

单泡声致发光中气泡运动特性的 Mie 散射测量^{*}

葛曹燕 李同保 程 茜 钱梦碌

(同济大学 声学研究所 上海 200092)

2002 年 11 月 18 日收到

2003 年 11 月 1 日定稿

摘要 运用光学 Mie 散射测量, 实验研究了声致发光单泡的运动状态和发光光强受激励声场频率 f 及声压 P_a 变化的影响, 结合动力学 $R - P$ 方程拟合得到不同声压 P_a 下气泡半径随时间变化的动力学特征曲线—— $R(t)$ 曲线, 定量确定了气泡平衡半径 R_0 和压缩比 $R_{\max}/R_0$, 并通过气泡振子模型给出的势能方程估算了气泡塌缩阶段的能量损耗。结果表明: 适当控制谐振频率 ($\Delta f/f_0 \sim 10^{-4}$, $f_0 = 21$ kHz) 和声压 (1.2 atm~1.5 atm) 可实现稳定的单泡声致发光; 并且随着 P_a 的增大, 气泡压缩比增大, 回弹势能占总能量的比值逐渐减小 ($10^{-1} \sim 10^{-3}$), 气泡在膨胀相聚集的大部分声能很可能以激波和热能形式释放。

PACS 数: 43.25, 43.35

Measurement of a sonoluminescence bubble's dynamic behavior by Mie scattering

GE Caoyan LI Tongbao CHENG Qian QIAN Menglu

(Institute of Acoustics, Tongji University Shanghai 200092)

Received Nov. 18, 2002

Revised Nov. 1, 2003

Abstract The steady single-bubble sonoluminescence (SBSL) under the proper conditions of resonance frequencies $\Delta f/f_0 (\sim 10^{-4})$, $f_0 = 21$ kHz and sound pressure P_a (1.2 atm~1.5 atm) at room temperature was successfully obtained. The sound pressure P_a -dependent dynamic behaviors of the bubble, including its radius versus time curve $R(t)$, ambient radius R_0 , and the compression ratio $R_{\max}/R_0$, were investigated by fitting the Mie scattering measurement data to Rayleigh-Plesset equation. Meanwhile the energy dissipation of the bubble through rebound by calculating its potential energy was estimated. It is found that $R_{\max}/R_0$ increased with P_a , while the ratio of bubble's rebound energy to its total energy decreased ($10^{-1} \sim 10^{-3}$), which indicated that most energy of the bubble was transformed into thermal energy and/or generating the imploding shock wave.

引言

自从 D.F.Gaiten 博士实现单泡声致发光 (SBSL) 以来^[1], 人们一直在探究它如何将低能量密度的声转化为高能量密度的光。研究主要集中在两方面^[2]: 一是从实验上测定气泡半径随时间的变化 ($R(t)$ 曲线), 确定影响 SBSL 的参数空间 (如声场、温度、环境气压、气体含量、液体粘滞度和表面张力等), 并结合流体力学方程研究气泡的动力学特征^[3,4]; 二是从光谱分析出发, 实验测量光脉冲持续时间、发射光谱, 以

建立种种可能的理论发光模型, 探求 SBSL 的能量转换及发光机理^[2,5]。鉴于上述两方面的结合点在于气泡的动力学特征研究, 在实验室形成稳态的单泡声致发光, 测量反映气泡动力学特征的 $R(t)$ 曲线, 进而研究它在塌缩阶段的能量耗散对于验证气泡的发光机理十分重要。

从相关报道了解到, 虽然声致发光易于实现, 但其稳定性受制于上述参数, 其中尤以激励声压 P_a 和频率 f 最为敏感, 因此有必要研究它们相对于稳态 SBSL 的阈值; 另外, 由于气泡半径在几十微米到小

