

Tesis Doctorado en Ciencias Físicas

# Concentración de Energía en Sonoluminiscencia

Raúl Urteaga

Director:

**Dr. Fabián José Bonetto**

Instituto Balseiro  
Comisión Nacional de Energía Atómica  
Universidad Nacional de Cuyo

Febrero de 2008



A Itatí,

## Resumen

En este trabajo se estudiaron las diferentes limitaciones que aparecen en la concentración de energía en un sistema sonoluminiscente.

Esta concentración de energía está asociada a la obtención de altas temperaturas y la emisión de luz a partir de la compresión violenta de una burbuja en un campo de presión variable (sonoluminiscencia).

En una primera etapa se validó experimentalmente un modelo numérico que incluye los fenómenos físicos más relevantes en sonoluminiscencia. Utilizando agua como fluido de trabajo se encontró que el modelo representa correctamente la evolución temporal de la burbuja en todo el espacio de fases estudiado. Además, el modelo reprodujo correctamente la posición en diagrama de fases donde aparecen las inestabilidades de forma, difusiva y de posición, así como también la disociación de los distintos gases presentes en la burbuja. Esto último indica que las temperaturas calculadas dentro de la burbuja en este rango son correctas. Teniendo en cuenta que el modelo numérico no utiliza parámetros de ajuste, el acuerdo con los datos experimentales es de una precisión sin precedentes. Este modelo fue utilizado en el resto del trabajo como predictor de las diferentes inestabilidades que limitan las máximas temperaturas que pueden obtenerse.

Utilizando agua como fluido de trabajo se encontró que la limitación en la obtención de compresiones más violentas está asociada a la aparición de la inestabilidad de Rayleigh-Taylor. Esta inestabilidad produce la fragmentación de la burbuja en la fase de compresión. Estos fragmentos luego se disuelven de forma que la burbuja desaparece del sistema. En este caso las temperaturas máximas alcanzadas por dichas burbujas por el modelo numérico alcanzan valores de  $\sim 50000K$ .

Por otro lado, se estudió el sistema que utiliza ácido sulfúrico como fluido de trabajo, en el cual se obtienen intensidades de luz emitida hasta 100 veces mayor que en agua. Determinamos que la máxima concentración de energía está limitada en este caso por la inestabilidad de posición. Utilizando luego una excitación multiarmónica fuimos capaces de extender el espacio de fases accesible y lograr de esta manera un aumento de hasta cuatro veces en la intensidad de luz emitida. Además, el uso de más de un armónico permitió fijar espacialmente la burbuja por primera vez en ácido sulfúrico.

De esta manera se consiguió experimentalmente el sistema sonoluminiscente de mayor brillo hasta la fecha. Sin embargo, la gran intensidad de luz emitida proviene del hecho de obtener una burbuja sonoluminiscente más grande que se encuentra caliente por más tiempo y no por un incremento de la temperatura máxima alcanzada. Esto se traduce en una temperatura máxima obtenible incluso aún menor que en agua de  $\sim 30000K$ .

Por último, se estudió el sistema denominado "martillo líquido". En él se pueden explorar regiones del espacio de fases que en sonoluminiscencia realizada en un resonador son inaccesibles.

De esta manera se obtuvieron pulsos de luz individuales hasta tres ordenes de magnitud más intensos que en ácido sulfúrico. Sin embargo, pudo determinarse que (nuevamente) el incremento de intensidad no se condice con un aumento de la temperatura máxima. Se propone finalmente en este tipo de sistemas una manera de superar esta limitación.

## Abstract

In this work we investigate the energy concentration limitations in a sonoluminescent system.

The energy concentration is related with the generation of high temperatures and the light emission driving the violent compression of a bubble in a oscillatory sound field (Sonoluminescence).

In the first part of the work, a numerical model that includes the most relevant physical phenomena in sonoluminescence was validated. Using water as working fluid we found that the model correctly represent the temporal evolution of the bubble in the studied phase space. Besides, the model correctly reproduces the phase diagram position of the instabilities of shape, diffusion and position. Moreover, the dissociation of the different gases inside the bubble were reproduced in good agreement with the experimental data. In particular, this last fact indicates the correct prediction of the bubble maximum temperature. Taking into account that the model has not free parameters, the whole agreement with the experimental data has not precedent. The numerical model was used during the rest of the work as a predictor of the different instabilities which limit the maximum temperature that can be obtained.

Using water as the working fluid we found that the limitation to reach more violent collapses is associated with the onset of the Rayleigh-Taylor instability. This instability leads to the bubble fragmentation during the compression phase. These fragments then dissolve and the bubble disappears. In this case maximum temperatures predicted by the numerical model reach  $\sim 50000K$ .

Moreover, the system using sulphuric acid as fluid work was studied, which produces intensities of emitted light up to 100 times higher than in water. We determined that the highest energy concentration is limited in this case by the position instability. Adding an extra harmonic to the pressure excitation we were able to expand the accessible phase space and thus achieve an increase of up to four times the emitted light intensity. Moreover, the use of more than one harmonic spatially fix the bubble for the first time in sulphuric acid.

In this way we achieved experimentally the brighter sonoluminescent system up to now. However, the higher intensity is due to the larger bubble mass and the longer of the light pulse and not by a maximum temperature increase. The maximum reachable temperature in this system is even lower than with water ( $\sim 30000K$ ).

Finally, we studied a system called "liquid hammer". In this system it is possible to explore phase space regions inaccessible in sonoluminescence driven in a resonator.

Thus we were able to obtain pulses of light three orders of magnitude more intense than in sulfuric acid. However, we determine that increased intensity is not produced by an increase in the maximum temperature. It is proposed finally a way to overcome this limitation in these systems.



# Índice general

<b>1. Introducción</b>	<b>1</b>
1.1. Qué es la sonoluminiscencia . . . . .	1
1.2. Trabajos Previos . . . . .	2
1.3. Objetivos . . . . .	3
<b>2. Teoría General</b>	<b>5</b>
2.1. Dinámica de una burbuja en un campo de ultrasonido . . . . .	5
2.1.1. Campo de ultrasonido en un resonador esférico . . . . .	5
2.1.2. Oscilaciones radiales. Ecuación de Rayleigh y Plesset . . . . .	10
2.1.3. Levitación acústica de una burbuja . . . . .	12
2.2. Mie Scattering . . . . .	14
2.2.1. Mie Scattering en dos medios . . . . .	14
2.2.2. Constante dieléctrica del plasma en una burbuja SL . . . . .	16
2.2.3. Perfil de índice de refracción en una burbuja SL . . . . .	19
<b>3. Método experimental</b>	<b>25</b>
3.1. Dispositivo base . . . . .	25
3.1.1. Configuración básica . . . . .	25
3.1.2. Estabilización de la temperatura . . . . .	27
3.1.3. Creación de la burbuja . . . . .	28
3.1.4. Control del tipo y concentración de los gases disueltos . . . . .	29
3.2. Medición del radio en función del tiempo . . . . .	30
3.2.1. Mie scattering tradicional . . . . .	30
3.2.2. Método de dos detectores . . . . .	33
3.2.3. Método de las franjas . . . . .	36
<b>4. Validación del Modelo Numérico: Disociación</b>	<b>39</b>
4.1. Introducción . . . . .	39
4.2. Dispositivo Experimental . . . . .	40
4.3. Resultados . . . . .	41
4.4. Conclusiones . . . . .	44
<b>5. Frontera de Extinción en Sonoluminiscencia</b>	<b>45</b>
5.1. Introducción . . . . .	45
5.2. Dispositivo Experimental . . . . .	47
5.2.1. Intensidad de SL y tiempo de colapso . . . . .	47

5.2.2. Evolución temporal del radio y presión acústica . . . . .	49
5.3. Resultados . . . . .	50
5.4. Discusión . . . . .	55
5.5. Conclusiones . . . . .	57
<b>6. Estabilidad Espacial en Sonoluminiscencia con Ácido Sulfúrico</b>	<b>59</b>
6.1. Introducción . . . . .	59
6.2. Dispositivo Experimental . . . . .	60
6.3. Resultados . . . . .	62
6.4. Discusión . . . . .	66
6.5. Conclusiones . . . . .	69
<b>7. Sonoluminiscencia Multiarmónica en Ácido Sulfúrico</b>	<b>71</b>
7.1. Introducción . . . . .	71
7.2. Dispositivo Experimental . . . . .	72
7.2.1. Método de las franjas . . . . .	74
7.2.2. Modelo numérico . . . . .	74
7.3. Resultados . . . . .	75
7.4. Discusión . . . . .	79
7.5. Conclusiones . . . . .	81
<b>8. Temperatura de Plasma</b>	<b>83</b>
8.1. Introducción . . . . .	83
8.2. Dispositivo Experimental . . . . .	84
8.3. Resultados . . . . .	86
8.4. Discusión y Conclusiones . . . . .	92
<b>9. Generación de pulsos de alta presión</b>	<b>95</b>
9.1. Introducción . . . . .	95
9.2. Dispositivo Experimental . . . . .	95
9.3. Resultados . . . . .	97
9.4. Discusión . . . . .	100
9.5. Conclusiones . . . . .	101
<b>10. Martillo Líquido</b>	<b>103</b>
10.1. Introducción . . . . .	103
10.1.1. Diferentes maneras de obtener sonoluminiscencia . . . . .	104
10.2. Dispositivo Experimental . . . . .	105
10.3. Modelo para la Dinámica del Martillo . . . . .	108
10.3.1. Modelo de Cuerpo Rígido . . . . .	108
10.3.2. Modelo de Burbuja Inferior . . . . .	110
10.4. Resultados . . . . .	114
10.4.1. La Burbuja Inferior . . . . .	114
10.4.2. La Burbuja Superior . . . . .	121
10.4.3. Evolución Temporal de la Presión . . . . .	126
10.4.4. La Emisión de Luz . . . . .	130



10.5. Conclusiones . . . . .	131
<b>11. Conclusiones</b>	<b>133</b>
<b>A. Mie Scattering Multicapa</b>	<b>137</b>
A.1. El Cálculo . . . . .	137
A.2. La Implementación . . . . .	143
<b>B. El fotomultiplicador</b>	<b>145</b>
B.1. La medición del ancho de pulso . . . . .	145
B.2. La saturación del fotomultiplicador . . . . .	148
<b>C. Láser de colorantes</b>	<b>153</b>



# Capítulo 1

## Introducción

### 1.1. Qué es la sonoluminiscencia

La sonoluminiscencia (SL) es un fenómeno por el cual se puede concentrar la energía de un campo de ultrasonido y producir una emisión de luz pulsada en el rango visible y ultravioleta cercano. Esto equivale a concentrar la energía en aproximadamente 12 órdenes de magnitud [1].

