durch einen Piezo-Schallwandler registriert werden. Die beim Plasmasignal auftretende negative Spitze in Abbildung 4.5 ist eine Folge der Übersteuerung des Photomultipliers durch die große Intensität des Plasmaleuchtens.

Das zweite Oszilloskop dient zur Aufnahme des Lumineszenzsignals in hoher zeitlicher Auflösung. Dabei wird ein verzögerter Trigger nach dem Plasmaleuchten aktiviert, der dann auf das nachfolgende Lumineszenzsignal wartet. Die Verzögerungszeit muß lang genug sein, damit der Trigger nicht durch das abklingende Plasmasignal ausgelöst wird. Sie darf allerdings die Zeitdifferenz zwischen Plasmasignal und Lumineszenzsignal nicht überschreiten, da sonst das Lumineszenzsignal nicht registriert werden kann. Für unsere Messungen wurde eine Verzögerungszeit von $\sim 20 \mu\text{s}$ verwendet.

Das Lumineszenzsignal wird nicht ganz korrekt auf dem Oszilloskop wiedergegeben, weil die Kombination aus Photomultiplier, Kabel und Oszilloskop einen Filter für das eigentliche Signal darstellt. Eine genauere Form des Lumineszenzpulses erhält man durch die Entfaltung des Signals mit der Impulsantwort des Systems². Zur Bestimmung der Impulsantwort wurde ein Laserpuls mit einer Pulslänge von 75 fs auf die Apparatur geschickt. Das registrierte Signal ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Es kann als Impulsantwort angesehen werden, da der Laserpuls im Vergleich zur Länge des gemessenen Signals von einigen Nanosekunden näherungsweise einem Delta-Puls entspricht.

In Abbildung 4.7 sind sowohl das entfaltete als auch das nicht entfaltete Lumineszenzsignal einer kollabierenden Blase in Wasser dargestellt. Wie man sieht, ist das entfaltete Signal etwas schmaler und höher als die unkorrigierte Version. Der Lumineszenzblitz ist also kurz genug, um durch die Elektronik merklich verzerrt zu werden. Für die folgenden Betrachtungen wurde aus diesem Grund immer das entfaltete Signal verwendet.

4.4.1 Bestimmung der Photonenzahl

Zur Bestimmung der Anzahl emittierter Photonen wird davon ausgegangen, daß das Licht beim Kollaps gleichmäßig in alle Richtungen abgestrahlt wird. Reflektionen an den Quarzfenstern und Absorptionen in der Flüssigkeit werden dabei nicht berücksichtigt. Unterhalb von 200 nm kann durch die Absorption des Wassers keine Strahlung mehr registriert

²siehe Anhang

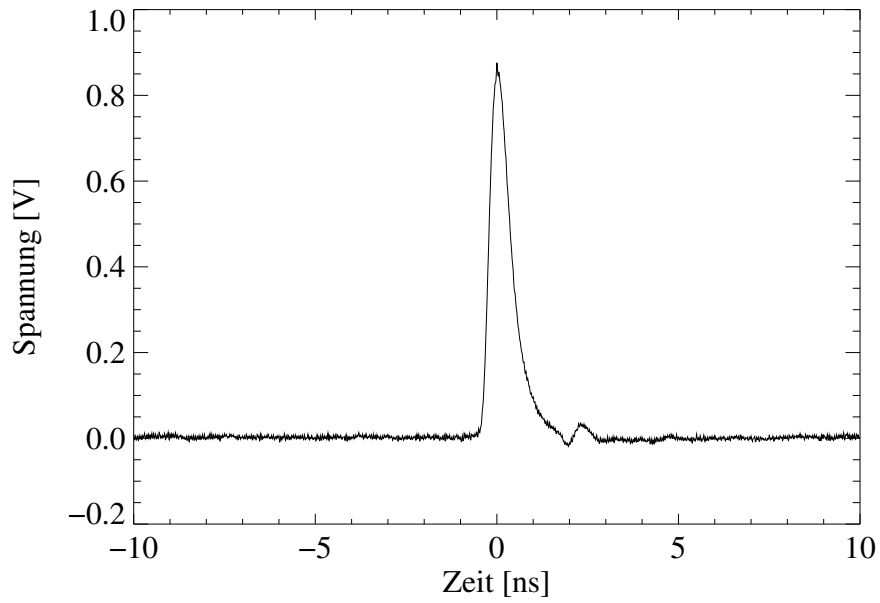


Abbildung 4.6: Impulsantwort des Photomultiplier-Oszilloskop-Systems.

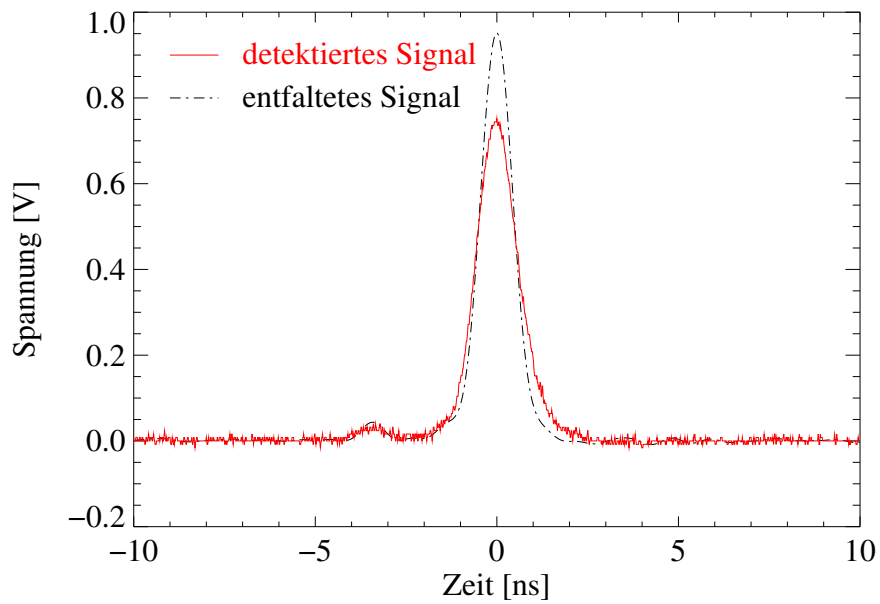


Abbildung 4.7: Entfaltetes und nicht entfaltetes Lumineszenzsignal.

werden, so daß dieser Bereich des Spektrums nicht mit in die Rechnung einfließt. Die Abschätzung stellt demnach eine untere Grenze der emittierten Lichtenergie dar.

Der Photomultiplier erzeugt ein Spannungssignal, welches proportional zur zeitabhängigen Leistung der einfallenden Strahlung ist. Der Konvertierungsfaktor hängt dabei von der Wellenlänge des Lichts und der Charakteristik des Photomultipliers ab. Da die spektrale Komposition der Blasenlumineszenz nicht genau bekannt ist, wurde ein von der Wellenlänge unabhängiger Konvertierungsfaktor angenommen. Die maximale Verstärkung des Photomultipliers liegt ungefähr bei einer Wellenlänge von 400 nm. Durch die Wahl des zugehörigen Konvertierungsfaktors ist sichergestellt, daß der errechnete Wert eine Abschätzung für die untere Grenze der einfallenden Leistung darstellt.

Die Energie eines einzelnen Lumineszenzblitzes errechnet sich durch Integration des Leistungssignals, wobei noch ein Faktor zur Berücksichtigung des Verhältnisses von bestrahlter Fläche und Detektorfläche ($\gamma = 1260$) einbezogen werden muß. Die bestrahlte Fläche ist bei dieser Rechnung eine Kugeloberfläche, deren Radius dem Abstand zwischen Blase und Detektor entspricht.

Die Anzahl der Photonen ergibt sich aus dem Verhältnis der Gesamtenergie zur Energie eines Photons. Letztere läßt sich mit der Planckschen Beziehung errechnen:

$$W_{phot} = hf \quad , \quad (4.1)$$

wobei h das Plancksche Wirkungsquantum und f die Frequenz der Strahlung ist. Analog zur Wahl des Konvertierungsfaktors wurde zur Berechnung der Photonenzahl eine mittlere Wellenlänge von 400 nm bzw. eine Frequenz von $7.5 \cdot 10^{14}$ Hz der registrierten Strahlung angenommen.

4.5 CCD-Aufnahme lasergenerierter Blasen und des Plasmas

Zur Aufnahme der Plasma- und Blasengeometrie wird eine CCD-Kamera (Photometrics, Sensys) mit 768×500 Pixeln und einer Pixelgröße von $9 \mu\text{m}$ verwendet. Die Steuerung der CCD-Kamera erfolgt durch ein kommerzielles Programm (PMIS 3.5). Als bildverarbeitender Rechner wird ein Pentium-PC (166 MHz) verwendet. Die Optik der Kamera besteht aus zwei Nikkon Objektiven mit 180 bzw. 80 mm Brennweite.

Der Plasmapuls wurde bei einer Repetitionsrate des Lasers von 1 Hz und einer Belichtungszeit der Kamera von 900 ms aufgenommen.

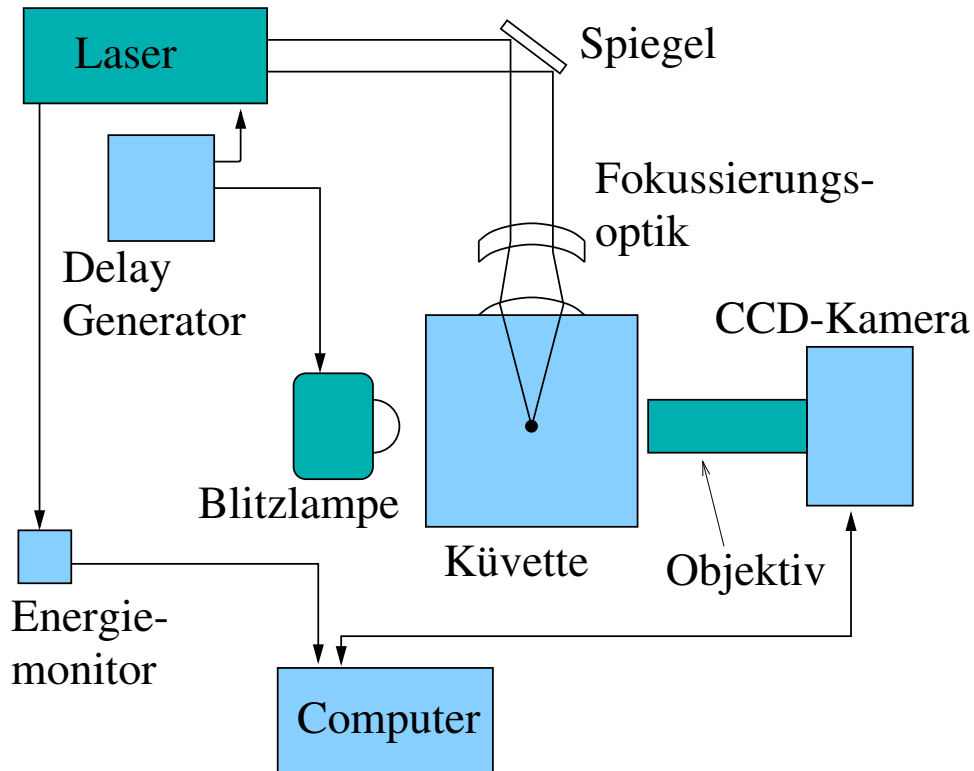


Abbildung 4.8: Experimenteller Aufbau zur Aufnahme lasergenerierter Blasen.

Für die Aufnahme der Blasen wurde zur Belichtung eine Blitzlampe mit einer Pulsdauer von $\tau = 1 \mu\text{s}$ verwendet. Der Beleuchtungszeitpunkt wurde dabei über einen Delay Generator (Stanford Research Systems, Model DG535) an die Lichtemission des Lasers und dadurch auch an die Blasenentstehung gekoppelt. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 4.8 dargestellt.

Kapitel 5

Blasenlumineszenz in Abhängigkeit des Gasgehalts

5.1 Der Einfluß von Edelgas auf SBSL

Experimente bei der akustischen Einzelblasenlumineszenz (SBSL) haben gezeigt, daß die Lichtemission sehr stark von dem in der Flüssigkeit gelösten Edelgasanteil abhängt [7]. Besonders auffällig ist, daß in Flüssigkeiten in denen kein Edelgas gelöst ist, auch keine stabile Lumineszenz über lange Zeit beobachtet werden kann.

In der sogenannten „argon rectification“ Theorie für stabile SBSL, werden die Einflüsse der chemischen Vorgänge innerhalb der Blase auf die Blasendynamik betrachtet [49]. Die Theorie geht davon aus, daß durch die hohen Drücke und Temperaturen beim Kollaps Stickstoff, Sauerstoff und Wasserdampf dissoziieren. Die dadurch gebildeten Radikale reagieren miteinander zu wasserlöslichen Gasen wie z.B. NO, OH und NH. Diese Reaktionsprodukte diffundieren in die umgebende Flüssigkeit und erzeugen unter anderem H₂O₂, HNO₂ und HNO₃. Aufgrund der guten Wasserlöslichkeit ist die Rückdiffusion der Reaktionsprodukte sehr gering.

Über viele Schwingungszyklen verliert die Blase demnach mehr und mehr an Stickstoff und Sauerstoff. Der geringe Anteil, der während der Expansionsphase aus der Flüssigkeit in die Blase diffundiert, wird beim darauffolgenden Kollaps dissoziiert und in Form von Reaktionsprodukten wieder in die umgebende Flüssigkeit abgegeben.

Im Unterschied zu N₂ und O₂ reagieren Edelgase selbst bei hohen Temperaturen nicht zu wasserlöslichen Substanzen. Ist also Luft in der Flüssigkeit gelöst, so verbleibt nach einiger Zeit nur das Edelgas (hauptsächlich Argon) innerhalb der Blase. Die so entstehenden

Edelgasblasen können periodisch über längere Zeiten kollabieren und wieder aufschwingen, sofern die Kriterien der Diffusionsstabilität für akustisch angeregte Einzelblasen erfüllt sind.

In einem anderen Modell von Garcia *et. al* wird die Bedeutung der Edelgase für die Blasenlumineszenz den langen Lebensdauern metastabiler Zustände der Edelgase zugeschrieben [58]. Ihrer Theorie zufolge beruht der lichterzeugende Mechanismus auf dem flexoelektrischen Effekt, also der Entstehung eines elektrischen Feldes aufgrund eines Druckgradienten. Einige durch thermische Ionisation erzeugte Initialelektronen werden durch das elektrische Feld beschleunigt und regen die Edelgasatome durch Stöße mit ihnen an. Die Lichtemission erfolgt dieser Theorie nach aufgrund von Übergängen zwischen hochenergetischen und metastabilen Zuständen der Edelgase.