* 国家自然科学基金 (19934001) 及教育部博士点基金 (024706) 资助项目

于一微米的范围内变化,直接测量气泡的形状变化难度很大,因而具有动态测量特性的 Mie 散射技术成为实验研究全声周期内气泡 $R(t)$ 曲线的首选。

在建立连续光 Mie 散射实验系统的基础上,本文对单泡声致发光的气泡运动特性进行了研究。通过将 Mie 散射测量的 $R(t)$ 曲线与动力学 R-P 方程相拟合,确定了不同声压下气泡的平衡半径 R_0 和压缩比 $R_{\max}/R_0$ 等值。利用气泡振子模型^[7]给出的势能方程,由所得的 $R(t)$ 曲线估算气泡塌缩后的回弹机械能耗散,其结果表明塌缩过程中气泡把所吸收的大部分能量转化为激波和热能,因此泡内形成高温是完全可能的。

1 实验装置

实验是在常温下进行的,图1为 SBSL 实验系统及 Mie 散射检测装置。信号发生器(HP3325A)输出的电信号 V_{out} 经功放(BK2713)增益 g 和 LC 回路调谐加到图示的压电陶瓷换能器(PZT)上,在 200 ml 的长颈球形烧瓶内形成谐振声场。瓶内的蒸馏水由机械真空泵去气 20 min 得到,瓶塞处插入镍铬丝和热敏温度计,前者用于加热产生小气泡,后者用来测量水温。稳功率 He-Ne 激光经迈克尔逊干涉仪,入射到气泡上,一方面由光电倍增管(PMT)3 接收干涉条纹信号,通过激光干涉法测量声场的理论计算出

腔内声场^[8];另一方面进行气泡 Mie 散射及声致发光测量。为了区分气泡散射的激光(632.8 nm)与声致发光(SL 闪光,光谱分布最大值在近紫外),可在图示位置加入红滤光片,用以阻隔进入光电倍增管1的 SL 光信号,实现 Mie 散射测量;同样,光电倍增管2前面的蓝滤光片可用以阻隔气泡散射激光,实现 SL 发光测量。最后将示波器接收到的 Mie 散射信号(PMT1)、SL 发光信号(PMT2)和干涉信号(PMT3)输入微机进行数据处理。

2 实验结果

实验中对激励声场的频率 f 、振幅 P_a 以及 Mie 散射角 θ 进行了严格的选择。

球腔调谐后,种入气泡,通过固定功放增益 g 、改变信号发生器的驱动信号来调节声场:(1)固定驱动电压峰-峰值 V_{out} ,微量调节驱动频率 f , (2)固定频率 f ,逐渐增大驱动电压 V_{out} ,使气泡发光,最后用 SDS-II 型光辐射计测量气泡的发光强度。图2(a)给出了在增益 g 为 49.7 dB、驱动电压 V_{out} 为 100 mV 时,气泡发光亮度随驱动频率的变化。实验发现气泡发光亮度在中心频率 21.023 kHz 时达到最大,偏离中心频率 ± 15 Hz 后气泡就不再发光,这表明 SBSL 要求激励频率的稳定性和准确性在 10^{-4} 量级 ($\Delta f/f_0$)。