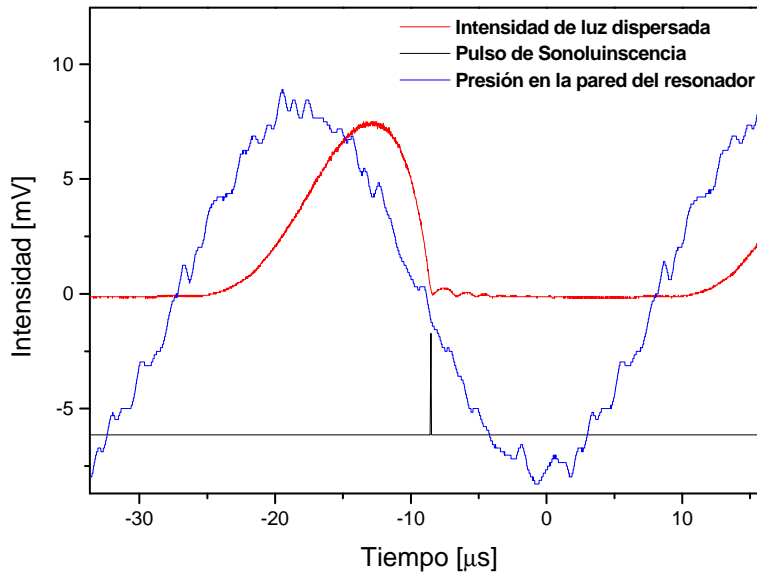
Este fenómeno aparece cuando una es burbuja atrapada en un nodo de velocidad y antinodo de presión en una onda estacionaria de sonido. A medida que se aumenta la amplitud de la onda de sonido, las oscilaciones de la burbuja crecen en amplitud y para intensidades lo suficientemente altas, la burbuja colapsa violentamente durante el ciclo de compresión calentando el gas dentro de la burbuja hasta ionizarlo.

En estas condiciones la burbuja emite un pulso de luz extremadamente breve [2] (entre  $50ps$  y  $300ps$ ) cuyo espectro de emisión abarca todo el visible y ultravioleta cercano [3] y que se repite para cada uno de los ciclos de la onda de sonido, típicamente unas 30000 veces por segundo, con una regularidad asombrosa [1] (la variabilidad del tiempo transcurrido entre pulsos puede ser menor a los  $50ps$ ).

En la Figura 1.1 se muestra la impresionante variedad de escalas de tiempo que presenta este fenómeno. Aquí puede observarse la presión de ultrasonido medida en la pared del resonador (curva azul) que posee una forma senoidal con la frecuencia de resonancia de  $28kHz$ . También se muestra la intensidad de luz dispersada al proyectar un haz láser sobre la burbuja (curva roja) que resulta ser una magnitud proporcional al cuadrado del radio. Podemos observar cómo partiendo de su radio de equilibrio ( $\sim 5\mu m$ ), la burbuja se expande hasta su radio máximo ( $\sim 50\mu m$ ) en escalas de tiempo del orden de los  $10\mu s$ .

El colapso posterior acelera la pared de la burbuja a velocidades superiores a la velocidad del sonido en el gas del interior de la burbuja [4] llegando a un radio mínimo de  $\sim 0,6\mu m$  que es comparable a la longitud de onda de la luz visible. En los últimos instantes antes del colapso se produce una compresión adiabática de los gases dentro de la burbuja aumentando rápidamente su temperatura. Este colapso resulta en la emisión de un pulso de luz extremadamente corto en la escala de tiempos de los  $100ps$  que se muestra en la figura como un pico en el momento del colapso.

Por otro lado, las grandes presiones que se generan en el momento del colapso (y en



**Figura 1.1:** Escalas de tiempo relacionadas con el fenómeno de sonoluminiscencia. Se muestran presión de ultrasonido en la pared del resonador, la intensidad de luz dispersada al proyectar un haz láser sobre la burbuja que resulta ser una magnitud proporcional al cuadrado del radio y el pulso de luz emitido

menor medida en los rebotes posteriores) producen pulsos de sonido que se suman a la onda fundamental resultando en una estructura compleja en forma de picos con escalas de tiempo del orden de los  $250ns$  que se ve en la figura como una especie de “rugosidad” en la presión medida.

Este violento movimiento de la burbuja se repite para cada ciclo de la onda de sonido emitiendo alrededor de  $2 \cdot 10^5$  fotones por pulso durante varias horas.

Las altas temperaturas alcanzadas en el momento del colapso (superiores a  $20000K$ ), así como también los pulsos de luz extremadamente cortos y el moderado costo de los equipos necesarios para conseguir sonoluminiscencia han estimulado el uso de este fenómeno en diferentes áreas. También se ha propuesto su utilización como un pequeño horno para llevar a cabo reacciones químicas controladas a muy altas temperatura o como fuente de luz para calibrar sensores ultrarápidos.

Por último, un gran esfuerzo se está llevando a cabo para comprender los mecanismos de la emisión dentro de la burbuja para tratar de alcanzar temperaturas lo suficientemente altas como para conseguir fusión nuclear.

## 1.2. Trabajos Previos

A partir del momento en que se obtuvo una burbuja sonoluminiscente estable en 1989 [5], se han podido realizar una gran cantidad de experimentos en pos de la comprensión

del fenómeno. Un excelente review de los principales hallazgos en sonoluminiscencia puede consultarse en [6]. Desde su comienzo, se ha realizado un gran esfuerzo en comprender las principales características del fenómeno. Las características tan particulares de la emisión de luz (espectro sin líneas, pulsos extremadamente breves, alta repetitividad y estabilidad) han sido objeto de estudio desde su comienzo [7, 8, 2].

La región del espacio de fases donde puede obtenerse sonoluminiscencia estable fue estudiada en detalle por muchos grupos ya que contiene las respuestas a muchas preguntas sobre las condiciones dentro de la burbuja (disociación de gases, reacciones químicas, etc) [9, 10, 11, 9]. A partir de estos trabajos se ha logrado un consenso sobre la limitación en el diagrama de fases para tamaños grandes de las burbujas (cantidad de gas dentro de la burbuja). Sin embargo, los mecanismos por los cuales el espacio de fases está limitado a altas presiones acústicas (máximas emisiones de luz y temperatura) no se han estudiado en profundidad. Esta limitación es de crucial importancia para obtener mayores niveles de concentración de energía.

A pesar de que ensayaron una gran cantidad de fluidos en sonoluminiscencia durante mucho tiempo el agua fue el más adecuado para obtener una burbuja estable e intensa. Durante el año 2005 un grupo de Urbana (EEUU) obtuvo sonoluminiscencia en una única burbuja utilizando una solución concentrada de ácido sulfúrico [12]. Ellos encontraron que podían conseguir una burbuja sonoluminiscente más de dos órdenes de magnitud más intensa que la obtenida en agua en condiciones óptimas. Además, detectaron la presencia de líneas de emisión en el espectro de la luz correspondiente a la transición de estados excitados de alta energía (hasta  $37,1eV$  por encima del estado base) [13]. Esta mayor intensidad de luz se asoció implícitamente con el uso de presiones acústicas relativamente elevadas de hasta 6 bars, cuatro veces mayor que en un experimento típico en agua. Las burbujas sonoluminiscentes obtenidas en este fluido no se encontraban fijas en el espacio sino que describían pseudo-orbitas alrededor del centro del resonador. Este comportamiento se asoció a la mayor viscosidad del fluido [14].

Por otro lado, un grupo de Cambridge, Inglaterra logró obtener en 2004 un sistema sonoluminiscente utilizando como excitación los pulsos de presión producidos por la detención brusca de fluido en un tubo (golpe de ariete) [15]. Este tipo de sistemas, denominado martillo líquido, permite generar burbujas de gran tamaño y se las puede excitar a frecuencias mucho menores que en sonoluminiscencia tradicional en resonadores. Utilizando ácido fosfórico como fluido a una frecuencia de 33Hz obtuvieron pulsos de luz cuatro órdenes de magnitud más intensos que en sonoluminiscencia en agua. Ellos analizaron una gran cantidad de fluidos y las características temporales de la emisión de luz. Sin embargo, no estudiaron los mecanismos por los cuales se obtenía esta gran cantidad de luz emitida en cada pulso.

### 1.3. Objetivos

En este trabajo, estamos interesados en explorar los límites de la concentración de energía en un sistema sonoluminiscente.

Para ello estudiaremos las distintas características del fenómeno prestando especial aten-

ción a los mecanismos que producen el aumento de temperatura durante el momento del colapso.