5.2 Edelgaseinfluß bei SCBL

Die Frage nach der Bedeutung des Edelgases für den lichterzeugenden Mechanismus kann eventuell durch die Untersuchung an transienten Blasen geklärt werden.

Sollte der Edelgasgehalt in der Flüssigkeit eine direkte Voraussetzung für die Blasenlumineszenz sein, wie es von Garcia *et. al* postuliert wird [64], so dürfte in entgastem oder nur mit Stickstoff gesättigtem Wasser auch bei lasererzeugten Blasen kein Leuchten im Kollaps auftreten, sofern der lichterzeugende Mechanismus bei SBSL und SCBL der gleiche ist.

Um dies zu überprüfen, wurde die Lumineszenz lasererzeugter Blasen in destilliertem Wasser mit unterschiedlichem Gasgehalt gemessen. Wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, wurden drei verschiedenen Wasserproben hergestellt:

1. Entgastes Wasser, Gasdruck: $P_{Luft} \sim 0.024$ bar
2. Wasser mit gelöster Luft, Gasdruck: $P_{Luft} = 1$ bar
3. Wasser mit gelöstem Argon, Gasdruck: $P_{Argon} = 1$ bar

Die Messungen wurden bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 1.0$ bar und $P_0 = 1.8$ bar durchgeführt. Abbildungen 5.1 und 5.2 zeigen die Anzahl der im Kollaps der Blase registrierten Photonen in Abhängigkeit von dem maximalen Blasenradius R_{max} .

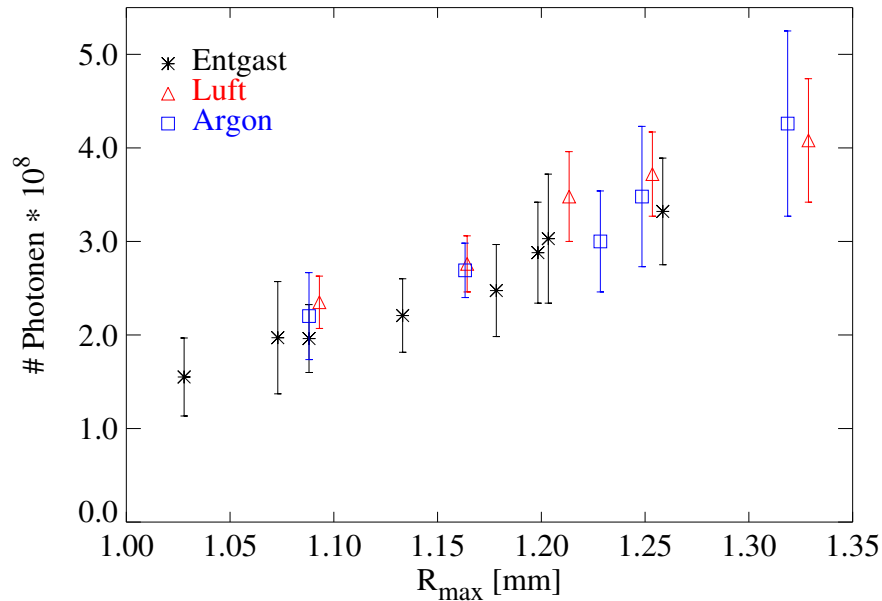


Abbildung 5.1: Anzahl der Photonen gegen die Größe des Blasenradius bei verschiedenen Gaskonzentrationen und 1.0 bar Umgebungsdruck.

Wie in den Abbildungen 5.1 und 5.2 zu sehen ist, besteht keine Abhängigkeit zwischen der Lumineszenz und der im Wasser gelösten Gaskonzentration innerhalb der Fehlergrenzen. Sofern Gas in der Flüssigkeit gelöst ist, scheint es bei der Bildung der Blase und insbesondere bei der Lumineszenz keine oder nur eine untergeordnete Rolle zu spielen.

Wenn man davon ausgeht, daß der lichterzeugende Mechanismus bei SBSL und SCBL der gleiche ist, läßt sich daraus schließen, daß Edelgase nicht direkt für die Blasenlumineszenz verantwortlich sind, wie es nach der Theorie von Garcia *et al.* zu erwarten wäre.

Die Tatsache, daß keine meßbare Abhängigkeit der Lumineszenz lasererzeugter Blasen vom gelösten Gasgehalt festgestellt werden konnte, liegt vermutlich daran, daß bei transienten Blasen nicht genug Zeit für die Akkumulation von Edelgas innerhalb der Blase vorhanden ist. Im Gegensatz zur akustischen Anregung, bei der über viele Schwingungszyklen Edelgas innerhalb der Blase angereichert werden kann, findet die Lichtemission bei transienten Blasen nur während des ersten Kollapses statt. Es ist daher anzunehmen, daß die Blase zu diesem Zeitpunkt im wesentlichen aus Wasserdampf und Dissoziationsprodukten des Wassers besteht, welche beim optischen Durchbruch erzeugt werden. Der Massenanteil des zu Beginn im Fokusvolumen gelösten Gases bei 1 bar Umgebungsdruck

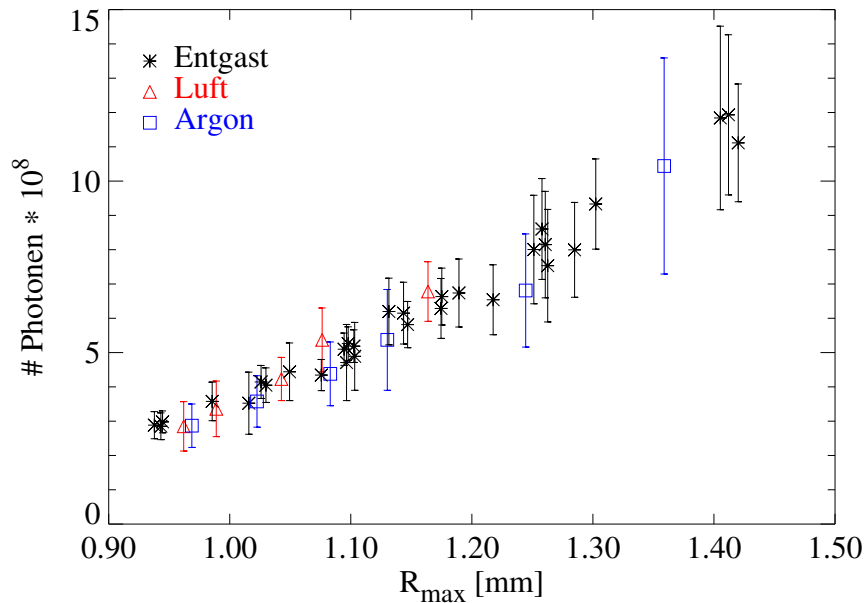


Abbildung 5.2: Anzahl der Photonen gegen die Größe des Blasenradius bei verschiedenen Gaskonzentrationen und 1.8 bar Umgebungsdruck.

ist um ungefähr 5 Größenordnungen geringer als der des Wassers. Die während des Zyklus bis zum ersten Kollaps in die Blase eindiffundierende Gasmenge ist ebenfalls sehr gering¹ und scheint daher keinen signifikanten Effekt auf die Lichtemission auszuüben.

5.3 Dissoziationsprodukte beim optischen Durchbruch

Bei der Erzeugung von Kavitationsblasen in entgastem Wasser ist es naheliegend, daß sich im Inneren der gebildeten Blase nur Wasserdampf und dessen Dissoziationsprodukte wie z.B. Wasserstoff und Sauerstoff befinden. Der Einfluß dieser Dissoziationsprodukte auf die Blasenlumineszenz ist zur Zeit noch nicht geklärt. Eine einfache Knallgasprobe sollte ermitteln, ob sich Wasserstoff innerhalb der Blase nachweisen läßt. Zu diesem Zweck wurden Blasen mit einer Repetitionsrate von 20 Hz und hohen Pulsenergien (~ 400 mJ) in der Küvette erzeugt. Die aufsteigenden Blasen wurden über einen Zeitraum von 3 Minuten in einem Plastikröhrchen eingefangen und danach durch eine Kanüle entnom-

¹Der Massenanteil des Gases aufgrund von einwärts gerichteter Diffusion ist bei den hier betrachteten Blasen mindestens um 3 Größenordnungen geringer als der des Wassers [65].

men. Die anschließende Knallgasprobe verlief positiv. Da es sich hierbei um eine rein qualitative Messung handelt, bleibt eine Abschätzung über den Einfluß der Dissoziationsprodukte auf die Lumineszenz schwierig. Genauere Messungen ließen sich evtl. mit einem Gaschromatographen durchführen, wobei die Löslichkeit der Dissoziationsprodukte in Wasser berücksichtigt werden muß.

Kapitel 6

Abhängigkeit der Blasenlumineszenz vom Umgebungsdruck

6.1 Auswirkungen des statischen Drucks bei SBSL

Für akustisch angeregte Einzelblasen ist die Lichtemission vom Umgebungsdruck P_0 abhängig. Bei konstanter Anregungsamplitude führt eine Druckerniedrigung zu höherer Lumineszenz [66]. Unterhalb einer kritischen Schwelle für den Druck werden die Blasen jedoch instabil und können nicht mehr zu periodischer Lichtemission angeregt werden. Die Langzeitstabilität einer SBSL-Blase wird durch drei Voraussetzungen bestimmt:

1. Diffusionsstabilität der Blase
2. Formstabilität der Blase
3. stabile Position der Blase innerhalb der Küvette

Für zu geringe Drücke entweicht die Blase aus dem Schwingungsbauch der akustischen Anregung, so daß dieser Parameterbereich mit SBSL-Blasen nicht abgedeckt werden kann.

6.2 Auswirkungen des statischen Drucks bei SCBL

Um den Einfluß des Umgebungsdrucks P_0 auf die Lumineszenz laserinduzierter Blasen zu messen, wurde in mehreren Meßreihen für verschiedene Laserenergien die Lichtemission bei Drücken zwischen 0.8 und 5.0 bar aufgenommen. Abbildung 6.1 zeigt die Anzahl der

im Kollaps emittierten Photonen als Funktion der Kollapszeit T_C für fünf verschiedene Drücke von 0.8 bis 2.8 bar. Wie in Abschnitt 4.4 beschrieben, ergibt sich T_C aus der Hälfte der Zeitdauer zwischen Plasma und Lumineszenzleuchten.

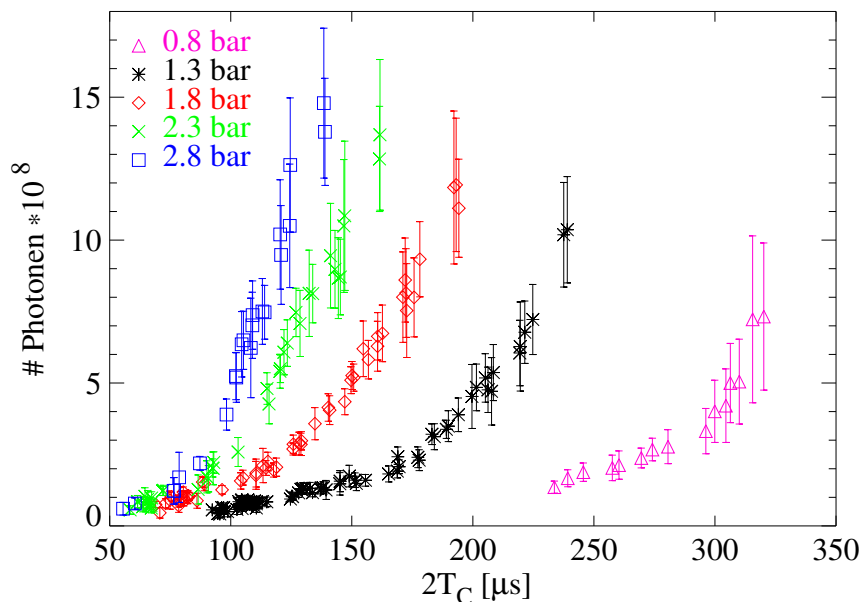


Abbildung 6.1: Emittierte Photonenzahl in Abhängigkeit der Kollapszeit der Blase für verschiedene Drücke.

Generell läßt sich bei allen Umgebungsdrücken P_0 ein Anstieg der Lichtemission für größere Kollapszeiten beobachten. Die Kurven verlaufen um so steiler, je höher der eingestellte Druck ist. Betrachtet man Blasen mit gleicher Kollapszeit, so ist die Lumineszenz bei höheren Drücken deutlich stärker. Beispielsweise ist für $T_C = 100 \mu\text{s}$ die Lichtemission bei $P_0 = 2.3 \text{ bar}$ vier mal so hoch wie bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 1.3 \text{ bar}$. Der Unterschied in der Lichtemission bei verschiedenen Drücken nimmt für steigende Kollapszeiten weiter zu.

Abbildung 6.2 zeigt sowohl das Plasma- als auch daß Lumineszenzleuchten bei einer Laserenergie von $E_L = 11.2 \text{ mJ}$ und Umgebungsdrücken von 0.8, 1.8, 2.3 und 2.8 bar. Der Abstand der beiden Pulse und damit auch die Kollapszeit sinkt für wachsende P_0 . Es geht daraus hervor, daß bei einer Erhöhung des Umgebungsdrucks größere Laserenergie erforderlich ist, um Blasen mit gleicher Kollapszeit zu erzeugen.

