

**A SZONOLUMINESZCENCIA JELENSÉGÉNEK  
VIZSGÁLATA**

**Simon Gábor**

fizikus hallgató

témavezetők:

**Csabai István**

ELTE Komplex Rendszerek Fizikája tanszék

**Horváth Ákos**

ELTE Atomfizikai tanszék

1998

## Tartalomjegyzék

1.	BEVEZETÉS .....	1. old.
2.	A SZONOLUMINESZCENCIA JELENSÉGE .....	2. old.
	2.1. A felfedezés története .....	2. old.
	2.2. Az egybuborékos szonolumineszcencia sajátosságai, a napjainkig elért kísérleti eredmények .....	4. old.
	2.2.1. <i>Az egybuborékos szonolumineszcencia létrehozásának módjai</i> .....	4. old.
	2.2.2. <i>A buborék falának mozgását megadó eljárások</i> .....	7. old.
	2.2.3. <i>A fénykibocsátó fázis megjelenése</i> .....	9. old.
	2.2.4. <i>A fényintenzitás függése a kísérleti paraméterektől</i> .....	10. old.
	2.2.5. <i>A fényesség függése a buborék összetételétől</i> .....	12. old.
	2.2.6. <i>A fényesség függése a kigázosítás mértékétől</i> .....	13. old.
	2.2.7. <i>A fényesség függése a folyadék hőmérsékletétől</i> .....	14. old.
	2.2.8. <i>A kibocsátott fény spektruma</i> .....	16. old.
	2.2.9. <i>A felvillanások hosszára irányuló mérések</i> .....	20. old.
	2.2.10. <i>Disszociációs hipotézis</i> .....	21. old.
	2.2.11. <i>A kísérleteket legjobban magyarázó elméletek, a nyitott kérdések és a gyakorlati alkalmazások áttekintése</i> .....	23. old.
3.	KÍSÉRLETI MÓDSZER .....	26. old.
	3.1. <i>Rezonátor</i> .....	26. old.
	3.2. <i>Kísérleti alap-összeállítás</i> .....	27. old.
	3.3. <i>A kísérletek előtti beállítások menete</i> .....	28. old.
	3.4. <i>Kigázosító készülék</i> .....	28. old.
4.	A SZONOLUMINESZCENCIA KÍSÉRLETI VIZSGÁLATA.....	31. old.
	4.1. A buborék viselkedésének, valamint a fényintenzitás és fluktuációjának függése a koncentrációtól és a gerjesztő amplitúdótól.....	31. old.
	4.1.1. <i>A kísérlet motivációja</i> .....	31. old.
	4.1.2. <i>A kísérlet leírása</i> .....	31. old.
	4.1.3. <i>Mérési adatok</i> .....	33. old.
	4.1.4. <i>Kísérleti eredmények</i> .....	35. old.
	4.1.5. <i>A mérési eredmények diszkussziója</i> .....	40. old.
	4.2. <i>Lágy-röntgen sugárzás detektálására irányuló mérés</i> .....	42. old.
	4.2.1. <i>A kísérlet motivációja</i> .....	42. old.
	4.2.2. <i>A Kísérlet leírása</i> .....	42. old.
	4.2.3. <i>Mérési eredmények</i> .....	43. old.
	4.2.4. <i>Diszkusszió</i> .....	46. old.
5.	A SZONOLUMINESZCENCIA ELMÉLETI VIZSGÁLATA.....	47. old.
	5.1. <i>Rayleigh - Plesset egyenlet numerikus megoldása a kísérletekben előforduló paraméterek mellett</i> .....	47. old.
	APPENDIX A. <i>Rezonátorok sajátfrekvenciái, és a bennük kialakuló állóhullámter.</i> ....	50. old.
	APPENDIX B. <i>A buborék lebegése</i> .....	53. old.
6.	ÖSSZEFOGLALÁS .....	55. old.

## 1. BEVEZETÉS

A szonolumineszcencia olyan folyamat ami során ultrahang akusztikus energiája nagymértékben koncentrálódik, és ennek egy része fényenergiává alakul át. Az utóbbi években a szonolumineszcencia intenzíven kutatott területté vált, egyrészt a lehetséges gyakorlati alkalmazásai miatt, másrészt mert a jelenségben a fizika számos területe fonódik össze. A jelenség magyarázatára az akusztikán és hidrodinamikán kívül, szükség lehet plazmafizikai és kvantum-elektrodinamikai ismeretekre is.

A szonolumineszcencia egyes aspektusainak magyarázatára már számos cikk jelent meg, az egész jelenséget átfogó elméletet azonban a mai napig még nem dolgoztak ki. A megjelent cikkek között túlsúlyban vannak az elméleti vizsgálatok, annak ellenére, hogy a jelenség kísérleti vonatkozásai még nincsenek teljesen letisztulva, és nagy paraméter tartományban még egyáltalán nem végeztek méréseket. Kísérletezéssel világszerte kb. 10 helyen foglalkoznak, de ezek közül is a kísérleti eredmények zöme nagyjából két kutató csoporttól származik, pedig a jelenség előállítása olcsó, és nem igényel különleges berendezéseket. Ezek hatására a diplomamunka során a jelenség reprodukálható előállítására, és a kísérletezésre koncentráltunk.

A szakdolgozat 2. fejezete a szonolumineszcenciával kapcsolatos, napjainkig kapott legfontosabb kísérleti eredményeket tartalmazza, az irodalomban található cikkek alapján. A kísérleteket legjobban magyarázó elméleteket, a nyitott kérdéseket, és a lehetséges gyakorlati felhasználásokat a fejezet utolsó pontjában foglaltuk össze.

A 3. fejezet az általunk használt kísérleti módszereket, a 4. fejezet az elvégzett mérések leírását tartalmazza, az 5. fejezetben és az appendixekben pedig a kísérletekhez kapcsolódó elméleti vizsgálatok találhatók.

## 2. A SZONOLUMINESZCENCIA JELENSÉGE

### 2.1. A felfedezés története

Az úttörő kísérleteket a 20-as években végezték, amikor a vegyészek azt tapasztalták, hogy ultrahangos gerjesztéssel eredményesen lehet katalizálni vizes oldatokban lejátszódó kémiai reakciókat. A hiedelbergi egyetem tudósa, *Reinhard Mecke* megjegyezte, hogy ezen reakciókhoz szükséges energia nagyságrendileg megegyezik a mennyiséggel ami egy gerjesztett atom fénykibocsátásához szükséges, és javasolta hipotézise ellenőrzését. Ezen inspirációra végezték el 1934-ben *H. Frenzel* és *H. Schultes* [H.F.34] kísérletüket, amiben egy kád vizet nagy teljesítményű ultrahanggal gerjesztve a fotólemezük megfeketedését észlelték.

A fénykibocsátást először közvetlenül az erős hanghullámnak tulajdonították, innen kapta a jelenség a szonolumineszcencia elnevezést. Később kiderült, hogy a fény folytonosan keletkező és megsemmisülő parányi buborékok felhőjéből ered (2.1.1. ábra). Ezt a folyamatot a szakirodalomban sokbuborékos szonolumineszcenciának (Multi-Bubble Sonoluminescence) nevezték el (MBSL). A hanghullám szerepe éppen ezen buborékok keltésében és megsemmisítésében nyilvánul meg a kavitáció jelensége által. Ha ugyanis a hanghullám amplitúdója egy adott értéknél (kavitációs határ) nagyobb, a folyadék nem bírja elviselni a benne ébredő széthúzó feszültségeket, ami kis üregek megjelenéséhez vezet. Az üregekbe bediffundálnak a folyadékban oldott gázok, és így apró buborékok alakulnak ki. A hullám összenyomó fázisában a buborékok összeomlanak. A buborékok néhány periódusideig léteznek, ezalatt az összeomlásuk egyre drasztikusabb lesz, míg végül megsemmisülnek. *H. Frenzel* és *H. Schultes* a fénykibocsátást dörzsölési elektromossággal próbálta magyarázni. Szerintük a kezdetben semleges közegben a kavitáció töltésszétváláshoz vezet, és az így kialakuló apró szikráknak tulajdonítható a derengő kékes fény. Más kutatók a fény spektrumát vették fel, de később az egész téma iránt megcsappant a tudományos érdeklődés. A MBSL típusú kísérletekből csak kevés információt lehetett megtudni a fénykibocsátás mechanizmusának részleteiről, mivel a fényt sok buborék bocsátja ki, amelyek mind különböző méretűek, és egymás dinamikáját befolyásolják.

A kutatások új lendületet kaptak amikor 1988-ban *Felipe Gaitan* megtalálta az egybuborékos szonolumineszcencia (Single Bubble Sonoluminescence) kísérleti feltételeit

(SBSL). Ezekben a kísérletekben kb. pohár nagyságú rezonátorokban olyan frekvenciával rezgetik a vizet, hogy a benne kialakuló állóhullám a felhajtóerő ellenében lebegtesse a buborékot (2.1.2. ábra). Az így stabilizált buborék akár több órán keresztül is világít, minden egyes periódusban egy-egy felvillanást produkálva. A SBSL kísérletekben olyan vizet használnak amiben az oldott levegő koncentrációja a telítési értéknek (atmoszferikus nyomás mellett érvényes egyensúlyi koncentráció) kevesebb mint fele, ettől a kavitációs határ nagyobb nyomásamplitúdók felé tolódik (az oldott gáz molekulái meggyengítik a víz szerkezetét, így minél kisebb a koncentráció annál nagyobb széthúzó feszültségek esetén jön létre a kavitáció). Ezáltal el lehetett érni a világításhoz szükséges nagy nyomásamplitúdót anélkül, hogy a folyadék egészében spontán buborékok keletkeznének. Míg a buborék-felhők fénye teljes sötétségben is csak derengeni látszik, addig az egybuborékos szonolumineszcencia megvilágított helyiségben is érzékelhető. A 90-es években a SBSL jó tanulmányozhatóságának és viszonylag egyszerű előállíthatóságának köszönhetően egymást követték a meglepő felfedezések.

## 2.2. Az egybuborékos szonolumineszcencia sajátosságai, a napjainkig elért kísérleti eredmények

### 2.2.1. Az egybuborékos szonolumineszcencia előállításának módjai

A jelenség létrehozásának a lényege, hogy egy buborékot lebegtetve, a buborékhoz közel a folyadékban megfelelően nagy (atm. nagyságrendű) nyomásamplitúdót lehessen létrehozni. Ezt legegyszerűbben akusztikus rezonátorokban lehet elérni, ahol a rezonátor falát rezgetik olyan frekvenciával, hogy a benne lévő folyadékban nagy amplitúdójú állóhullámok alakuljanak ki. Az időben szinuszosan változó állóhullámtér a buborékot erősen nemlineáris rezgésre gerjeszti, (ami a világítás kulcsa) és ezáltal egyben lebegtetni is képes azt (appendix B).

Az eleinte használt rezonátorok egyszerű pyrex-üveg lombikok voltak, (2.2.1. ábra) amelyek falára egymással szemben piezokristály adókat ragasztottak. Lombikos rezonátor elkészítésére, és abban szonolumineszcencia létrehozására részletes útmutatók találhatók [R.H. 95]. A piezokristály a ráadott szinuszos váltófeszültség hatására ugyanolyan frekvenciájú mechanikai rezgéseket végez, ami berezgeti a lombik falát. A vízzel teli lombik  $f$  sajátfrekvenciáit és a nyomásállóhullámteret közelítőleg megadó képletek:

$$f = \frac{c \cdot n}{2R} \quad \text{és} \quad P(r, t) = P_A \frac{\sin(k \cdot r)}{r} \sin(2\pi \cdot f \cdot t) \quad , \quad k = \frac{n \cdot \pi}{R} \quad (2.2.1.)$$

Ahol  $c$ ,  $R$ ,  $P_A$ , rendre a hang sebessége vízben, a lombik sugara, és a nyomásamplitúdó. Az  $n$  paraméter a sebesség-csomófelületek (nyomás duzzadóhelyek) számát adja meg. Az  $n=1$  módust gerjesztve egy buborékot lehet a lombik centrumában lebegtetni (ez az általánosan elterjedt eljárás), míg az  $n=2$  esetben egy gömbhéj mentén akár több buborék is stabilizálható. A valódi sajátfrekvenciák az 2.2.1. képletben megadottól kis mértékben eltérnek mivel annak származtatásánál (appendix A) nem vettük figyelembe a gömbszimmetriától való eltérést, az üveg, és a ragasztó perturbáló hatását. Buborék keltése kis mennyiségű friss víz befecskendezésével, vagy erősen gerjesztett rezonátor esetén akár a szabad vízfelszín megérintésével lehetséges. A lombikos rezonátorok olcsón és könnyen elkészíthetők, jól használhatók demonstrációs célra. Hátrányuk, hogy az akusztikus rezonancia minősége erősen függ a lombik szárában lévő víz mennyiségétől. Ráadásul mivel a részlegesen kigázósított víz viszonylag nagy felületen érintkezik levegővel néhány óra múlva a vízben oldott levegő koncentrációja jelentősen megváltozik, ami lehetetlenné teszi hosszabb mérések elvégzését.

A reprodukálhatóság növelése és az előbbi probléma leküzdése érdekében a zárt, általában henger alakú rezonátorok terjedtek el (2.2.2. ábra). Itt a piezo adók fém tárcsákra vannak ragasztva, amelyek tömítőgyűrűk közbeiktatásával egy üveghengert fognak közre. A tárcsákba szerelt csövek a víz és a levegő ki-be vezetésére szolgálnak, a víz hőmérséklete termopárral mérhető. Buborék keltésére NiCr drótból készült miniatűr forraló szolgál. A dróton áramot átvezetve egy kis térrészben felforr a víz. Az apró gőzbuborékokba bediffundálnak a vízben oldott gázok, majd a nyomás duzzadóhelyen egyesülnek egyetlen buborékot hozva létre. A henger alakú rezonátor  $n=1$  módusának sajátfrekvenciája közelítőleg (appendix A):

$$f = \frac{c}{2} \sqrt{\frac{1}{h^2} + \left(\frac{2.4}{\pi \cdot R}\right)^2} \quad (2.2.2.)$$

ahol  $c$ ,  $h$ ,  $R$  rendre a hang sebessége a folyadékban, a henger magassága és sugara. A nyomás állóhullámot megadó közelítő képlet hengerkoordinátákban ( $z=0$  közepén):

$$P(r, z, \phi, t) = P_A \cdot \cos\left(\frac{\pi \cdot z}{h}\right) J_0\left(\frac{2.4r}{R}\right) \sin(2\pi \cdot f \cdot t) \quad (2.2.3.)$$

Ahol  $J_0$  a nulladrendű elsőfajú Bessel-függvény. A pontos rezonancia frekvencia kísérleti meghatározásához érdemes először több frekvencián buborékokat keltetni. Ha a buborékok nem szállnak fel, hanem középre gyűlnek, azt jelenti, hogy a rezonanciához közeli frekvenciát találtunk el. A pontosításban az üvegre ragasztott piezo mikrofon segít. A mikrofon jelének éles maximuma van a rezonancia frekvencián. Csak a mikrofon jelre hagyatkozva elég nehéz megtalálni a rezonanciát, mivel a rezonátor sok egyéb módusához is tartoznak csúcsok amelyek akár nagyobbak is lehetnek. Általában a rezonátorok méreteit úgy választják meg, hogy a rezonancia frekvencia a 20 - 50 kHz-es ultrahang tartományba essen. (Az alsó határt az emberi fül érzékenysége szabja meg, ugyanis a kisebb frekvenciákon hallhatóvá váló hang süketülést okozhat).

Egybuborékos szonolumineszcencia létrehozásához a piezo adókra a rezonátor jóságától függően kb. 50 - 500 V váltófeszültséget kell adni. A legjobb eljárás erre nagyfeszültségű lineáris erősítő alkalmazása. Alternatív, ennél olcsóbb megoldás lehet ha a függvény-generátor jelét audio erősítővel néhányszor 10 V nagyságúra előerősítjük, majd az így kapott jelet feltranszformáljuk. A leginkább elterjedt megoldásban az elektronikai szempontból kapacitásnak tekinthető piezo adókkal változtatható induktivitású tekercset kötnek sorba. Az audio erősítő jelével táplált soros rezgőkörben az induktivitást változtatva a

feszültség rezonancia az akusztikus rezonancia frekvenciájára hangolható és így viszonylag olcsón előállítható a kívánt nagyfeszültség.

A stabil egybuborékos szonolumineszcencia létrehozásának egy fontos eleme a részlegesen kigázósított víz használata, azaz hogy a folyadékban oldott gázok koncentrációja a telítési érték kevesebb mint fele legyen. Demonstrációs célokra a koncentráció a víz kiforrásával is beállítható, de a reprodukálhatósághoz és a koncentráció jó kontrollálhatóságához az *2.2.3. ábrán* vázolthoz hasonló vákuumos kigázosító berendezés szükséges. A vákuumos kigázosításnál a víz felett lévő levegő parciális nyomását állítják be a kívánt szintre, és megvárják amíg a víz azzal termodinamikai egyensúlyba jut. Az egyensúly beálltát mágneses keverő gyorsíthatja, amivel a kigázosítási procedúra kb. 20 percig tart. Levegő helyett más gázt, vagy gázkeveréket is használnak szonolumineszcencia előállítására, ilyenkor a vizet (vagy más folyadékot) először teljesen kigázosítják. Ha a rezonátor a telítési érték kb. felére kigázosított vízzel van feltöltve, és a gerjesztést egy alacsony értékről elkezdjük növelni a buborék a következő dinamikai fázisokon megy keresztül. Kis gerjesztésnél a buborék kb. 1 másodpercen belül feloszlik a vízben. Növelve az amplitúdót egy küszöb felett diffúziós egyensúlyba kerül, tovább növelve felerősödnek a buborék rezgéseinek nemszférikus módusai, és a buborék ekkor bonyolult "táncoló" mozgást végez. Még tovább növelve az amplitúdót a nemszférikus rezgések lecsillapodnak, a buborék stabilizálódik, és elkezdi halványan világítani. Növelve a gerjesztést a fény intenzitása is egyre nő egészen egy felső határig, ahol hirtelen elhalványodik, és a buborék megsemmisül.



### 2.2.2. A buborék falának mozgását megadó eljárások

A buborék sugarának időbeli változását legprecízebben megadó eljárásnak a lézeres Mie-szórési technika bizonyult [B.B.92]. Ennek lényege, hogy a buborékot oldalról lézer fényvel világítják meg, és egy kiválasztott szögbe szórt lézer-intenzitást fotoelektron-sokszorozóval detektálják (2.2.4. ábra). A hullámoptikában egy tökéletesen gömb alakú buborék által tetszőleges szögben szórt fény intenzitása:  $I \approx R(t)^2$ , ahol  $R(t)$  a buborék sugara. Adott sugár mellett különböző szögekben szórt fény intenzitása a 2.2.5. ábrán látható.