Es en general muy cierto que un aumento en la presión acústica de excitación produce un aumento en la concentración de energía, por lo que la limitación podría ser simplemente la magnitud de presión acústica que podemos generar. Sin embargo, aparecen en este fenómeno diferentes inestabilidades que limitan el incremento de la presión mucho antes de que sea un problema poder generarlas. Por este motivo, una parte importante del esfuerzo realizado en este trabajo está destinado a estudiar las diferentes inestabilidades que aparecen en las distintas regiones del espacio de fases en sonoluminiscencia.

Inicialmente estudiamos el espacio de fases completo de sonoluminiscencia realizando un especial esfuerzo en la validación del modelo numérico desarrollado por la Dra. Puente en nuestros laboratorios [16]. Los resultados se muestran en el Capítulo 4. Este modelo numérico se utilizó luego a través de todo el trabajo para predecir las posiciones de las diferentes inestabilidades y las máximas temperaturas alcanzadas.

Luego estudiamos la región de máxima presión acústica en un sistema agua-aire en pos de determinar los fenómenos que limitan la aplicación de presiones acústicas elevadas. Los resultados obtenidos son presentados en el Capítulo 5.

En los Capítulos 6 y 7 estudiamos el sistema sonoluminiscente que utiliza ácido sulfúrico como fluido de trabajo. En el Capítulo 6 estudiamos cual es la limitación en concentración de energía cuando se utiliza este tipo de fluido, mientras que en el Capítulo 7 desarrollamos una técnica para fijar espacialmente la burbuja y al mismo tiempo incrementar el espacio de fases accesible.

Debido a que el parámetro principal asociado a la concentración de energía es la temperatura máxima alcanzada, desarrollamos durante este trabajo una técnica para determinar en forma directa la temperatura dentro de la burbuja sonoluminiscente. En el Capítulo 8 se exponen los avances logrados en este sentido.

En Capítulos 9 y 10 estudiamos un sistema alternativo al utilizado típicamente en sonoluminiscencia basado en el uso de un martillo líquido. Allí investigamos los mecanismos que dan lugar a la emisión de los pulsos de luz más intensos conocidos. Se estudia además la posibilidad de incrementar la temperatura máxima en este tipo de sistemas.

Por último se resumen las conclusiones en el Capítulo 11.

# Capítulo 2

## Teoría General

En este capítulo describiremos los fundamentos teóricos necesarios para el entendimiento del fenómeno de sonoluminiscencia. Describiremos la dinámica de una burbuja en estado sonoluminiscente, como así también las bases teóricas de las técnicas experimentales utilizadas en este trabajo.

### 2.1. Dinámica de una burbuja en un campo de ultrasonido

La dinámica de una burbuja está determinada por las variaciones espaciales y temporales del campo de presiones al cual está sometida. Las variaciones espaciales determinan su movimiento de traslación mientras que las variaciones temporales de la presión inducen oscilaciones radiales en la burbuja. Si la amplitud de la variación de presión es suficientemente intensa, las oscilaciones de la burbuja se pueden tornar altamente no lineales y producir una compresión violenta de los gases que contiene. Durante esta compresión, los gases pueden calentarse lo suficiente como para producir la emisión de luz que se observa en sonoluminiscencia.

#### 2.1.1. Campo de ultrasonido en un resonador esférico

Los dispositivos utilizados para obtener sonoluminiscencia son generalmente resonadores cilíndricos o esféricos, en los cuales se produce un campo de ultrasonido estacionario. Para obtener altas intensidades de presión acústica se ajusta la frecuencia de forma tal que coincida con un modo normal de oscilación del resonador.

En esta sección estudiaremos cuáles son las soluciones estacionarias para el campo de presiones en un oscilador esférico (que es el tipo de resonador que se utilizó principalmente en este trabajo). Tendremos en cuenta aquí el efecto de las paredes del resonador sobre las frecuencias de resonancia.

Si sólo tomamos en cuenta las soluciones que poseen simetría esférica, la propagación del campo de ultrasonido en el fluido estará gobernada por la ecuación de ondas en simetría esférica [17]

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial \Phi}{\partial r} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial t^2} \quad (2.1)$$

Donde  $\Phi$  es el potencial de la velocidad,  $r$  es la distancia al centro del resonador,  $c$  es la velocidad del sonido en el fluido y  $t$  es el tiempo. Las soluciones estacionarias para esta ecuación que son finitas en todo el dominio tendrán entonces la forma

$$\Phi = \frac{A}{r} \sin(mr) \cos(cmt + \phi) \quad (2.2)$$

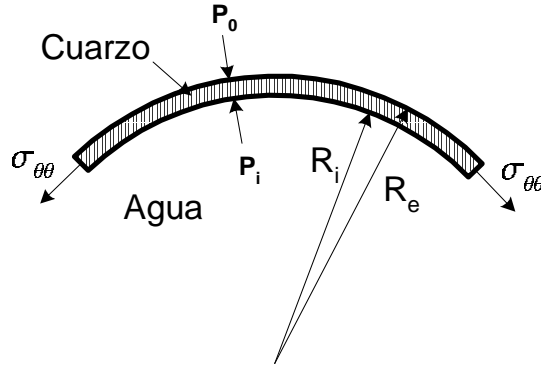
Donde  $m$  debe determinarse a partir de las condiciones de borde. La presión y la velocidad en el fluido están relacionadas con el potencial de la velocidad mediante las siguientes relaciones

$$P(r, t) = \rho_0 \frac{\partial \Phi}{\partial t} + P_0 \quad (2.3)$$

$$u(r, t) = -\nabla \Phi = -\frac{\partial \Phi}{\partial r}$$

Donde  $\rho_0$  es la densidad del líquido y  $P_0$  es la presión estática. Es importante notar que en este tipo de soluciones, el centro del resonador será siempre un antinodo de presión ( $\frac{\sin(mr)}{r}$  presenta un máximo en  $r = 0$ ).

El balance de fuerzas en  $R_i$  (Figura 2.1) impone una condición para el desplazamiento en el líquido  $\xi$ . La fuerza de inercia de la cáscara debe estar equilibrada con las fuerzas



**Figura 2.1:** Esquema de una sección del resonador. Se indican las fuerzas que actúan sobre la cáscara.

debidas a la presión a cada lado del casquete y las fuerzas de tensión elásticas debidas a la deformación del casquete.

Asumiendo que la cáscara es delgada ( $h = R_e - R_i \ll R_i$ ), se puede calcular la tensión en la cáscara como [18]

$$\sigma_{\theta\theta} = \frac{E}{1 - \nu} \frac{\xi(r=R_i)}{\bar{r}} \quad (2.4)$$

donde  $E$  y  $\nu$  son el módulo de Young y el cociente de Poisson del material de la cáscara respectivamente y  $\bar{r}$  es el radio medio de la cáscara. De esta manera obtenemos para el balance de fuerzas en  $r = R_i$

$$\ddot{\xi} |_{r=R_i} = \frac{-2E}{(1 - \nu)\rho_c \bar{r}^2} \cdot \xi + \frac{(P_{r=R_i} - P_0)}{\rho_c h} \quad (2.5)$$



Donde  $\rho_c$  es la densidad de la cáscara. El primer término representa el esfuerzo realizado por la deformación de la cáscara (proporcional al desplazamiento) y el segundo es debido a las fuerzas de presión a cada lado de la cáscara.

A partir de las ecuaciones 2.2 y 2.3 podemos obtener una expresión para la presión y la velocidad del fluido dentro del resonador. Integrando la velocidad obtenemos el desplazamiento y reemplazando estas expresiones en la ecuación 2.5 obtenemos una expresión para hallar el valor de  $m$  que cumple con la condición de borde. De esta manera encontramos que los valores posibles de  $m$  son las raíces de la siguiente expresión

$$\left( m \cos(mR_i) - \frac{\sin(mR_i)}{R_i} \right) \left( \rho_c + \frac{2E}{(cm\bar{r})^2(1-\nu)} \right) - \frac{\sin(mR_i)\rho_0}{h} \quad (2.6)$$

Cabe notar que en el caso en que no se considera la presencia de la cáscara ( $\rho_c = 0$  y  $E = 0$ ), las soluciones para  $m$  se reducen a  $\sin(mR_i) = 0$ , es decir,  $m = \frac{n\pi}{R_i}$ . En este caso las frecuencias de resonancia se pueden calcular como

$$f_n^{sin\ cascara} = n \cdot f_1 \quad (2.7)$$

$$f_1^{sin\ cascara} = \frac{c}{2R_i}$$

En la Tabla 2.1 se resumen los parámetros típicos para un resonador de vidrio utilizado en sonoluminiscencia que contiene agua. Utilizando estos valores, obtenemos para la expresión 2.6 los valores mostrados en la Figura 2.2.

$c$ [ $\frac{m}{s}$ ]	$\rho_0$ [ $\frac{Kg}{m^3}$ ]	$h$ [ $mm$ ]	$E$ [ $GPa$ ]	$\nu$	$\rho_c$ [ $\frac{Kg}{m^3}$ ]	$R_e$ [ $mm$ ]
1480	1000	0,8	$6 \cdot 10^{10}$	0.171	2500	30

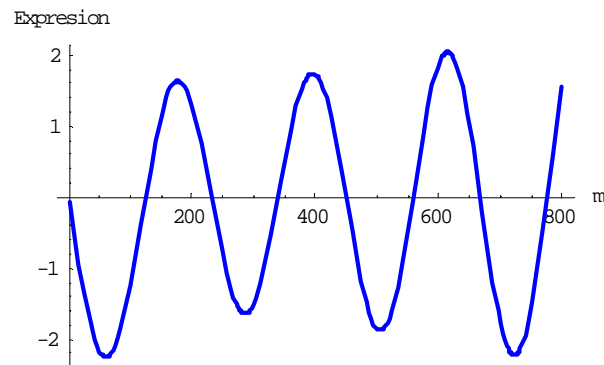
**Cuadro 2.1:** Valores típicos para un resonador de vidrio utilizado en sonoluminiscencia.