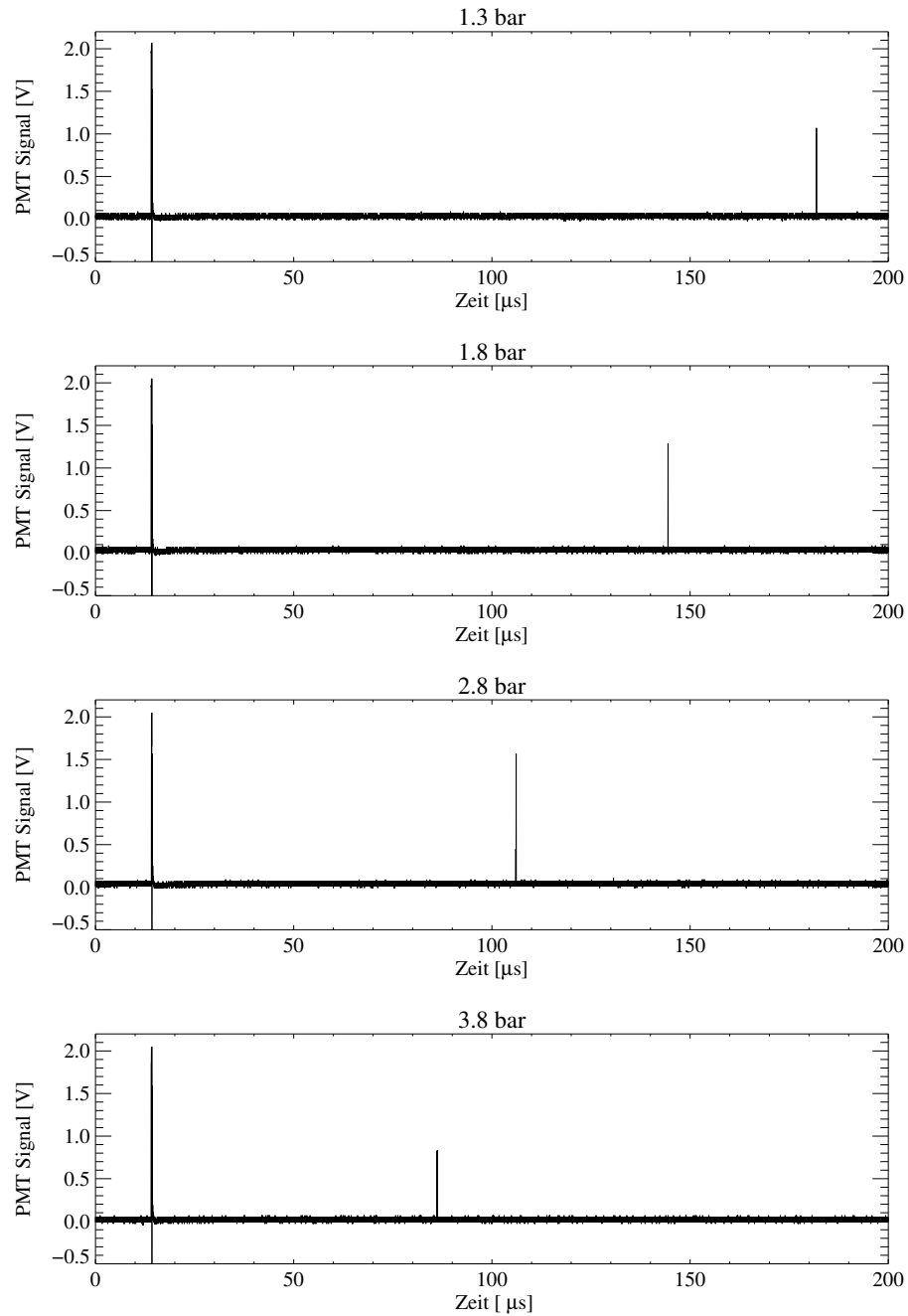


Abbildung 6.2: Plasma- und Lumineszenzleuchten bei einer Laserenergie von $E_L = 11.2$ mJ und verschiedenen Umgebungsdrücken. Der zeitliche Abstand der Signale entspricht der doppelten Blaskollapszeit.

Nach Rayleigh ist die Kollapszeit mit der Blasengröße über Gleichung (3.16) verknüpft:

$$R_{max} = 1.09 \sqrt{\frac{P_0 - P_D}{\rho}} \cdot T_C \quad . \quad (6.1)$$

Diese Beziehung wurde für zwei verschiedene Drücke experimentell überprüft. In den Abbildungen 6.3 und 6.4 sind Aufnahmen von lasererzeugten Blasen bei einer Laserenergie von $E_L = 6.7$ mJ und einem Umgebungsdruck von 1.3 bzw. 3.3 bar zu verschiedenen Zeiten nach der Blasenentstehung dargestellt.

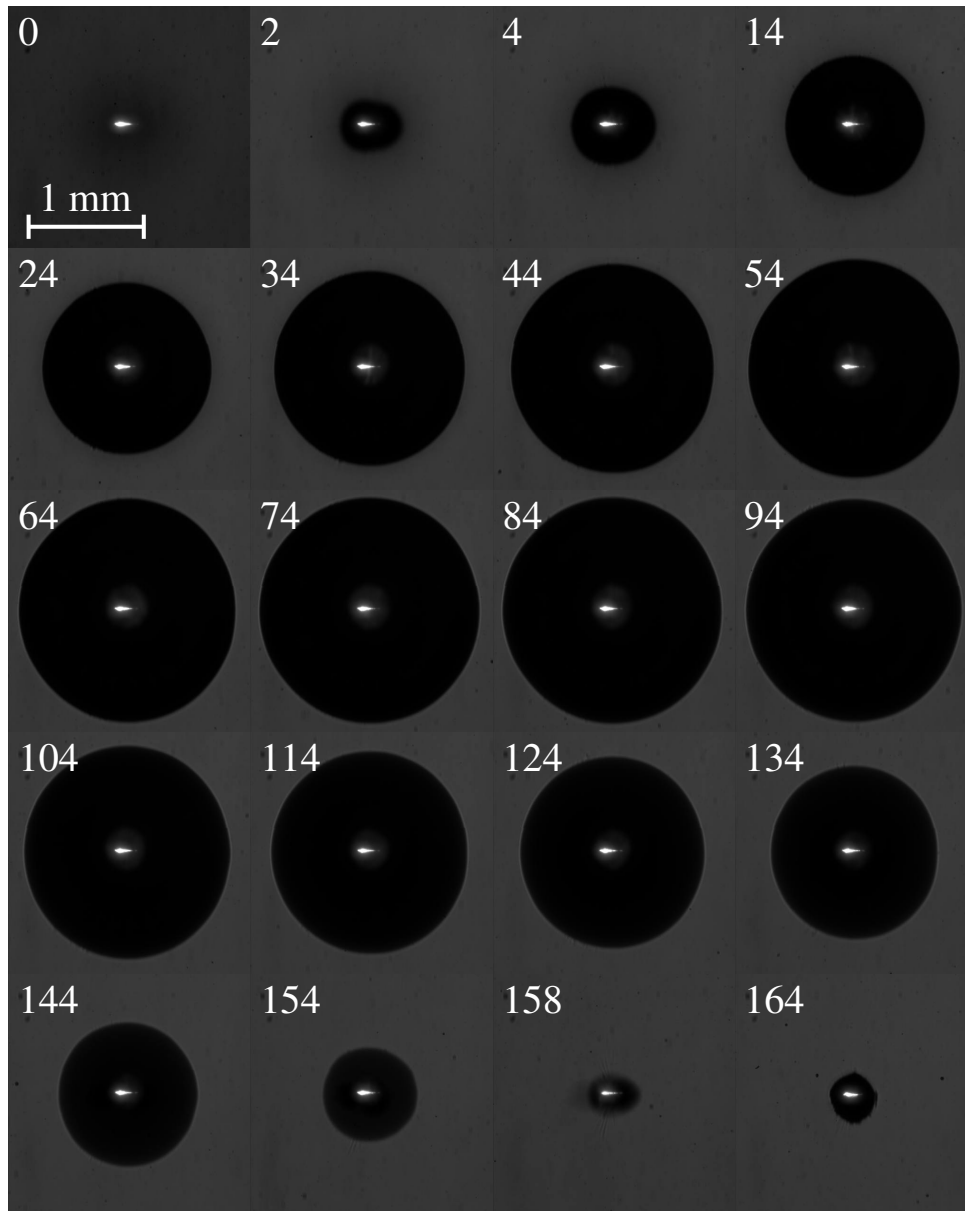


Abbildung 6.3: CCD-Aufnahmen lasererzeugter Blasen bei einer Laserenergie von $E_L = 6.7$ mJ und einem Umgebungsdruck von $P_0 = 1.3$ bar. Die angegebenen Zahlenwerte entsprechen der Zeit nach dem optischen Durchbruch in Mikrosekunden.

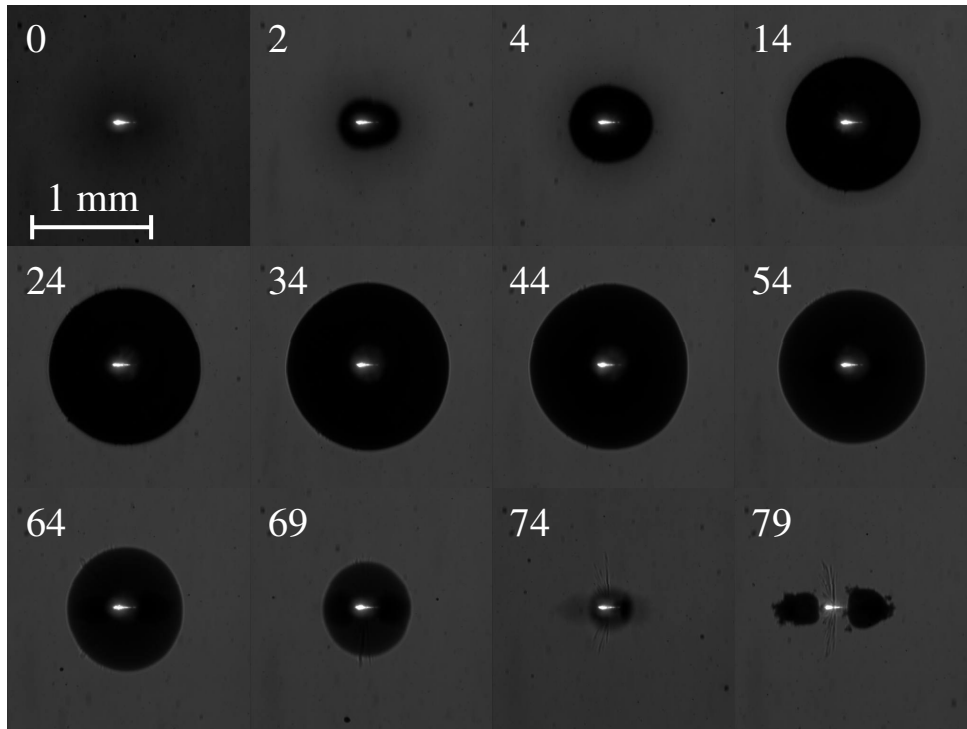


Abbildung 6.4: CCD-Aufnahmen lasererzeugter Blasen bei einer Laserenergie von $E_L = 6.7$ mJ und einem Umgebungsdruck von $P_0 = 3.3$ bar.

Die aus den Aufnahmen ermittelte Beziehung zwischen Maximalradius und Kollapszeit der Blase und die aus Gleichung (6.1) berechneten Werte sind in Tabelle 6.1 aufgeführt. Für beide Drücke stimmen experimentelle und theoretische Daten relativ gut überein. Im weiteren wird deshalb zur Berechnung der maximalen Blasengröße aus der Kollapszeit die Rayleighsche Beziehung für den Kollaps einer sphärischen Blase (Gleichung 6.1) verwendet.

Auffallend ist, daß die Blase beim Wiederaufschwingen nach dem Kollaps häufig ihre sphärische Geometrie verliert. Besonders bei hohen Drücken konnte, wie in Abbildung 6.4

P_0 [bar]	R_{max} [mm]	$T_{C,exp.}$ [μs]	$T_{C,theo.}$ [μs]
1.3	0.95	~ 79	77
3.3	0.70	~ 37	35

Tabelle 6.1: Vergleich der beobachteten Kollapszeit $T_{C,exp.}$ mit der aus dem Radius der Blase berechneten Kollapszeit $T_{C,theo.}$.

dargestellt, vermehrt eine Aufspaltung der Blase in zwei kleinere Blasen beim erneuten Aufschwimmen beobachtet werden.

Abbildung 6.5 zeigt die Anzahl emittierter Photonen als Funktion des maximalen Blasenradius. Wie schon bei der Auftragung gegen die Kollapszeit (Abbildung 6.1), läßt sich

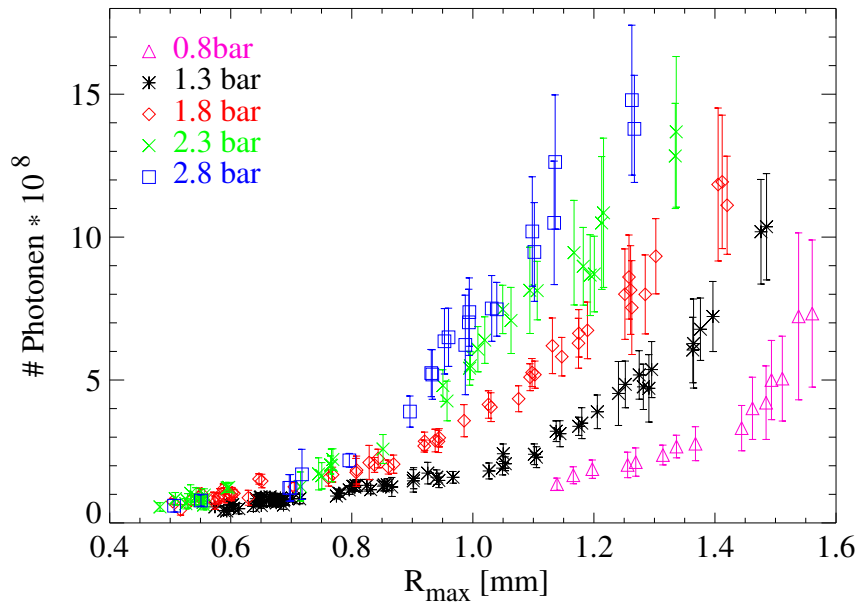


Abbildung 6.5: Anzahl der emittierten Photonen gegen die Größe des Blasenradius bei verschiedenen Drücken.

auch hier eine Druckabhängigkeit der Lumineszenz beobachten. Aufgrund des Wurzelterms in Gleichung (6.1) ist diese Beziehung beim Vergleich der Blasenradien jedoch nicht so stark ausgeprägt. Für kleine Blasen ($R_{max} \sim 0.5$ mm) ist kaum noch ein Unterschied in der Anzahl emittierter Photonen festzustellen. Größere Blasen hingegen zeigen eine zunehmende Druckabhängigkeit der Lumineszenz. Zum Beispiel steigt für einen Blasenradius von $R_{max} = 1.3$ mm die Lichtemission bei einer Druckerhöhung von 0.8 auf 2.8 bar fast um eine Größenordnung.

Diese Beziehung ist zu erwarten, wenn man bedenkt, daß Blasen der gleichen Größe bei hohen Drücken mehr Energie gespeichert haben als bei geringen Drücken. Aus den Daten läßt sich jedoch schließen, daß die Blasen auch bei höheren Drücken stabil genug sind, um während des Kollapses mehr Licht zu emittieren.