A vastagabb és egyenletesebben változó vonal a hullámoptikai határesetet szemlélteti, míg a vékonyabb vonal az egzakt Mie-elméletből adódik. Látható, hogy a szórt intenzitás nagyon érzékenyen függ a szóródás szögétől. Ahhoz, hogy ezt az érzékenységet lecsökkentsék, a lézer fényt tipikusan a  $60^\circ$  körüli  $25^\circ$ -os szögtartományból gyűjtik össze egy lencsével, ami kiátlagolja a csúcokat. A buborék saját felvillanásait időzítő jelként lehet használni, amit egy másik fotoelektron-sokszorozó detektál. A megfelelő PMT-csövek elé a lézer fényt, illetve a folytonos spektrumú felvillanásokat elnyelő szűrőket helyeznek el. A lézert detektáló PMT  $V(t)$  jele az  $R(t)^2$ -el arányos jelből és a  $V_z$  háttérből tevődik össze, így  $\sqrt{V(t) - V_z}$  a buborék sugarával arányos jelnek használható. A háttér meghatározásához a buborék jelenléte nélkül szóródott lézer fényt detektálják. A két jel,  $V(t)$  és  $V_z$  aránya a 2.2.6. ábrán látható. A 2.2.6. ábra adatai alapján meghatározott relatív buboréksugár időfüggését egy periódusra a 2.2.7. ábra mutatja. Az ábráról leolvashatóak a fénykibocsátó buborék dinamikáját jellemző időskálák és méret arányok egy akusztikus periódus alatt:  $t_A$  a buborék lassú, (közel lineáris)

kitágulásának ideje ( $\sim 15 \mu s$ ), a negatív gerjesztő nyomás hatására. Ekkor a buborék sugara a kezdeti értékének kb. 10-szeresére nő meg. Ezt követi a maximális sugár körüli átfordulás ideje,  $t_B \sim 5 \mu s$ , ez a buborék tehetetlensége miatt egy kicsivel a negyed-periódus után következik be. Ezen a ponton túl, mivel a gerjesztő nyomás már pozitívvá fordult, a buborék összeroppan, a sugara  $t_c \sim 1/2 \mu s$  alatt csökken le  $1/2 R_{\max}$ -ról a minimális sugárig ( $R_c \sim R_{\max}/100$ ), ahonnan "visszapattan". A minimális sugár elérésekor történik a rövid (ps nagyságrendű) fényimpulzus és egy erős nyomás-hullám kibocsátása. (A minimális sugár az ábrán nem látható, mivel a maximális sugár fényességére beállított PMT a visszapattanást nem tudta felbontani). A nyomás-hullám kibocsátásával a buborék jelentős mennyiségű energiát veszít, majd egyre csökkenő amplitúdóval sajátrezgéseket végez  $R_0$  körül,  $t_d \sim 1 \mu s$  periódussal. ( $R_0$  az a sugár, amekkora a buborék lenne, ha csak a külső sztatikus nyomás hatna rá, és a felületi feszültség, valamint a diffúzió hatásától eltekintünk).

Az abszolút sugár adatok meghatározásához a kísérleti adatokat összehasonlítják a buborék dinamikáját leíró Rayleigh-Plesset egyenlet (5.1) [B.B97] numerikus megoldásaival. A különböző időskálák alapján az illesztés egy jól behatárolható paraméter tartományt jelöl ki, és a  $P_A$  nyomásamplitúdó meghatározására is alapot ad. A 2.2.7. ábra buborékjára  $R_{\max} = 38 \mu m$ ,  $R_0 = 4 \mu m$ , és  $P_A = 1.35 \text{ atm}$ . A buborék minimális sugaráról való visszapattanásának a vizsgálatára a 2.2.4. ábrán "acusto-optic modulátor"-al jelzett készülékkel a maximális sugár környékén (ahol a szórt fény intenzitása a legnagyobb) kikapcsolják a lézert, így a PMT csövet megfelelően nagy tápfeszültség mellett lehet használni (túl nagy anód-áram elérése nélkül), ami kisebb sugarakon is lehetővé teszi a detektálást. A 2.2.8. ábrán a buborék sugara  $t_n \sim 10 \text{ ns}$  alatt csökken  $R_0$ -ról a legkisebb felbontható sugárig. Az így végzett méréseket az előzőekben

leírt módszerrel végzett mérésekhez kalibrálják. A minimális sugár körüli mérés még tovább finomítható, folytonosan sugárzó lézer helyett nagyfrekvenciás (76 Mhz, 200 fs) impulzus lézert használva [B.B.97]. Az eljárás részletezése nélkül az eredmény a 2.2.9. ábrán látható. Az ábra adatai alapján a buborék falának sebessége eléri a normál állapotban lévő levegő hangsebességének 4-szeresét, és a visszapattanáskor a buborék falának gyorsulása  $10^{11}$  g.

### 2.2.3. A fénykibocsátó fázis megjelenése

A 2.2.2.-ban leírt eljárásokkal  $R(t)$  görbét lehet felvenni különböző kísérleti paraméterek mellett. Különösen érdekes a buborék átmenete fénykibocsátó fázisba, mert itt a buborékhoz használt gáztól függően egymástól lényegesen különböző viselkedést tapasztaltak. A 2.2.10. ábrán levegő buborék egy periódus alatti  $R(t)$  görbéi láthatók különböző nyomás amplitúdók mellett. A vastag fekete vonal a fénykibocsátást és annak relatív erősségét szemlélteti, a legkisebb nyomásamplitúdónál felrajzolt görbe a méréskor fellépő zaj nagyságát mutatja. Látható, hogy kb. 1.1 atm nyomásnál a fénykibocsátás megjelenésével együtt a buborékban lévő gáz mennyiségére jellemző  $R_0$  paraméter ugrásszerűen lecsökken. A szonolumineszcencia küszöb alatti buborékokat "pattogó" buborékoknak nevezték el, mivel ezeknél a kevésbé drasztikus összeroppanást követő utórezgések amplitúdója sokkal nagyobb, mint a fénykibocsátó buborékok esetén. A 2.2.11. ábrán a buborék két fázisa közti különbségek még szembetűnőbben látszanak. A 2.2.12. ábrán argon buborék  $R(t)$  görbéi láthatók [R.H. 94], a vastag vonal itt is a relatív fényerősséget jelképezi. Látható, hogy a levegő buborékkal ellentétben itt minden paraméter folytonosan változik, miközben a buborék átkerül a pattogó fázisból a szonolumineszcencia fázisba. További kísérletek alapján kiderült, hogy ugyanez a viselkedés tapasztalható az összes megvizsgált nemes gázra (Radon

buborékkal még nem végeztek kísérleteket). Ugyanakkor nitrogént, vagy oxigént tartalmazó gázkeverékekre az ugrásos átmenet a jellemző. A 2.2.13. ábrán nitrogén és 5% argon keverékéből álló buborék viselkedése látható [R.L.95]. (A relatív fényességet itt az  $R(t)$  görbék végén felrajzolt függőleges vonalak jelzik.)

#### **2.2.4. A fényintenzitás függése a kísérleti paramétereiktől.**

A szonolumineszcencia fázisban lévő buborék fényintenzitása és stabilitása nagyon érzékeny majdnem minden kísérleti paraméter, és külső körülmény kis megváltozására. A fényességet leginkább befolyásoló tényezők a buborék összetétele, a használt folyadék, a külső hőmérséklet, a külső sztatikus nyomás, a gerjesztési nyomásamplitúdó, a gerjesztés frekvenciája, a kigázosítás mértéke, és erős külső mágneses terek [J.Y.96] jelenléte. A következőkben, az ábrákon feltüntetett relatív intenzitások 150 mmHg parciális nyomásra kigázosított, levegő buborék 25kHz-es gerjesztés, 24°C külső hőmérséklet, és atmoszférius sztatikus nyomás mellett észlelhető legnagyobb fényességéhez ( $\approx 2 \cdot 10^5$  foton/felvillanás) lettek viszonyítva.

A fényesség függése a nyomásamplitúdótól 2.2.3. ábrái alapján tanulmányozható. Stabil buborékokra általánosan érvényes, hogy a nyomásamplitúdót lassan (egyensúlyi módon) növelve a fényesség monoton nő a felső határ eléréséig. A 2.2.14. ábrán levegő buborék fényességének és maximális sugarának válasza látható a nyomásamplitúdó hirtelen megváltoztatására [B.B.94]. Az **A** esetben a nyomás a felső határ fölé lett emelve, a **B** esetben pedig alacsony fénykibocsátásról lett feljebb emelve. Mindkét esetben a fényességben és a sugárban tranziensek játszódnak le, ami után az **A** esetben a buborék megsemmisül, a **B** esetben pedig új egyensúlyi értékek állnak be. A 2.2.15. ábrán vízben meghajtott, 2 mmHg-re kigázósított etán buborék maximális fényességének függése látható a sztatikus nyomás megváltozásától [B.B.97]. Az ábrán a felvillanások (félperiódushoz képesti) fázisának függése is fel van tüntetve.

A folyadéktól való függés abban nyilvánul meg, hogy a legtöbb folyadék alkalmatlan szonolumineszcencia létrehozására. A napjainkig elvégzett kísérletek alapján elmondható, hogy a legnagyobb fényességet, és a legstabilabb buborékokat víz használatával lehet elérni. Próbálkoztak víz és más folyadékok, pl. glicerin különböző arányú keverékeivel is [D.G.96], de a keverés mindig a fényesség rovására ment, viszont pl. kis mennyiségű glicerin megnövelheti a buborék stabilitását. (A stabilitás itt úgy értendő, hogy a buborék szemre kevésbé ugrál, egyenletesebben világít.) Vízben, és vizet tartalmazó keverékeken kívül néhány alkoholban sikerült még szonolumineszcenciát előállítani xenoné és levegő buborékokkal [B.B.97]. Úgy néz ki, hogy a folyadék és a gáz megválasztásának a problémáját együtt kell kezelni, de a jelenségről még olyan kevés ismert, hogy egyelőre lehetetlen megmondani, hogy a víz-levegő párosításnál található-e jobb kombináció. A következőkben fényesség alatt az adott paraméterek mellett elérhető legnagyobb fény intenzitás értendő.

### 2.2.5. A fényesség függése a buborék összetételétől

Lényeges eltéréseket tapasztaltak vízben meghajtott buborékok gáz összetételének megváltoztatásával is [R.H.94].(A továbbiakban a buborék összetételét úgy kell érteni, hogy a víz a kigázosítás során az adott összetételű gázkeverékkel került termodinamikai egyensúlyba. Mivel a buborék valódi összetételét direkt módon még nem sikerült megmérni, így az sem zárható ki, hogy a keverékek valamelyik komponense feldúsuljon.) Az első kísérleteket tiszta nitrogén buborékokkal végezték, mivel a levegő után ezt tartották a legkézenfekvőbbnek, de mind ez, mind a 20%oxigén-nitrogén keverék legalább 30-szor halványabb volt a levegővel elérhető értéknél. A 2.2.16. ábra tiszta nitrogén buborék relatív intenzitásának időfüggését mutatja. Látható, hogy a világitás nem stabil, és a nyomásamplitúdó értékétől függően különböző időskálán jelentősen fluktuál. Az **A** eset alacsony, a **B** magasabb gerjesztésnek felel meg.

(A buborék átlagos sugarát ( $R_0$  paraméterét) mérve, annak ingadozására hasonló görbéket kaptak.) Különösen érzékenynek bizonyult az elérhető fényesség a buborék nemesgáz tartalmának mértékére. A nitrogén mellett lévő nemesgáz arányának függvényében a relatív intenzitás a 2.2.17. ábrán látható. Mindhárom nemesgáz esetén az 1%-os arány maximálta a fényességet. (A mérések 150 mmHg kigázosítás mellett lettek végezve.) Hasonló viselkedést figyeltek meg oxigén-nemesgáz keverékekre is [D.C. 96].

### 2.2.6. A fényesség függése a kigázosítás mértékétől

Az elérhető legnagyobb relatív fényesség jelentős változását tapasztalták akkor is, ha a méréseket különböző kigázosítási szint mellett végezték [R.H.94], [D.C.96]. Ez látható a 2.2.18. és 2.2.19. ábrákon különböző arányú nitrogén-nemesgáz és oxigén-nemesgáz keverékekre. Valamennyi keverék buborékra az jellemző, hogy a telítési koncentráció (kigázosítás nélküli érték) felé közeledve a fénykibocsátás drasztikusan lecsökken, a tiszta nemesgáz buborékok fénye ezzel szemben nagyjából állandó minden kigázosítási szinten. Látható, hogy a nemesgáz %-os arányától függően a görbék jelentős különbségeket mutatnak.

A kis parciális nyomásokon (~3 mmHg) való kigázosításnak kitüntetett szerepe van, mivel itt olyan gázok esetén is megfigyeltek fénykibocsátást, amelyek nagyobb parciális nyomásokon nem világítanak, és nagyon instabilak [B.B.95]. Másrészt a gerjesztett buborék klasszikus diffúziós elmélete [R.L.95], [M.F.94] alapján a fénykibocsátó buborék csak kis (~3 mmHg) parciális nyomáson lehetne stabil (Ezzel szemben levegő buborékokat 150 mmHg kigázosításnál találták a legstabilabbnak). A 2.2.20. ábrán feltüntetett gázok esetén jól látható, hogy a fényességüknek maximuma van az elmélet által megállapított parciális nyomáson, valamint, hogy deutériumhoz argont keverve nem váltódott ki a 2.2.17. ábrán nitrogénre vázolthoz hasonló hatás. Tiszta nemesgáz buborékokat az elmélettel egyezően ~3 mmHg értéknél találták a legstabilabbnak. A 2.2.21. ábrán 150 mmHg -en kigázosított argon buborék relatív fényességének időfüggése látható. A mérési pontok az egymást követő periódusoknak felelnek meg. A 2.2.22. ábrán vázolt mérésben azt vizsgálták, hogy az akusztikus ciklus mely fázisában történik a felvillanás, és a fázis hogyan függ az időtől és a kigázosítás mértékétől. (Az ábra függőleges tengelyén az átlagos fázistól való eltérés lett feltüntetve.)

A 2.2.22. ábrán jól látható, hogy a fázis időbeli fluktuációja  $\sim 3$  mmHg-nél a legkisebb, viszont levegő buboréknál ez a stabilitás  $\sim 150$  mmHg kigázosításnál jelentkezik.

### 2.2.7. A fényesség függése a folyadék hőmérsékletétől

Különösen fontos az elérhető legnagyobb fényesség függése a külső hőmérséklettől, mivel ez, a nyomásamplitúdótól való függéshez hasonlóan, általános érvényűnek látszik. Az eddig megvizsgált esetekben a folyadék hőmérsékletét csökkentve mindig a fényesség monoton növekedést tapasztalták (Ettől eltérést, csak néhány alkoholban végzett mérésnél találtak). A fényerő fokozásának többnyire csak a folyadék fagyáspontja szab határt, illetve a fagyásponthoz közeledve a rezonátorok akusztikai tulajdonságai is megváltozhatnak, pl. a buborék "elmászik" középről. A 2.2.23. ábrán a felvillanásonkénti maximális fotonszám látható a hőmérséklet függvényében [R.H.92]. A mérést levegő buborékkal végezték vízben,



a frekvenciát mindig az adott hőmérsékleten érvényes rezonanciára hangolva. (A rezonancia frekvencia 27348 Hz-ről 27127 Hz-re változott, miközben a hőmérséklet 22°C-ról 7°C-ra csökkent.) A 2.2.24. ábrán a fotonszám ( $N$ ) hőmérsékletfüggésén kívül látható az is, hogy az adott fényességhez milyen nyomásamplitúdó,  $R_0$ ,  $R_{\max}/R_0$  paraméterek tartoznak [B.B.94]. ( $R_0$  a buborékban lévő gázmennyiséggel áll kapcsolatban,  $R_{\max}/R_0$  pedig az összeroppanás hevességére jellemző.) A feltüntetett hibakorlát az előbbi paraméterekből és azok kiindulási hibáiból, a szonolumineszcencia lökeshullám modelje [C.W.94] alapján számolt fényességet ábrázolja.

Megvizsgálták a hőmérsékletfüggést víz helyett különböző alkoholt használva folyadéknak [K.W.95]. Ezekben a mérésekben xenon és levegő buborékokat használtak, hélium és argon esetén nem láttak fénykibocsátást. A vízzel folytatott kísérletekkel összehasonlítva alkoholokban a buborék sokkal instabilabb, általában a nyomás duzzadóhely körül néhány mm-es tartományban ugrál. A 2.2.25. ábrán 150 mmHg kigázosításnál xenon buborék

fényességének hőmérsékletfüggése látható különböző folyadékokban. A 2.2.26. , 2.2.27. és 2.2.28. ábrák a maximális fényesség hőmérsékletfüggését mutatják rendre xenon buborékra 1-butanol-ban, xenon buborékra etanolban és levegő buborékra butanolban, különböző kigázósítási értékek mellett.

### **2.2.8. A kibocsátott fény spektruma**

Az egybuborékos szonolumineszcencia iránti tudományos érdeklődés nagyban köszönhető a fény spektrumának [R.H.92], [R.H.94], [R.H.95], [D.G.96], [T.M.95]. A 2.2.29. ábrán egy tipikus spektrum látható. A két folytonos vonal esetén 500 illetve 300 nm-en levágó szűrőket alkalmaztak, a (+) jelsorozat esetén nem használtak szűrőt. A spektrum levágása 200 nm ( $\sim 6$  eV) környékén egyrészt a kísérleti berendezés érzékenysége csökkenésének köszönhető, de főként annak, hogy a víz ilyen hullámhosszakon már jelentősen elnyel. Az ábráról leolvashatók a SBSL spektrumok legfőbb tulajdonságai. A színeképp folytonos, hiányoznak belőle a gáz, vagy a folyadék anyagára jellemző spektrumvonalak, és a fényesség a nagyobb energiák felé nő. Ez arra utal, hogy a buborék belsejében a gáz extrém hőmérséklet és nyomás értékeket ér el.

A nyers spektrumokat általában korrigálták a víz és a rezonátor kvarc ablakának elnyelésére. A következőkben a korrigált spektrumok esetén a 2.2.30. ábrán vázolt korrekciót alkalmazták. A 2.2.31. ábrán 150 mmHg parciális nyomásra kigázósított hélium buborék korrigált spektrumai láthatók különböző vízhőmérsékletek mellett. Az ábra nagyjából azonos spektrális eloszlást mutat minden hőmérsékleten, és a 2.2.8.-ban tárgyalt hőmérsékletfüggést. Különböző nemesgázok szobahőmérsékleten és a víz fagyáspontjánál felvett korrigálatlan spektrumai a 2.2.32. és 2.2.33. ábrákon láthatók. Mindkét mérésorozatot 3 mmHg kigázosítás mellett végezték. A spektrumok növekvő tömegszám mellett egyre nagyobb összintenzitást mutatnak, ugyanakkor az ultraibolya tartomány felé közeledve a spektrális sűrűség csökken a tömegszámmal.

Néhány nemesgáz, és nitrogén-nemesgáz keverék korrigált spektrumát a 2.2.34. ábra mutatja. A mérések 150 mmHg kigázosítás és 24°C-os vízhőmérséklet mellett lettek végezve. Érdeemes megfigyelni, hogy a keverék-buborékoknál a nitrogén hatása a tiszta nemesgázhoz képest

főleg az, hogy a fényességet növeli, miközben a spektrális eloszlást nagyjából változatlanul hagyja.

Különösen érdekes az a mérés, amelyben MBSL és SBSL spektrumait hasonlították össze [T.M.95]. A 2.2.35. ábrán feltüntetett spektrumokat víz és 0.1M nátrium-klorid oldatban végezték ugyanazzal a spektrométerrel. A SBSL mérést ~130 mmHg kigázosítás mellett végezték, míg a MBSL esetben az oldatot nem gázosították ki. A spektrumok úgy lettek skálázva, hogy mindkettő megjeleníthető legyen egy ábrán, ezért az intenzitás adatok nem mérvadóak. Lényeges különbséget jelent azonban vonalak megjelenése a MBSL spektrumban. A 310 nm-es vonal gerjesztett OH-gyöktől származik, míg 589 nm-en a nátrium D vonala látható.

A nátrium vonalának megjelenése a sokbuborékos kísérletben arra utal, hogy az oldott anyag bekerült a buborékok belsejébe. Mivel a nátrium nem párolog ki az oldatból, ez legvalószínűbb módon úgy történhet, hogy az oldatot egy kialakuló "jet" beinjekciózza. Nemszférikus rezgéseket végző buborékok esetén (ami a MBSL-re is jellemző a sok buborék kölcsönhatása miatt) megfigyeltek jet-képződést (2.2.36. ábra) A SBSL mérésnél a nátrium vonal teljes hiánya arra utal, hogy itt a buborék rezgései csak kis mértékben térhetnek el a gömbszimmetriától. Ezt a lökeshullám modell eleve fel is tételezi, mivel a gömbszimmetria az energiakoncentráció kulcsa. Ezek alapján a MBSL és SBSL fénykibocsátó mechanizmusai jelentősen eltérhetnek egymástól.