Los cruces por cero en esta figura determinan los valores de  $m$  en la ecuación 2.2 que satisfacen las condiciones de borde. Las frecuencias de los modos normales se pueden obtener a partir de los valores de  $m$  mediante

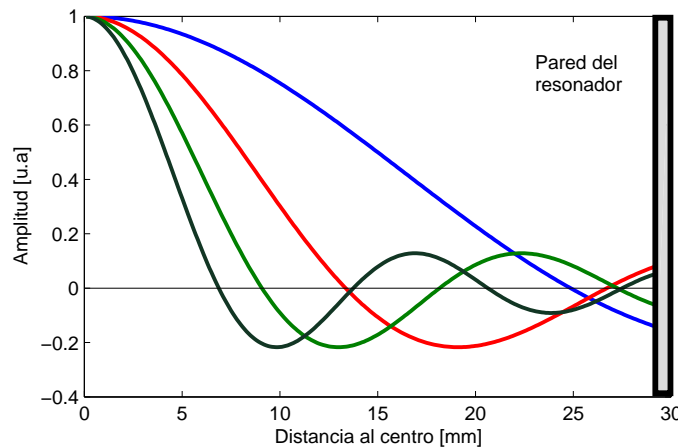
$$f_i = \frac{cm}{2\pi} \quad (2.8)$$

En la Figura 2.3 se muestran los perfiles de la presión acústica normalizados en función de la posición para los primeros cuatro modos del resonador. Allí puede observarse que para el primer modo la presión cambia de signo antes de alcanzar la pared del resonador. Esto significa que dentro del resonador existirá un nodo de presión aún para el primer modo de resonancia.

Por otro lado, para el primer modo la presión acústica en la pared alcanza aproximadamente el 14% de la presión acústica en el centro del resonador. Esto significa que en estas condiciones se puede alcanzar una presión en el centro de  $7,1atm$  antes de alcanzar



**Figura 2.2:** Expresión 2.6 en función del parámetro  $m$ . Las raíces de esta curva determinan los valores de  $m$  en la Ecuación 2.2 que satisfacen las condiciones de borde.

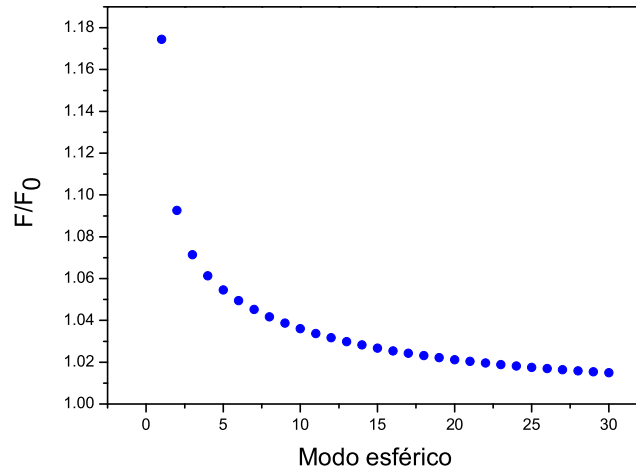


**Figura 2.3:** Perfil de la presión acústica para los primeros cuatro modos esféricos de un resonador típico (ver Tabla 2.1). Las frecuencias de resonancia son  $29723\text{Hz}$ ,  $55303\text{Hz}$ ,  $81351\text{Hz}$  y  $107436\text{Hz}$  respectivamente. Se indica en forma esquemática la pared del resonador

una presión de  $1\text{atm}$  en las paredes.

A partir de este valor es probable que se produzca cavitación en las paredes del resonador originadas en alguna imperfección del material. Esto representa entonces una limitación en las máximas presiones acústicas que pueden alcanzarse. Esta limitación se reduce utilizando modos de orden mayor o disminuyendo el espesor de las paredes del resonador.

En la Figura 2.4 se muestra la frecuencia de resonancia de los primeros 30 modos normales del resonador. La frecuencia se encuentra normalizada con el valor que tendría si retiramos las paredes del resonador. En esta figura puede observarse que los primeros modos presentan una frecuencia mayor a la esperada si no hubiese paredes. Sin embargo, los modos superiores se ven menos afectados por la presencia de las paredes del resonador. Es importante notar que debido a que las paredes modifican el espectro de resonancias los distintos modos ya no poseen una frecuencia que es un múltiplo de la fundamental. Esto tiene consecuencias importantes en la respuesta del resonador a una excitación periódica



**Figura 2.4:** Frecuencia de resonancia para los primeros 30 modos esféricos Utilizando los mismos parámetros que en la Figura 2.2. El valor se normalizó con la frecuencia que tendría el mismo modo si eliminamos las paredes del resonador.

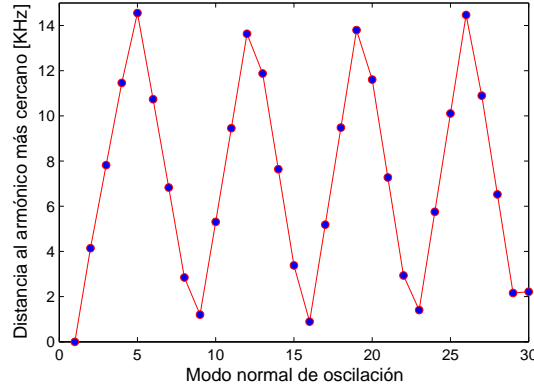
a la frecuencia del modo fundamental (como lo es la emisión de ultrasonido producido por una burbuja sonoluminiscente).

Si excitamos al resonador con pulsos periódicos a una frecuencia igual a la fundamental, las componentes armónicas de la excitación se encontrarán ubicadas en frecuencias que serán múltiplos de la fundamental. Puede ocurrir que alguna de estas componentes armónicas coincida en frecuencia con algún modo normal de oscilación del resonador (que no son múltiplos de la fundamental). En ese caso, esta componente se acoplará en forma eficiente al resonador y la respuesta a esta frecuencia se incrementará. Dicho de otra manera, la respuesta de cada armónico de la excitación dependerá de la proximidad al modo normal más cercano.

En la Figura 2.5 se muestra la diferencia en frecuencia de cada armónico de la excitación fundamental al modo normal más cercano. Aquí vemos que la diferencia presenta una modulación, mostrando una secuencia de mínimos a medida que se exploran armónicos de mayor frecuencia. El primer mínimo ocurre en el armónico 9 que coincide en ese caso con el modo normal número 10 del resonador. La frecuencia a la que se repiten los mínimos puede estimarse a partir de la diferencia entre la frecuencia fundamental y la frecuencia del resonador sin cascara (Ec. 2.8 y 2.7) que es el valor asintótico al que tienden los modos de alta frecuencia (Fig. 2.4).

$$f_{\text{mínimos}} = \frac{f_1}{(f_1 - f_1^{\text{sin cascara}})} \quad (2.9)$$

En el caso ejemplificado aquí (Tabla 2.1) resulta  $f_{\text{mínimos}} = 6,6$ . Este valor coincide razonablemente bien con la frecuencia de aparición de los mínimos en la Figura 2.5.



**Figura 2.5:** Proximidad de los diferentes modos de resonancia a los armónicos (múltiplos) de la frecuencia fundamental en un resonador típico en sonoluminiscencia.

### 2.1.2. Oscilaciones radiales. Ecuación de Rayleigh y Plesset

En 1917 Rayleigh [19] resolvió analíticamente el movimiento de una burbuja para bajo número de Mach y luego en 1949 Plesset [20] complementaría su trabajo para incluir modificaciones a primer orden en el número de Mach. Desde entonces se han realizado muchos aportes a la descripción de la dinámica de una burbuja en un campo de ultrasonido para tener en cuenta la difusión de calor, condensación, evaporación, etc. Sin embargo, se sigue llamando en general como ecuación de Rayleigh-Plesset.

En el transcurso de este trabajo, hemos utilizado una versión de esta ecuación desarrollada durante el trabajo de tesis doctoral de Gabriela Puente [16].

Presentaremos aquí un breve resumen de las características principales de esta ecuación y los efectos tomados en cuenta en el modelo numérico implementado.

La Ecuación de Rayleigh-Plesset modificada puede escribirse como

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{c_L} + \frac{\dot{m}}{c_L \rho_{Li}}\right) R \ddot{R} + \frac{3}{2} \dot{R}^2 \left(1 - \frac{\dot{R}}{3c_L} + \frac{2\dot{m}}{3c_L \rho_{Li}}\right) = \frac{1}{\rho_{Li}} \left(1 + \frac{\dot{R}}{c_L}\right) \left[p_B - p_s\left(t + \frac{R}{c_L}\right) - p_\infty\right] + \frac{\ddot{m}R}{\rho_{Li}} \left(1 - \frac{\dot{R}}{c_L} + \frac{\dot{m}}{c_L \rho_{Li}}\right) + \frac{\dot{m}}{\rho_{Li}} \left(\dot{R} - \frac{\dot{m}}{2\rho_{Li}} + \frac{\dot{m}\dot{R}}{2c_L \rho_{Li}}\right) + \frac{R}{c_L \rho_{L\infty}} \frac{dp_B}{dt} \quad (2.10)$$

donde  $R$  es el radio de la burbuja,  $c_L$  es la velocidad del sonido del líquido en el infinito,  $\dot{m}$  es el flujo neto de evaporación por unidad de área y unidad de tiempo (positivo si el vapor es entrante),  $\rho_{Li}$  y  $\rho_{L\infty}$  son la densidad del líquido en la superficie de la burbuja y en el infinito respectivamente,  $p_B$  es la presión del líquido sobre la superficie externa de la burbuja,  $p_\infty$  es la presión ambiente en el infinito y  $p_s$  es la componente no constante de la presión ambiente. Para los casos estudiados en este trabajo corresponde a la presión de ultrasonido dada por

$$p_s(t) = P_a \sin(\omega t - \phi)$$

donde  $P_a$  es la presión de ultrasonido  $\omega$  la frecuencia angular y  $\phi$  es la fase. En el Capítulo 7 se utilizarán además otras componentes armónicas sumadas a la primera con amplitud

y fase arbitrarias.