Generell läßt sich bei allen Drücken eine Steigerung der Lumineszenz mit zunehmender

Blasengröße beobachten. Geht man von einem thermischen Prozeß für die Lichtemission aus, so gibt es im wesentlichen zwei Faktoren, welche die Helligkeit der Lumineszenz beeinflussen können.

1. Die Temperatur im Inneren der Blase
2. Die Anzahl der leuchtenden Moleküle

Bei der Verwendung höherer Laserenergien steigt die Größe des Plasmavolumens und damit auch die Anzahl der beim optischen Durchbruch verdampften Moleküle. Es läßt sich daher vermuten, daß auch die Anzahl der am Kollapsleuchten beteiligten Moleküle größer ist und somit wenigstens die zweite Bedingung für eine Steigerung der Lumineszenz erfüllt wird.

Abbildung 6.6 zeigt die Anzahl der emittierten Photonen in Abhängigkeit der Laserenergie. Es ist zu sehen, daß selbst bei der Verwendung gleicher Laserenergien immer noch eine Abhängigkeit der Anzahl emittierter Photonen von P_0 existiert.

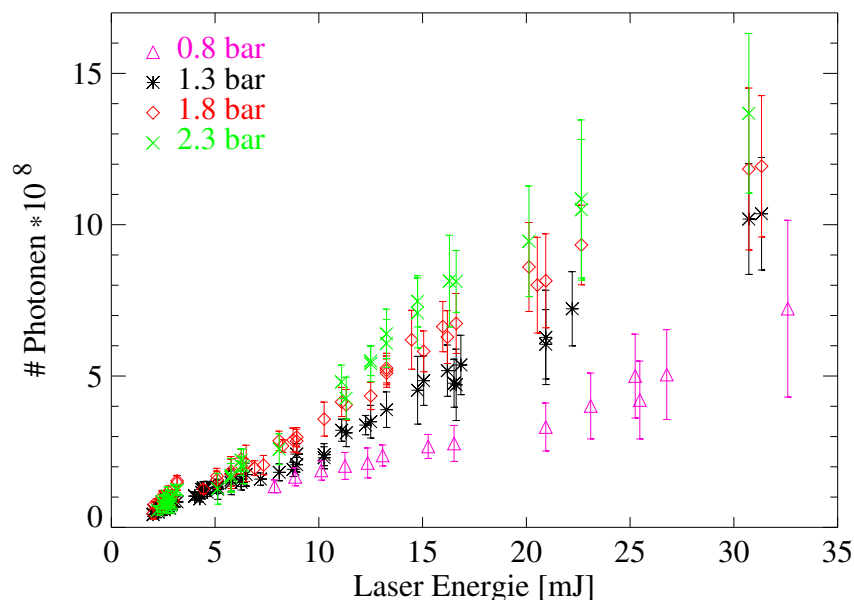


Abbildung 6.6: Anzahl der emittierten Photonen in Abhängigkeit der Laserenergie.

Besonders für hohe Laserenergien, ist die Lichtausbeute bei großem Umgebungsdruck besser als bei geringem. Dieser Anstieg läßt sich jedoch nicht monoton über den gesamten Druckbereich verfolgen. Stattdessen existiert ein energieabhängiger optimaler Umgebungsdruck, bei dem die Lumineszenz ein Maximum annimmt. Abbildung 6.7 zeigt die Lichtemission in Abhängigkeit des Drucks für drei verschiedene Laserenergien.

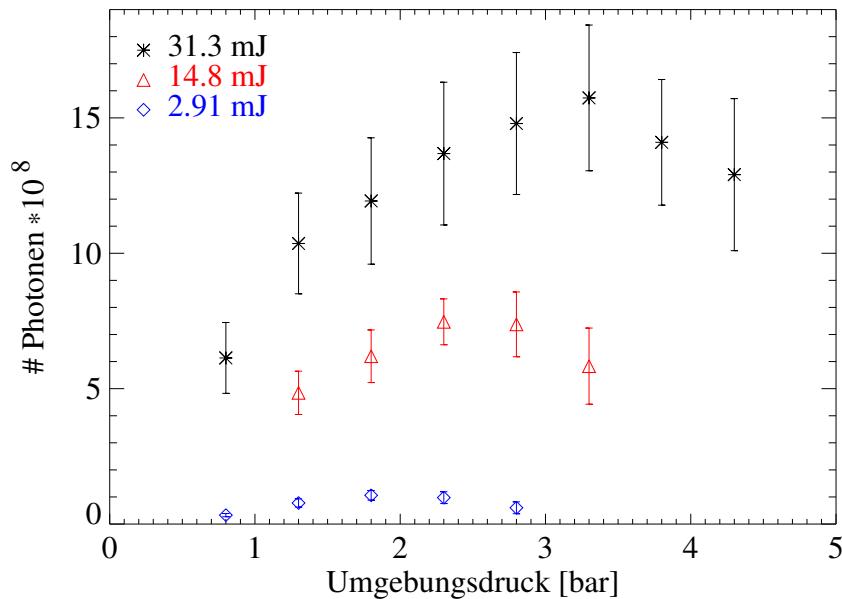


Abbildung 6.7: Anzahl der emittierten Photonen in Abhängigkeit des Drucks für drei verschiedene Laserenergien.

Bei einer Laserenergie von 2.91 mJ befindet sich der optimale Druck für maximale Lichtemission ungefähr bei 2 bar. Mit steigender Laserenergie erhöht sich zum einen die Gesamtintensität der Lumineszenz und zum anderen der optimale Druck P_{opt} . Bei einer Laserenergie von 14.8 mJ liegt P_{opt} zwischen 2 und 3 bar und bei 31.3 mJ bereits oberhalb von 3 bar.

Die Begrenzung des optimalen Drucks nach oben erfolgt wahrscheinlich aufgrund von Instabilitäten der Blase. Es läßt sich vermuten, daß im Bereich hoher Drücke die Geometrie der Blase im Kollaps stark durch das kegelförmige Plasmavolumen bei der Entstehung beeinflusst wird. Die Blase bekommt dadurch eine asphärische Form, was eine schlechtere Energiefokussierung und geringere Lichtemission zur Folge hat, wie es unter anderem beim Kollaps von Blasen in der Nähe von Grenzflächen zu beobachten ist [29].

E_L (mJ)	P_0 (bar)	$T_{1/2}$ (ns)	$N_{Phot} \cdot 10^8$
2.91	0.8	6.67 ± 0.23	0.33 ± 0.06
2.91	1.3	6.53 ± 0.31	0.91 ± 0.21
2.91	1.8	6.62 ± 0.23	1.07 ± 0.18
2.91	2.3	7.60 ± 0.83	0.85 ± 0.13
14.8	1.3	10.36 ± 1.00	4.85 ± 0.81
14.8	1.8	9.59 ± 0.76	6.19 ± 1.00
14.8	2.3	10.02 ± 0.50	7.46 ± 0.85
14.8	2.8	10.36 ± 0.97	7.37 ± 0.87
14.8	3.3	12.10 ± 2.38	5.82 ± 1.40
31.3	1.3	12.7 ± 1.4	10.4 ± 2.1
31.3	1.8	12.5 ± 1.4	11.7 ± 2.7
31.3	2.3	12.7 ± 1.4	13.8 ± 2.8
31.3	2.8	12.7 ± 1.2	14.6 ± 3.3
31.3	3.3	12.6 ± 0.9	15.6 ± 2.3

Tabelle 6.2: Puls-Charakteristiken: Halbwertsbreite $T_{1/2}$ und die Anzahl der emittierten Photonen N_{Phot} für verschiedene Laserenergien E_L und Drücke P_0 .

Die vermutete Asphärizität macht sich auch in den Halbwertsbreiten der Lumineszenzpulse bemerkbar. Je asphärischer sich die Blase im Kollaps verhält, desto ungleichmäßiger erfolgt die Aufheizung der Blase. Diese inhomogene Aufheizung führt zu einer Verbreiterung der Pulse. Tabelle 6.2 zeigt die Halbwertsbreiten der Lumineszenzpulse für verschiedene Laserenergien und Drücke. Bis zu einer gewissen Druckschwelle P_{th} bleibt für gleiche Laserenergien die Halbwertsbreite der Pulse nahezu konstant. Oberhalb dieser Schwelle werden die Pulse deutlich länger und die Gesamtintensität der Lumineszenz nimmt ab. Es konnten für diesen Fall gehäuft Doppelpulse beobachtet werden, wie sie in Abbildung 6.8 zu sehen sind.

Vermutlich liegt in diesem Fall eine so asphärische Geometrie vor, daß sich die Blase kurz vor dem Kollaps teilt. Es entstehen dadurch zwei lichtemittierende Volumina, die zeitlich um einige Nanosekunden getrennt sein können. Die Entstehung zweier getrennter Blasen konnte mit Aufnahmen der CCD-Kamera (Abbildung 6.4) verifiziert werden. Allerdings geht aus diesen Daten aufgrund der limitierten zeitlichen Auflösung nicht hervor, ob die Aufspaltung der Blase vor oder nach dem Kollaps geschieht. Bemerkenswert ist in jedem Fall der geringe zeitliche Abstand (üblicherweise ≤ 20 ns) zwischen den beiden

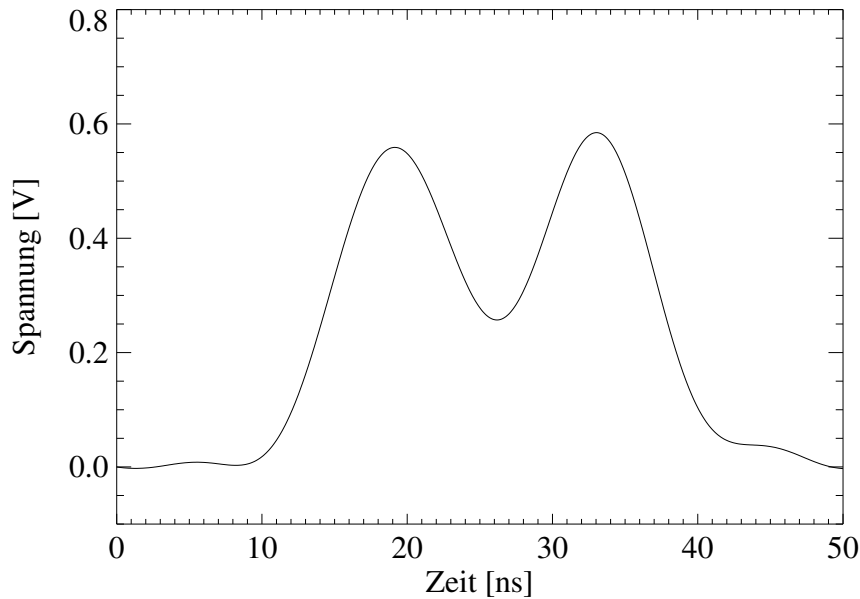


Abbildung 6.8: Doppelpuls einer kollabierenden Blase bei einer Laserenergie von 12.5 mJ und 4 bar Umgebungsdruck.

Lichtpulsen. Dies läßt entweder auf eine sehr späte Teilung der Blase in der letzten Phase des Kollapses oder möglicherweise auf eine Synchronisation zwischen den beiden Blasen schließen.

Die Schwelle für den Druck P_{th} nimmt mit steigender Laserenergie zu. Sie entspricht ungefähr dem optimalen Druck P_{opt} bei der Betrachtung der Lumineszenz in Abhängigkeit von P_0 aus Abbildung 6.7.

Der beobachtete Anstieg der Lumineszenz mit steigendem Umgebungsdruck unterhalb von P_{opt} beruht auf zwei verschiedenen Effekten.

Zum einen hängt die Konversion von Laserenergie E_L in mechanische Blasenenergie

$$E_{mech}(E_L) = \frac{4}{3}\pi(P_0 - P_D)R^3 \quad (6.2)$$

vom Umgebungsdruck P_0 ab.

Diese Beziehung ist in Abbildung 6.9 dargestellt, welche die mechanische Blasenenergie in Abhängigkeit der Laserenergie für verschiedene Drücke aufzeigt.

Für geringe Laserenergien besteht ein konstanter Konversionsfaktor K_{konst} von Laser- zu mechanischer Blasenenergie unabhängig vom jeweiligen Druck. Beim Übergang zu höheren

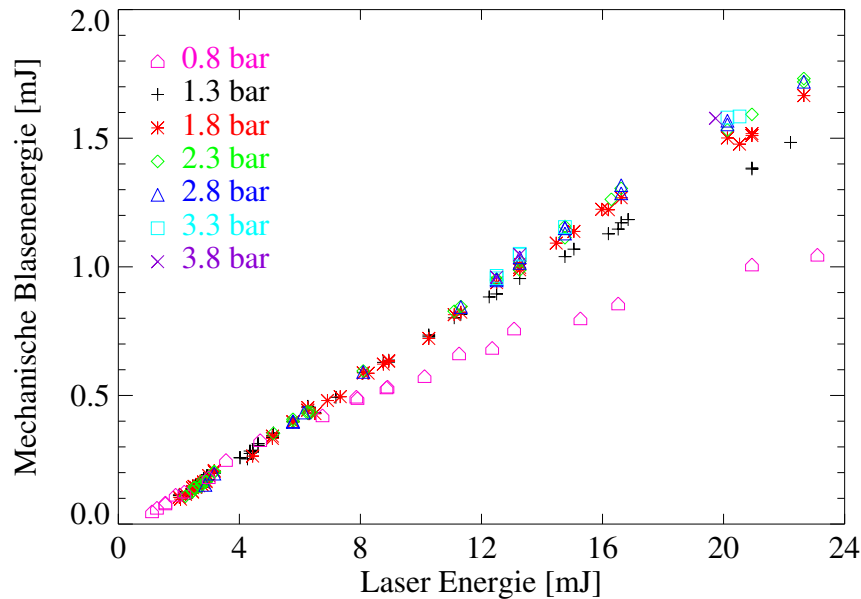


Abbildung 6.9: Konversion von Laserenergie in mechanische Blasenenergie in Abhängigkeit vom Druck.