Az egybuborékos szonolumineszcencia spektrumok leglényegesebb tulajdonsága, hogy jól illeszthetők feketetest-sugárzással, viszont az illesztésből adódó effektív hőmérséklet tág

határok között mozoghat. Ennek az egyik oka, hogy a spektrumok csak a látható tartományban ismertek, másrészt az illesztéshez fel kell használni olyan paramétereket amelyekre csak nagyságrendi becslések vannak ( $R_f$  a fénykibocsátó régió sugara), vagy aminek az értékére a különböző cikkek eltérő értékeket adnak meg ( $\tau$  a felvillanás hossza), és ezek az illesztésnek elég nagy szabadságot adnak. A 2.2.37. ábrán levegő buborék spektruma látható [R.H.92]. A mérés 22°C-os vízben lett végezve 27 kHz rezgetés mellett. Az ábrán a pontozott vonal és a hibahatárral ellátott pontok ugyanannak a mérésnek két különböző módszerrel végzett kalibrációja. A folytonos vonal 25 000 K effektív hőmérsékletű ( $R_f = 0.5 \mu\text{m}$ ,  $\tau = 50 \text{ ps}$ ) feketetest sugárzásnak felel meg. (Az illesztés érzékenységére jellemző, hogy ha azt  $R_f = 0.3 \mu\text{m}$ ,  $\tau = 12 \text{ ps}$  mellett végzik, akkor az effektív hőmérsékletre 131 000 K adódik).

A 2.2.38. ábrán szintén levegő buborék spektruma látható, ahogy egy másik kutatócsoport mérte [D.G.96.]. A mérés ~43 kHz mellett lett végezve (a víz hőmérsékletét nem közölték), és a kapott spektrumra 16 200 K effektív hőmérsékletű ( $R_f = 1 \mu\text{m}$ ,  $\tau = 50 \text{ ps}$ ) feketetest sugárzást találtak a legjobb illesztésnek. Az ábrán a szimbólumok az ő kísérleti eredményüket tüntetik fel, a folytonos vonal pedig [R.H.92] mérésével egyezik meg. Megvizsgálták még azt is, hogy a vízhez glicerint keverve hogyan változik a spektrum (2.2.39. ábra.). Az ábrán három spektrum látható, a négyzetek a tiszta víznek (43 kHz), a rombuszok és a körök rendre 25% (46 kHz) és 40% (52 kHz) -os glicerin aránynak felelnek meg. A glicerines spektrumokra ~10 000 K-es effektív hőmérsékletet adtak meg.

### 2.2.9. A felvillanások hosszára irányuló mérések

A szonolumineszcenciát jellemző legrövidebb időskálának a felvillanások hossza bizonyult, ami rövidebb az  $R(t)$  görbék felvételénél felbontott legkisebb (500 ps) időskálánál. Sokáig a felvillanások hosszára csak felső korlátokat adtak. A 2.2.40. ábrán egy 170 ps felfutási idejű fotoelektron-sokszorozó válasza látható szonolumineszcencia felvillanásra (folytonos görbe), és 34 ps-os lézer impulzusra (pontozott vonal) [B.B.92]. A lézer impulzus felfutási idejét tipikusan 172 ps-nak mérték, a buborék felvillanásainak felfutási idejére pedig 172-176 ps értéket kaptak. Ezek alapján a felvillanások hosszára 50 ps-os felső határt állapítottak meg.

Érdeemes megfigyelni, hogy a felvillanásra adott válasz hamarabb lecseng mint a lézer-impulzusra adott válasz. Ez azért van mert a lézer-impulzust utórezgés jellemzi, míg a felvillanás esetében ez hiányzik. Más módszerrel (streak-camera nyom-kamera?) végzett mérésnél a buborék felvillanásainak hosszára 12 ps-os felső határt állapítottak meg [M.M.95]. A legfrissebben publikált mérésben [R.H.98] ismét más módszerrel (time-correlated single-photon counting) többféle gázt tartalmazó buborékokra, és széles paraméter tartományban vizsgálták a felvillanások hosszát különböző hullámhosszak mellett. A megmért esetek alapján úgy tapasztalták, hogy a felvillanások hossza 35 ps-tól (levegő buborék vízben 20 mmHg kigázosításnál) 380 ps-ig (1% xenon-oxigén keverék vízben, 300 mmHg kigázosításnál) terjed. Nagy jelentőségű az a mérési eredmény, hogy a felvillanások hossza minden esetben függetlennek adódott a fény hullámhosszától. (Ez alapján végleg elvethető a

SBSL adiabatikus felhevülésen alapuló modellje, mivel ez a hosszabb hullámhosszakon nagyobb felvillanáshosszat jósol, ahogy a buborék felhevül, majd lehül.) A 2.2.41. ábrán a felvillanáshossz látható a hullámhossz függvényében különböző buborék, kigázosítás és intenzitás mellett. A zárójelekben feltüntetett számok a levegő buborék vízben, 150 mmHg kigázosításnál elérhető maximális fényességhez viszonyított relatív intenzitások. A 2.2.42. és 2.2.43. ábrákon 500 nm-en mért felvillanáshossz látható a relatív intenzitás függvényében, különböző vízhőmérséklet, illetve különböző gázt tartalmazó buborékok esetén. A 2.2.42. ábrán 1% xenon-oxigén keveréket használtak, 300 mmHg kigázosításnál. A 2.2.43. ábra esetében a méréseket 20°C-os vízben végezték, a körök 3 mmHg xenon, a háromszögek 3 mmHg argon, a keresztek 3 mmHg hélium, a rombuszok 20 mmHg levegő, és a négyzetek 300 mmHg 1% xenon-oxigén buborékokat jelentenek. A betétábrán a 3 mmHg argon mérés viszonya látható a lökés hullám-modellből [C.W.93] adódó felvillanáshosszakhoz.

### 2.2.10. Disszociációs hipotézis

A 2.2.3.-ban gázkeverékekre leírt viselkedés magyarázatára kémiai reakciók lejátszódását javasolták [D.L.97]. A kémiai reakciók szerepét már régóta felismerték a MBSL

kísérletekben. Már 1936-ban nitrogén vizes oldatát erős ultrahanggal gerjesztve,  $\text{HNO}_2$  és  $\text{HNO}_3$  savak képződését figyelték meg [H.S.36]. Ezt úgy magyarázták [D.L.97], hogy a buborékok összeroppanásai következtében a legkisebb sugárnál a hőmérséklet meghaladta az oxigén és nitrogén disszociációs hőmérsékletét (~9000 K). A jelenlévő nitrogén és oxigén molekulák felbomlásából O és N-gyökök képződnek, amik a buborék visszahülésekor reakcióba lépnek a vízgőz felbomlásából származó H és O-gyökökkel. A képződő NO, OH, és NH-t termékek rövid idő alatt feloszlanak a vízben, ami az említett  $\text{HNO}_2$  és  $\text{HNO}_3$  savak képződéséhez vezet. Az egybuborékos szonolumineszcencia spektrumai (2.2.8.) [R.H.92], és hidrodinamikai szimulációk [W.M.97] alapján SBSL esetén még magasabb hőmérsékletek érhetők el mint MBSL-ben, így hasonló kémiai reakciók fellépte várható egybuborékos esetben is. A reakció termékek nagyon gyorsan elhagyják a buborékot, és a következő ciklusban sem diffundálnak vissza, mivel ezek oldhatósága a vízben nagyságrendekkel nagyobb mint a kiinduló anyagoké. Egy eredetileg levegő buborékból néhány periódus elteltével, a hipotézis szerint csak a reakcióba nem lépő nemes gázok, jelen esetben az argon marad meg (a levegő 1%-a argon). A disszociációs hipotézissel értelmezhetőek a 2.2.3.-ban leírt különbségek a tiszta argon (vagy más nemesgáz), és levegő (vagy más gázkeverék) buborékok viselkedése között. Ezek szerint a levegő buborék fénykibocsátó fázisába való átmenete során  $R_0$  ugrásszerű lecsökkenése annak tudható be, hogy a buborék hőmérséklete ezen a ponton haladta meg a nitrogén, és oxigén disszociációjához szükséges határt. Nemesgáz buborékokban ilyen hatás nem lép fel, ezért ott az átmenet folytonos. A hipotézisből az is következik, hogy a fénykibocsátó fázisban lévő levegő buborék tulajdonképpen argon buborék.

A disszociációs hipotézis alátámasztására megvizsgálták levegő, nitrogén, és argon buborék tranziens válaszát a nyomásamplitúdó hirtelen, fénykibocsátó küszöb fölé emelésére [T.M. 97]. (A 2.2.3.-ban leírt mérésekben minden  $R(t)$  görbe többszáz periódus kiátlagolásával lett felvéve, ezért ott a buborék végig "egyensúlyi" állapotban volt, különböző  $P_A$  mellett.) A tranziens mérésekben 240 perióduson keresztül vették fel a buborék fényét ( $x$ ) és a sugár négyzetével arányos jelet (+). A mérések közben a nyomásamplitúdót hirtelen, kb. 90 periódus alatt 1.0-ról 1.4 atm -ra növelték. A rezonátor sajátfrekvenciája 30 kHz volt. A 2.2.44.a ábrán a mérés kezdetén látható levegő buborék még nem volt szonolumineszcencia fázisban. A küszöb fölé emelve a nyomásamplitúdót (~120. periódusban), a zajtól alig megkülönböztethető fénykibocsátás látható, ami később s-os időskálán megnőtt (ez az ábrán már nem látszik). Ezt a mérést 10°C-os vízhőmérséklet mellett végezték. A 2.2.44.b ábrán az



előzetesen (~30 s-ig) fénykibocsátó fázisban lévő buborék nyomásamplitúdóját 1.0 atm -ra csökkentették, majd kb. 90 ms (2700 periódus) után újra 1.4 atm -ra növelték (az ábrán kb. a 120. periódusban). Itt a mérést szobahőmérsékleten végezték, ennek ellenére jelentős fényességet észleltek. A két mérés közti különbség jól értelmezhető a disszociációs hipotézissel. A 2.2.44.a ábrán a kezdeti buborék levegőt tartalmaz. A nyomásamplitúdót megnövelve, az ábrán feltüntetett idő alatt a nitrogénnek és az oxigénnek még nem volt ideje "kiégni", ezért a fényesség a tiszta nitrogénre és oxigénre jellemző alacsony értéket mutat. A 2.2.44.b ábrán a buborék 30 s-ig fénykibocsátó fázisban volt, és ennyi idő már fel tudott dúsulni argonnal. A nyomásamplitúdót 90 ms-ig lecsökkentve még megmaradt az argon túlsúlya, ezért visszanoveléskor a buborék egyből a nemesgázokra jellemző nagy fényességgel világított. Ezt a képet alátámasztják a 2.2.45.a és 2.2.45.b ábrákon feltüntetett tiszta nitrogén és tiszta argon buborékokkal végzett tranziens mérések. (A nitrogén esetében itt is hűtötték a vizet.) Látható, hogy az intenzitások a 2.2.44.a és 2.2.44.b ábrákon vázoltakhoz hasonlóan alakulnak.

### 2.2.11. A nyitott kérdések, a kísérleteket legjobban magyarázó elméletek, és a gyakorlati felhasználások áttekintése

Az előző pontokban felsorolt kísérleti eredmények többségére egyelőre nincs kielégítő elméleti magyarázat. A szonolumineszcenciával kapcsolatos legfontosabb nyitott kérdések a következők:

- Mi a fénykibocsátó mechanizmus ?
- Mi a szonolumineszcencia során elérhető energia-koncentráció felső határa ?
- Hogyan folytatódik a spektrum a víz ultraibolya elnyelése mögött ?
- Mi határozza meg a fénykibocsátó fázis alsó és felső nyomásamplitúdó határait ?
- Mi határozza meg a buborék  $R_0$  átlagos sugarát, ami körül az erősen nemlineáris rezgés létrejön ?
- Miért szükséges nemesgáz a stabil, fényes világításhoz, és miért olyan instabilak és halványak a többatomos gázt tartalmazó buborékok ?
- Miért a víz a legmegfelelőbb folyadék szonolumineszcencia létrehozására ?
- Mivel magyarázható a fényesség erős függése a folyadék hőmérsékletétől ?

A kísérleti eredményeket (spektrum, intenzitás, felvillanás hossza) leginkább visszaadó elméletnek idáig a szonolumineszcencia lökeshullám modellje bizonyult [C.W.94], [L.K.95], [W.M.97]. E szerint a buborék összeroppanásának végső szakaszában egy szférikus lökeshullám alakul ki, ami a középpontba konvergálva egyre felerősödik. A lökeshullám tulajdonsága, hogy a front mögötti gázt felfűti és összenyomja. Ideális esetben a lökeshullám végig megtartaná a gömbszimmetriát, és a középpontban a gázt minden határon túl felfűtené. A valóságban mindig fellépnek olyan instabilitások amik elrontják a gömbszimmetriát, így az elérhető hőmérséklet attól függ, hogy az instabilitások a centrumtól milyen távolságban jelentkeznek. A forró gázban a modell szerint a Nap szerkezetéhez hasonlóan egy optikailag sűrű és egy optikailag ritka régió alakulna ki. Az optikailag sűrű régió felszíne hőmérsékleti sugárzást bocsátana ki, míg az optikailag ritka régió fékezési sugárzás útján bocsátana ki fényt.

Meg kell azonban említeni, hogy idáig nem sikerült a feltételezett lökeshullámot kísérletileg kimutatni. A lökeshullám modellen kívül számos más mechanizmust is javasoltak a

fénykibocsátásra, mint pl. *qantum vacuum radiation* [C.E.96], vagy *collision induced emission* [L.F.94]. Létezik egy olyan elmélet is, ami szerint az összeroppanás nem gömbszimmetrikus, és ennek következtében a folyadék egy "jet"-et lövell be a buborékba, ami nagy sebességgel csapódik a szemközti falnak, az összeütközéskor fényt bocsátva ki (A. Prosperetti 1996). Ez a modell érvényes lehet MBSL esetben, de az egybuborékos szonolumineszcencia esetében kevésbé valószínű.

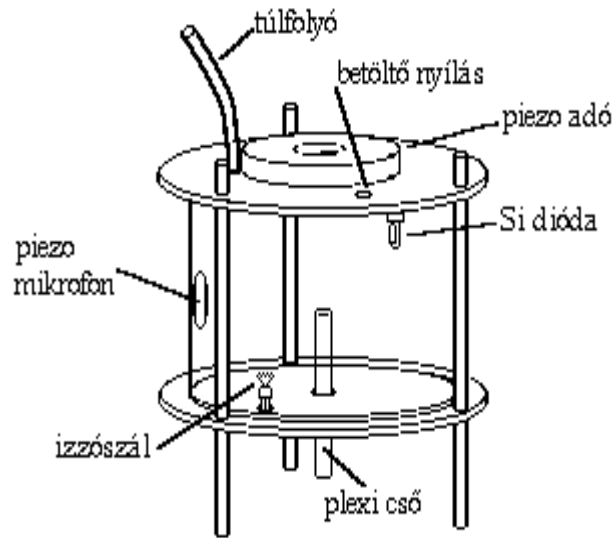
Az  $R_0$  átlagos sugarat meghatározó diffúziós elmélet [R.L.95], [M.F.94] jól működik nem fénykibocsátó fázisban lévő buborékokra, de levegő és más keverékek esetén szonolumineszcencia fázisban a kísérletekben mérttől nagyságrendekkel eltérő értéket ad meg.

A lökéshullám modell alapján végzett számítógépes szimulációk a buborék belsejében  $10^8$  K nagyságrendű hőmérsékleteket jósolnak, ami sokakat arra a spekulációra vezetett, hogy ha előállítható lenne szonolumineszcencia deutérium-trícium keverékkel, akkor abban kisszámú fúziós reakció is lezajlódhatna [9]. Ha ez valóban így volna, akkor a szonolumineszcencia a termonukleáris fúzió tanulmányozásának egy olcsó módszerét adhatná. Egyes alkalmazásokban az egybuborékos szonolumineszcencia felválthatná a sokkal drágább ps-os impulzus lézereket is. A sokbuborékos szonolumineszcenciát már napjainkban is használják veszélyes hulladékok lebontásának katalizálására, és különleges anyagok (pl. amorf vas) laboratóriumi szintű előállítására. A vas a nagyon rövid ideig tartó magas hőmérsékletéről olyan hirtelen hűl le, hogy kristályosodás nélkül szilárdul meg. A szonolumineszcencia jelenségét jobban megértve még számos gyakorlati alkalmazásra lehet számítani a szonokémia és a tudományok más területein.

### 3. KÍSÉRLETI MÓDSZER

A diplomamunka során a szonolumineszcencia előállítására szolgáló számos berendezést és eljárást próbáltunk ki, és tökéletesítettünk. A következőkben azok a legújabban elkészített berendezések kerülnek leírásra, amelyeket a 4.1. és a 4.2.-ban leírt mérésekben használtunk.

#### 3.1. Rezonátor



3.1. ábra

A rezonátor (3.1. ábra) két 1.5 mm vastag alumínium tárcsa által közrefogott pyrex-üveg- hengerből áll. Az üveghenger és a tárcsák között szilikon-gumi tömítőgyűrűket helyeztünk el, amelyek fixálására a tárcsák belső felületén 0.5 mm mély vajat alakítottunk ki. Az alumínium tárcsák külső oldalára középen lyukas piezo adókat ragasztottunk, ezek szolgálják a vízben az állóhullámok keltését. Az üveghenger oldalára egy piezo mikrofont (hasonló a kvarc órákban megtalálható csipogókhoz) ragasztottunk fel, ami a berendezés sajátfrekvenciájának a megtalálásához szükséges. A mikrofon jele, akusztikus rezonancia esetén, a nyomásamplitúdóval arányos jelként is használható.

A buborékok keltésére egy zsebizzóból (3.5 V , 0.2 A) kiszedett izzószál szolgál, ami egy a tárcsába épített aljzatba tehető. Erre az izzószál cserélhetősége érdekében van szükség, mivel az néha kiég. A buborék keltéshez elegendő a másodperc töredékéig áramot átfolyatni az izzószálon, amihez egy szabályozható tápegységet és egy nyomógombot használunk. A víz hőmérsékletének mérésére egy beépített Si diódát használtunk. A víz betöltésére és a levegő eltávolítására két nyílás szolgál. Feltöltés után a vízbevezető nyílás egy csavarral elzárható, így a víz a környező levegővel csak a másik kis ( $d=2$  mm) nyíláson keresztül érintkezik. Az ezen

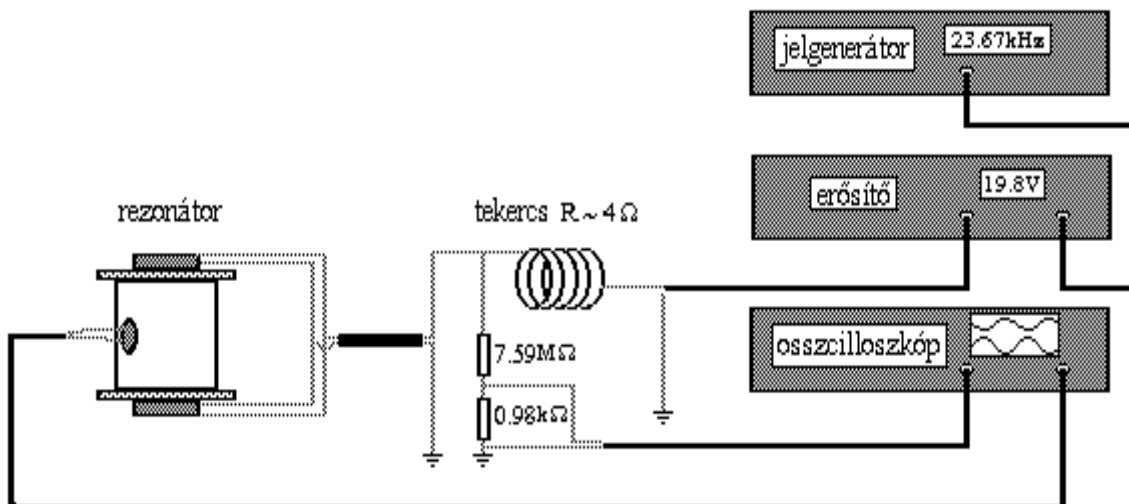
keresztül a mérések ideje alatt bediffundáló levegő okozta koncentrációváltozás elenyésző (<4 mmHg / óra) . A kb. 300 mmHg nyomáson elkészített vizet betöltve, egy nappal később is lehet látni szonolumineszcenciát, ami azt jelenti, hogy a koncentráció nem emelkedett a telítettségi érték felénél sokkal feljebb. A rezonátor sajátfrekvenciája szempontjából a legfontosabb adatok az üveghenger méretei. Ezek, valamint a mért és (2.2.3.) képletből (a vízbeni hangsebességet 1480 m/ s-nak véve) számított sajátfrekvenciák a 3.1. táblázatban találhatóak. Látható, hogy a (2.2.3.) képlet jól használható a cylinder alakú rezonátorok sajátfrekvenciájának megbecslésére.