La presión  $p_B$  sobre el líquido en la superficie de la burbuja se puede relacionar con la presión en el interior de la burbuja a través de

$$p_B(t) = p_t(t) - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu}{R} \left( \dot{R} - \frac{\dot{m}}{\rho_{Li}} \right) - \dot{m}^2 \left( \frac{1}{\rho_{Li}} - \frac{1}{\rho_t} \right) \quad (2.11)$$

donde  $p_t$  y  $\rho_t$  son la presión y densidad en el interior de la burbuja,  $\sigma$  es la tensión superficial y  $\mu$  es la viscosidad del líquido. Es interesante notar en este punto, que la viscosidad del líquido aparece en la ecuación de movimiento sólo en la condición de borde (la presión dentro de la burbuja).

Finalmente la presión en el interior de la burbuja se puede obtener a partir de una ecuación de estado. En este caso utilizaremos la ecuación de Van der Waals

$$p_t = \frac{R_g T}{v - b} \frac{a}{v^2} \quad (2.12)$$

donde  $v$  es el volumen molar,  $T$  la temperatura,  $R_g$  la constante de los gases y  $a$  y  $b$  son las constantes de Van der Waals.

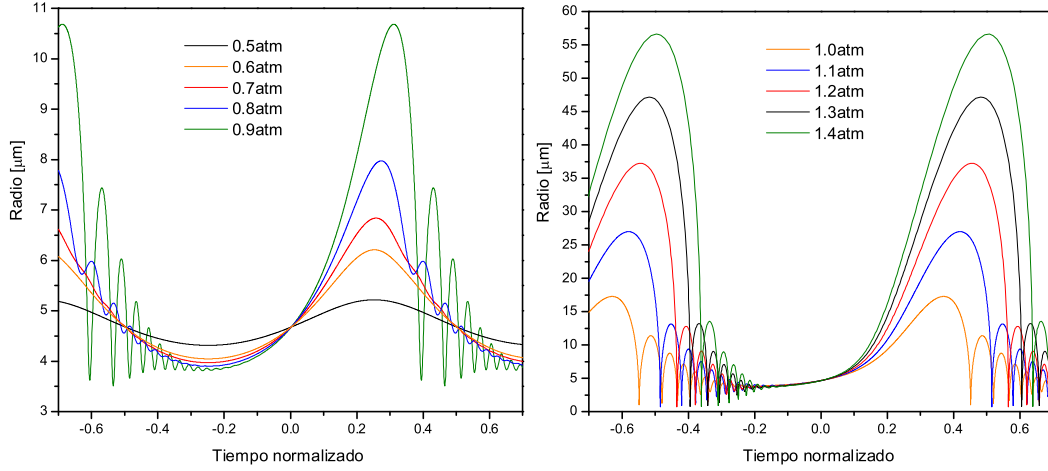
Los diferentes fenómenos físicos tenidos en cuenta en el modelo son:

- ◇ Transferencia de calor a través de la interfase líquido-mezcla.
- ◇ Evaporación - condensación y difusión de las partículas de vapor.
- ◇ Difusión de los gases no condensables en la mezcla y en el líquido.
- ◇ Variación de la temperatura del líquido en función de la posición y el tiempo.
- ◇ Variaciones térmicas debidas a los procesos endotérmicos (y en algunos casos exotérmicos) producidas por la disociación de las moléculas de vapor y gases no condensables.

Estas ecuaciones diferenciales se resolvieron numéricamente utilizando un algoritmo Runge-Kutta 4.5 de paso adaptivo. Se encontró que para los parámetros típicos utilizados en sonoluminiscencia la resolución de 8 ciclos de ultrasonido eran suficientes para que la evolución final no dependiese de las condiciones iniciales.

En la Figura 2.6 se muestran los resultados obtenidos utilizando este modelo para una burbuja de aire de  $R_0 = 5\mu m$  en agua para distintos valores de  $P_a$  utilizando una frecuencia de  $30kHz$ .

Allí puede apreciarse la dinámica no lineal del radio de la burbuja a medida que aumentamos la presión acústica. Superado un valor umbral de presión acústica (en este caso  $0,9atm$ ) la dinámica presenta un colapso para una fase cercana a 0,4. A medida que la presión acústica aumenta, el colapso ocurre para fases mayores y se produce con más violencia. El radio máximo de la burbuja también aumenta rápidamente al superar la presión umbral alcanzando valores diez veces mas grandes que su radio de equilibrio.



**Figura 2.6:** Evolución temporal de una burbuja de  $R_0 = 5\mu m$  de aire en agua para distintos valores de  $P_a$ . La frecuencia del ultrasonido es en este caso de  $30kHz$ . La escala temporal se normalizó con el período y el tiempo igual a cero corresponde al cruce por cero con pendiente negativa de la presión acústica.

### 2.1.3. Levitación acústica de una burbuja

Para que la burbuja permanezca en un punto de equilibrio la suma de todas las fuerzas que actúan sobre ella debe anularse. En particular, la fuerza boyante tiende a desplazar a la burbuja siempre hacia arriba y por lo tanto el campo de ultrasonido aplicado deberá generar entonces una fuerza *promedio* en sentido descendente.

En esta sección consideraremos las fuerzas que actúan sobre una burbuja de gas inmersa en un fluido cuyo campo de presiones está dado por una solución de la ecuación 2.2 y hallaremos su posición de equilibrio en el resonador.

Despreciando la fuerza de Basset (o history force), la cual produce oscilaciones de la burbuja en forma de órbitas cuasiperiódicas [14] la fuerza total sobre una burbuja puede calcularse mediante [21]

$$F_T = -V_{(t)} \left( \nabla P_{(r,t)} - \rho g \hat{z} \right) - \frac{1}{2} \rho \frac{d}{dt} \left[ V_{(t)} u_r \right] - 12\pi \mu u_r R_{(t)} \quad (2.13)$$

donde  $V_{(t)}$  es el volumen de la burbuja,  $P_{(r,t)}$  es la presión acústica dentro del resonador,  $\rho$  es la densidad del líquido,  $g$  la aceleración de la gravedad,  $u_r$  es la velocidad relativa de la burbuja respecto del líquido,  $R$  el radio de la burbuja y  $\mu$  es la viscosidad del fluido. Los dos últimos términos en la Ecuación 2.13, que representan la masa virtual de la burbuja y la fuerza de arrastre<sup>1</sup> tienen un efecto muy pequeño sobre la posición media de la burbuja [21].

<sup>1</sup>Esta fuerza de arrastre es 3 veces mayor a la obtenida para una burbuja de radio fijo. Para una

El término restante se denomina fuerza de Bjerknes y es consecuencia simplemente de tener un volumen de gas inmerso en un gradiente de presión.

La burbuja ocupará una posición de equilibrio si esta fuerza es cero en valor medio durante un ciclo de ultrasonido completo, es decir

$$0 = \frac{1}{T} \int_0^T (\nabla P_{(r,t)} - \rho g \hat{z}) V(t) dt \quad (2.14)$$

Por otro lado, la frecuencia natural de oscilación de una burbuja se puede aproximar para pequeñas perturbaciones como [23]

$$\omega = \sqrt{\frac{1}{R_0^2 \rho_l} \left[ 3\gamma P_0 - \frac{2\sigma}{R_0} - \frac{4\mu^2}{R_0^2 \rho_l} \right]} \quad (2.15)$$

Donde  $R_0$  es el radio de la burbuja sin perturbar a la presión  $P_0$ . Por otro lado,  $\sigma$ ,  $\mu$ ,  $\rho_l$  son la tensión superficial, la viscosidad y la densidad del líquido respectivamente y  $\gamma$  es el cociente de calores específicos del gas.

Esta frecuencia se conoce como la frecuencia de Minnaert y es válida sólo para pequeñas oscilaciones de la burbuja.

Si la burbuja se encuentra sometida entonces a un campo de presión oscilante cuya frecuencia es menor a esta frecuencia de resonancia, (que es el caso que se presenta típicamente en sonoluminiscencia) entonces las oscilaciones de la burbuja *estarán en fase* con la variación temporal de la presión, es decir, el tamaño de la burbuja se modificará en forma inversa a la presión en todo momento.

Si la burbuja se encuentra una pequeña distancia *por encima* del centro del resonador, tendremos que durante la primera mitad del ciclo, cuando la presión es máxima en centro, la burbuja tendrá un tamaño pequeño y por lo tanto la fuerza resultante será también pequeña. En este caso actuará en el mismo sentido que la fuerza boyante (parte izquierda de la Figura 2.7)

Durante la segunda mitad del ciclo, la presión en el centro será mínima, la burbuja tendrá un tamaño mayor y por lo tanto la fuerza resultante será también más grande. Sin embargo, en este caso actuará en sentido contrario a la fuerza boyante (parte derecha de la Figura 2.7).