Laserenergien hingegen existiert diese lineare Beziehung nicht mehr. Es läßt sich eine deutliche Abhängigkeit der mechanischen Blasenenergie vom Umgebungsdruck feststellen. Je kleiner P_0 ist, desto weiter bleibt der Konwertierungswert für steigende Laserenergien hinter K_{konst} zurück. Bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 1.3$ bar setzt die Abweichung von der linearen Beziehung beispielsweise bei einer Laserenergie von $E_L = 13$ mJ bzw. einer Blasengröße von $R_{max} = 1.17$ mm ein, während erste Abweichungen bei $P_0 = 0.8$ bar schon bei $E_L = 7$ mJ bzw. einer Blasengröße von $R_{max} = 1.08$ mm auftreten.

Der zweite Effekt beruht auf der Abhängigkeit der Lumineszenz vom Druck beim Vergleich von Blasen mit äquivalenter Blasenenergie. Diese Beziehung ist in Abbildung 6.10 dargestellt. Die Druckabhängigkeit ist in diesem Fall jedoch deutlich geringer als es bei der Betrachtung von Blasen bei gleicher Laserenergie der Fall war.

Die Umwandlung der Laserpulsenergie beim optischen Durchbruch wurde ausführlich von Vogel *et. al.* [67] untersucht. Der größte Anteil geht dabei in die Generierung von Stoßwellen und mechanische Energie der Blase. Ein geringerer Anteil ($\sim 5\%$) entfällt auf die Verdampfung der Flüssigkeit im Fokusbereich. Die Energie des Plasmaleuchtens ist nochmals um ca. vier Größenordnungen kleiner und kann daher vernachlässigt werden.

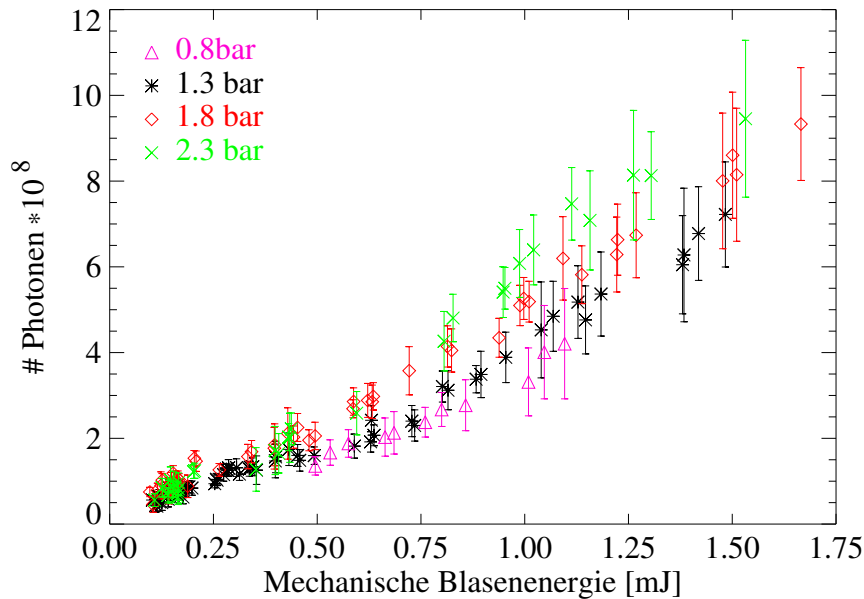


Abbildung 6.10: Anzahl der Photonen in Abhängigkeit der mechanischen Blasenenergie für verschiedene Drücke.

Aufgrund der geringen Kompressibilität der Flüssigkeit hat die Veränderung des Umgebungsdrucks kaum einen Einfluß auf die Anzahl der Wassermoleküle im Fokusvolumen. Es kann daher angenommen werden, daß der zur Verdampfung des Fokusvolumens benötigte Energieanteil zwar abhängig von der Laserenergie, jedoch unabhängig von P_0 ist. Im weiteren gibt es keinen Hinweis auf einen Einfluß des Umgebungsdrucks auf die Energie der emittierten Stoßwellen [68].

Es ist daher anzunehmen, daß die Druckabhängigkeit von SCBL aufgrund der kürzeren Kollapszeit und geringeren Größe der Blasen bei höheren Drücken zustande kommt. Durch die verkleinerte Oberfläche werden Energieverluste aufgrund von thermischer Leitfähigkeit und Nicht-Gleichgewichts-Effekten bei der Verdampfung und Kondensation verringert. Desweiteren ist es denkbar, daß der schnellere Kollaps der Blase bei hohen Drücken einen früheren Übergang von isothermer zu adiabatischer Kompression bewirkt. Der Blase bleibt in diesem Fall weniger Zeit, Energie an die Umgebung abzugeben. Die Folge davon wäre eine höhere Endtemperatur der Blase und damit auch eine größere Helligkeit beim Leuchten.

Kapitel 7

Blasenlumineszenz in Alkohol und Glycerin

7.1 Der Einfluß von Alkohol auf die Blasenlumineszenz

Neben Einflüssen des Gasgehalts und des statischen Drucks hat auch die chemische Zusammensetzung der Flüssigkeit eine starke Auswirkung auf die Intensität der Lichtemission kollabierender Blasen. Untersuchungen an akustisch angeregten Einzelblasen [8] und Blasenfeldern [69] haben gezeigt, daß wenige Tropfen Alkohol ausreichen, um die Lumineszenz um mehrere Größenordnungen zu verringern.

Die Lichtemission der SBSL-Blasen sinkt bereits bei einem Molanteil von $n_b = 5.3 \cdot 10^{-6}$ Isopropanol in destilliertem Wasser auf 50% ihres ursprünglichen Wertes ab [70]. Dieser Effekt wird verstärkt, je länger die Kohlenstoffkette des verwendeten Alkohols ist. Bei MBSL läßt sich die gleiche Tendenz in schwächerer Form beobachten. Damit sich die Intensität halbiert, muß die Alkoholkonzentration um zwei Größenordnungen höher sein als bei SBSL [69].

Um den Effekt von Alkohol auf SCBL zu untersuchen, wurde destilliertes Wasser stufenweise mit Isopropanol versetzt und die Lichtemission der kollabierenden Blasen in Abhängigkeit der Konzentration gemessen. Temperatur (24°C), Laserenergie (9 mJ) und der umgebende Druck (1 bar) wurden bei diesem Experiment konstant gehalten. Aufgrund der geringen Diffusionskonstante von Isopropanol ($D \sim 10^{-5} \text{cm}^2/\text{s}$) und der damit verbundenen langen Diffusionszeit ($\tau_{Diff} = R_{Küvette}^2/D \sim 250$ Stunden) wurde der Inhalt der Küvette nach Zugabe des Alkohols verrührt. Abbildung 7.1 zeigt die normierte Lichtemission gegen die Isopropanolkonzentration. Wie bei SBSL wird die Helligkeit mit steigender Alkoholkonzentration geringer. Der Verlauf der Lichtintensität folgt dabei ungefähr einer exponentiellen Abnahme, wie in der logarithmischen Auftragung aus Abbildung 7.2

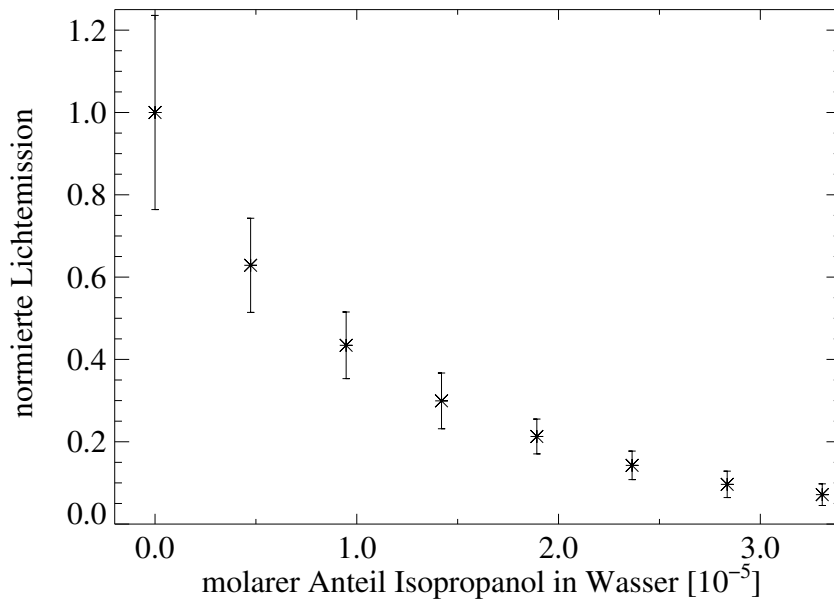


Abbildung 7.1: Auftragung der normierten Lumineszenzenergie in Abhängigkeit der Isopropanolkonzentration in destilliertem Wasser bei $P_0 = 1.0$ bar, $E_L = 9$ mJ und $T = 24^\circ\text{C}$.

zu sehen ist. Eine Verminderung der Lichtemission um 50% tritt bei einem molaren Isopropanolanteil von ca. $8 \cdot 10^{-6}$ auf, was etwas oberhalb der Werte für SBSL liegt.

In weiteren Messungen wurde die Küvette mit reinem Isopropanol befüllt und die Lumineszenz aufgenommen. Die Lichtemission ging dabei um mehr als 2 Größenordnungen im Vergleich zu SCBL in Wasser zurück. Bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 4.8$ bar und einer Laserenergie $E_L = 20.1$ mJ betrug die Anzahl der emittierten Photonen $N_{Phot} = (4.5 \pm 2.8) \cdot 10^6$. Ein mit diesen Parametern aufgenommener Lumineszenzimpuls ist in Abbildung 7.3 dargestellt. Die Halbwertsbreite liegt mit $T_{1/2} = 91.5$ ns deutlich oberhalb der Werte für Wasser. Neben dem langen Hauptlumineszenzimpuls, der bei einer Kollapszeit von $T_C = 42 \mu\text{s}$ beobachtet wurde, treten auch kürzere Pulse mit wesentlich weniger Energie auf. Abbildung 7.4 zeigt einen solchen Puls, der mit gleicher Parametereinstellung wie der vorhergehende Puls erzeugt wurde. Die maximale Intensität der Lumineszenz ist in diesem Fall geringfügig größer (Faktor 1.3) als beim Hauptsignal. Aufgrund der kurzen Zeitdauer dieser Pulse beträgt die Gesamtzahl der emittierten Photonen jedoch nur $N_{Phot} = 0.94 \cdot 10^6$, also ungefähr 1/5 des breiteren Signals. Die kurzen Lichtpulse aus Abbildung 7.4 treten zusammen mit dem Hauptpuls um einige μs zeitlich versetzt, und

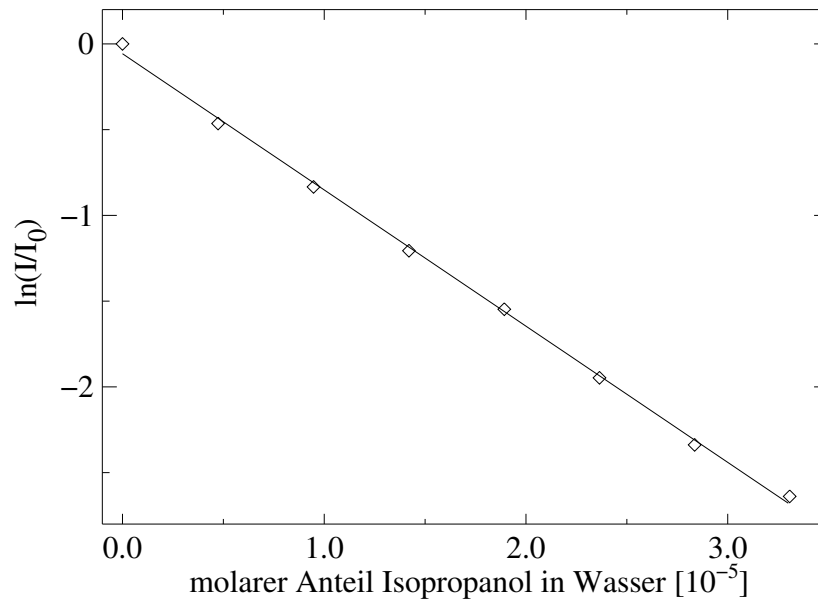


Abbildung 7.2: Logarithmische Auftragung der normierten Lumineszenzintensität gegen die Isopropanolkonzentration in destilliertem Wasser bei $P_0 = 1.0$ bar, $E_L = 9$ mJ und $T = 24^\circ\text{C}$.

zwar sowohl davor als auch danach auf.

Eine erste qualitative Theorie über den Einfluß von Alkohol auf die Lumineszenz wurde aufgrund von Beobachtungen bei akustisch angeregten Blasenfeldern (MBSL) entwickelt [69]. Sie geht davon aus, daß sich die Alkoholmoleküle wegen ihrer hydrophoben Kohlenstoffkette an den Blasenwänden akkumulieren und auf diese Weise in die Blase gelangen.