### 3.1. táblázat

magasság	sugár	vastagság	számított sajátfrekvencia	(T=21°C) mért sajátfrekvencia
57.7 mm	29.15 mm	2 mm	23.25 kHz	23.35 kHz

A 4.2.-ban leírt mérés elvégzéséhez az alsó alumínium tárcsába 8 mm átmérőjű lyuk lett kialakítva, amibe gumi tömítésen keresztül a méréshez szükséges plexi cső illeszthető. A 4.1. mérésben ezt a nyílást vékony cellux réteggel ragasztottuk le.

### 3.2. Kísérleti alap-összeállítás



3.2. ábra

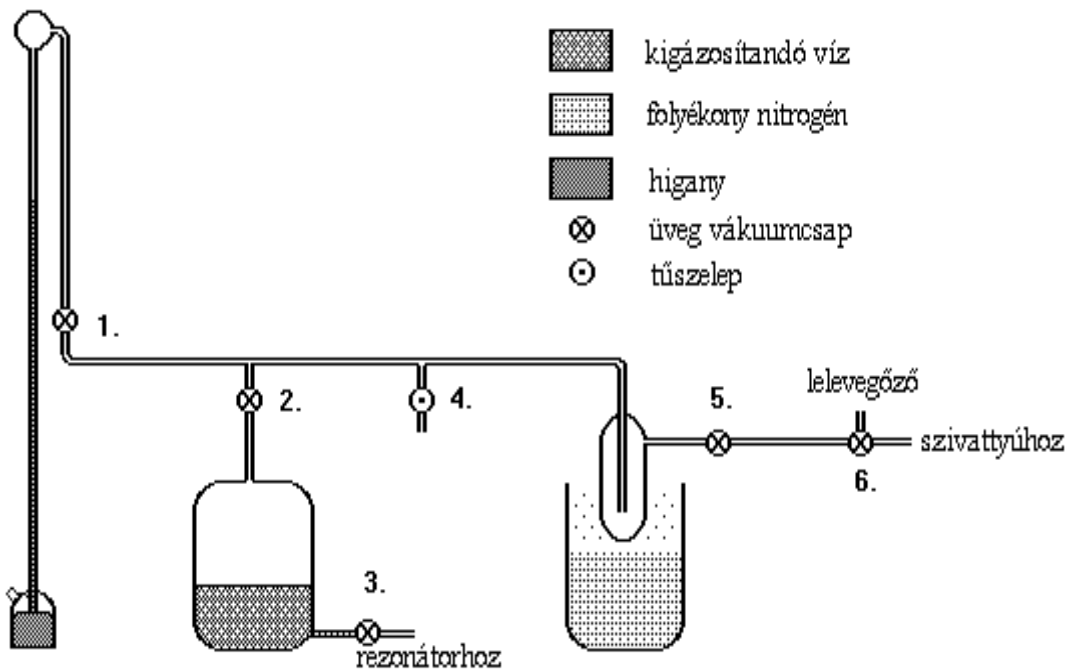
Szonolumineszcencia előállításához használt berendezések, és a kísérleti összeállítás a 3.2. ábrán láthatók. A szinuszos elektromos jelet egy jelgenerátor szolgáltatja, amit egy audió erősítőbe vezetünk. A felerősített jel egy soros rezgőkör számára biztosítja a váltófeszültséget. A rezgőkörben a kapacitásnak a két párhuzamosan kapcsolt piezo adó felel

meg. A tekercs induktivitását egy ferrit-mag ki-be tolásával lehet változtatni, és ezzel a rezgőkör elektromos rezonanciáját a rezonátor akusztikus rezonanciájához hangolni. A piezo adókra adott feszültség leolvasása és megjelenítése céljából a piezokkal egy feszültség osztót kapcsoltunk párhuzamosan .

### 3.3. A kísérletek előtti beállítások menete

1. Lényeges, hogy a berendezéseket olyan üzemi viszonyok mellett használjuk ahol legnagyobb a tűrésük, és legkisebbek az ingadozások. Ez a jelgenerátor és az erősítő esetében fontos mivel a buborék fénykibocsátása rendkívül érzékeny a frekvencia és a meghajtó feszültség kis megváltozásaira.
2. A rezonátor feltöltése részlegesen kigázosított vízzel.
3. A tekercset egy kapcsolóval kiiktatva az akusztikus rezonancia megkeresése a 2.2.1.-ban leírtak szerint.
4. A tekercset az áramkörbe visszakapcsolva, a ferrit rudat addig kell a tekercsbe betolni, amíg az akusztikus rezonancia frekvenciáján a mikrofon vagy a piezo adók jele maximális nem lesz.
5. Buborék keltése, majd a meghajtó feszültség növelése a világítás eléréséig.

## 3.4. Kigázósító készülék



3.3. ábra

A kigázósító készülék (3.3. ábra) egy higanyos manométerből, puffer-edényből, vízgőz kifagyasztóból, és hozzájuk csatlakoztatott rotációs szivattyúból áll. A manométerről kb. 0,3 mmHg pontossággal olvasható le a nyomás. A kifagyasztó egy folyékony nitrogénnel megtöltött termoszba lóg bele, úgy, hogy azt a nitrogén gőze hűtse. A kifagyasztásra azért van szükség, mert a vízgőz belekerülve a szivattyúba tönkretenné azt. Kigázosítás előtt le kell olvasni egy barométerről a légnyomást, és meg kell mérni a kigázosítandó víz hőmérsékletét. A manométerről leolvasható beállított nyomás a víz felett lévő levegő nyomása és az adott hőmérsékletű gőznyomás összegeként adódik. Mivel a vízben oldott gázok koncentrációját termodinamikai egyensúlyban a parciális nyomásaik és a hőmérséklet határozza meg (3.1. képlet) [N.K.Term.], ezért a koncentráció számításához a gőznyomást mindig le kell vonni a leolvasott értékből.

$$X = \xi \cdot p \cdot \exp\left(\frac{Q}{R \cdot T}\right) \quad (3.1.)$$

A fenti képletben  $X$ ,  $p$ ,  $Q$ ,  $\xi$ ,  $T$ ,  $R$  rendre a gáz koncentrációja, parciális nyomása, moláris oldáshője, gázra jellemző állandó, hőmérséklet és a moláris gázállandó szerepelnek. Valóságos gázok esetén a hőmérsékletfüggés kis mértékben eltér az exponenciálistól. Az

esetünkben fontos Nitrogén és Argon gázokra  $p=1$  atm mellett érvényes (empirikusan megállapított, 273.15 K - 348.15 K ig érvényes) hőmérsékletfüggések [CRC]:

$$X_0 = \exp\left(A + \frac{B}{T^*}\right) \cdot (T^*)^C \quad T^* = T/100K \quad (3.2.)$$

	A	B	C
Argon	-57.6661	74.7627	20.1398
Nitrogén	-67.3877	86.3213	24.7981

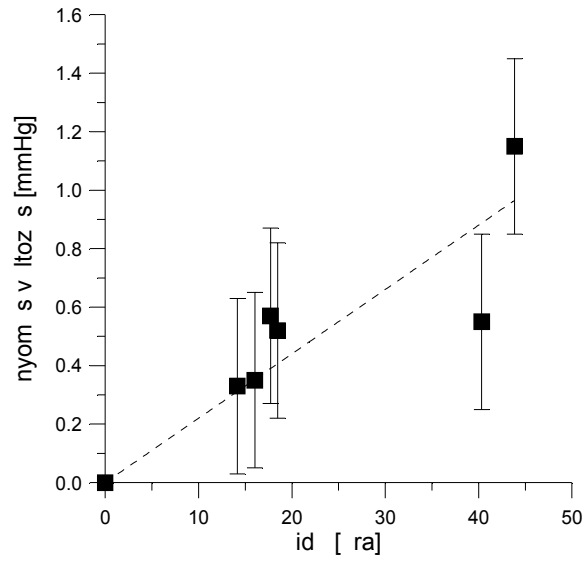
Tetszőleges  $p$  nyomáson érvényes  $X$  egyensúlyi koncentráció ezek után Henry törvényéből számolható:

$$\frac{X}{X_0} = \frac{p}{p_0} \quad (3.3.)$$

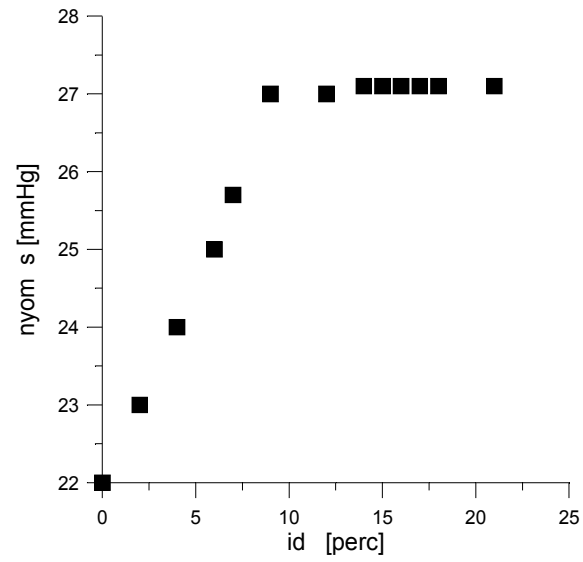
A kigázosító készülék beömlését a (3.4. ábra) mutatja. A feltüntetett nyomás változásokat korrigáltuk az idő közben megváltozott légköri nyomás és a változó labor hőmérséklet miatt megváltozó gőznyomás hatásaira. A beömlés olyan kicsi, hogy az adatokon erősen érződik a nyomás leolvasási hibája. Az illesztett egyenes meredeksége alapján a beömlés kb. 0.02 mmHg/óra . A kigázosítási procedúra kevesebb mint 30 perce alatt a beömlés elhanyagolható.

A 3.5. ábrán egy tipikus kigázosítás menete látható. Ha a kigázosítandó víz a 3.3. ábrán feltüntetett 2. csap elzárásával leválasztottuk, és a kifagyasztóban felgyülemlt kevés víz megfagyott, akkor a szivattyú 3 mmHg nyomásig tudta leszívni a rendszert, ami kb. -5 °C-os jég feletti gőznyomásnak felel meg. A 2. csapot kinyitva a szivattyú 22 mmHg-ig szívta le a rendszert ami jól egyezik a 24 °C-nak mért hőmérsékleten érvényes 22,377 mmHg-os gőznyomással. Ezek után a szivattyút leválasztottuk. A vízből felszabaduló levegő kis mértékben megnövelte a nyomást, és kb. 15 perc után beállt az egyensúly. Az ábrán látható egyensúlyi nyomásból levonva a 22.377 mmHg-os gőznyomást, megállapítható, hogy ez a víz 4.7 mmHg-os szintre lett kigázosítva.





3.4. ábra



3.5. ábra

## 4. A SZONOLUMINESZCENCIA KÍSÉRLETI VIZSGÁLATA

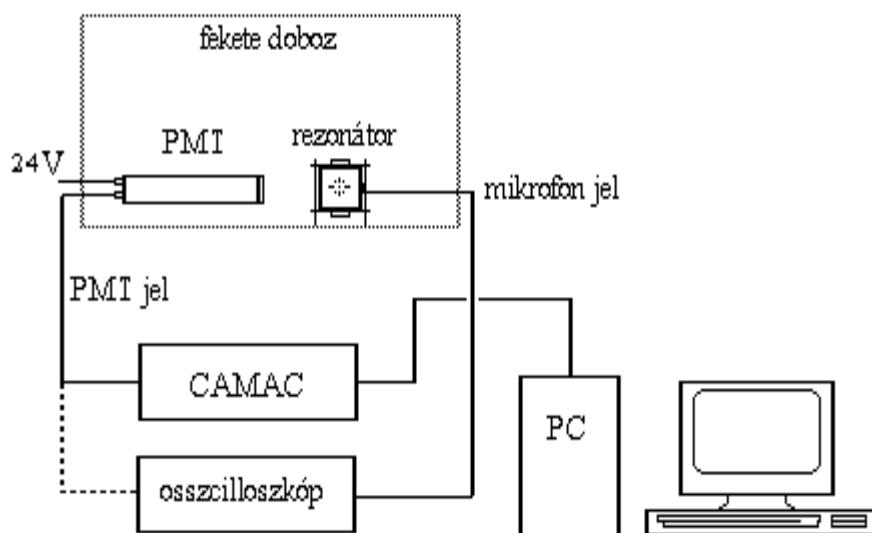
### 4.1. A buborék viselkedésének, valamint a fényintenzitás és fluktuációjának függése a koncentrációtól és a gerjesztő amplitúdótól.

#### 4.1.1. A kísérlet motivációja

Az ELTE Atomfizikai Tanszékén a szonolumineszcencia jelenségével 1996-97-ben kezdtünk foglalkozni. Az első kísérleteket elsősorban azzal a céllal végeztük, hogy a buborék viselkedéséről egy széles paraméter tartományban átfogó képet kapjunk, valamint, hogy összehasonlítást végezhessünk mások eredményeivel [R.H.94], [D.G.96]. A mérés a kigázósító készülék és a kigázósítási eljárás tesztelését is szolgálta. Másik motiváló tényező, hogy a fényesség fluktuációjának a kísérleti paraméterektől való függését vizsgáló mérést nem találtunk az irodalomban.

#### 4.1.2. A kísérlet leírása

A kísérleti összeállítás vázlatát a 4.1.1. ábrán látható. A szonolumineszcencia előállításához szükséges berendezések (az ábrán nincsenek feltüntetve) megegyeznek a 3.1.2.-ben leírtakkal.



4.1.1. ábra

Hat különböző koncentráció és változó gerjesztő amplitúdó mellett a következő méréseket végeztük:

1. A buborék dinamikai fázishatárainak a leolvasása. A fázisok növekvő gerjesztő amplitúdó mellett a következők lehetnek:

**D** - A buborék nincs diffúziós egyensúlyban, másodperces időskálán teljesen feloszlik a vízben.

**S<sub>1</sub>**- Instabil diffúziós egyensúlyi fázis.

**U** - A buborék fala nemszférikus rezgéseket végez, mikrobuborékokat lövell ki, ami szemre a buborék "táncoló" mozgásában nyilvánul meg.

**S<sub>2</sub>**- Stabil diffúziós egyensúlyi fázis, a buborék "táncoló" mozgása abbamarad.

**SL**-Szonolumineszcencia fázis. A buborék itt kezd el világítani, egyre nagyobb gerjesztés mellett egyre fényesebben, egy felső határ eléréséig, ami felett a buborék megsemmisül.

A **D**, **S<sub>1</sub>**, **U** fázisokat szemmel figyeltem meg a buborékot oldalról erős fényel világítva meg. A fázisok határainál a nyomásamplitúdóval arányos mennyiségeket, a piezo mikrofon jelét, és a piezo adókra adott feszültséget jegyeztem fel, valamint tájékoztató jelleggel az erősítő effektív kimeneti feszültségét. A **SL** fázis határait a következőkben részletezett mérésekből állapítottam meg. Ezek ismeretében **S<sub>2</sub>** határai már adódnak.

2. A rezonátort a fényzáró fekete dobozba tettem, (4.1.1. ábra) ahol a fénykibocsátást egy a buboréktól (A rezonátor közepétől) 10 cm-re elhelyezett fotoelektron-sokszorozó detektálta. A fotoelektron-sokszorozó jelét az oszcilloszkópról vezetve olvastam le. Ezzel a módszerrel a jel átlagértékét lehet megállapítani, kb.  $\pm 20$  mV leolvasási hibával. Ugyanakkor a piezo mikrofon és a fotoelektron-sokszorozó jelét egyszerre megjelenítve leolvasható, hogy a fényfelvillanás az akusztikus ciklus mely fázisában történt. (Feltételezve, hogy a mikrofon elektromos jele fázis-helyesen tükrözi a nyomás időbeli változását.) A fázis adatok segítségével megbecsülhetőek a buborék dinamikája szempontjából fontos paraméterek (lásd 5.1.). A fázist a felvillanások és a mikrofon szinusz jele zérushelyének (ahol a derivált pozitív) távolságával adtam meg. Ennek a leolvasási hibája kb.  $\pm 0.1$   $\mu$ s. A fázis negatív, ha a felvillanás a zérushely előtt érkezett. A szonolumineszcencia alsó határának azt vettem amikor a fotoelektron-sokszorozó jele kisebb volt 50 mV-nál, felső határnak pedig azt a maximális jelet, amin a buborék kb.

10s-on belül megsemmisült. (Néha a megsemmisülés helyett a jel először hirtelen 50 mV körüli értékre zuhan és csak utána tűnt el teljesen.)

3. A fénykibocsátás és fluktuációjának pontosabb detektálása érdekében a fotoelektron-sokszorozó jelét a 4.1.1. ábrán CAMAC-al jelölt sokcsatornás amplitúdó-analizátorba vezettem egy erősítő (az ábrán nincs jelölve) közbeiktatásával. Az amplitúdó spektrumokon 10s alatt jött felvillanások fényesség-eloszlását vettem fel. A spektrumokon a vízszintes tengelyen ábrázolt csatornaszám a felvillanások fényességével arányos, a függőleges tengelyen ábrázolt gyakoriság, az adott csatornába érkező felvillanások számát adja meg. A kis csatornaszámoknál jelentkező elektronikus zaj miatt 70 mV-nál kisebb PMT jeleknél nem vettem fel spektrumokat.