El resultado neto del campo de ultrasonido en un ciclo completo será entonces una fuerza promedio en sentido contrario a la fuerza boyante.

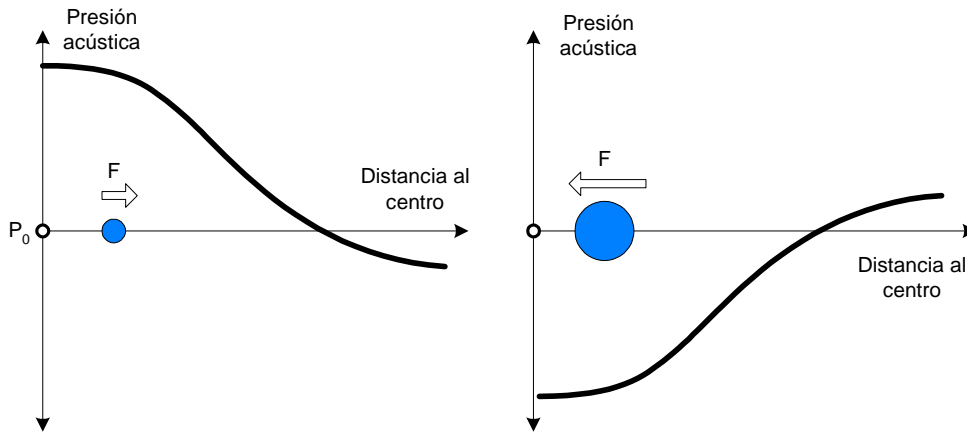
Para calcular la posición de equilibrio debemos hallar en qué punto del resonador esta fuerza es igual a la fuerza boyante, es decir, para que valor de  $z$  se cumple

$$\langle V \rangle (\rho_l - \rho_g) g = -\frac{1}{T} \int_0^T \nabla \left( P_0 + \frac{P_a}{kz} \sin(kz) * \sin(\omega t) \right) * \frac{4\pi}{3} R^3(t) dt \quad (2.16)$$

Esta ecuación se resolvió numéricamente utilizando los parámetros que normalmente se utilizan para obtener sonoluminiscencia, y considerando un comportamiento isotérmico

---

discusión completa de este aumento en el drag debido a las oscilaciones de la burbuja puede consultarse [22]



**Figura 2.7:** Esquema de las fuerzas actuantes sobre una burbuja en un campo de ultrasonido a una frecuencia menor que la frecuencia de resonancia de la burbuja. Durante la primera parte del ciclo (izquierda) la fuerza es pequeña y tiene dirección alejándose del centro. Durante la segunda parte del ciclo (derecha) la fuerza es mayor (la burbuja es más grande y tiene dirección hacia el centro). El promedio en un ciclo es una fuerza resultante hacia el centro.

del gas dentro de la burbuja.  $\langle R \rangle = 5\mu m$ ,  $w = 2 * \pi * 30kHz$ ,  $c = 1480m/s$ ,  $P_a = 10^5 Pa$ ,  $\rho_l = 1000Kg/m^3$  y  $\rho_g = 1,3kg/m^3$ .

El valor de  $z$  medio obtenido de esta manera es de  $\approx 200\mu m$

## 2.2. Mie Scattering

### 2.2.1. Mie Scattering en dos medios

Discutiremos aquí la dispersión de una onda plana de luz por una esfera dieléctrica en un medio homogéneo, que será una herramienta fundamental para examinar experimentalmente la burbuja. En particular, será útil en la determinación del radio de la burbuja y en la medición de la temperatura dentro de la burbuja.

La solución analítica de este problema fue calculada por Mie en 1908 [24] y presentada luego en forma compacta por Stratton [25]. La geometría del problema se muestra en la Figura 2.8.

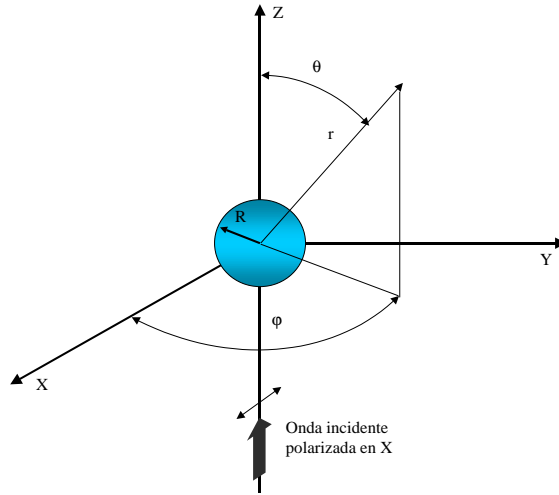
Para una onda plana incidente desde  $-z$  de longitud de onda  $\lambda$  polarizada en el eje  $x$  sobre una esfera de radio  $R$  ubicada en el centro de coordenadas, la intensidad de luz dispersada se obtiene desarrollando el campo eléctrico incidente en armónicos esféricos y utilizando las condiciones de contorno apropiadas sobre la superficie de la esfera. La solución obtenida de esta forma para la intensidad dispersada está dada por la serie:

$$\frac{I_\theta}{I_0} = \frac{\lambda^2}{4 * \pi^2 * r^2} |S_2|^2 \cos(\varphi)^2$$

y

$$\frac{I_\varphi}{I_0} = \frac{\lambda^2}{4 * \pi^2 * r^2} |S_1|^2 \sin(\varphi)^2$$





**Figura 2.8:** Una onda electromagnética plana incide desde  $-\hat{z}$  sobre una esfera dieléctrica ubicada en el origen. La onda incidente se toma polarizada en la dirección  $\hat{x}$

donde  $I_0$  es la intensidad incidente,  $I_\theta$  y  $I_\varphi$  representan la intensidad de luz dispersada polarizada en la dirección  $\theta$  y  $\varphi$  respectivamente, donde

$$S_1 = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[ a_n \frac{P_n^1(\cos \theta)}{\sin \theta} + b_n \frac{dP_n^1(\cos \theta)}{d\theta} \right] \quad (2.17)$$

y

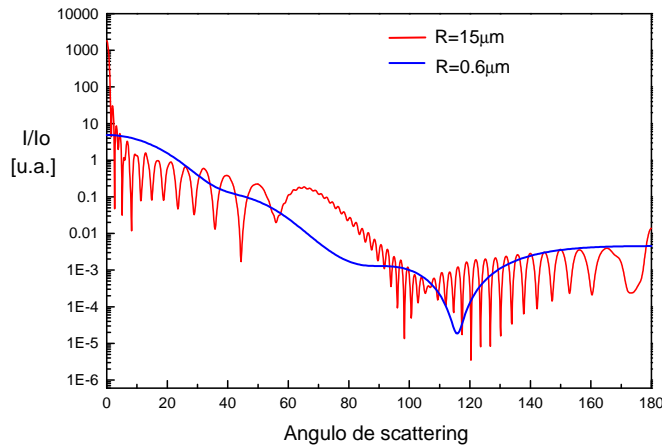
$$S_2 = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[ a_n \frac{dP_n^1(\cos \theta)}{d\theta} + b_n \frac{P_n^1(\cos \theta)}{\sin \theta} \right] \quad (2.18)$$

y donde  $P_n^1$  es el polinomio asociado de Legendre de primera clase, primer orden y de grado  $n$  y donde  $a_n$  y  $b_n$  son los coeficientes del desarrollo en serie que son función de  $\lambda$ ,  $R$  y de la constante dieléctrica de ambos medios, llamados coeficientes de Mie.

Esta serie se evaluó numéricamente para el caso de una esfera de aire (constante dieléctrica  $\epsilon_{aire} = 1$ ) inmersa en agua, cuya constante dieléctrica es  $\epsilon_{agua} = 1,78$  ( $n = 1.334$ ). En la Figura 2.9 se muestran los resultados obtenidos para la dispersión de luz en función del ángulo  $\theta$  para distintos tamaños de la burbuja para un haz incidente cuya longitud de onda se tomó igual a  $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ , que es la que corresponde a un láser He-Ne.

Como puede observarse la intensidad decrece a medida que nos alejamos de la dirección de incidencia  $\theta = 0$  (forward scattering). Por otro lado, cuando el tamaño de la burbuja es pequeño (del orden de la longitud de onda), la sección eficaz diferencial es suave mientras que para radios mayores presenta fuertes oscilaciones a medida que varía el ángulo de dispersión.

En el Apéndice A describiremos el cálculo de la dispersión de luz para una esfera rodeada por una sucesión de capas esféricas concéntricas (similar a las capas de una cebolla). Este



**Figura 2.9:** Intensidad de luz dispersada en función del ángulo  $\theta$  para dos burbujas de distintos radios. La longitud de onda de la luz en este caso se tomó igual a  $632.8\text{nm}$  (láser He-Ne).

cálculo puede utilizarse para calcular la dispersión de luz en un medio cuyo índice de refracción varía en forma continua en función del radio.

### 2.2.2. Constante dieléctrica del plasma en una burbuja SL

La compresión casi adiabática que se produce en los últimos momentos del colapso de una burbuja sonoluminiscente dan como resultado un rápido calentamiento de los gases que contiene. La producción de luz en una burbuja sonoluminiscente está asociada a los diferentes procesos de emisión del plasma que se forma durante esta compresión. Por ello es importante estudiar las características de este plasma en función de su temperatura y densidad. Estas características pueden ser utilizadas de hecho para estudiar experimentalmente las temperaturas y densidades que se alcanzan durante el colapso de la burbuja. La característica más importante de un plasma, en el sentido de su determinación experimental, es el índice de refracción.

Para estimar el índice de refracción de este plasma hemos utilizado los resultados de simulaciones numéricas de la dinámica del sistema. La dinámica de la burbuja prevista por el modelo numérico nos proporciona información sobre la temperatura y densidad del plasma interior.