Nimmt man an, daß die Anwesenheit von Alkoholmolekülen direkten Einfluß auf die Temperatur der Blase ausübt, so läßt sich die Abschwächung der Lumineszenz im Rahmen einer Theorie beschreiben, in der die Lichtemission von thermisch induzierter Bremsstrahlung verursacht wird [70]. Wie in Abschnitt 3.2 beschrieben, soll die Blase dabei kein reiner schwarzer Strahler sein, sondern eine gewisse Lichtdurchlässigkeit aufweisen. In diesem Fall hängt die Lichtintensität im wesentlichen von zwei Faktoren ab. Ein Faktor verhält sich wie Schwarzkörperstrahlung ($\propto T^4$). Der andere Faktor berücksichtigt die Transparenz der Blase und ist proportional zu $\exp(-E_{ion}/2k_B T)$, wobei E_{ion} die Ionisierungsenergie der Moleküle in der Blase und k_B die Boltzmannkonstante ist. Für die

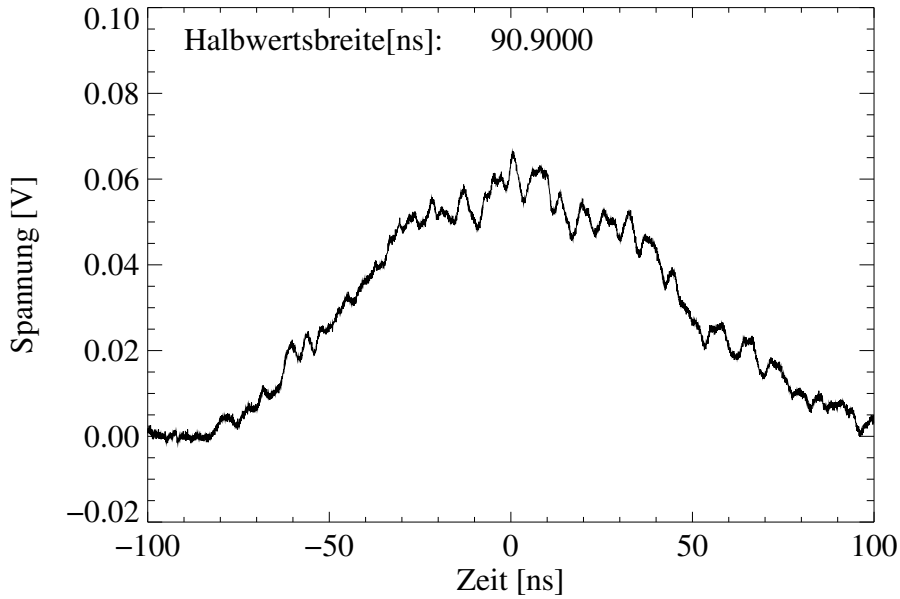


Abbildung 7.3: Lumineszenzimpuls einer kollabierenden Blase in Isopropanol bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 4.8$ bar und einer Laserenergie von $E_L = 20.1$ mJ.

relative Intensitätsminderung aufgrund der Zugabe von Alkohol ergibt sich dann:

$$\frac{I(n_{alc})}{I(0)} = \left(\frac{T(n_{alc})}{T(0)} \right)^4 \cdot \exp \left[-\frac{E_{ion}}{2k_B} \left(\frac{1}{T(n_{alc})} - \frac{1}{T(0)} \right) \right] \quad (7.1)$$

Hierbei ist n_{alc} die molare Fraktion an Alkohol innerhalb der Flüssigkeit. Geht man bei geringer Alkoholkonzentration von einer kleinen Temperaturänderung aus:

$$\Delta T(n_{alc}) = T(0) - T(n_{alc}) \ll T(0) \quad ,$$

so dominiert in Gleichung (7.1) die exponentielle Abhängigkeit. Wir erhalten demnach:

$$\frac{I(n_{alc})}{I(0)} \sim \exp \left[-\frac{E_{ion}}{2k_B} \cdot \frac{\Delta T(n_{alc})}{T(0)^2} \right] \quad (7.2)$$

Gleichung (7.2) liefert eine mögliche qualitative Erklärung des beobachteten exponentiellen Abfalls der Leuchtintensität mit steigender Alkoholkonzentration. Dabei ist jedoch noch nicht einwandfrei geklärt, ob thermische Bremsstrahlung die wirklich Ursache für die Lichtemission ist. Desweiteren benötigt man eine lineare Beziehung zwischen der Alkoholkonzentration in der Flüssigkeit und der Temperatur im Inneren der Blase.

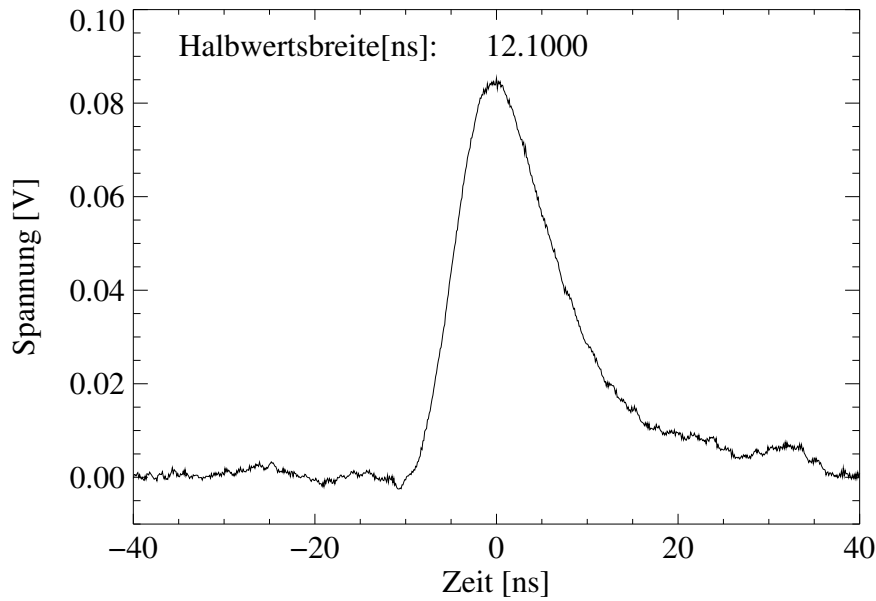


Abbildung 7.4: Lumineszenzpuls einer kollabierenden Blase in Isopropanol bei einem Umgebungsdruck von $P_0 = 4.8$ bar und einer Laserenergie von $E_L = 20.1$ mJ. Dieser Nebenpuls tritt zeitlich versetzt zum breiteren Hauptpuls aus Abbildung 7.3 auf.

Tögel *et. al* schreiben diesen Effekt einer Veränderung des Adiabatenexponenten innerhalb der Blase zu [70]. Beim Erreichen adiabatischer Zustände im Kollaps gilt für die Temperatur:

$$T(n_{alc,b}) \propto K^{\gamma(n_{alc,b}-1)} \quad , \quad (7.3)$$

wobei γ der Adiabatenexponent und $n_{alc,b}$ die molare Fraktion an Alkohol innerhalb der Blase ist. Die Kompression K wird bei dieser Betrachtung als unabhängig von der Alkoholkonzentration angenommen. Der Adiabatenexponent hängt von der Anzahl der Freiheitsgrade f des jeweiligen Gases ab:

$$\gamma = 1 + \frac{2}{f} \quad . \quad (7.4)$$

Im Falle einer reinen Edelgasblase existieren pro Molekül drei Translationsfreiheitsgrade, so daß $\gamma = 5/3$ beträgt. Sind sowohl Wasserdampf als auch dessen Dissoziationsprodukte in der Blase enthalten, wird γ durch die zusätzlichen Rotationsfreiheitsgrade (2 für 2-atomige und 3 für 3-atomige Gase) je nach Verteilung zwischen $4/3$ und $5/3$ liegen.

Der Adiabatenexponent einer Mischung aus k verschiedenen Gasen kann nach dem Gesetz von Dalton berechnet werden:

$$\gamma = \frac{n_1(f_1 + 2) + n_2(f_2 + 2) + \dots + n_k(f_k + 2)}{n_1 f_1 + n_2 f_2 + \dots + n_k f_k} . \quad (7.5)$$

Isopropanol besitzt in seiner undissoziierten Form ($f_{alc} = 66$) Freiheitsgrade. Geht man davon aus, daß die neben dem Alkohol in der Blase befindlichen Moleküle eine mittlere Anzahl von 5 Freiheitsgraden besitzen, so ergibt sich aus Gleichung (7.5):

$$\gamma(n_{alc,b}) = 1 + \frac{2}{n_{alc,b}(f_{alc} - 5) + 5} . \quad (7.6)$$

Da $f_{alc} > 5$, sinkt der Adiabatenexponent mit steigender Isopropanolkonzentration. Aus den Gleichungen (7.3) und (7.6) erhält man unter Verwendung der ersten Taylor-Näherung eine lineare Beziehung zwischen der Temperaturänderung und dem molaren Anteil an Isopropanol innerhalb der Blase:

$$\Delta T(n_{alc,b}) \propto K^{2/5} \cdot \frac{2(f_{alc} - 5)}{25} \cdot n_{alc,b} . \quad (7.7)$$

Geht man davon aus, daß die molaren Anteile von Alkohol innerhalb der Blase und in der Flüssigkeit proportional zu einander sind ($n_{alc,b} = c \cdot n_{alc}$), so erhalten wir in Gleichung (7.2) die erwartete exponentielle Beziehung zwischen Lichtintensität und Temperaturänderung:

$$\frac{I(n_{alc})}{I(0)} \sim \exp \left[-\frac{E_{ion}}{k_B} \cdot c \frac{n_{alc}(f_{alc} - 5)}{25 K^{2/5}} \right] . \quad (7.8)$$

Eine quantitative Abschätzung bleibt jedoch schwierig, da weder die adiabatische Kompression K , noch die Proportionalitätskonstante c bekannt ist. Bei der vorliegenden Betrachtung muß außerdem auch die Dissoziation von Alkoholmolekülen aufgrund der hohen Temperaturen sowohl beim optischen Durchbruch, als auch im Kollaps der Blase berücksichtigt werden. Aus Gleichung (7.6) läßt sich entnehmen, daß erste Dissoziationsreaktionen des Alkohols noch keine signifikante Änderung des Adiabatenexponenten verursachen, da sich in diesem Fall der molare Anteil an organischen Molekülen ungefähr antiproportional zur Anzahl der Freiheitsgrade verhält. Bei steigender Temperatur erwartet man jedoch eine Reduktion zu Molekülen, deren Anzahl an Freiheitsgraden dem Wasserdampf oder dessen Dissoziationsprodukten entspricht.

Wie in Abschnitt 5.2 gezeigt wurde, hat der Edelgasanteil keinen Einfluß auf die Lichtemission von SCBL Blasen. In entgastem Wasser kann man davon ausgehen, daß die

	Dampfdruck P_D [MPa]	Kompressibilität κ [1/GPa]	Viskosität η [mPa·s]
Wasser	2.34	0.50	1.002
Methanol	12.9	1.22	0.587
Isopropanol	4.25	1.00	1.32
Glycerin	0.000001	0.22	1480

Tabelle 7.1: Dampfdruck, Kompressibilität und Viskosität für verschiedene Flüssigkeiten bei 20°C und 1 bar Umgebungsdruck [71].

Blasen nicht aus Edelgas, sondern nur aus Wasserdampf und dessen Dissoziationsprodukten bestehen. In diesem Fall befindet sich die mittlere Anzahl der Freiheitsgrade zwischen 3 und 6, also höher als bei einer reinen SBSL-Edelgasblase, deren Moleküle nur 3 Freiheitsgrade besitzen. Es ist daher anzunehmen, daß der Alkoholgehalt bei lasererzeugten Blasen weniger Auswirkungen auf den Adiabatenexponenten hat und dadurch auch eine kleinere Temperaturänderung verursacht. Dies ist möglicherweise eine Erklärung für die beobachteten Unterschiede in der Abhängigkeit der Lichtemission vom Alkoholgehalt bei SCBL- und SBSL Blasen.

Allerdings ist zu erwarten, daß eine alleinige Betrachtung des Adiabatenexponenten nicht ausreicht, um die Auswirkungen des Alkoholgehalts in der Flüssigkeit auf die Lichtemission quantitativ zu erklären. Neben dem Adiabatenexponent innerhalb der Blase werden besonders bei hohen Alkoholkonzentrationen noch andere Parameter der Flüssigkeit verändert.

Tabelle (7.1) zeigt einige Eigenschaften von reinen Flüssigkeiten bei einem Umgebungsdruck von 1 bar und 20°C. Es ist zu beachten, daß alle Parameter von der Temperatur und die Kompressibilität und Viskosität zusätzlich vom Umgebungsdruck abhängen. Desweiteren ergeben sich die Werte für Lösungen im allgemeinen nicht einfach durch Summation der Produkte aus Stoffmengenanteil und zugehörigem Parameter.

Generell läßt sich jedoch annehmen, daß bei einer Zugabe von Isopropanol zu Wasser der Dampfdruck und die Kompressibilität erhöht wird. Zudem verursacht die Anlagerung der Alkoholmoleküle an die Blasenoberfläche eine Verminderung der Oberflächenspannung.

Alle diese Faktoren können Einfluß auf die Blasendynamik und evtl. auch auf die Ausbreitung von Stoßwellen innerhalb der Blase nehmen, weswegen die Annahme eines konstanten Kompressionsfaktors in Frage gestellt werden muß.

Der stark verbreiterte Lumineszenzimpuls aus Abbildung 7.3, der bei Messungen in reinem

Isopropanol aufgenommen wurde, deutet auf eine inhomogene Kompression der Blase hin. Als mögliche Ursache für diese Inhomogenität kommt eine asphärische Blasengeometrie in Betracht. In diesem Fall wäre es denkbar, daß sich aufgrund der asphärischen Geometrie kleine Blasen von der Hauptblase abspalten, deren Kollapsleuchten dann als unabhängiges Signal vom Photomultiplier registriert werden kann, wie es in Abbildung 7.4 zu sehen ist.

CCD-Aufnahmen von Blasen in Isopropanol Abbildung 7.5 zeigen jedoch keine besonders ausgeprägte Asphärizität während des ersten Schwingungszyklus. Erst beim wiederholten Aufschwingen macht sich der Einfluß höherer Moden zunehmend bemerkbar und die Blase verliert ihre sphärische Geometrie. Anders als bei den Blasen in Wasser erreicht der Radius beim zweiten Schwingungszyklus weit über die Hälfte seines maximalen Werts.

Es besteht die Möglichkeit, daß die postulierte Asphärizität erst während der letzten Phase des Kollapses zum Tragen kommt und aus diesem Grund nicht auf der Mikrosekunden-Zeitskala aufgelöst werden kann.

Andererseits ist es auch denkbar, daß die Ursache für die vergleichsweise lichtschwache und zeitlich lange Emission der kollabierenden Blasen in Isopropanol nicht aufgrund ihrer Asphärizität, sondern durch die größere Kompressibilität und den höheren Dampfdruck der umgebenden Flüssigkeit zustande kommt. Der höhere Dampfdruck führt zu einer Steigerung der Teilchenzahl innerhalb der Blase, so daß sich auch die Energie auf mehr Moleküle verteilen muß. Dies könnte der Grund für das weitere Wiederaufschwingen der Blase sein, da eine Steigerung der Molekülanzahl innerhalb der Blase den Kollaps weicher macht und dadurch den Energieverlust durch Abstrahlung von Stoßwellen reduziert. Im Zusammenhang mit der größeren Kompressibilität von Alkohol ist daher ein weniger rapider Kollaps und eine geringere Temperatur der Blase anzunehmen, wobei die Zunahme der Freiheitsgrade pro Molekül die Verminderung der Temperatur noch zusätzlich verstärkt. Da die Anzahl der leuchtenden Moleküle maximal linear, die Temperatur jedoch mit höherer Ordnung in die Strahlungsenergie eingeht, ist es zu erwarten, daß die Lichtemission dabei insgesamt verringert wird.

Ein weicherer Kollaps könnte wie eine Feder mit geringer Federkonstante ein langsameres Wiederaufschwingen zur Folge haben, so daß sich die Zeit, in der die Moleküle zum Leuchten angeregt werden, verlängert. Dies würde die beobachtete lange Pulsdauer von Blasen in Isopropanol aus Abbildung 7.3 erklären.