### 4.1.3. Mérési adatok

A következő táblázatokban a nyers mérési adatok találhatóak, a &-al jelzett esetekben amplitúdó-spektrumokat is felvettünk. A táblázatokban feltüntetett mennyiségek:

frekvencia - hibája  $\pm 5$  Hz

piezo fesz. - piezo adókra adott váltófeszültséggel arányos jel amplitúdója,  
leolvasási hibája  $\pm 1$  mV

p. mikrofon - piezo mikrofon jele csúcstól csúcsig, leolvasási hibája  $\pm 20$  mV

erősítő - az audio erősítő effektív kimeneti feszültsége, hibája  $\pm 0.1$  V

PMT jel - fotoelektron-sokszorozó jele, leolvasási hibája  $\pm 20$  mV

fázis - a 4.1.2. ban a 2. mérésben leírt fázis, leolvasási hibája  $\pm 0.1$   $\mu$ s

din. fázis - a 4.1.2. ban az 1. mérésben leírt dinamikai fázisok felső határai

kigázosítás - a beállt egyensúlyban a levegő parciális nyomása a víz felett, hibáját a víz hőmérsékletének  $\pm 1^\circ\text{C}$ -os hibája határozza meg a gőznyomás hőmérséklet függése által

4.1.1. táblázat

víz hőmérséklet: $24.5 \pm 1^\circ\text{C}$			kigázosítás: $7.9 \pm 1.3$ mmHg			
frekvencia [Hz]	piezo fesz. [mV]	p. mikrofon [V]	din. fázis	erősítő [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu$ s]
23 902	81	1.84	D	16.1	-	-
23 904	83	1.96	-	16.9	70	-3
23 902	85	2.00	&	17.0	100	-1.3
23 907	88	2.02	&	17.9	130	-1

4.1.2. A kísérlet leírása

23 905	90	2.12	&	18.7	150	-0.8
23 904	94	2.20	&	19.6	200	0

4.1.2. táblázat

víz hőmérséklet: $24 \pm 1$ °C				kigázosítás: $19.1 \pm 1.4$ mmHg		
frekvencia [Hz]	piezo fesz. [mV]	p. mikrofon [V]	din. fázis	erősítő [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu$ s]
23 903	84	2.04	D	23.0	-	-
23 903	88	2.16	-	24.7	60	-1.8
23 901	89	2.24	&	25.4	100	-1
23 902	90	2.32	&	26.1	140	-0.5
23 901	94	2.36	&	27.2	170	0
23 902	96	2.42	&	28.2	200	-

4.1.3. táblázat

víz hőmérséklet: $24 \pm 1$ °C				kigázosítás: $60.8 \pm 1.4$ mmHg		
frekvencia [Hz]	piezo fesz. [mV]	p. mikrofon [V]	din. fázis	erősítő [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu$ s]
23 905	60	1.24	D	14.0	-	-
23 905	67	1.54	U	16.4	-	-
23 905	80	1.88	-	20.3	<50	-
23 905	84	1.98	-	21.4	50	-2.5
23 906	88	2.08	&	24.0	100	-2
23 906	92	2.20	&	25.5	150	-1
23 906	94	2.24	&	26.1	180	-0.7
23 905	96	2.32	&	27.0	200	-0.2
23 907	98	2.40	-	28.2	220	-

4.1.4. táblázat

víz hőmérséklet: $23.5 \pm 1$ °C				kigázosítás: $105.3 \pm 1.3$ mmHg		
frekvencia [Hz]	piezo fesz. [mV]	p. mikrofon [V]	din. fázis	erősítő [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu$ s]
23 904	48	1.00	D	10.4	-	-
23 904	51	1.08	S1	11.3	-	-
23 904	55	1.16	U	12.3	-	-
23 903	64	1.32	-	15.0	<50	-
23 904	69	1.42	-	16.5	70	-3.8
23 902	70	1.44	&	17.1	100	-2.8
23 901	72	1.48	&	17.6	125	-2.5
23 902	73	1.50	&	18.1	150	-2.0
23 903	75	1.54	&	18.7	200	-1.5

4.1.5. táblázat

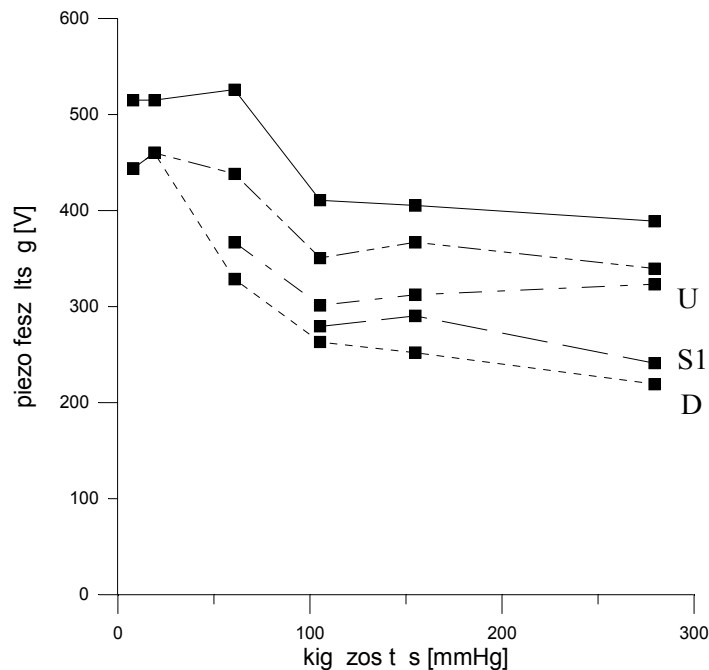
víz hőmérséklet: $23.5 \pm 1$ °C				kigázosítás: $154.8 \pm 1.3$ mmHg		
frekvencia [Hz]	piezo fesz. [mV]	p. mikrofon [V]	din. fázis	erősítő [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu$ s]
23 903	46	1.00	D	10.0	-	D
23 902	53	1.14	S1	11.8	-	S1
23 904	57	1.26	U	13.3	-	U
23 905	67	1.46	-	16,0	<50	-
23 905	71	1.54	&	17,4	80	-3.0
23 905	72	1.56	&	17.7	100	-2.8
23 905	74	1.60	&	18,6	150	-2.0

4.1.6. táblázat

víz hőmérséklet: $23.5 \pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$			kigázosítás: $279.5 \pm 1.3 \text{ mmHg}$			
frekvencia [Hz]	piezo fesz. [mV]	p. mikrofon [V]	din. fázis	erősítő [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu\text{s}$ ]
23 908	40	0.90	D	9.0	-	-
23 908	44	0.98	S1	9.8	-	-
23 908	59	1.30	U	14.2	-	-
23 906	62	1.36	-	15.0	<50	-
23 907	67	1.48	-	16.6	50	-4.5
23 907	68	1.50	&	17.3	70	-3.5
23 904	71	1,52	&	18,1	100	-3.0

#### 4.1.4. Kísérleti eredmények

A 4.1.2 ábrán  $\sim 24^\circ\text{C}$ -os vízben keltett buborék dinamikai fázisainak függése látható a kigázosítás fokától és a piezo adókra adott feszültség effektív értékétől.



Az ábrán a D,S1, U jelek a megfelelő fázisok felső határait jelölik, a legfelső két görbe az 50 mV- nál kisebb PMT jelnek, illetve a buborék megsemmisülése előtti mérési pontok görbéinek felel meg. Látható, hogy 20 mmHg nál kisebb parciális nyomásokon a buborék csak fénykibocsátó fázisban létezik. Ehhez hasonló viselkedést [B.B.95] ír le etán, etén és deutérium buborékok esetében, de olyan cikket nem találtam az irodalomban ami ugyanezt levegő buborékok esetén figyelte volna meg. Nagyobb parciális nyomásokon (100-200 mmHg) a buborék minden fázisa jelen van, egyezésben azzal amit számos cikk írt le [R.H.96]. Megfigyelhető, hogy a telítési koncentrációhoz közeledve a buborék U fázisa egyre kiszélesedik.

#### 4.1.4. Kísérleti eredmények

A kiértékelt amplitúdó-spektrumok és jellemzőik a következő ábrákon és táblázatokban láthatók. A növekvő csatornaszám növekvő fényességnek felel meg. Az esetek többségében az amplitúdó-spektrumok jól illeszthetők gauss-görbével. A táblázatokban szereplő *csatornaszám*, *szigma*, *terület*,  $\chi^2$ , rendre az illesztett gauss-görbére vonatkozó adatok, illetve a  $\chi^2$  próba paramétere.

4.1.7. táblázat

frekvencia [kHz]	víz hőmérséklet: $24.5 \pm 1^\circ\text{C}$				kigázosítás: $7.9 \pm 1.3 \text{ mmHg}$				
	p. mikrofon [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu\text{s}$ ]	csatornaszám m	csatornaszám m hibája	szigma	terület	terület hibája	$\chi^2$
23 904	1.96	70	-3	-	-	-	-	-	-
23 902	2.00	100	-1,3	290,51	0,112	35,72	180006	442	1.09
23 907	2.02	130	-1	346,63	0,114	37,73	185792	446	1.98
23 905	2.12	150	-0,8	420,79	0,129	42,48	178741	433	1.08
23 904	2.20	200	0	568,05	0,147	48,47	176311	429	0.89

4.1.8. táblázat

frekvencia [kHz]	víz hőmérséklet: $24 \pm 1^\circ\text{C}$				kigázosítás: $19.1 \pm 1.4 \text{ mmHg}$				
	p. mikrofon [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu\text{s}$ ]	csatornaszám m	csatornaszám m hibája	szigma	terület	terület hibája	$\chi^2$
23 903	2.16	60	-1.8	-	-	-	-	-	-
23 901	2.24	100	-1.0	287.24	0.127	37.28	179665	460	2.39
23 902	2.32	140	-0.5	386.91	0,130	43.33	181723	435	1.56
23 901	2.36	170	0	506.06	0,131	45.27	193750	450	0.94
23 902	2.42	200	-	-	-	-	-	-	-

4.1.9. táblázat

frekvencia [kHz]	víz hőmérséklet: $24 \pm 1^\circ\text{C}$				kigázosítás: $60.8 \pm 1.4 \text{ mmHg}$				
	p. mikrofon [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu\text{s}$ ]	csatornaszám m	csatornaszám m hibája	szigma	terület	terület hibája	$\chi^2$
23 905	1.98	50	-2.5	-	-	-	-	-	-
23 906	2.08	100	-2.0	287.56	0.116	37.03	179540	444	1.69
23 906	2.20	150	-1.0	436.86	0.124	42.09	185048	439	0.96
23 906	2.24	180	-0.7	484.40	0.134	44.96	182684	437	0.87
23 905	2.32	200	-0.2	550.77	0.142	48.22	186534	441	0.95
23 907	2.40	220	-	-	-	-	-	-	-

4.1.10. táblázat

frekvencia [kHz]	víz hőmérséklet: $23.5 \pm 1^\circ\text{C}$				kigázosítás: $105.3 \pm 1.3 \text{ mmHg}$				
	p. mikrofon [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu\text{s}$ ]	csatornaszám m	csatornaszám m hibája	szigma	terület	terület hibája	$\chi^2$
23 904	1.42	70	-3.8	-	-	-	-	-	-
23 902	1.44	100	-2.8	294.68	0.129	41.40	181775	443	2.66
23 901	1.48	125	-2.5	311.33	0.151	53.55	194960	448	6.51
23 902	1.50	150	-2	396.16	0.140	47.58	186485	441	1.06
23 903	1.54	200	-1.5	528.77	0.162	54.34	179696	433	1.32



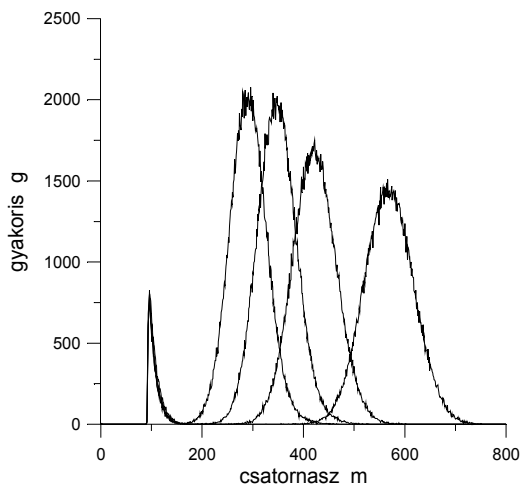
#### 4.1.4. Kísérleti eredmények

4.1.10. táblázat

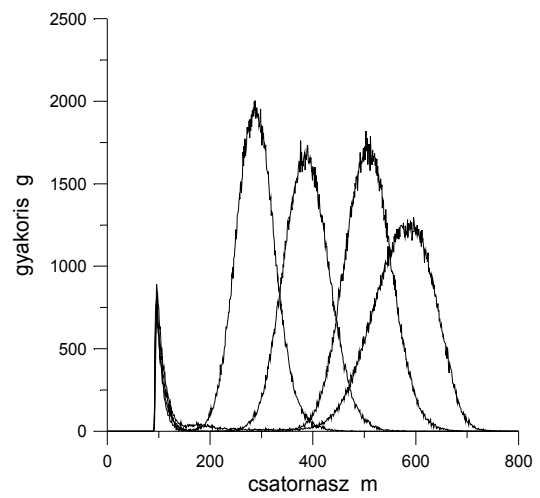
frekvencia [kHz]	víz hőmérséklet: $23.5 \pm 1^\circ\text{C}$				kigázosítás: $154.8 \pm 1.3 \text{ mmHg}$				
	p. mikrofon [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu\text{s}$ ]	csatornaszá m	csatornaszá m hibája	szigma	terület	terület hibája	$\chi^2$
23 905	1.54	80	-3.0	200.34	0.094	31.76	191814	450	9.52
23 905	1.56	100	-2.8	254.29	0.112	36.03	175449	433	7.96
23 905	1.60	150	-2.0	420.85	0.145	50.09	191177	445	2.86

4.1.11. táblázat

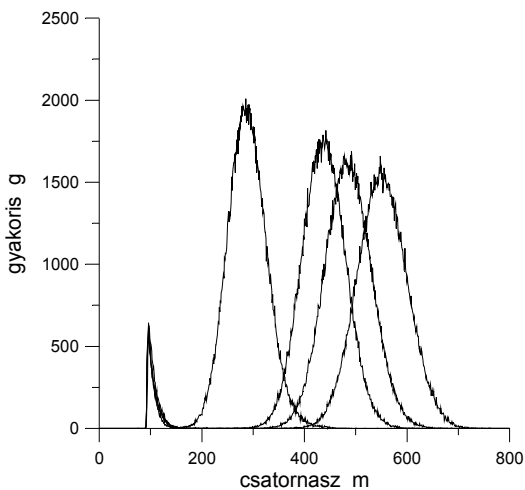
frekvencia [kHz]	víz hőmérséklet: $23.5 \pm 1^\circ\text{C}$				kigázosítás: $279.5 \pm 1.3 \text{ mmHg}$				
	p. mikrofon [V]	PMT jel [mV]	fázis [ $\mu\text{s}$ ]	csatornaszá m	csatornaszá m hibája	szigma	terület	terület hibája	$\chi^2$
23 907	1.50	70	-3.5	194.16	0.104	33.90	179847	439	2.29
23 904	1.52	100	-3	279.72	0.116	39.23	179979	425	1.76



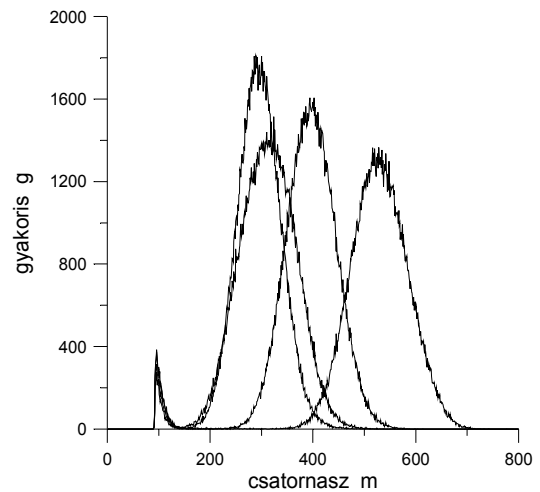
4.1.3. ábra (kigázosítás:  $\sim 7.9 \text{ mmHg}$ )



4.1.4. ábra (kigázosítás:  $\sim 19.1 \text{ mmHg}$ )

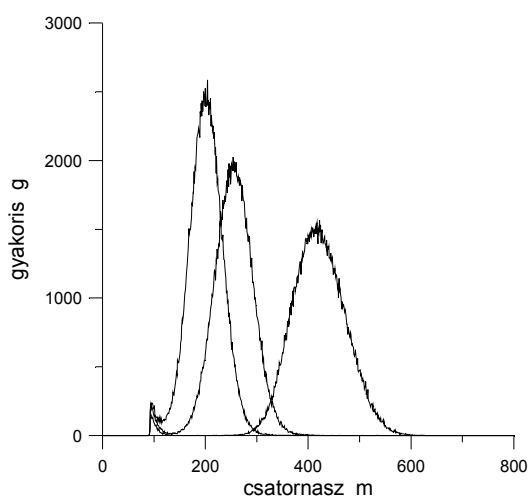


4.1.5. ábra (kigázosítás:  $\sim 60,8 \text{ mmHg}$ )

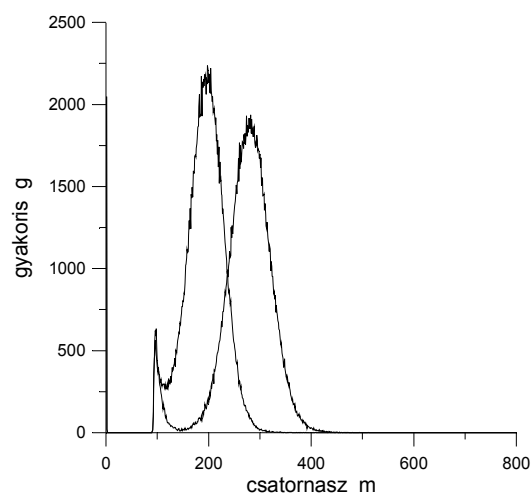


4.1.6. ábra (kigázosítás:  $\sim 105,3 \text{ mmHg}$ )

#### 4.1.4. Kísérleti eredmények

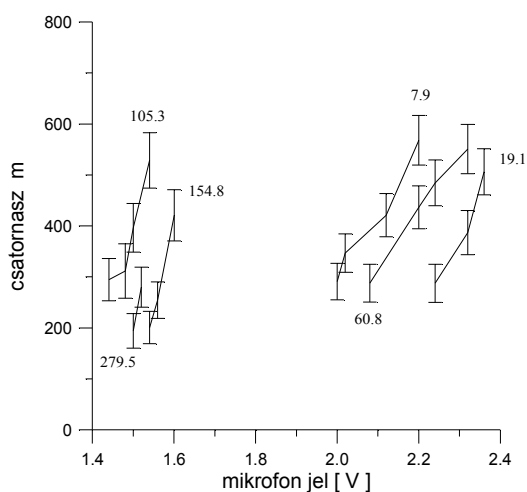


4.1.7. ábra (kigázosítás: ~ 154.8 mmHg)

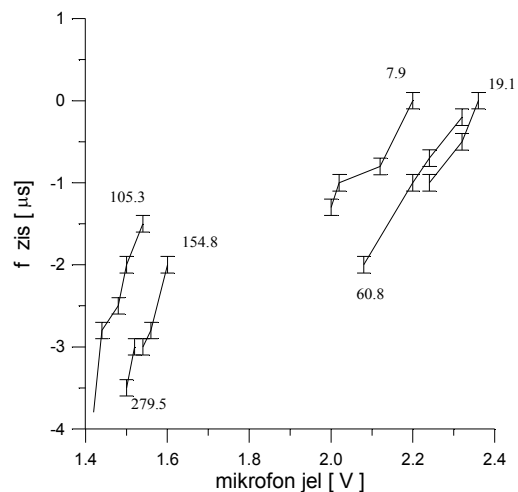


4.1.8. ábra (kigázosítás: ~ 279.5 mmHg)

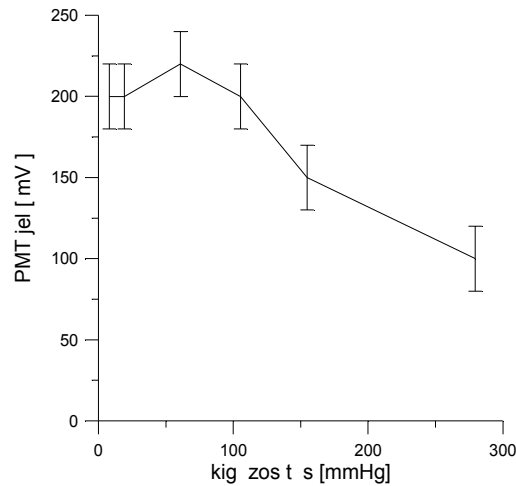
A 4.1.9 ábra a fényességgel arányos csatornaszám függését mutatja a nyomásamplitúdóval arányos mikrofon jeltől, különböző kigázosítások mellett. A görbék meredekségéből megállapítható, hogy a fényesség érzékenyen függ a gerjesztő amplitúdó kis megváltozásától, és ez az érzékenység nagyobb koncentrációk esetén nagyobb. A 4.1.10. ábrán a 4.1.2.-ban definiált fázis mikrofonjeltől való függése látható, a 4.1.11. ábrán pedig az egyes mérésekkor detektált legnagyobb fényesség függése a kigázosítás mértékétől.