Para las temperaturas que se alcanzan típicamente en sonoluminiscencia (decenas de miles de grados) este plasma está formado principalmente por átomos en un estado de primera ionización que presentan una ligera tendencia a alejarse del centro [26]. Sin embargo, el sistema mantiene la neutralidad local en cada punto. La existencia de equilibrio termodinámico local en la burbuja es normalmente aceptado [27] y [28]. Esto es importante para poder construir un modelo de función dieléctrica ya que puede asignarse la misma temperatura local a los iones y electrones. Asumiendo un modelo sencillo para el plasma dominado por colisiones, la frecuencia de colisiones depende sólo de la temperatura

y concentración del plasma. En estas condiciones, el índice de refracción del plasma esta dado por [29]

$$n^2 = n_b^2 - \frac{w_p^2}{w^2 + i\nu_{eff}w} \quad (2.19)$$

donde  $w_p = \sqrt{\frac{N_e e^2}{m\epsilon_0}}$  es la frecuencia de plasma,  $N_e$  es la densidad de electrones,  $e$  es la carga del electron y  $m$  su masa. El valor de  $\epsilon_0$  esta definido como  $\frac{10^7}{4\pi c}$  donde  $c$  es la velocidad de la luz en el vacío. Por último,  $\nu_{eff}$  se asocia con una frecuencia efectiva de colisión o con la velocidad de pérdida de energía de una onda electromagnética que se propaga en el plasma.

El valor de  $n_b$  en la Ecuación 2.19 es el índice de refracción debido a los átomos neutros y esta dado por la ecuación de Clausius -Mossotti [30]

$$n_b^2 = \frac{1 + \frac{2}{3}N_0\alpha_0\epsilon_0}{1 - \frac{1}{3}N_0\alpha_0\epsilon_0} \quad (2.20)$$

donde  $\alpha$  es la polarizabilidad atómica.

En el caso de que el medio (gas neutro) no sea diluido, el campo eléctrico local es afectado por la polarización y debe incorporarse una corrección a la Ecuación 2.19 de la forma [31]

$$n^2 = \frac{1 + \frac{2}{3}N_0\alpha_0\epsilon_0 + \frac{2}{3}N_e\alpha_e\epsilon_0}{1 - \frac{1}{3}N_0\alpha_0\epsilon_0 - \frac{1}{3}N_e\alpha_e\epsilon_0} \quad (2.21)$$

donde ahora  $\alpha_0$  es la polarizabilidad de los átomos neutros y  $\alpha_e$  es la polarizabilidad de los electrones dada por<sup>2</sup>

$$\alpha_e = \frac{e^2}{m\epsilon_0} \left( \frac{-1}{w^2 + i\nu_{eff}w} \right)$$

La Ecuación 2.21 se reduce a la Ecuación 2.19 cuando  $N_e\alpha_e \rightarrow 0$ .

Los valores de  $\alpha_0$  se pueden modelar mediante [31]

$$\alpha_0 = \frac{e^2}{m\epsilon_0} \sum_k \left( \frac{f_k}{-w^2 + i\nu_k w + w_{0k}^2} \right)$$

donde  $f_k$  es la intensidad relativa de cada modo de oscilación (visión clásica de las transiciones atómicas).

Para el argón, se ha medido directamente el valor de  $\alpha_0$  en función de la presión y la longitud de onda incidente [32]. Se pueden utilizar las ecuaciones de los ajustes de esta referencia como una buena estimación de los valores de  $\alpha_0$ . Para el caso del xenon, en la bibliografía aparecen mediciones en función de la densidad sólo a  $546,1nm$  [33]. Sin embargo, la variación con la longitud de onda es muy pequeña y por otro lado estamos interesados en este trabajo en la longitud de onda de un láser de colorantes cuya longitud de onda es muy cercana a este valor ( $590nm$ ).

Resta entonces modelar la  $\nu_{eff}$  para los electrones. Esta frecuencia de colisión efectiva se puede representar como la suma de las distintas contribuciones

$$\nu_{eff} = \nu_{electron-ion} + \nu_{electron-atomo} + \nu_{electron-ion RC}$$

<sup>2</sup>En esta ecuación el signo delante de  $i$  proviene de la elección de la evolución temporal  $e^{iwt}$  o  $e^{-iwt}$  en la onda electromagnética. Dependiendo de la bibliografía se puede encontrar uno u otro indistintamente.

Las primeras dos se refieren a transiciones “free-free” o colisiones de electrones con átomos o iones y la última es del tipo “free-bond” o de recombinación.

Cada una de estas cantidades se puede calcular mediante las siguientes expresiones [29]. La frecuencia de colisión entre electrones e iones se puede estimar mediante

$$\nu_{e-i} = \sum_j 2 \left( \frac{2\pi}{3} \right)^{\frac{3}{2}} N_{i_j} \left( \frac{Z_j e^2}{4\pi\epsilon_0 k_B T} \right)^2 \left( \frac{k_B T}{m} \right)^{\frac{1}{2}} e^{-\frac{\hbar w}{k_B T}} \cdot \overline{g_{ff}}(w, T, j) \quad (2.22)$$

Aquí  $N_{i_j}$  es el número de iones con carga  $j$ ,  $Z_j$  es la ionización,  $k_B$  es la constante de Boltzman,  $T$  la temperatura y  $g_{ff}$  es el factor de Gaunt, que representa la corrección proveniente de la mecánica cuántica sobre esta ecuación clásica.

La barra sobre el  $g_{ff}$  representa el promedio pesado con la velocidad del factor de Gaunt

$$\overline{g_{ff}}(w, T) = \frac{e^{\frac{\hbar w}{k_B T}}}{k_B T} \int_{\hbar w}^{\infty} g_{ff}(w, E) e^{-\frac{E}{k_B T}} dE$$

Por otro lado, el factor de Gaunt “free-free” se puede calcular a partir de una expresión analítica que ajusta los valores precisos con un error menor al 0,1 % [34]. En el caso en que las temperaturas no sean demasiado altas (comparadas con la energía de ionización) los valores de  $Z_j$  no son muy altos (razonable en el caso de sonoluminiscencia ) y se puede utilizar la expresión no relativista para el factor de Gaunt dada por

$$g_{ff} = \sum_{i=0}^{10} \sum_{j=0}^{10} b_{ij} \Gamma^i U^j$$

donde

$$\Gamma \equiv \frac{1}{2,5} \left( \log \left( \frac{Z_j^2 R_y}{k_B T} \right) + 0,5 \right) \quad \text{y} \quad U \equiv \frac{1}{2,5} \left( \log \left( \frac{\hbar w}{k_B T} \right)^2 + 1,5 \right)$$

En esta ecuación  $R_y$  es la constante de Rydberg ( $\sim 13,6eV$ ). Los 100 coeficientes  $b_{ij}$  se encuentran tabulados en la bibliografía [34].

De la misma manera para la frecuencia de colisión entre electrones e iones en el caso de recombinación

$$\nu_{rc} = \sum_j 2 \left( \frac{2\pi}{3} \right)^{\frac{3}{2}} N_{i_j} \left( \frac{Z_j e^2}{4\pi\epsilon_0 k_B T} \right)^2 \left( \frac{k_B T}{m} \right)^{\frac{1}{2}} e^{-\frac{\hbar w}{k_B T}} \cdot \overline{g_{fb}}(w, T, j) \quad (2.23)$$

Donde nuevamente la barra sobre el  $g_{fb}$  representa el promedio pesado con la velocidad del factor de Gaunt

$$\overline{g_{fb}}(w, T) = 2x_1 \sum_{n^*}^{\infty} \frac{1}{n^3} e^{x_n} g_{fb}(n, w, v)$$

Donde  $v$  es la velocidad del electrón,  $x_n = \frac{E_{ion}}{n^2 k_B T}$ , donde  $E_{ion}$  es la energía de primera ionización del átomo y  $n^*$  es el menor nivel para el cual  $E_{n^*} < \hbar w$ .

Esta expresión puede ser simplificada si la energía del fotón es pequeña comparada con la energía de ionización ( $\sim 15eV$  para el argón). En este caso el nivel  $n^*$  es alto comparado con el estado base y debido a que la densidad de niveles se incrementa rápidamente al

aumentar  $n$ , los niveles discretos mayores a  $n^*$  pueden ser reemplazados por un espectro continuo y la sumatoria por una integral. De esta manera la expresión para el  $g_{fb}$  se reduce a

$$\overline{g_{fb}}(w, T) = e^{\frac{\hbar w}{k_B T}} - 1$$

Por último, para la frecuencia de colisión entre átomos e iones

$$\nu_{e-a} = \frac{8\sqrt{2}}{3} N_a \left( \frac{k_B T}{m} \right)^{\frac{1}{2}} (3C_{Tr} k_B T + d_{Tr}) \quad (2.24)$$

donde  $C_{Tr} = 0,1 \frac{m^2}{J}$  y  $d_{Tr} = -0,6 \cdot 10^{-20} m^2$  son cantidades obtenidas empíricamente.

Para hallar la constante dieléctrica resta entonces conocer los valores de densidad electrónica. Para condiciones típicas en sonoluminiscencia, (grado de ionización bajo) la densidad electrónica es igual a la densidad iónica [26].

La relación entre la densidad electrónica y la temperatura del gas se puede obtener a partir de la ecuación de Saha [35].

$$\frac{\alpha^2}{1 - \alpha} = \left( \frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{e^{-\frac{E_{ion}}{k_B T}}}{N_a} \quad (2.25)$$

donde  $\alpha$  es la fracción de átomos ionizados respecto del total.