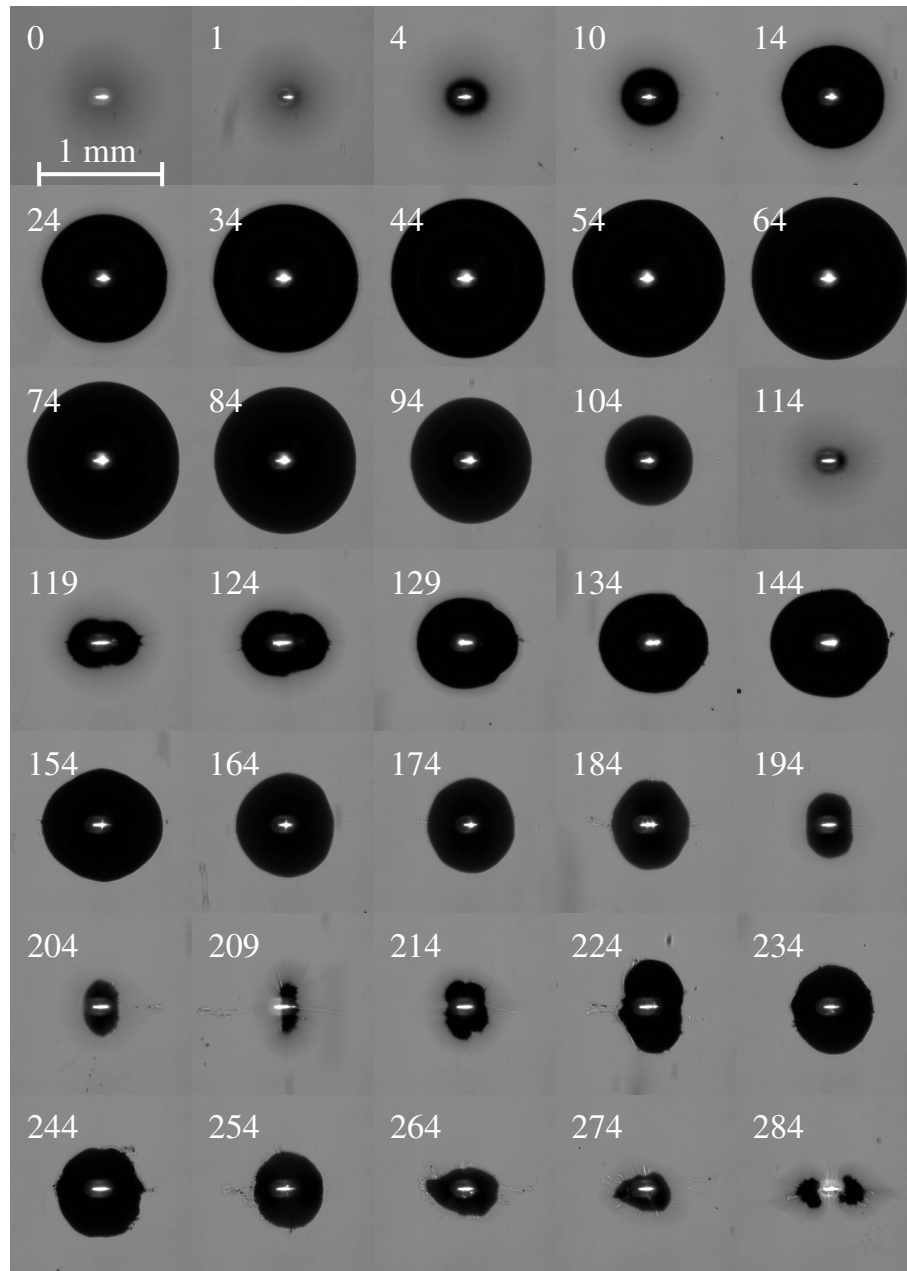


Abbildung 7.5: CCD-Aufnahmen von lasergenerierten Blasen in Isopropanol bei einer Laserenergie von $E_L = 2.5$ mJ und einem Umgebungsdruck von 1 bar. Die Zahlenwerte geben den Zeitpunkt nach der Blasenentstehung in μs an.

7.2 Der Einfluß von Glycerin auf die Blasenlumineszenz

Neben Alkohol und Wasser wurde außerdem der Einfluß von Glycerin auf die Blasenlumineszenz untersucht. Der signifikanteste Unterschied zu Wasser besteht in der Viskosität, die bei Glycerin um drei Größenordnungen höher liegt, siehe Tabelle (7.1).

Abbildung 7.6 zeigt die Abhängigkeit der Lumineszenz vom Glyceringehalt im Wasser. Die Lichtemission verringert sich bei steigender Glycerinkonzentration, wobei in diesem Fall kein exponentieller Abfall zu beobachten ist.

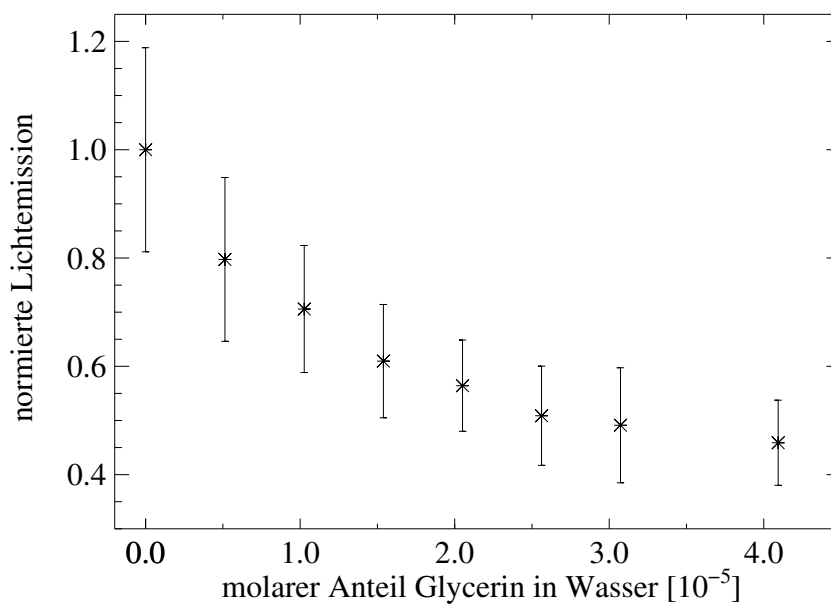


Abbildung 7.6: Lichtintensität in Abhängigkeit von der Glycerinkonzentration in Wasser.

Die Ergebnisse stehen im Gegensatz zu Beobachtungen von SBSL in Wasser-Glycerin-Gemischen, die eine Verstärkung der Lichtemission aufzeigen. Aufgrund des geringen Dampfdrucks und der kleineren Kompressibilität von Glycerin ist nach den vorherigen Annahmen auch eine Steigerung der Lichtemission zu erwarten.

Allerdings könnte im Falle der lasererzeugten Blasen die Viskosität, welche wahrscheinlich zur Dämpfung des Blasenkollapses führt, einen größeren Einfluß besitzen. Zudem ist bei einer Aufnahme von Glycerinmolekülen in die Blase wie beim Alkohol eine Verminderung des Adiabatenexponenten aufgrund der vielen Freiheitsgrade zu erwarten, was eine

geringere Temperatur zur Folge hätte.

Kapitel 8

Zusammenfassung

Zur Erzeugung optischer Kavitationsblasen wurde eine aberrationsminimierte Fokussierungsoptik entworfen, mit der sich eine möglichst sphärische Geometrie der Blasen realisieren läßt. Die Lumineszenz der kollabierenden Blasen wurde auf Abhängigkeiten vom Gasgehalt in der Flüssigkeit, von der chemischen Komposition der Flüssigkeit und vom Umgebungsdruck überprüft.

Es konnte gezeigt werden, daß für die Lichtemission lasererzeugter Blasen keine Abhängigkeit vom Edelgasgehalt in der Flüssigkeit besteht. Dieser Befund steht im Gegensatz zu der starken Abhängigkeit der Lumineszenz vom Edelgasgehalt, die bei SBSL-Experimenten beobachtet wurde. Es läßt sich daher vermuten, daß die Rolle des Edelgases auf Diffusionsstabilitäten der SBSL-Blasen beschränkt ist und keinen notwendigen Faktor bei der Lichterzeugung darstellt.

Werden die Blasen in einer Wasser-Propanol-Lösung erzeugt, so beobachtet man eine exponentielle Abnahme der Lichtintensität mit der Alkoholkonzentration. Der qualitative Verlauf läßt sich im Rahmen eines thermischen Bremsstrahlungsmodells mit der komprimierten Blase als transparenter Lichtquelle verstehen, wobei die Maximaltemperatur innerhalb der Blase durch den Alkohol verringert wird. Die Temperaturänderung wird wahrscheinlich durch mehrere Faktoren sowie den höheren Dampfdruck, die größere Kompressibilität und einer Verminderung des Adiabatenexponenten beeinflusst.

Anders als bei SBSL-Blasen führt eine Zugabe von Glycerin zu Wasser ebenfalls zu einer geringeren Leuchtintensität der kollabierenden Blasen. Da in diesem Fall Dampfdruck und Kompressibilität geringer sind als bei Wasser, beruht die Abschwächung der Helligkeit vermutlich auf der hohen Viskosität von Glycerin, die eine Dämpfung des Kollapses und damit auch eine geringere Maximaltemperatur der Blase zur Folge hat. Wie bei Alkohol besteht auch die Möglichkeit, daß eine Aufnahme der langkettigen Molekülen in die

Blase zu einer Verringerung des Adiabatenexponenten und folglich zu einer schwächeren Aufheizung während der Kompressionsphase führt.

Desweiteren wurde die Abhängigkeit der Lumineszenz vom umgebenden Druck und der Laserenergie untersucht. Die Lichtemission kann durch eine Erhöhung der Laserenergie um mehrere Größenordnungen verstärkt werden. Es existiert ein energieabhängiger optimaler Druck P_{opt} , bei dem die Anzahl der emittierten Photonen ein Maximum annimmt. Oberhalb dieses Drucks weisen die Blasen eine geringere Stabilität auf, weshalb sie im Kollaps dazu tendieren, sich aufzuspalten. Die Verstärkung der Lumineszenz mit steigendem Druck unterhalb P_{opt} erfolgt vermutlich aufgrund eines rapideren Kollapses, der eine höhere Temperatur innerhalb der Blase verursacht. Daher läßt sich vermuten, daß eine Veränderung des statischen Drucks auch Einfluß auf chemische Reaktionen nehmen kann, welche bei hohen Temperaturen und Drücken innerhalb der Blase ermöglicht werden.

Durch die Verwendung aberrationsminimierter Optiken mit großer Apertur läßt sich die Sphärizität der Blasen optimieren. Es ist anzunehmen, daß eine verbesserte Stabilität der Blasen bei hohen Drücken zu einer weiteren Steigerung der Lichtemission bzw. einer höheren Maximaltemperatur innerhalb der Blase führt.

Anhang A

Entfaltung der Lumineszenzpulse

Sei $x(t)$ das Eingangssignal eines Filters mit der Übertragungsfunktion $h(t)$, so ergibt sich das Ausgangssignal $y(t)$ durch Faltung der beiden Funktionen [72]:

$$y(t) = x(t) * h(t) = \int_{-\infty}^{\infty} x(t') \cdot h(t - t') dt' \quad . \quad (\text{A.1})$$

Das Ausgangssignal läßt sich mit Hilfe der Fouriertransformation

$$Y(f) = \mathcal{F}\{y(t)\}(f) = \int_{-\infty}^{\infty} y(t) \cdot e^{2\pi i f t} dt \quad (\text{A.2})$$

auch im Frequenzbereich darstellen, wobei die Faltung im Zeitbereich einer Multiplikation der Fouriertransformierten im Frequenzbereich entspricht:

$$Y(f) = X(f) \cdot H(f) \quad . \quad (\text{A.3})$$

Die Übertragungsfunktion $H(f)$ erhält man durch Fouriertransformation der Impulsantwort, da die Faltung mit einer Delta-Distribution im Zeitbereich äquivalent zu einer Multiplikation mit 1 im Frequenzbereich ist.

Um das Eingangssignal $x(t)$ zu erhalten, bildet man also zunächst die Fouriertransformierte $Y(f)$ des Ausgangssignals, dividiert diese durch $H(f)$ und führt anschließend eine Rücktransformation in den Zeitbereich durch:

$$\mathcal{F}^{-1} \left\{ \frac{Y(f)}{H(f)} \right\} (t) = x(t) \quad . \quad (\text{A.4})$$

Diesen Vorgang bezeichnet man auch als Entfaltung. In der vorliegenden Arbeit wurde die Entfaltung verwendet, um die von dem Oszilloskop ausgegebenen Signale der Lumineszenzpulse zu entzerren.

Bei der Division in Gleichung (A.4) können für $H(f) \sim 0$ geringe Quantisierungsfehler oder Rauschen zu erheblichen Ungenauigkeiten führen. Dieser Fall tritt besonders bei Frequenzen oberhalb von 1 GHz auf, da bei den hier betrachteten Signalen die Amplituden der Spektren für hohe Frequenzen sehr gering sind. Aus diesem Grund wurde vor der Rücktransformation für Frequenzen oberhalb von 1 GHz $X(f) = 0$ gesetzt, was einer idealen Tiefpaßfilterung entspricht.

Bei dem hier vorliegenden System werden nur diskrete Zeitwerte abgefragt. Die Zeitsignale sind demnach mit einer Kammfunktion multipliziert, was zu einer Wiederholung der Spektren im Abstand der Abtastfrequenz führt. Wäre die Breite des Spektrums größer als die halbe Abtastfrequenz, so würde es zur Überlagerung der Spektren, dem sogenannten „Aliasing“, kommen. Bei den hier vorliegenden Signalen ist dieser Effekt jedoch aufgrund der schnellen Abtastrate ($4 \cdot 10^{12}$ Samples/s) vernachlässigbar und würde ansonsten auch durch die Verwendung des Tiefpaßfilters bei 1 GHz unterbunden werden.