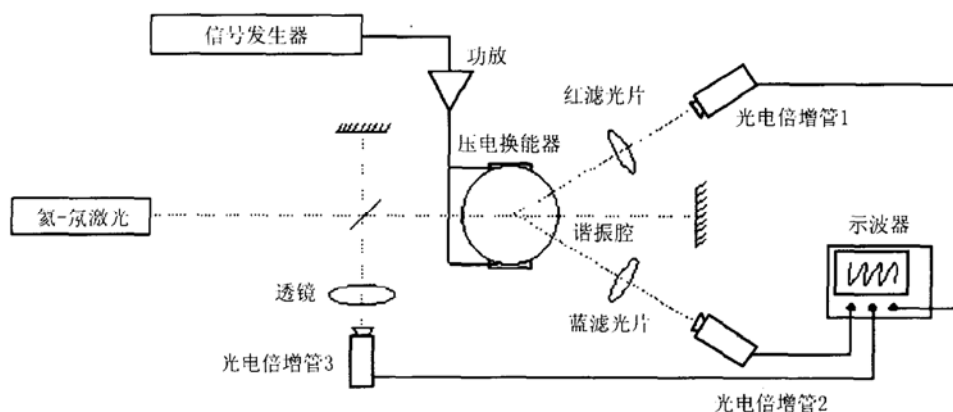


图1 SBSL 发生装置及 Mie 散射检测装置

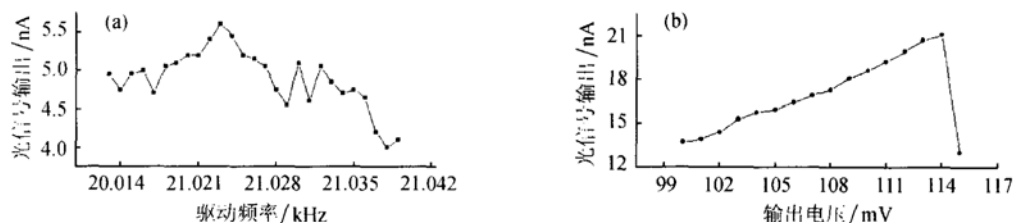


图2 常温常压下, 功放增益 g 为 49.7 dB 时, 接收 SBSL 发光信号的光辐射计输出电流与信号发生器驱动频率 f 、驱动电压 V_{out} 的关系: (a) SBSL 发光光强随驱动频率的变化, $V_{\text{out}} = 100$ mV, (b) SBSL 发光光强随驱动电压的变化, $f = 21.100$ kHz。

图2(b)给出了增益49.7 dB、声激励频率为21.023 kHz时, 气泡发光亮度和驱动电压 V_{out} 的关系。当 V_{out} 达到 100 mV 时, 气泡开始发光; 此后随着 V_{out} 的增大, 发光亮度逐渐增强; 当 V_{out} 超过 114 mV 时, 腔内声压过大, 气泡无法保持平衡而破裂, 发光消失。由激光干涉测量声场的定量计算显示, 稳态发光的声场阈值在 1.2 atm~1.5 atm 之间。

Mie 散射在微小粒子尺度测量上具有动态、灵活的特点, 但它具有明显的各向异性^[7]。图 3 给出了气泡半径为 30 μm 时, 散射光强 I 与散射角 θ 对应关系的理论结果。可以看到, Mie 散射具有很强的各向异性, 且前向散射远大于后向散射, 所以散射角 θ 的选择对实验的信噪比及数据拟合影响很大。进一步的计算表明, 在 80° 附近用 $\phi 25$ 的石英透镜接收光信号, 可以近似满足散射光强与半径的平方成正比^[10], 方便数据拟合。

我们着重观察了声压 P_a 变化时气泡的动力学特性。Dominik Hammer^[2], Yuren Tian^[11] 等人在其文献中对气泡的动力学行为进行了明确的分类, 并给出相应的声压阈值。我们在此结合观察到的气泡运动进行更为细致的描述, 如图 4。图中各区的阈值与文献给出的基本相同。值得一提的是: 随着声压的升

高, 气泡不仅存在运动状态的变化, 平衡半径也相应变化, 尤其是在发光前瞬间。

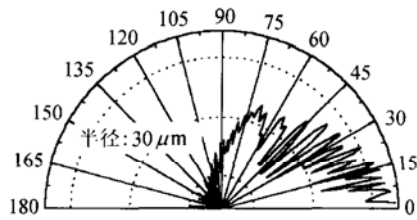


图 3 散射粒子半径为 30 μm 时散射光强随散射角变化的理论计算结果

图 5 给出了 22°C, 21.25 kHz, 功放增益 45 dB 时, 不同驱动电压 V_{out} 下 PMT1 输出的 Mie 散射信号。三条曲线由上而下各自对应的 V_{out} 为 110 mV, 135 mV 和 150 mV。其中 110 mV 和 135 mV 对应的气泡尚未发光, 150 mV 对应的气泡稳定发光。为了将图形缩放在一起, 便于比较气泡回弹与最大半径的相对比值, 图示 PMT 输出信号取任意坐标, 且三条曲线的纵向缩放比不一样。可以看到, 尚未发光的气泡运动明显分为膨胀、塌缩和回弹三个过程, 并且, 随着声压增大, 气泡回弹的幅度逐渐减小、频率增大; 发光后的气泡回弹则非常微弱, 以致淹没在噪声中不可见了。另外, 随着驱动电压的增大, 气泡塌