4.1.9. ábra



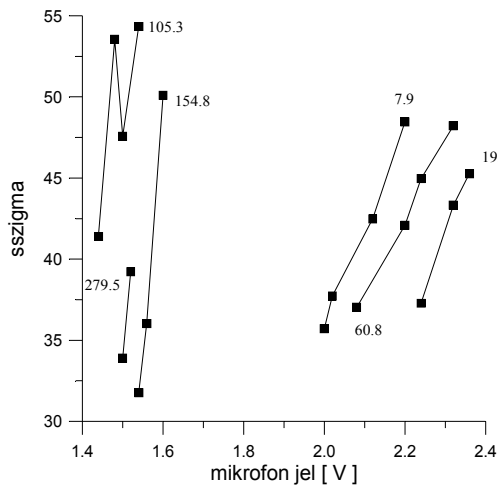
4.1.8. ábra



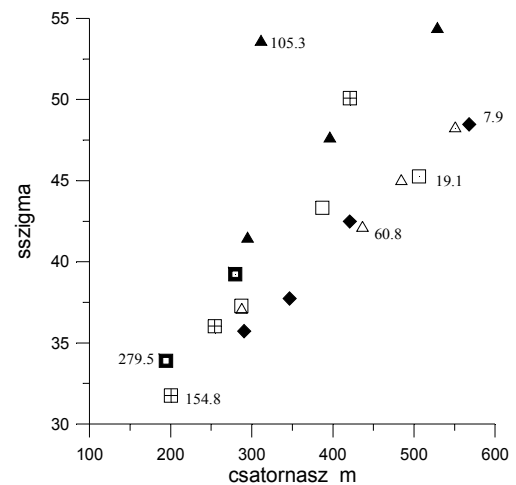
4.1.11. ábra

A fényesség-fluktuáció jellemzésére az amplitúdó-spektrumokra illesztett gauss-görbék

szigma paraméterét használtam. Ennek változását a mikrofon jel nagyságától és a fényességtől, különböző koncentrációk mellett a 4.1.12. ábra, illetve a 4.1.13. ábra szemléltetik.



4.1.12. ábra



4.1.13. ábra

A mindkét ábra menetétől elűtő mérési pontban az amplitúdó spektrum nem volt jól illeszthető egy gauss-görbével. Az eltérést az okozta, hogy a spektrum felvételének 10 s-a alatt az átlagos fényesség nem volt állandó, és ez a spektrum kiszélesedéséhez vezetett. A 4.1.13. ábrán látható, hogy a mérési pontok nagyjából egy egyenes köré csoportosulnak, azaz első közelítésben a felvillanások fényességének fluktuációja függetlennek látszik a kigázósítás mértékétől

#### 4.1.5. A mérési eredmények diszkussziója

A dinamikai fázishatárokat (~150 mmHg kigázosításnál) összehasonlítva Holt és Gaitan eredményeivel [G.H.96] (4.1.14 ábra) kapcsolat teremthető a nyomásamplitúdó és a piezo mikrofon jele között.

##### 4.1.14. ábra

Az ábrán a buborék dinamikai fázishatárai láthatók a  $(P_A, R_0)$  térben, ~150 mmHg kigázosítás mellett. A sötét tartományban a buborék feloszlik, a pontozott tartományban pedig növekszik. A mérés során a buborék a  $(P_A, R_0)$  térben az ábrán szimbólumokkal feltüntetett állapotokban ment keresztül. Leolvasható, hogy  $P_A < 0.95$  atm esetén a buborék feloszlik (D),  $P_A \sim 0.95$  atm.-nál instabil diffúziós egyensúlyban van ( $S_1$ ). Kb. 1 és 1.2 atm között a buborékra a nem szférikus rezgések, és mikrobuborékok kilövellése jellemző (U). Kb. 1.2 és 1.3 atm között stabil diffúziós egyensúly áll be ( $S_2$ ), és kb. 1.3 és 1.4 atm között a buborék világít. Feltételezve, hogy a cikkben 20.6 kHz-el gerjesztett buborék fázishatárai nem nagyon térnek el az általunk 23.9 kHz-en meghajtott buborékétól, a  $P_A = K \cdot \text{mikrofonjel}$  összefüggés írható, ahol  $K \approx 0.89 \frac{\text{atm}}{V}$

A 4.1.4.-ban feltüntetett amplitúdó spektrumok területeit megvizsgálva a várt 239000 felvillanás helyett  $183699 \pm 5519$  adódik. Ennek az az oka, hogy a kis csatornákon mindig jelenlévő, időben véletlenszerűen eloszló elektronikus zaj beütéseinek holtidejébe kerülő felvillanásokat a CAMAC nem detektálta.

A 4.1.11. ábrán vázolthoz hasonló mérést végzett Hiller et al [R.H.94] (2.2.6.), olyan buborékokkal ahol a teljesen kigázósított víz Nitrogén és 1% Argon keverékkel került egyensúlyba különböző parciális nyomásokon. A mérést az általunk elvégzetthez hasonló körülmények között végezték (24°C-on és 24 kHz-es gerjesztéssel) , mégis az eredmények jelentősen eltérnek egymástól. Hiller et al azt tapasztalta, hogy a maximális fényesség ~150 mmHg esetén a legnagyobb, és onnan 0 mmHg-hez közeledve élesen levág. Az általunk végzett mérésben a maximális fényesség ~50 mmHg-nél a legnagyobb, és a legkisebb parciális nyomáson végzett mérési pontig (~8 mmHg) nincs jele a levágásnak. Mivel a levegő a nitrogén-argon keveréktől jelentősen csak az oxigén tartalomban különbözik, ezért elképzelhető, hogy a két mérés eredménye közti különbséget az oxigén hatása okozza. Levegő buborékkal készült hasonló mérést nem találtunk az irodalomban.

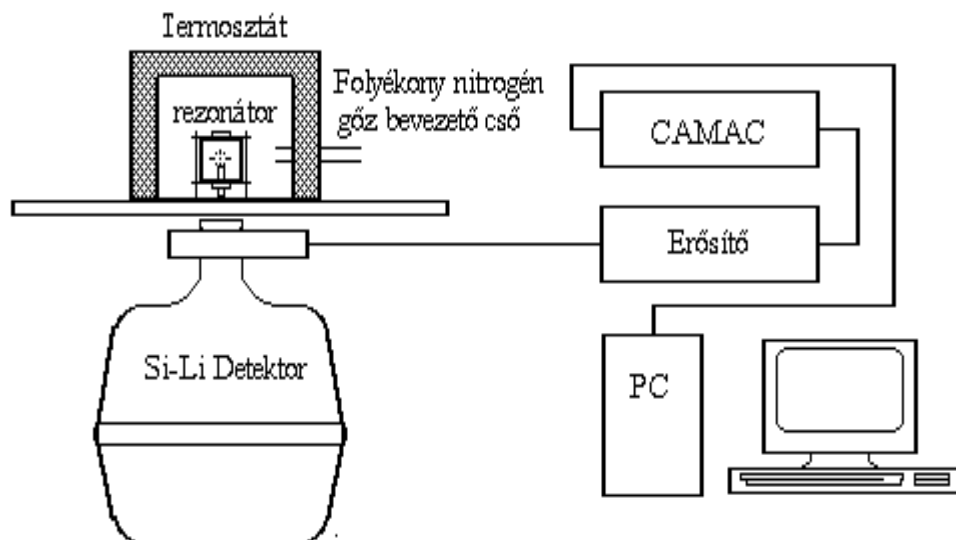
## 4.2. Lágy-röntgen sugárzás detektálására irányuló mérés

### 4.2.1. A mérés motivációja

A mérést az a tény motiválta, hogy a buborék által kibocsátott fény spektruma a víz ultraibolya elnyelési határán ( $\sim 6$  eV) túl nem ismert. A víz legközelebb a lágy-röntgen tartományban (3-20 keV) válik átlátszóvá. Ilyen nagy energiájú fotonok kibocsátása igen kétséges, mégis a szonolumineszcencia lökeshullám-modellje, erősen gerjesztett buborékok esetére megjósolja a röntgen kibocsátást [L.K.95]. Röntgen sugárzás kimutatása pontosíthatná a buborék effektív hőmérsékletére a spektrum látható tartománya alapján adott durva becsléseket [R.H.92]. Ez alapján a lökeshullám modell keretén belül kiszámolható lenne, hogy a buborék centrumában a hőmérséklet valóban eléri e a  $10^8$  K nagyságrendet. Negatív eredmény esetén az effektív hőmérsékletre felső korlát állítható fel az illesztési paraméterek függvényében.

#### 4.2.2. A kísérlet leírása

A kísérleti elrendezés vázlata a 4.2.1. ábrán látható, a szonolumineszcencia előállítására szolgáló 3.1.2.-ban leírt berendezések az ábrán nincsenek feltüntetve.



4.2.1. ábra

A buborék fénye a rezonátor aljába fűrt lyukon, egy 4cm hosszú, 3mm belső átmérőjű plexi csövön (poly-metil metakrilát) keresztül jut el a detektorig. A plexi cső a buborék felőli végén van csak lezárva, itt a plexi vastagsága 0.5 mm. A cső a buborékhoz minél közelebb van elhelyezve, hogy a (leginkább elnyelő) vízréteg hatása minél kisebb legyen. A cső a buborékot általában vonzza vagy taszítja, de a frekvencia finomhangolásával elérhető, hogy a buborék stabilan a plexi cső felett maradjon. Szilárd felület fényesség csökkentő hatását a buborék és a felület távolságának a függvényében [C.O.98] vizsgálta kísérletileg. Az esetünkben megvalósuló (> 5mm) távolságok esetén ez a hatás elhanyagolható. A 4.2.2. és 4.2.3. ábrákon a víz és a plexi abszorpciója látható.

A plexi cső zárt végétől a fény levegőn, és egy vékony Be-fólián keresztül jut el a Si-Li detektor felületéig. A detektor főbb jellemzőit a 4.2.1. táblázat tartalmazza.

4.2.1. táblázat

detektor érzékeny felülete	detektor vastagsága	Be-fólia vastagsága	Detektor hatásfoka (4 - 15 keV)	Be-fólia távolsága a detektortól
20 mm <sup>2</sup>	3.5 mm	~40 μm	0.94	8 mm

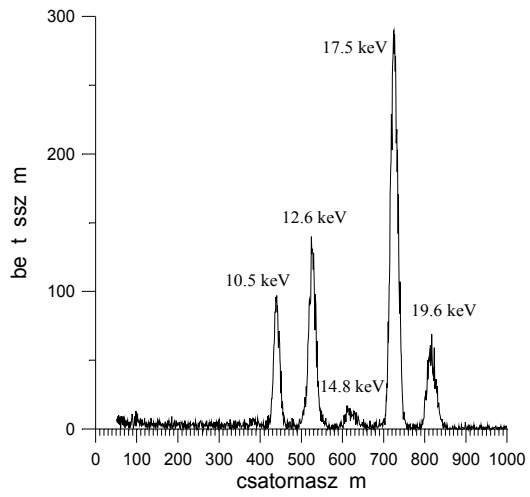
A felerősített detektor-jelet CAMAC sokcsatornás amplitúdó-analizátor dolgozza fel, a felvett spektrumokat számítógép tárolja, és jeleníti meg. A minél fényesebb buborékok előállítására érdekében a víz fagypontra körüli hőmérsékletre lett hűtve. A rezonátort a habzivacs termosztátba befűjt folyékony nitrogén gőz hűtötte. A hőmérséklet szabályozását a befűtés mértékének a változtatásával lehetett elérni. A víz hőmérsékletét a rezonátorba épített Si dióda segítségével  $\pm 1^\circ\text{C}$  hibával tudtam mérni.

### 4.2.3. Mérési eredmények

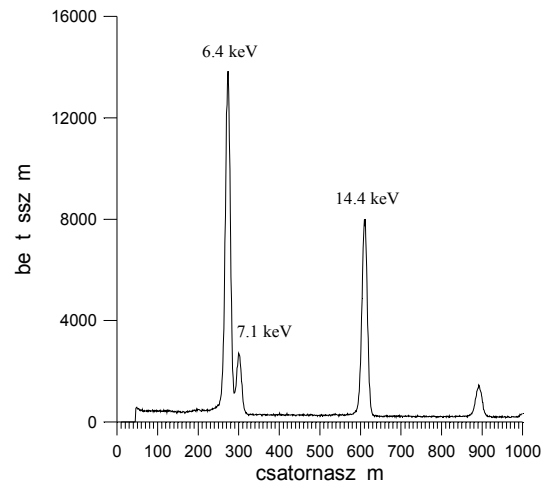
A csatornaszám energia-kalibrációja (4.2.6. ábra) amerícium-forrással felaktivált ólom, és molibdén (4.2.4. ábra), valamint <sup>57</sup>Co-forrás (4.2.5. ábra) vonalai alapján történt. A 4.2.7. ábrán 10 órás háttérmérés eredménye látható. A további spektrumok mind 1 óra alatt lettek felvéve. A buborékos méréseket, minden esetben háttérmérés követte, amiben minden körülmény változatlan volt, kivéve a buborék jelenlétét.



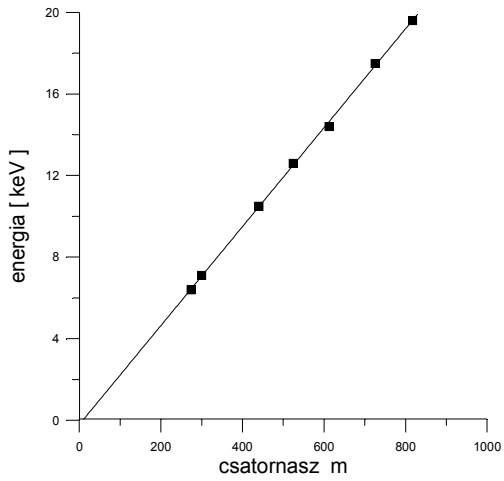
4.2.4. ábra



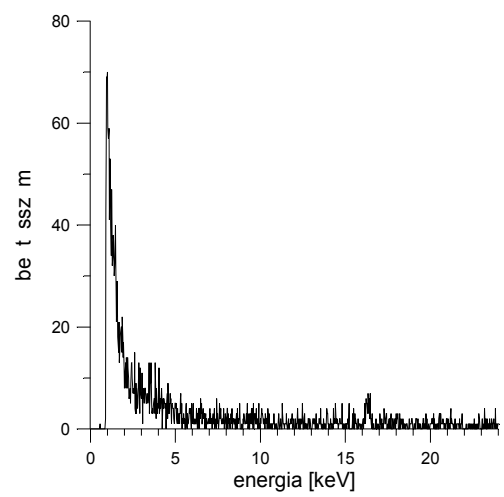
4.2.5. ábra



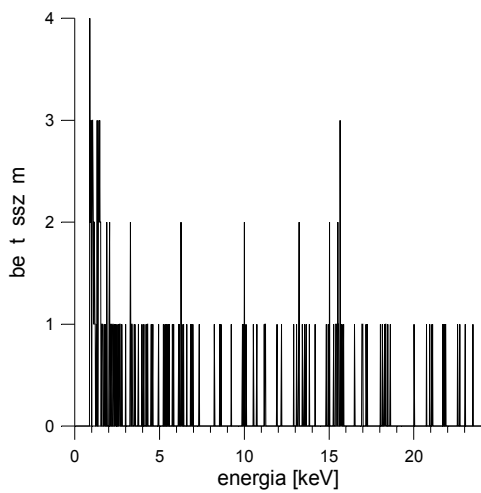
4.2.6. ábra



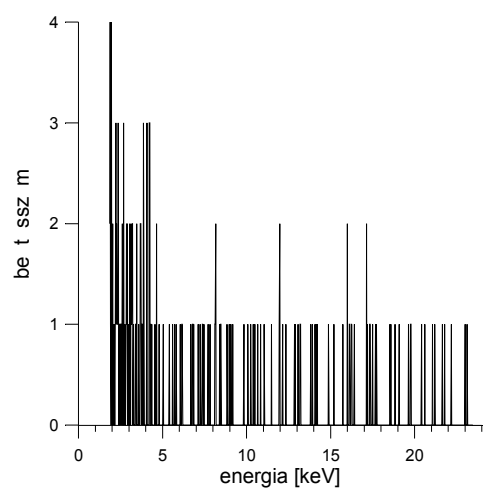
4.2.7. ábra



4.2.8. ábra



4.2.9. ábra

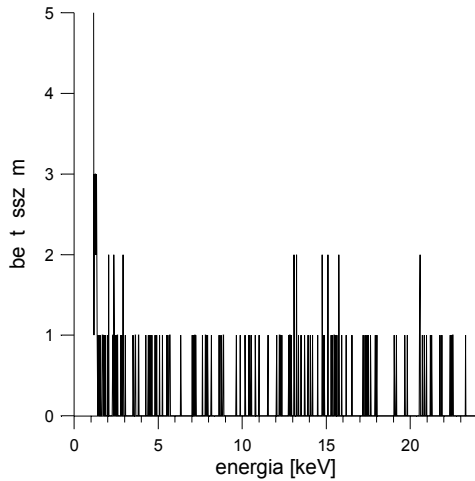


A 4.2.8. és 4.2.9. ábrákon feltüntetett buborékos, illetve háttér mérések a 4.2.2. táblázatban leírt kísérleti feltételek mellett lettek végezve. A további mérések a hozzájuk tartozó táblázatokban leírt feltételek mellett lettek elvégezve.

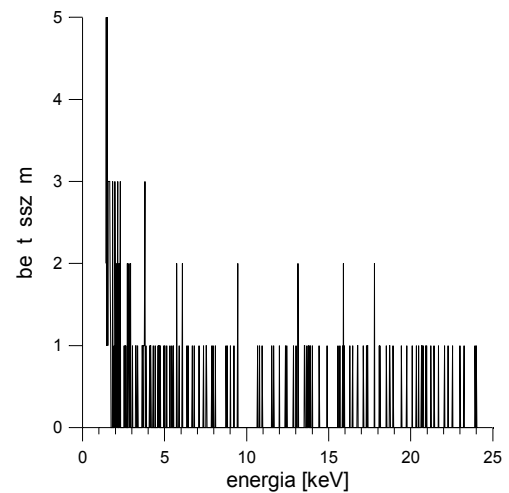
4.2.2. táblázat

kigázosítás [mmHg]	víz hőmérséklet [°C]	frekvencia [kHz]	buborék és plexi távolsága [mm]	térszög
148.1±1.3	3±1	23.15±0.01	7±1	1.6E-4

4.2.10. ábra



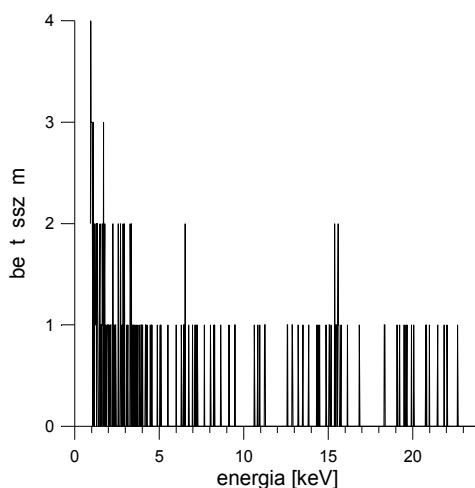
4.2.11. ábra



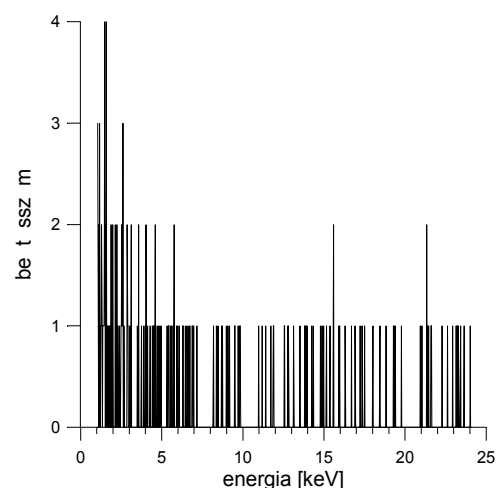
4.2.3. táblázat

kigázosítás [mmHg]	víz hőmérséklet [°C]	frekvencia [kHz]	buborék és plexi távolsága [mm]	térszög
103.9±1.1	3±1	23.10±0.01	9±1	1.8E-4

4.2.12. ábra



4.2.13. ábra



4.2.3. táblázat

kigázosítás [mmHg]	víz hőmérséklet [°C]	frekvencia [kHz]	buborék és plexi távolsága [mm]	térszög
152,4±1.2	3±1	22.79±0.03	7±1	1.9E-4

A mérések főbb hibaforrásai, hogy a buborék és a plexi cső távolságát szemmel olvastam le (üveghengerre ragasztott mm-papír segítségével). Ezen kívül a plexi csővel "be kellett célozni" a detektor kis felületét, amit szintén szemmel végeztem.