Literaturverzeichnis

- [1] H. Frenzel und H. Schultes. Lumineszenz in ultraschallbeschicktem Wasser. *Z. phys. Chem. Abt. B*, **27** (1934) 421–424.
- [2] H. Kuttruff. Über den Zusammenhang zwischen der Sonolumineszenz und der Schwingungskavitation in Flüssigkeiten. *Acustica*, **12** (1962) 230–254.
- [3] A. J. Walton, G. T. Reynolds. Sonoluminescence. *Advances in Physics*, **33** (1984) 595–660.
- [4] D. F. Gaitan, L. A. Crum, C. C. Church, R. A. Roy. Sonoluminescence and bubble dynamics for a single, stable, cavitation bubble. *J. Acoust. Soc. Am.*, **91** (1992) 3166–3183.
- [5] B. Gompf, R. Günther, G. Nick, R. Pecha, W. Eisenmenger. Resolving sonoluminescence pulse width with time-correlated single photon counting. *Phys. Rev. Lett.*, **79** (1997) 1405–1408.
- [6] R. Hiller, S. J. Putterman, B. P. Barber. Spectrum of synchronous picosecond sonoluminescence. *Phys. Rev. Lett.*, **69** (1992) 1182–1185.
- [7] R. Hiller, K. Weninger, S. J. Putterman, B. P. Barber. Effect of noble gas doping in single-bubble sonoluminescence. *Science*, **266** (1994) 248–250.
- [8] K. R. Weninger, R. Hiller, B. P. Barber, D. Lacoste, S. J. Putterman. Sonoluminescence from single bubbles in nonaqueous liquids: New parameter space for sonochemistry. *J. Phys. Chem*, **99** (1995) 14195–14197.
- [9] B. P. Barber, R. A. Hiller, R. Löfstedt, S. J. Putterman, K. R. Weninger. Defining the unknowns of sonoluminescence. *Phys. Rep.*, **281** (1997) 65–143.

-
- [10] M. Harrison. An experimental study of single bubble cavitation noise. *J. Acoust. Soc. Am.*, **24** (1952) 776–782.
- [11] C. L. Kling, F. G. Hammitt. A photographic study of spark-induced cavitation bubble collapse. *Journal of Basic Engineering D*, **94** (1972) 825–833.
- [12] J. Schmid. Gasgehalt und Lumineszenz einer Kavitationsblase (Modellversuche an Glaskugeln). *Acustica*, **12** (1962) 70–83.
- [13] S. Fujikawa, T. Akamatsu. Effects of the non-equilibrium condensation of vapour on the pressure wave produced by the collapse of a bubble in a liquid. *J. Fluid Mech.*, **97** (1980) 481–512.
- [14] F. Peterson, T. Anderson. Light emission from hydrodynamic cavitation. *Phys. Fluids*, **10** (1967) 874–879.
- [15] W. Güth. Kinematographische Aufnahmen von Wasserdampfblasen. *Acustica*, **4** (1954) 445–455.
- [16] W. Lauterborn. Erzeugung und Hochfrequenzkinematographie von Hohlräumen in Wasser mit einem Rubin-Laser. *Research Film*, **7** (1970) 25–31.
- [17] A. A. Buzukov, V. S. Teslenko. Sonoluminescence following focusing of laser radiation into a liquid. *Soviet Phys. JETP Lett.*, **14** (1971) 189–191.
- [18] W. Lauterborn. High-speed photography of laser-induced breakdown in liquids. *Appl. Phys. Lett.*, **21** (1972) 27–29.
- [19] W. Lauterborn. Kavitation durch Laserlicht. *Acustica*, **31** (1974) 51–78.
- [20] W. Lauterborn, H. Bolle. Experimental investigations of cavitation-bubble collapse in the neighbourhood of a solid boundary. *J. Fluid Mech.*, **72** (1975) 391–399.
- [21] K. J. Ebeling. Zum Verhalten kugelförmiger, lasererzeugter Kavitationsblasen in Wasser. *Acustica*, **40** (1978) 229–239.
- [22] Y. Tomita, A. Shima. Mechanisms of impulsive pressure generation and damage pit formation by bubble collapse. *J. Fluid Mech.*, **169** (1986) 535–564.
- [23] A. Shima, Y. Tomita, T. Ohno. Temperature effects on single bubble collapse and induced impulsive pressure. *J. Fluids Eng.*, **110** (1988) 194–199.

-
- [24] A. Vogel, W. Lauterborn. Acoustic transient generation by laser-produced cavitation bubbles near solid boundaries. *J. Acoust. Soc. Am.*, **84** (1988) 229–239.
- [25] A. Vogel, W. Lauterborn, R. Timm. Optical and acoustic investigations of the dynamics of laser-produced cavitation bubbles near a solid boundary. *J. Fluid Mech.*, **206** (1989) 299–338.
- [26] Y. Tomita, A. Shima. High-speed photographic observations of laser-induced cavitation bubbles in water. *Acustica*, **71** (1990) 161–171.
- [27] A. Philipp. Kavitationserosion durch lasererzeugte Einzelblasen. Dissertation, TH Darmstadt, 1995.
- [28] A. Philipp, W. Lauterborn. Damage of solid surfaces by single laser-produced cavitation bubbles. *Acustica*, **83** (1997) 223–227.
- [29] C.-D. Ohl, O. Lindau, W. Lauterborn. Luminescence from spherically and aspherically collapsing laser induced bubbles. *Phys. Rev. Lett.*, **80** (1998) 393–396.
- [30] Olgert Lindau. Dynamik und Lumineszenz lasererzeugter Kavitationsblasen. Diplomarbeit, 1998.
- [31] C.-D. Ohl. Zur Dynamik und Lumineszenz von Kavitationsblasen. Dissertation, Georg-August-Universität zu Göttingen, 1998.
- [32] O. Baghdassarian, B. Tabbert, G. A. Williams. Luminescence characteristics of laser-induced bubbles in water. *Phys. Rev. Lett.*, **83** (1999) 2437–2440.
- [33] D. J. Stolarski, J. Hardman, C. G. Bramlette, G. D. Noojin, R. J. Thomas, B. A. Rockwell, W. P. Roach. Integrated light spectroscopy of laser-induced breakdown in aqueous media. *SPIE Proc.*, **2391** (1995) 100 – 109.
- [34] J. Noack, A. Vogel. Single-shot spatially resolved characterization of laser-induced shock waves in water. *Applied. Optics*, **37** (1998) 4092 – 4099.
- [35] C. E. Mortimer. *Chemie, 5. Auflage*. Georg Thieme Verlag Stuttgart, 1987. p. 87.
- [36] F. Docchio, P. Regondi, M. R. C. Capon, J. Mellorio. Study of the temporal and spatial dynamics of plasmas induced in liquids by nanosecond Nd:YAG laser pulses. *Applied. Optics*, **27** (1988) 3661–3674.

-
- [37] W. H. Besant. *Hydrostatics and Hydrodynamics*. Deighton Bell, Cambridge, 1859. p. 170.
- [38] M.S. Plesset. The dynamics of cavitation bubbles. *J. Appl. Mech.*, **16** (1949) 277 – 282.
- [39] B. E. Noltingk, E. A. Neppiras. Cavitation produced by ultrasonics. *Proc. Phys. Soc. London B.*, **63** (1950) 674–685.
- [40] B. E. Noltingk, E. A. Neppiras. Cavitation produced by ultrasonics, theoretical conditions for the onset of cavitation. *Proc. Phys. Soc. London B.*, **64** (1951) 1032–1038.
- [41] H. Poritsky. The collapse or growth of a spherical bubble or cavity in a viscous fluid. *Proc. of the 1st U.S. Nat. Congr. in Appl. Mech.*, (1952) 813 – 821.
- [42] F. R. Gilmore. Hydrodynamics laboratory report 26-4. Technical Report, California Institut of Technology, 1952.
- [43] C. C. Wu, P. H. Roberts. Shock-wave propagation in a sonoluminescing gas bubble. *Phys. Rev. Lett.*, **70** (1993) 3424–3427.
- [44] L.A. Crum. Sonoluminescence, sonochemistry, and sonophysics. *J. Acoust. Soc. Am.*, **95** (1994) 559–562.
- [45] L. Kondić, J. I. Gersten, C. Yuan. Theoretical studies of sonoluminescence radiation: Radiative transfer and parametric dependence. *Physical Review E*, **52** (1995) 4976–4990.
- [46] W. C. Moss, D. B. Clarke, D. A. Young. Calculated pulse width and spectra of a single sonoluminescing bubble. *Science*, **276** (1997) 1187–1190.
- [47] K. Yasui. Alternative model of single-bubble sonoluminescence. *Physical Review E*, **56** (1997) 6750–6760.
- [48] V. Q. Vuong, A. J. Szeri. Sonoluminescence and diffusive transport. *Physics of Fluids*, **8** (1996) 2354–2364.
- [49] D. Lohse, M. Brenner, T. Dupont, S. Hilgenfeldt, B. Johnston. Sonoluminescing air bubbles rectify argon. *Phys. Rev. Lett.*, **78** (1997) 1359–1362.

- [50] Lord Rayleigh, J. W. Strutt. On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity. *Phil. Mag.*, **34** (1917) 94–98.
- [51] I. Akhatov, N. Vakhitova, K. Zakirov, R. Mettin, O. Lindau, W. Lauterborn. Dynamics of laser-induced cavitation bubbles. *J. Acoust. Soc. Am.*, **106** (1999) 2290–2291.
- [52] A. Eller, H. G. Flynn. Rectified diffusion during nonlinear pulsations of cavitation bubbles. *J. Acoust. Soc. Am.*, **37** (1965) 493–503.
- [53] W. C. Moss, D. A. Young, J. A. Harte, J. L. Levatin, B. F. Rozsnyai, G. B. Zimmerman, I. H. Zimmerman. Computed optical emissions from a sonoluminescing bubble. *Physical Review E*, **59** (1999) 2986–2992.
- [54] S. Hilgenfeldt, S. Grossmann, D. Lohse. A simple explanation of light emission in sonoluminescence. *Nature*, **398** (1999) 402–405.
- [55] W. C. Moss, D. B. Clarke, J. W. White, D. A. Young. Hydrodynamic simulations of bubble collapse and picosecond sonoluminescence. *Phys. Fluids*, **6** (1994) 2979–2985.
- [56] W. C. Moss, D. B. Clarke, J. W. White, D. A. Young. Sonoluminescence and the prospects for table-top micro-thermonuclear fusion. *Phys. Lett. A*, **211** (1996) 69–74.
- [57] N. García, A. P. Levanyuk, V.V.Osipov. Scenario of the electric breakdown and UV radiation spectra in single-bubble sonoluminescence. *JETP Letters*, **70** (1999) 431–437.
- [58] N. García, A. P. Levanyuk, V.V.Osipov. Nature of sonoluminescence: Noble gas radiation excited by hot electrons in cold water. *Physical Review E*, **62** (2000) 2168–2176.
- [59] C. Eberlein. Sonoluminescence as quantum vacuum radiation. *Phys. Rev. Lett.*, **76** (1996) 3842–3845.
- [60] S. Hilgenfeldt, S. Grossmann, D. Lohse. Sonoluminescence light emission. *Phys. Fluids*, **11** (1999) 1318–1330.
- [61] S. Hilgenfeldt, S. Grossmann, D. Lohse. Sonolumineszenz. *Physikalische Blätter*, **56** (2000) 43–46.
- [62] I. Akhatov, N. Gumerov, C. D. Ohl, U. Parlitz, W. Lauterborn. The role of surface tension in stable single-bubble sonoluminescence. *Phys. Rev. Lett.*, **78** (1997) 227–230.

-
- [63] Win Lens 4.0, Spindler & Hoyer.
- [64] N. García, A. P. Levanyuk. Sonoluminescence: A new electrical breakdown hypothesis. *JETP Lett.*, **64** (1996) 907–911.
- [65] I. Akhatov. Private Mitteilung.
- [66] M. Dan, J. D. N. Cheeke, L. Kondic. Ambient pressure effect on single-bubble sonoluminescence. *Phys. Rev. Lett.*, **83** (1999) 1870–1873.
- [67] A. Vogel, J. Noack, D. Theisen, S. Busch, U. Parlitz, D. X. Hammer, G. D. Noojin, B. A. Rockwell, R. Birngruber. Energy balance of optical breakdown in water at nanosecond to femtosecond time scales. *Appl. Phys. B*, **68** (1999) 271 – 280.
- [68] F. Jomni, F. Aitken, A. Denat. Experimental investigation of transient pressure waves produced in dielectric liquids. *J. Acoust. Soc. Am.*, **107** (2000) 1203–1211.
- [69] M. Ashokkumar, R. Hall, P. Mulvaney, F. Grieser. Sonoluminescence from aqueous alcohol and surfactant solutions. *J. Phys. Chem*, **101** (1997) 10845–10850.
- [70] R. Tögel, S. Hilgenfeldt, D. Lohse. Squeezing alcohols into sonoluminescing bubbles: The universal role of surfactants. *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000) 2509–2512.
- [71] E. Lax, C. Synowietz. *Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Erster Band, 3. Auflage*. Springer-Verlag, 1967.
- [72] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, B. P. Flannery. *Numerical Recipes, 2. Edition*. Cambridge University Press, 1992. Chapter 12 & 13.

Danksagung

Hiermit möchte ich all denen meinen herzlichen Dank ausdrücken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Insbesondere danke ich

- Prof. Dr. Werner Lauterborn für die Ermöglichung der Diplomarbeit und die guten Arbeitsbedingungen in diesem Institut.
- Dr. Thomas Kurz für die Betreuung der Arbeit und die vielen Diskussionen und Anregungen zu Experimenten.
- Olgert Lindau für die Einweisung, Hilfestellung und gute Zusammenarbeit im Labor.
- Reinhard Geisler für die zahlreichen Tips und Tricks zu Experimenten und die häufige Unterstützung bei technischen Problemen.
- Dr. Robert Mettin, Dr. Thomas Kurz und meinem Vater für das Korrekturlesen der Arbeit und die vielen hilfreichen Ratschläge und Diskussionen.
- der gesamten Arbeitsgruppe „Nichtlineare Dynamik“, Gisa Kirschmann, Dr. Martin Wiesenfeldt und Prof. Dr. Iskander Akhatov für anregende Diskussionen und die nette, aufgeschlossene Atmosphäre in der Gruppe.
- der Flüssigkeitsphysik-Gruppe von Herrn Dr. Kaatze und der Akustik-Gruppe von Herrn Prof. Dr. Ronneberger für die Bereitstellung von Geräten und der prompten Hilfe bei Fragestellungen, die in ihre Arbeitsbereiche fielen.
- Herrn Hille und den Mitarbeitern der Werkstatt für die Anfertigung der Küvette und sämtlicher anderer benötigter Bauteile.
- meiner Freundin Silke Stange für moralische Unterstützung während der gesamten Studienzzeit.
- allen Freunden und Kommilitonen für die schöne Zeit, die wir hier in Göttingen verbracht haben.
- meinen Eltern für die Finanzierung meines Studiums und vieles mehr.