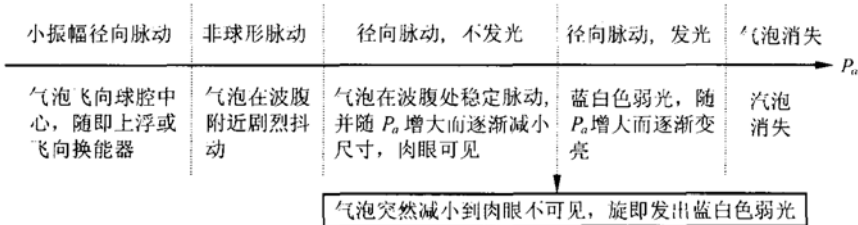


图 4 常温常压下, 不同声压 P_a 下观察到的气泡运动特性

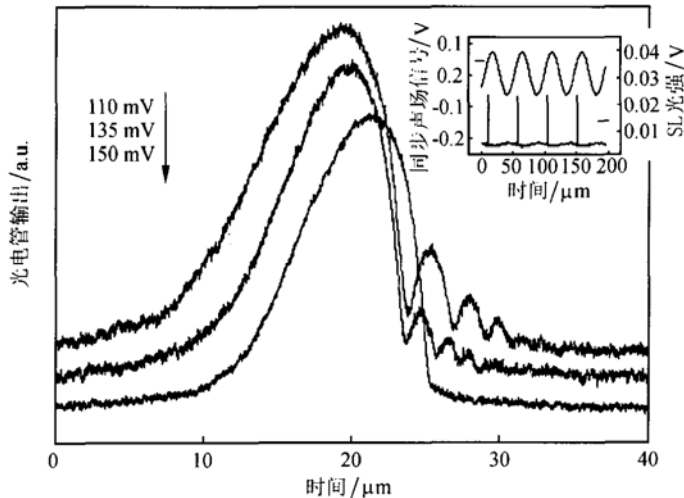


图 5 22°C, 21.25 kHz, 功放增益 45 dB, 驱动电压 V_{out} 分别为 110 mV, 135 mV 和 150 mV 时的 Mie 散射信号: 110 mV 和 135 mV 对应的气泡尚未发光; 150 mV 对应的气泡稳定发光。小图为 PMT2 输出的气泡发光 (SL) 信号与声场的对应关系。

缩的起始相位逐渐后移, 即其吸收声能的膨胀过程加长了。由此可见, 随着声压增大, 气泡一方面聚集了更多的声能, 一方面减小了回弹的能量耗散: 足见有更多的能量被用于其他途径, 如化学反应耗能、激波辐射、光子辐射或热能耗散。插入的小图为多周期内 PMT2 输出的气泡发光 (SL) 信号与正弦声场的对应关系, 该正弦信号由烧瓶底部的 pill 换能器测得。可以看到, 声致发光与激励声场严格同周期。

3 数据拟合

Mie 散射实验可以得到 PMT 输出电压与时间的对应关系, 即 $V(t)$ 曲线, 而光电倍增管感光阴极与阳极间的电子增益是呈线性关系的, 即其输出电流 I 与电压 V 成正比: $V = GI$, G 为增益系数。同时, Mie 散射理论计算的结果表明, 当激光 Mie 散射实验满足散射角 $\theta = 80^\circ$ 、接收透镜 $\phi = 25$ mm 时, 散射光强 I 与半径 R 的平方成正比^[10]。这样, 经过相应的修正, 就可以拟合理论与实验, 得到气泡的 $R(t)$ 曲线。具体来说, 将 PMT1 的输出信号 $V(t)$ 减去背景信号 (由于瓶壁等引起的杂散光) $\Delta V(t)$, 开根号后乘以某一系数 k , 跟调整参数后的理论 $R(t)$ 曲线进行比较, 最终完成 $R(t)$ 曲线的拟合。理论 $R(t)$ 曲线由 R-P 方程^[5]:

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 + \frac{1}{\rho}\left[P_0 + P_a \sin \omega t - P_v - P_{g0}\left(\frac{R_0}{R}\right)^{3\gamma}\right] + \frac{2\sigma}{\rho R} + \frac{4\mu\dot{R}}{\rho R} = 0 \quad (1)$$

数值求解得到。其中平衡半径 R_0 、声压 P_a 为拟合参数, P_0 , P_v , P_{g0} , ω , ρ , σ , μ , γ 分别为环境气压、泡内蒸汽压、平衡半径时泡内的气压、驱动声场圆频率、流体密度、流体表面张力、流体粘滞系数以及泡内气体的多方指数, 计算过程中选取与文献 7 相同的量值。

这样, 共有 4 个参数待拟合: 背景信号 $\Delta V(t)$ 、比例系数 k 、声压 P_a 和平衡半径 R_0 。拟合过程满足以下条件, 即实验 $R(t)$ 曲线与理论 $R(t)$ 曲线相比较: (1) 压缩比 $R_{\max}/R_0$ 相同, 其中 $R_{\max}$ 是气泡的最大半径, (2) 半高宽相等, (3) 回弹频率一致。图 6 给出了拟合后的 Mie 散射实验曲线 (实线) 及 R-P 方程理论 $R(t)$ 曲线 (虚线)。图 6(a) 对应的气泡尚未发光, 拟合结果为声压 $P_a = 1.15$ atm, 平衡半径 $R_0 = 9.6$ μm , 压缩比 $R_{\max}/R_0 = 3.62$; 图 6(b) 的拟合参数为 $P_a = 1.54$ atm, $R_0 = 6.0$ μm , $R_{\max}/R_0 = 12.79$, 此时气泡稳定发光。比较 a, b 两

图, 压缩比 $R_{\max}/R_0$ 的显著上升标志着气泡的塌缩过程加剧, 能量转换效率上升。

在 22°C , 21.25 kHz, 功放增益 47 dB 时选取对应于不同驱动电压 V_{out} 的一组 Mie 散射实验数据进行拟合, 得到平衡半径 R_0 (空心方格)、压缩比 $R_{\max}/R_0$ (实心圆) 和声压 P_a 的关系, 如图 7。插入的小图是拟合声压值 P_a 与实验中实际施加的驱动电压 V_{out} 的对应关系。值得一提的是, 当驱动电压增大到 132 mV 时气泡开始稳定发光, 这在图示 $R_0 - P_a$, $R_{\max}/R_0 - P_a$ 两条曲线上表现为它们都在 $P_a = 1.23$ atm 附近发生了显著变化 (在本实验结果中 1.23 atm 正是气泡发光的声场下限)。从图 7 可以明显看到, 当声压 P_a 从 0.88 atm 逐渐增加到 1.54 atm 时, 与压缩比 $R_{\max}/R_0$ 单调地从 1.58 上升到 12.79。不同的是, 平衡半径 R_0 先随着 P_a 变大

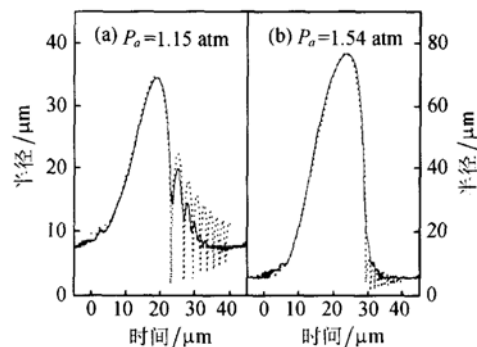


图 6 22°C , 21.25 kHz, 功放增益 47 dB 时气泡的 $R(t)$ 曲线 其中实线为拟合后的 Mie 散射实验结果; 虚线为 R-P 方程的理论计算结果: (a) 气泡尚未发光, $P_a = 1.15$ atm, $R_0 = 9.6$ μm , $R_{\max}/R_0 = 3.62$; (b) 气泡稳定发光, $P_a = 1.54$ atm, $R_0 = 6.0$ μm , $R_{\max}/R_0 = 12.79$ 。