#### 4.2.4. Diskusszió

Mivel a felvett spektrumok és a háttér-mérések között nem látható szignifikáns eltérés, ezért a vizsgált energia tartományban a röntgen kibocsátásra adható felső korlátot 1 beütés/óra intenzitásnak vettem. Az effektív hőmérsékletre adható felső korlát becsléséhez a buborék fénykibocsátását  $\tau$  ideig tartó  $\nu$  frekvenciájú felvillanásokkal modelleztem, ahol a felvillanások fénykibocsátását  $T_{eff}$  hőmérsékletű,  $4\pi R^2$  felületű feketetest sugárzónak tulajdonítottam. A használt modell durva, mivel a buborék a felvillanás alatt nem sugároz állandó intenzitással, és a fénykibocsátás nem lokalizálható teljesen egy gömbfelületre, de ezen tényezők nem befolyásolják jelentősen a becslést. A felső korlátot a 4.2.1. képlet alapján állapítottam meg, ahol figyelembe vettem a víz, és a plexi elnyelő hatását, a detektor hatásfokát, és a detektorra eső sugárzás kis térszögét.

$$\frac{N \cdot E}{t} = f \cdot \tau \cdot \Omega \cdot \eta \cdot 4\pi R^2 \int_{3 \text{ keV}}^{20 \text{ keV}} \text{plank}(T_{eff}, \nu) \cdot \exp\left(-\frac{l}{l_A(\nu)}\right) \cdot \exp\left(-\frac{h}{h_A(\nu)}\right) \cdot d\nu \quad (4.2.1.)$$

Ahol  $N$  a mért beütésszám felső korlátja (1),  $E$  a feltételezett röntgen csúcs energiája (adott hőmérsékleten a plank-görbe és az exponenciális elnyelések szorzata egy éles csúcsot eredményez),  $f$  a rezgetés frekvenciája,  $\tau$  a felvillanások hossza,  $\Omega$  a detektálás térszöge,  $\eta$  a detektor hatásfoka,  $R$  a fénykibocsátó régió sugara,  $l_A$  és  $h_A$  a víz illetve a plexi abszorpciós hossza.

A  $\tau$  és  $R$  paraméterek pontos értéke nem ismert, de ezek nagyságrendje a [R.H.98], [W.M.97] cikkek alapján megbecsülhető. A becsléshez  $\tau=200$  ps,  $R=0.1$   $\mu\text{m}$  értékeket használtam.

A 4.2.1. képlet alapján a 4.2.2. táblázat adataihoz tartozó mérésben a buborék effektív hőmérsékletének felső korlátja 2.8 millió kelvin

## 5. A SZONOLUMINESZCENCIA ELMÉLETI VIZSGÁLATA

### 5.1. Rayleigh-Plesset egyenlet numerikus megoldása a kísérletekben előforduló paraméterek mellett.

A Rayleigh-Plesset egyenlet (5.1. képlet) [B.B.97] folyadékban lévő gázbuborék falának a mozgásegyenlete.

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{1}{\rho}(P_g - P_0 - P(0,t)) - \frac{4\eta\dot{R}}{\rho R} - \frac{2\sigma}{\rho R} + \frac{R}{\rho c_w} \cdot \frac{\partial}{\partial t}(P_g - P_A) \quad (5.1.)$$

Ahol  $R$  a buborék sugara,  $\rho$  a folyadék sűrűsége,  $P_g$  a gáz nyomása a buborékban,  $P_0$  a külső sztatikus nyomás,  $P(0,t)$  a gerjesztő nyomás a buborék helyén,  $\eta$  a folyadék viszkozitása,  $\sigma$  a felületi feszültség, és  $c_w$  a hangsebesség a folyadékban. Az egyenlet levezetésekor feltételezték a gömbszimmetriát, és a következő közelítéseket tették:

$$\frac{R}{c_g} \ll 1, \quad \frac{R\dot{R}}{c_g^2} \ll 1, \quad \frac{R}{c_w} \ll 1, \quad \frac{R\dot{R}}{c_w^2} \ll 1$$

Ahol  $c_g$  a hangsebesség a gázban. A fenti közelítések a buborék összeroppanásának kb. 200 ns-án kívül az egész akusztikus periódusban jogosak. Ahhoz hogy az 5.1. egyenlet megoldható legyen meg kell adni a gáz állapot egyenletét és a gerjesztést. Ehhez izotermikus Van der Waals állapot egyenletet (5.2. képlet), és időben szinuszosan változó gerjesztő nyomást (5.3. képlet) használtam.

$$P_g = \frac{(R_0^3 - a^3)P_0}{R^3 - a^3} \quad (5.2.)$$

$$P(0,t) = -P_A \sin(\omega \cdot t) \quad (5.3.)$$

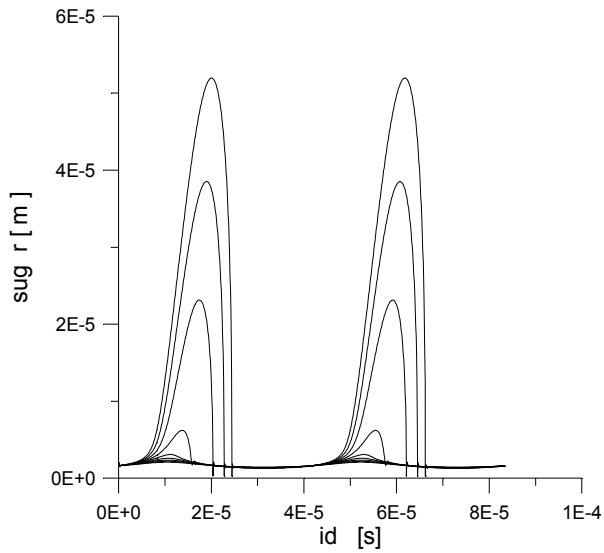
Ahol  $R_0$  az a sugár ami mellett a buborékban a nyomás éppen  $P_0$ ,  $a$  a gáz Van der Waals állandója,  $P_A$  a nyomás állóhullám amplitúdója, és  $\omega$  a gerjesztés körfrekvenciája. Ha a rezonátorban kialakuló állóhullám hossza sokkal nagyobb a buborék méreténél, akkor az 5.3. képlet a rezonátor alakjától függetlenül használható. Az egyenlet numerikus megoldását Rhunge-Kutta Adaptive stepsize controll [Num.Rec.] módszerrel végeztük a következő paraméterek mellett:

$$\omega = 2\pi \cdot 23950 \text{ Hz}, \quad \rho = 998 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}, \quad c_w = 1483 \frac{\text{m}}{\text{s}}$$

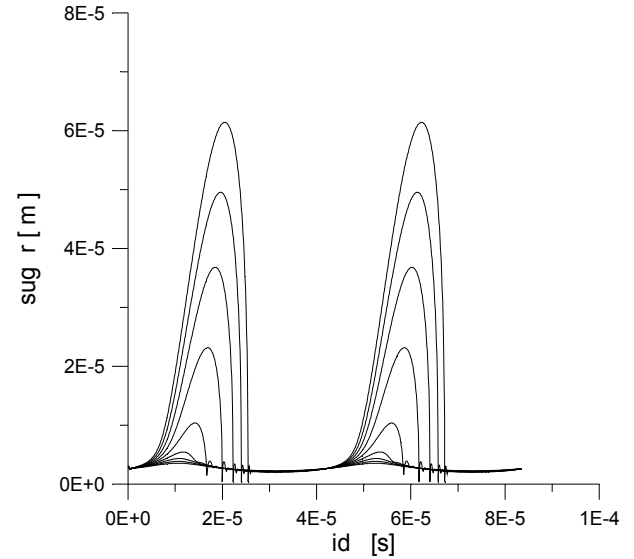
$$\sigma = 0.073 \frac{\text{kg}}{\text{s}^2}, \quad \eta = 7 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}, \quad a = R_0 / 8.73, \quad P_0 = 1 \text{ atm.}$$

5.1. Rayleigh-Plesset egyenlet numerikus megoldása a kísérletekben előforduló paraméterek mellett

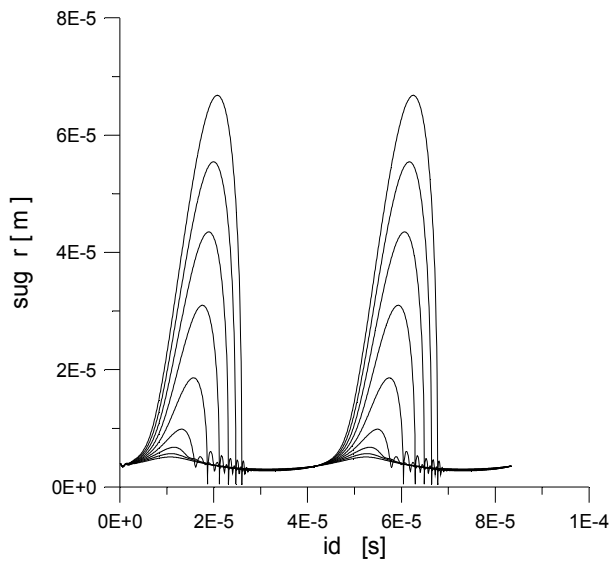
Az 5.1.1....5.1.7. ábrákon a buborék sugarának időfüggése látható két periódus alatt,  $P_A=0.8, 0.9, 1.0, 1.1, 1.2, 1.3, 1.4, 1.5, 1.6$  atm. nyomásamplitúdók mellett, különböző  $R_0$  paraméterek esetén.



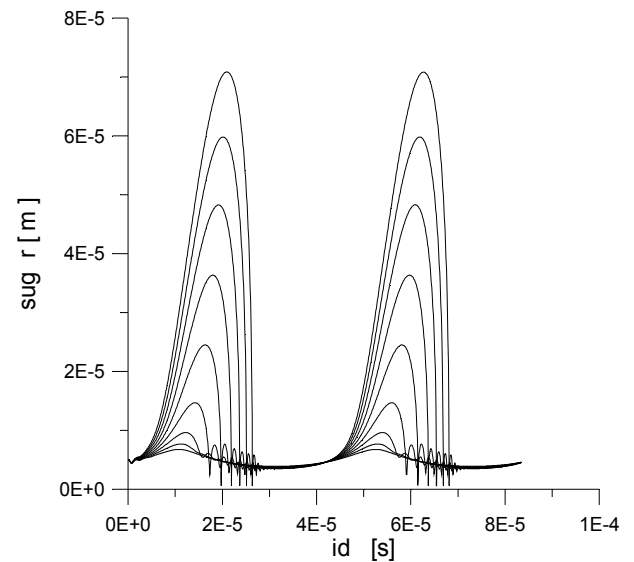
5.1.1. ábra  $R_0=2\mu\text{m}$



5.1.2. ábra  $R_0=3\mu\text{m}$

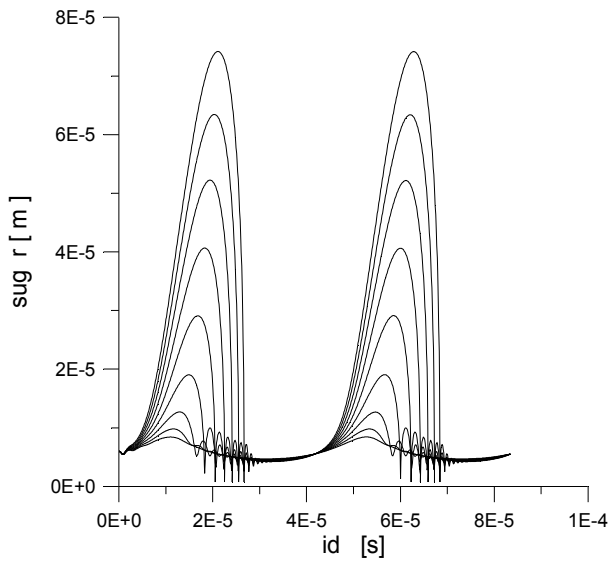


5.1.3. ábra  $R_0=4\mu\text{m}$

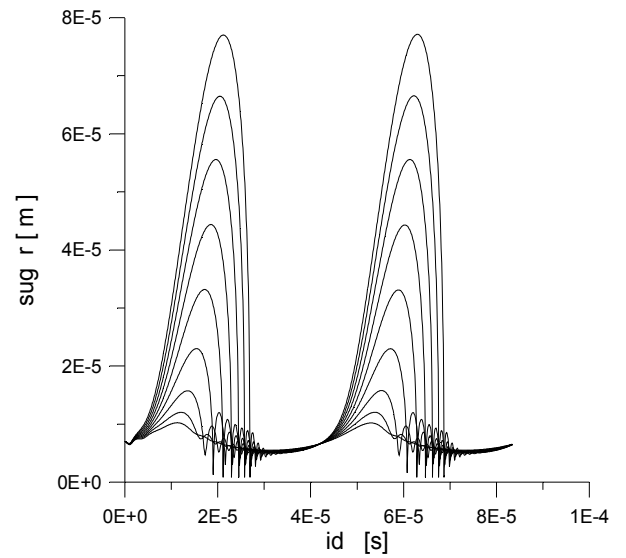


5.1.4. ábra  $R_0=5\mu\text{m}$

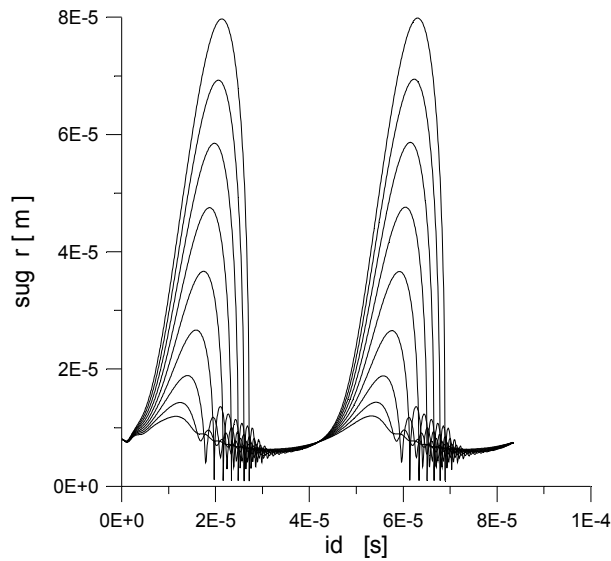
5.1. Rayleigh-Plesset egyenlet numerikus megoldása a kísérletekben előforduló paraméterek mellett



5.1.5. ábra  $R_0 = 6\mu\text{m}$



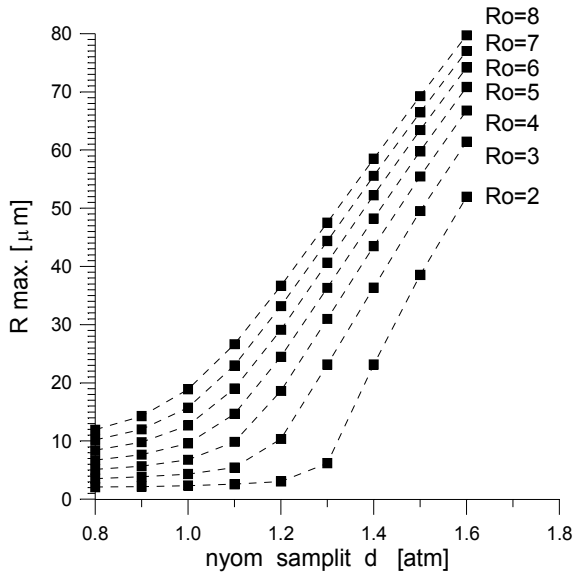
5.1.6. ábra  $R_0 = 7\mu\text{m}$



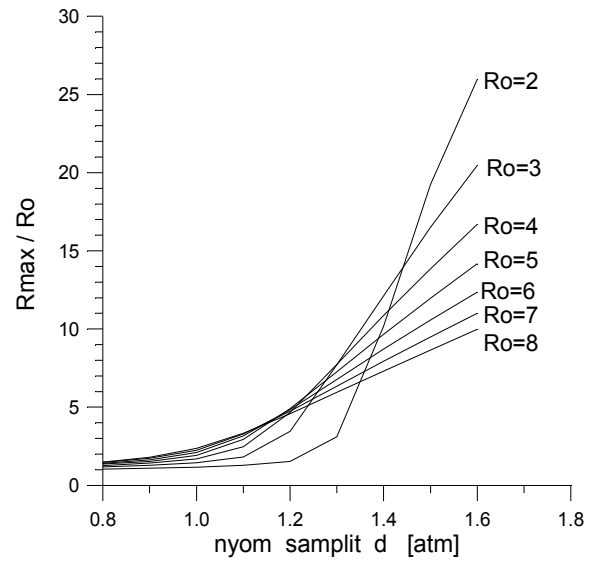
5.1.7. ábra  $R_0 = 8\mu\text{m}$

A fenti ábrákról leolvasható, hogy a buborék maximális sugara, és az összeroppanás hevessége a nyomásamplitúdóval monoton nő. A buborék utórezgéseinek amplitúdója  $R_0$  növekedésével egyre nő. Kis  $R_0$ -nál nagyobb nyomásamplitúdó kell a buborék összeroppanásához. Minden esetben az összeroppanás minimális sugarához tartozó fázis a nyomásamplitúdó monoton függvénye. Az ábrák adatai alapján megadható a szonolumineszcencia szempontjából fontos  $R_{\text{max}}$  (5.1.8. ábra),  $R_{\text{max}}/R_0$  (5.1.9. ábra)

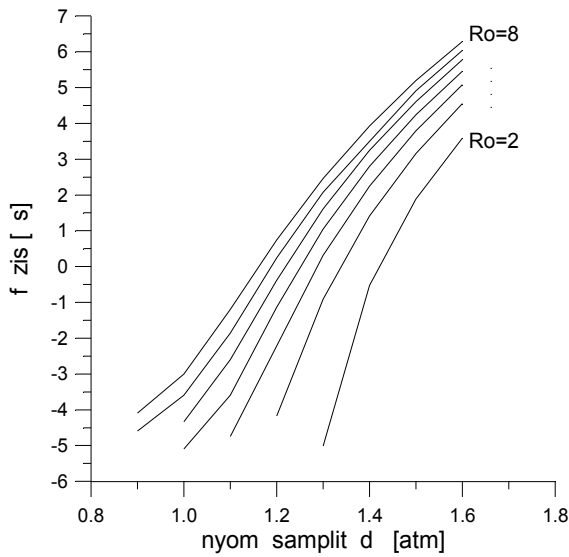
paraméterek és a minimális sugár fázisának (5.1.10.ábra) függése  $R_0$ -tól, és a nyomásamplitúdótól. A fázis a nyomás zérushelyétől (ahol a derivált pozitív) lett számítva.