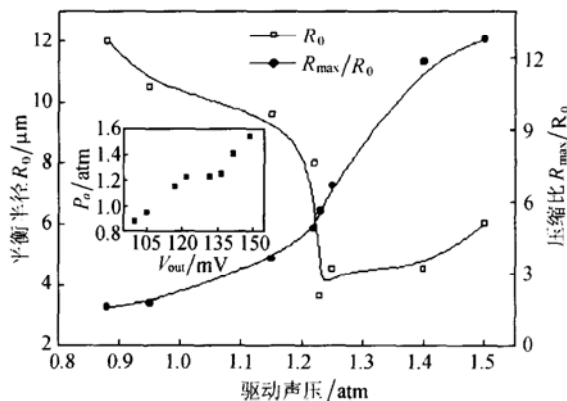


图 7 根据 22°C , 21.25 kHz, 不同声压下 Mie 散射 $R(t)$ 曲线的拟合结果得出的平衡半径 R_0 (空心方格)、压缩比 $R_{\max}/R_0$ (实心圆) 和声压 P_a 的关系。插入的小图为拟合声压 P_a 与实验中实际施加的驱动电压 V_{out} 的对应关系: 当驱动电压大于 132 mV (对应于声压大于 1.23 atm) 时, 气泡存在稳定声致发光。

表 1 气泡闭合过程中能量损耗的比较

		我们的		Suslick 等人的 *
实验条件	环境气压 P_0/atm	1.0		1.0
	温度 $T/^\circ\text{C}$	22		22
	谐振频率 f/kHz	21.15		52
	谐振声压 P_a/atm	1.22	1.4	1.5
实验结果	$R_{\max}$ 处的势能 /eV*	1.7×10^{11}	4.4×10^{11}	6.4×10^{10}
	$R_{1st-\text{reb}}$ 处的势能 /eV	1.6×10^{10}	6.2×10^8	/
	声化学反应能 /eV#	/	/	5×10^6
	声致发光光能 /eV	/	/	2.7×10^4

* 参考文献 4

* 一般近似认为: $R_{\max}$ 处的势能 = 机械能 (包括回弹势能即 $R_{1st-\text{reb}}$ 处的势能与激波) + 热能 + 化学能 + 光能# 文献中的声化学反应能指反应生成的 OH 基与 NO_2^- 根的能量之和。

而迅速减小, 在发光起始阈值 $P_a = 1.2 \text{ atm}$ 左右达到最小, 随后缓慢回升。这可以理解为, 最初声压加大时泡内的整流扩散^[3]程度加剧, 更多的气体分子转化为离子及自由基, 溶解在水中, 因而达到扩散平衡时, 泡内的残留气体较少, 气泡半径减小; 一旦气泡发光, 其扩散平衡相对稳定, 随着 $R_{\max}$ 的增大, 它势必选取一个相对较大的平衡半径, 以保持运动学平衡。

4 能量估计

由气泡的势能公式^[7]:

$$U = \int_{V_0}^V (P_{\text{out}} - P_{\text{in}}) dV + \sigma \int_S dS, \quad (2)$$

忽略由气泡非球对称扰动引入的各项因子, 得到^[7]:

$$U = \frac{4\pi R^3}{3} \left[P_0 + P_a \sin \omega t - P_v - P_{g0} \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} \right] + 4\pi R^2 \sigma, \quad (3)$$

其中 $P_{g0} = P_0 + 2\sigma/R_0$ 。据此分别计算声压为 1.22 atm 和 1.40 atm 时 $R(t)$ 曲线上某些特殊点的相应势能, 主要指: (1) $R_{\max}$ 处的势能, 相当于气泡汇聚的最大能量, (2) 气泡闭合过程中与第一次回弹峰值等高的点的势能 $R_{1st-\text{reb}}$, 相当于气泡塌缩后剩余的机械能。