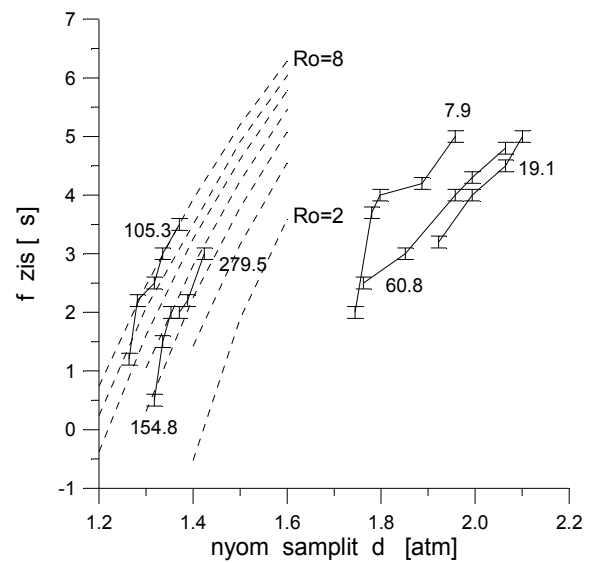
5.1.8. ábra



5.1.9. ábra



5.1.10. ábra



5.1.11. ábra

Az 5.1.11. ábrán a 4.1.-ben leírt mérés fázis adatai és a szimulációból kapott fázis illesztése látható. Az illesztést úgy végeztem, hogy a kb. 150 mmHg kigázosítás mellett végzett mérés  $R_0$ , és  $P_A$  paraméterei konzisztensek legyenek a mások által kapott eredményekkel [G.H. 96], ehhez azt kellett feltételezni, hogy a piezo mikrofon jele kb. 5  $\mu s$  fáziskésésben van a nyomásamplitúdóhoz képest.



## APPENDIX A. Rezonátorok sajátfrekvenciái, és a bennük kialakuló állóhullámtér

A rezonátorok sajátfrekvenciái, és a kialakuló állóhullámtér meghatározásához a sebességpotenciálra érvényes hullámgömböt (A1.) kell megoldani [L.L.Hidr.]. A folyadékban kialakuló  $p$  nyomás és  $v$  sebesség a  $\psi$  sebességpotenciállal A3. és A4. szerint fejezhető ki [L.L.Hidr.]. Mivel a rezonátorban állóhullámok kialakulását várjuk, ezért a sebességpotenciál felbontható tér és időtől függő tagok szorzatára (A2.).

$$\Delta \psi = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} \quad (A1.) \quad \psi = \xi(\vec{r}) \cdot \cos(\omega \cdot t) \quad (A2.)$$

$$p = -\rho \frac{\partial \psi}{\partial t} \quad (A3.) \quad v = \nabla \psi \quad (A4.)$$

Ahol  $c$  a hangsebesség a folyadékban,  $\omega$  a rezgés körfrekvenciája, és  $\rho$  a folyadék sűrűsége. A sebességpotenciál A2. alakját A1.-be téve a hullámgömb Poisson-egyenletévé egyszerűsödik (A5.). Ezt kell megoldani különböző geometriák mellett.

$$\Delta \xi = -\frac{\omega^2}{c^2} \xi \quad (A5.)$$

### Gömb alakú rezonátor esete

Feltéve, hogy a folyadékban csak sugárirányú mozgások lépnek fel, A5. a következőképpen írható:

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial \xi}{\partial r} \right) = -\frac{\omega^2}{c^2} \xi \quad (A6.) \quad \xi = \frac{\sin(kr)}{r} \quad (A7.)$$

$\xi$ -t az A7. alakban keresve az A6. egyenletből a következőt kapjuk:  $k = \frac{\omega}{c}$  (A8.)

A rezonátor falánál érvényes peremfeltétel: (A9.)  $\xi(R)=0$ . A nyomásnak csomópontja, a sebességnek pedig duzzadóhelye van a gömb  $R$  sugaránál. Az A9. peremfeltételt A7.-el összevetve:

$$k = \frac{n \cdot \pi}{R} \quad n=1, 2, 3... \quad (A10.)$$

Végül A10.-et A8.-al összevetve a gömb alakú rezonátor  $f$  sajátfrekvenciái:

$$f = \frac{c \cdot n}{2R} \quad n=1, 2, 3... \quad (A11.)$$

A nyomástér pedig  $A2.$ ,  $A3.$ ,  $A7.$  és  $A10.$  alapján:

$$P(r,t) = P_A \frac{\sin(k \cdot r)}{r} \sin(2\pi \cdot f \cdot t) \quad (A12.)$$

ahol a  $P_A$  nyomásamplitúdót a gerjesztés mértéke határozza meg.

### Henger alakú rezonátor esete

Az  $A5.$  egyenletet henger koordinátákban felírva, feltételezve a forgási invarianciát:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial \xi}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 \xi}{\partial z^2} = -\frac{\omega^2}{c^2} \xi \quad (A13.) \quad \xi(r,z) = A(r) \cdot B(z) \quad (A14.)$$

A sebességpotenciál térfüggő részét  $A14.$  alakban felírva, és az  $A13.$  egyenletbe téve, majd mindkét oldalt elosztva  $\xi$ -vel a következőt kapjuk:

$$\frac{1}{Ar} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial A}{\partial r} \right) + \frac{1}{B} \frac{\partial^2 B}{\partial z^2} = -\frac{\omega^2}{c^2} \quad (A15.) \quad \frac{\omega^2}{c^2} = a^2 + b^2 \quad (A16.)$$

Az  $A15.$  egyenlet jobb oldalán szereplő állandót  $A16.$  alakba írva,  $A15.$  a következő két egyenletre szeparálható:

$$\frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial A}{\partial r} \right) = -a^2 A \cdot r \quad (A17.) \quad \frac{\partial^2 B}{\partial z^2} = -b^2 B \quad (A18.)$$

Az  $A17.$  egyenlet megoldásához a zárójelet felbontva, bevezetve az  $A = J(a \cdot r)$   $(A19.)$  átalakítást, és az egyenletet elosztva  $a^2 \cdot r$ -el,  $A17.$  a következő alakra hozható:

$$\frac{1}{ar} \frac{\partial J}{\partial(ar)} + \frac{\partial^2 J}{\partial(ar)^2} = -J \quad (A18.)$$

Az  $A18.$  egyenlet Bessel típusú differenciálegyenlet, aminek a megoldása a  $J_0(x)$  nulladrendű elsőfajú hengerfüggvény, ahol  $x = a \cdot r$ . A rezonátor falánál a peremfeltétel,  $A9.$ -hez hasonlóan a sebességpotenciál eltűnése.  $J_0(x)$  első zérushelye  $x \cong 2.4$ , amiből :

$$a = \frac{2.4}{R} \quad (A19.)$$

Az  $A18.$  egyenlet megoldása:  $B = M \cdot \sin(b \cdot z) + N \cdot \cos(b \cdot z)$   $(A20.)$

A henger fedőlapjain érvényes peremfeltétel szintén a sebességpotenciál eltűnése, de ezen kívül szükséges még, hogy a fedőlapoknál a sebesség mindig ellentétes irányú legyen  $(A21.)$ .

$$\nabla \psi \Big|_{z=\pm \frac{h}{2}} = \pm U \cdot \cos(\omega \cdot t) \quad (A21.)$$

Ahol  $U$  a sebességamplitúdó a fedőlapoknál, és  $h$  a henger magassága.

Ahhoz, hogy  $A20.$  kielégítse az  $A21.$  feltételt  $M=0$  kell legyen. Ezt figyelembe véve:

$$\frac{\partial C}{\partial z} \Big|_{z=\pm \frac{h}{2}} = mN \cdot b \cdot \sin\left(b \cdot \frac{h}{2}\right) = \pm U \quad (A22.)$$

Az  $A22.$  feltételből  $b$ -re és  $N$ -re a következők adódnak:

$$b = \frac{(2k+1)\pi}{h} \quad (A23.) \quad N = -\frac{U \cdot h}{(2k+1) \cdot \pi} \quad (A24.) \quad k \in Z$$

Szonolumineszcencia előállításához a  $k=0$  módust használják, ahol egy nyomás duzzadóhely jön létre. Az  $A23.$ ,  $A19.$  és az  $A16.$  kifejezéseket összehasonlítva a henger alakú rezonátorok  $f$  sajátfrekvenciája:

$$f = \frac{c}{2} \sqrt{\frac{1}{h^2} + \left(\frac{2.4}{\pi \cdot R}\right)^2} \quad (A25.)$$

A nyomástér pedig  $A2.$ ,  $A3.$ ,  $A14.$ ,  $A19.$  és  $A20$  alapján a következő alakú:

$$P(r, z, \phi, t) = P_A \cdot \cos\left(\frac{\pi \cdot z}{h}\right) J_0\left(\frac{2.4r}{R}\right) \sin(2\pi \cdot f \cdot t) \quad (A26.) \quad P_A = -\frac{\rho \cdot U \cdot h}{\pi} \quad (A27.)$$

ahol  $P_A$  a nyomásamplitúdó. A nyomásamplitúdóra ugyan fel lehet állítani a levezetés alapján az  $A27.$  kifejezést de az csak  $P_A \ll P_0$  esetben érvényes mivel már a kiindulási hullámegyenlet is csak ennél a közelítésnél írható fel. Mivel szonolumineszcencia előállítása a sztatikus nyomással összemérhető, vagy azt meghaladó nyomásamplitúdók mellett lehetséges, így esetünkben  $A27.$  nem használható becslésre.

## APPENDIX B. A buborék lebegése

Feltételezve, hogy a buborék a henger alakú rezonátor forgástengelyén helyezkedik el, és végig gömbszimmetrikus, a mozgását befolyásoló legfontosabb erők, az  $F_f$  felhajtóerő,  $F_p$  a nyomás-állóhullámtér hatása, és az  $F_k$  közegellenállási erő, ami a Stokes-törvény buboréokra érvényes változata [L.L. Hidr. 20§ 2.feladat].

$$F_f = \frac{4}{3}\pi \cdot R(t)^3 \rho \cdot g \quad (B1.) \quad F_k = 4\pi \cdot \xi \eta \cdot R(t) \quad (B2.)$$

ahol  $\rho$  a folyadék sűrűsége,  $g$  a nehézségi gyorsulás,  $\eta$  a folyadék viszkozitása,  $z$  a függőlegesen mért helykoordináta ( $z=0$  a rezonátor közepénél),  $R(t)$  a buborék sugara.

$$F_p = -\iint_A p(r, z, t) dA \quad (B3.)$$

Ahol  $p(r, z, t)$  megegyezik A26.-al. A buborék felületére B3.-ban vett integrál átalakítható térfogati integrállá:

$$\iint_A p(r, z, t) dA = \iiint_V \text{grad}(p(r, z, t)) dV \quad (B4.)$$

Ha a buborék a rezonátor forgástengelyén helyezkedik el, de nem a középpontban, akkor az integrálba csak a  $z$  irányú gradiens ad nem eltűnő járulékot. Mivel a buborék mérete sokkal kisebb a nyomásállóhullám hullámhosszánál, ezért B4.-ben a nyomás gradiens függetlennek vehető a hely koordinátáktól, ezért az integrál elé kiemelhető. A  $z$  irányú nyomás-gradienst A26.-ból számolva:

$$F_p = P_A \frac{4\pi^2}{3h} \sin\left(\frac{\pi \cdot z}{h}\right) \sin(\omega \cdot t) \cdot R(t)^3 \quad (B5.)$$

Az akusztikus ciklus azon fázisában amikor a nyomás negatív, a B5. erő  $z=0$  -ba, a nyomás duzzadóhely felé mutat. Amikor a nyomás pozitív az erő a középponttól kifelé mutat. A buborék lebegésének a kulcsa az időbeli aszimmetria, vagyis, hogy a buborék sugara és így a B5. erő is sokkal nagyobb az akusztikus ciklus azon félperiódusban, amelyikben a nyomás negatív (B1. ábra). A B5. erőt egy teljes periódusra kiátlagolva, egy mindig a centrumba mutató erőt kapunk, ami ellensúlyozni képes a felhajtóerőt, és a buborékot a nyomás duzzadóhely felett  $z_0$  távolságra stabilizálja. A közegellenállási erőt figyelmen kívül hagyva  $z_0$  a következő egyenletből becsülhető:

$$\frac{4}{3}\pi \cdot \rho \cdot g \langle R(t)^3 \rangle_T = P_A \frac{4\pi^2}{3h} \sin\left(\frac{\pi \cdot z_0}{h}\right) \langle \sin(\omega \cdot t) \cdot R(t)^3 \rangle_T \quad (B6.)$$

ahol  $\langle \dots \rangle_T = \frac{1}{T} \int_T (\dots) dt$  az akusztikus periódusra vett átlag.

$R(t)$  a Rayleigh-Plesset egyenletből (5.1.) numerikusan számolható. Szonolumineszcencia fázisban lévő buborék  $R(t)$  adatai alapján a buborék távolsága a nyomás-duzzadóhelytől a mm törtrésze.

## 6. ÖSSZEFOGLALÁS

A szonolumineszcencia jelenségével kapcsolatban az eddig megválaszolt kérdések elenyésző számban vannak a magyarázatra váró aspektusokkal szemben. A jelenség sok paramétertől függ, amiket megváltoztatva még számos felfedezésre nyílik mód. A diplomamunka során elértük a jelenség reprodukálható előállítását, tapasztalatokat szereztünk a szonolumineszcencia létrehozásához és detektálásához szükséges berendezések kezelésében, és ezzel megteremtettük a további kísérleti munka lehetőségét. Méréseket végeztünk a buborék dinamikai fázis határainak, a kibocsátott fény intenzitásának és fluktuációjának függésére a kigázosítás fokától, és a gerjesztés mértékétől. A mérés eredményeként azt a nem várt viselkedést kaptuk, hogy az elérhető legnagyobb intenzitás, mások eredményeivel ellentétben nem 150 mmHg kigázosításnál volt maximális, hanem sokkal kisebb parciális nyomásokon. A dinamikai fázis határokat vizsgálva 150 mmHg-nál visszakaptuk a mások által leírt viselkedést, kisebb parciális nyomásokon pedig azt tapasztaltuk, hogy a buborék csak fénykibocsátó fázisban létezhet. Ilyen viselkedést már megfigyeltek etán, etén, és deutérium buborékok esetén, szintén kis parciális nyomásokon, de olyan cikket nem találtunk ami ezt levegő esetére írta volna le. A kibocsátott fény fluktuációját vizsgálva azt tapasztaltuk, hogy egy adott fényességhez nagyjából ugyanakkora fluktuáció tartozik minden kigázosítási értéknél. Ez ismét váratlan viselkedés, mivel mások azt tapasztalták, hogy levegő esetén kb. 150 mmHg kigázosításnál a legstabilabb a buborék, és a fénykibocsátás. A másik mérésünkben arra a kérdésre kerestük a választ, hogy sugároz-e a buborék a lágy-röntgen tartományban. A vízben való elnyelődés csökkentése érdekében a sugárzást a buborékhoz ~7mm közel elhelyezett vékonyfalú plexi csövön keresztül vezettük a detektor felületére. A mérésekben nem találtunk a háttértől szignifikánsan elkülönülő röntgen intenzitást. A negatív eredmény alapján a vízben és a plexiben való elnyelődést figyelembe véve, a mért esetekben a buborék effektív hőmérsékletére a 2800 000 K felső korlátot tudtuk felállítani. A buborék mozgásegyenletét numerikusan megoldva, és a szimulációból valamint a mérésekből a felvillanások fázisára adódó értékeket összehasonlítva, sikerült megbecsülni, hogy az egyes mérésekben mekkorák voltak a nyomásamplitúdó ( $P_A$ ), és az átlagos sugár ( $R_0$ ) paraméterek.

## **Köszönetnyilvánítás**

Ezúton is szeretnék köszönetet mondani témavezetőimnek *Csabai Istvánnak* és *Horváth Ákosnak* a munkám során nyújtott mindennemű segítségükért. Külön megköszönöm *Kiss Ádámnak* az anyagi támogatást, és a hasznos konzultációkat. További köszönet illeti a Neutronlabor, az NMR-labor, a Háziműhely, és az Üvegtechnika dolgozóit valamint mindazokat, akiktől műszereket kaptunk kölcsön, vagy tanácsaikkal segítették a munkánkat.

**Hivatkozások**

- [B.B.92] B.P. Barber, S.J. Putterman, 1992, Phys. Rev. Lett. 69, 3839.
- [B.B.94] B.B. Barber, C.C. Wu, R. Löfstedt, P.H. Roberts, S.J. Putterman, 1994, Phys. Rev. Lett. 72, 1380.
- [B.B.95] B.P. Barber, K. Weninger, R. Löfstedt, S.J. Putterman, 1995, Phys. Rev. Lett. 74, 5276.
- [B.B.97] B.B. Barber et al./Physics Reports 281 (1997) 65-143.
- [C.E.96] C. Eberlein, 1996, Phys. Rev. Lett. 76, 3842.
- [H.F.34] H.Frenzel, H. Schultes, Z. Phys. Chem. 27B, 421 (1934)
- [L.F.94] L. Frommhold, A.A. Atchley, 1994, Phys. Rev. Lett. 73, 2883.
- [M.F.94] M.M Fyrillas, A.J. Szeri, 1994, J. Fluid Mech. 277, 381.
- [D.C.96] B.B. Barber et al./Physics Reports 281 (1997) 65-143.
- [D.G.96] D.F. Gaitan, A.A. Atchley, S.D. Lewis, J.T. Carlson, X.K. Maruyama, M. Moran, D. Schweider, 1996, Phys. Rev. E 54, 525.
- [G.H.96] R.G. Holt, D.F. Gaitan, 1996, Phys. Rev. Lett. 77, 3791.
- [R.H.92] R. Hiller, S.J. Putterman, B.P. Barber, 1992, Phys. Rev. Lett. 69,1182.
- [R.H.94] R. Hiller, K. Weninger, S.J. Putterman, B.B. Barber, 1994, Science 266, 248.
- [R.H.95] R. Hiller, S.J. Putterman, 1995, Phys. Rev. Lett. 75, 3549; 77, 2345 (E).
- [R.Hi.95] R. Hiller, B.P. Barber, 1995, Sci. Am. 272, 78.
- [R.H.98] R. Hiller, S.J. Putterman, K. Weninger, 1998, Phys. Rev. Lett. 80, 1090.
- [L.K.95] L. Kondic, J.I. Gersten, C. Yuan, 1995, Phys. Rev. E 52, 4976.
- [D.L.97] D. Lohse, M.P. Brenner, T.F. Dupont, S. Hilgenfeldt, B. Johnston, 1997, Phys. Rev. Lett. 78, 1359.
- [R.L.95] R. Löfstedt, K. Weninger, S.J. Putterman, B.B. Barber, 1995, Phys. Rev. E 51, 4400.
- [M.M.95] M.J. Moran, R.E. Haigh, M.E. Lowry, D.R. Sweider, G.R. Abel, J.T. Carlson, S.D. Lewis, A.A. Atchley, D.F. Gaitan, X.K. Maruyama, 1995, Nucl. Instrum. Methods B96,651.
- [T.M.95] T.I. Matula, R.A. Roy, P.D. Mourad, W.B. McNamara, K.S. Suslick, 1995, Phys. Rev. Lett. 75, 2602.
- [C.O.98] C.D. Ohl, O. Lindau, W. Lauterborn, 1998, Phys. Rev. Lett. 80, 393.
- [W.M.97] W.C. Moss, D.B. Clarke, D.A. Young, 1997, Science 276, 1398.
- [H.S.36] H. Schultes, H. Gohr, Angew. Chem. 49, 420 (1936).



- [C.W.93] C.C Wu, P.H. Roberts, 1993, Phys. Rev. Lett. 70, 3424.
- [C.W.94] C.C Wu, P.H. Roberts, 1994, Proc. Roy. Soc. A445, 323.
- [K.W.95] B.B. Barber et al./Physics Reports 281 (1997) 65-143.
- [J.Y.96] J.B. Young, T. Schmiedel, W. Kang, 1996, Phys. Rev. Lett. 77, 4816.
- [N.K.Term.] Nagy Károly, Termodinamika és statisztikus mechanika, tankönyvkiadó Bp.1991.
- [L.L.Hidr.] Landau-Lifsic, VI. Hidrodinamika, tankönyvkiadó Bp. 1980
- [CRC] Handbook of Chemistry and Physics, 1991-1992, 72 nd edition, CRC Pres, inc.
- [Num.Rec.] Numerical Recipies in C, Cambridge 1988.