所得的计算结果如表 1 所示, 同时列出的是 Suslick 等人的结果^[6]。引用的数值显示, 气泡运动过程中转化生成的化学能和光能分别仅占总能量的 10^{-4} , 10^{-6} 量级; 而我们的计算结果表明, 气泡塌缩后剩余的机械能占总能量的 10^{-1} 至 10^{-3} 不等。鉴于气泡集聚的声能可能转化为以下几种形式^[6]: 机械能 (包括回弹势能与激波辐射)、热能、化学能及光

能 (SL), 因此, 气泡 (尤其是发光气泡) 聚集的声能, 有 90% 以上转化成了激波辐射和热能耗散。据此进一步从理论探究泡内的最高温度是十分必要的。

5 结论

在散射角 $\theta = 80^\circ$ 、接收透镜 $\phi = 25 \text{ mm}$ 的情况下, 利用连续光 Mie 散射技术, 得到不同声压下气泡的 $R(t)$ 曲线, 发现稳态 SBSL 要求激励频率的稳定性和准确性在 10^{-4} 量级, 声压阈值为 1.2 atm~1.5 atm。为了定量研究气泡的动力学特性, 将 Mie 散射实验结果与 R-P 方程的理论曲线进行拟合, 得到不同声压下气泡的 $R(t)$ 曲线、平衡半径 R_0 和压缩比 $R_{\max}/R_0$ 。结果表明: 随着声压的增大, 气泡回弹逐渐减小, 压缩比逐渐增大, 同时平衡半径迅速减小, 在发光起始声压阈值附近达到最低值后又缓慢回升。这些特征都定性地显示了气泡的聚能特性。进一步利用拟合的 $R(t)$ 曲线, 结合势能方程计算气泡膨胀过程聚集的最大能量及剩余的回弹能。结果表明, 只有 1% 至 1/10 不等的声能通过机械回弹的形式耗散。因此, 气泡塌缩过程中有 90% 以上气泡所吸收的声能转换成热能和用于产生激波, 进一步的理论计算有望得出泡内的最高温度。

参 考 文 献

- 1 Gaiten D H. An experimental investigation of acoustic cavitation in gaseous liquids. Mississippi: University of Mississippi, 1990
- 2 Hammer D, Frommhold L. Sonoluminescence: how bubble glow. *J. of Modern Optics*, 2001; 48(2): 239—277

- 3 Barber B P, Hiller R A *et al.* Defining the unknowns of sonoluminescence. *Phys. Reports*, 1997; **281**: 65—143
- 4 安 宇, 周铁英. 声致发光气泡内的气体热力学性质. *声学学报*, 2000; **25**(2): 103—107
- 5 李化茂. Luminal - 碳酸钠水溶液的声致发光. *声学学报*, 1994; **19**(6): 450—454
- 6 Didenko Y T, Suslik K S. the energy efficiency of formation of photons, radicals and ions during single-bubble cavitation. *Nature*, 2002; **418**(25): 394—397
- 7 钱梦谔, 程 茜, 葛曹燕. 单泡声致发光中气泡的动力学特性——振子模型. *声学学报*, 2002; **27**(4): 289—294
- 8 Cheng Q, Qian M L. Laser interferometric technique for the acoustic pressure in the spherical resonant field. *Progress in Natural Science*, 2001; **11**, Suppl: 360—363
- 9 Wiscombe W J. Improved Mie scattering algorithms. *Appl. Opt.*, 1980, **19**(9): 1505—1509
- 10 葛曹燕, 钱梦谔, 李同保. 声致发光单泡的 Mie 散射测量参数的理论计算. *应用声学*, 2002; **21**(5): 12—18
- 11 Tian Y, Jeffery A *et al.* Direct observation of microbubble oscillation. *Acoust. Society of America*, 1996; **100**(6): 3976—3978