En la Figura 2.10 se muestran los resultados del cálculo de la fracción de átomos ionizados utilizando la energía de ionización del argón (15,8eV) y del xenón (12,13eV) para la densidad atómica que resulta de un colapso típico en sonoluminiscencia (solución al 85 % de ácido sulfúrico, presión acústica de 1,5atm, y un  $R_0$  de 4 $\mu$ m).

En este caso el radio mínimo es  $\sim 0,49\mu$ m y la densidad alcanza los 0,94gr/cm<sup>3</sup>. La mayor fracción de átomos ionizados en el caso del xenón refleja la menor energía de ionización respecto del argón. La temperatura predicha por el modelo numérico en estas condiciones es de casi 12000K. A esta temperatura y densidad, la Ecuación 2.25 predice una fracción de átomos ionizados de  $1,3 \cdot 10^{-3}$  para el xenón y  $2,3 \cdot 10^{-4}$  para el argón.

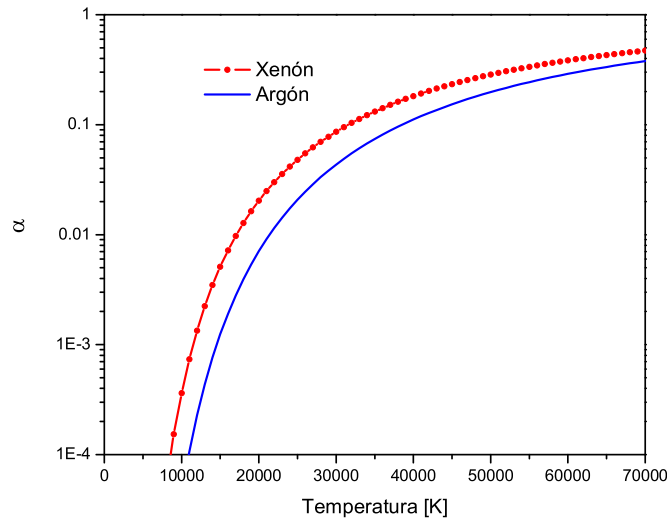
Utilizando los mismos parámetros de la Figura 2.10 se pueden calcular las distintas contribuciones a la frecuencia efectiva de colisiones (Ecuaciones 2.22, 2.23 y 2.24).

En la Figura 2.11 se muestran las distintas contribuciones para el argón en función de la temperatura utilizando una longitud de onda incidente de  $\lambda = 590nm$  correspondiente a un láser de colorantes (Rodamina 6G excitada por Nd-Yag).

Aquí puede observarse que la contribución más importante en el rango de temperaturas de interés son debidas a la interacción entre los electrones y los átomos.

### 2.2.3. Perfil de índice de refracción en una burbuja SL

Para obtener el perfil de índice de refracción dentro de la burbuja se utilizaron los resultados del modelo numérico desarrollado por García Martínez en su tesis de grado [36].



**Figura 2.10:** Fracción de átomos ionizados en función de la temperatura para el xenon y el argón. Para este cálculo se utilizó la densidad total en el momento de máxima compresión en un colapso típico en sonoluminiscencia ( $R_0 = 4\mu\text{m}$  y  $P_a = 1,5\text{atm}$ )

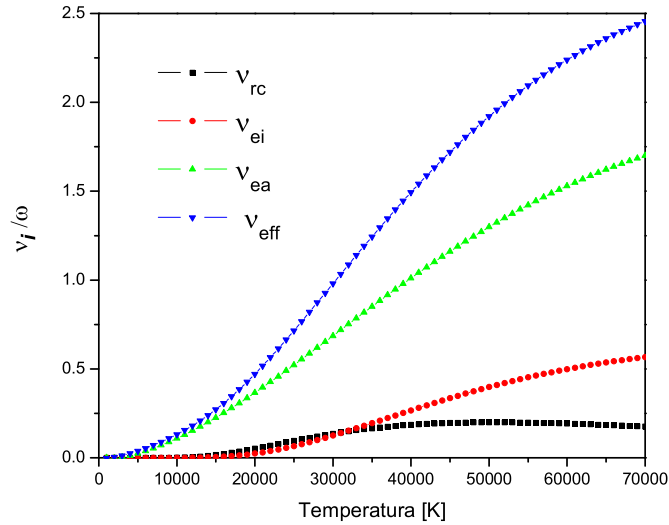
Conocidos los perfiles de densidad y temperatura dentro de la burbuja se puede calcular el índice de refracción para cada punto (Sección 2.2.2). En la Figura 2.12 se muestran los perfiles de temperatura dentro de la burbuja para el caso de utilizar ácido sulfúrico a una presión acústica de  $2,3\text{atm}$ , con un radio de equilibrio ( $R_0$ ) de  $11\mu\text{m}$  [37]. Allí se muestran los perfiles de temperatura para cuatro momentos diferentes incluyendo el punto de máxima temperatura. Se puede observar en esta Figura que la temperatura aumenta rápidamente a medida que el radio de la burbuja disminuye. En este caso la burbuja alcanza una temperatura extremadamente alta ( $120000\text{K}$ ) en su punto central.

Las diferentes curvas sin embargo, presentan una similitud en cuanto a dependencia espacial. Para simplificar el cálculo de la temperatura dentro de la burbuja se modeló esta dependencia espacial con una forma funcional sencilla. La Ecuación 2.26 muestra la dependencia utilizada.

$$T = T_{max} \sqrt[n]{1 - \left[\frac{r}{R}\right]^n} \quad (2.26)$$

De esta manera podemos ajustar el perfil completo de temperatura conociendo el valor del radio y la temperatura en el centro de la burbuja. Resta determinar cual es el valor óptimo para  $n$ .

Para ello se dibujaron las curvas de la Figura 2.12 normalizadas con el radio y la temperatura máxima. Los resultados se muestran en la Figura 2.13. En esta Figura se muestra además un par de curvas dadas por la Ecuación 2.26 para dos valores distintos del parámetro  $n$ . Puede observarse aquí que la dependencia funcional propuesta ajusta muy bien a los perfiles calculados. El valor del parámetro  $n$  que mejor ajusta al perfil completo varía entre 2 y 1,8 para temperaturas máximas entre 45000 y 120000 respectivamente.



**Figura 2.11:** Distintas contribuciones a la frecuencia efectiva de colisiones en función de la temperatura para el caso de utilizar argón. Para este cálculo se utilizó la densidad en el momento de máxima en un colapso típico en sonoluminiscencia ( $R_0 = 4\mu m$  y  $P_a = 1,5 atm$ ) y una longitud de onda incidente de  $\lambda = 590 nm$ .

Por otro lado, para obtener el perfil de densidades dentro de la burbuja, podemos usar el hecho de que la presión dentro de la burbuja será constante mientras no se produzcan ondas de choque. Esto es equivalente a [36, 38]

$$\epsilon_p = \frac{R\ddot{R}}{\sqrt{\gamma P_c} \bar{\rho}} \ll 1$$

Donde  $R$  y  $\ddot{R}$  son el radio y la aceleración de la burbuja,  $\gamma$  la constante politrópica del gas dentro de la burbuja,  $P_c$  la presión en el centro de la burbuja y  $\bar{\rho}$  es la densidad media. Esto resulta ser cierto para las condiciones normales de sonoluminiscencia.

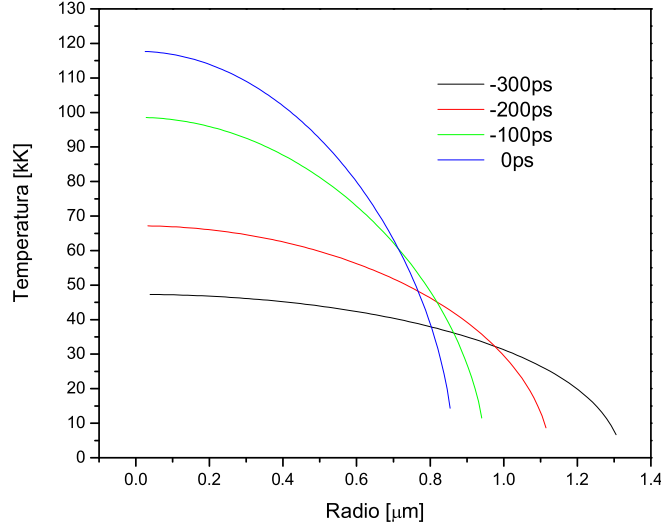
De esta manera, podemos obtener el perfil de densidades usando el perfil de temperaturas y la ecuación de estado para el gas<sup>3</sup>, esto es

$$\rho(r) = \frac{P}{R_g T(r)} = \frac{P}{R_g T_{max} \sqrt[1 - \left(\frac{r}{R}\right)^n]} \quad (2.27)$$

donde  $R_g$  es la constante de los gases y  $P$  es la presión dentro de la burbuja.

Aquí surge un pequeño problema, debido a que el perfil de temperaturas tiende a cero para  $r \rightarrow R$  la densidad diverge en ese punto. Para solucionar este problema se corrigió el perfil de temperaturas sumándole la temperatura del líquido ( $\sim 300 K$ ).

<sup>3</sup>Ecuaciones de estado más complejas deben utilizarse cuando la ionización es importante, para tener en cuenta el incremento de la presión debido al aumento del número de partículas [29].



**Figura 2.12:** Perfil de temperaturas dentro de la burbuja en el momento del colapso para una burbuja en ácido sulfúrico a una presión acústica de  $2,3\text{atm}$  y  $R_0 = 11\mu\text{m}$ . Se muestran los perfiles para 4 tiempos antes del punto de máxima temperatura.

Resta entonces hallar el valor de la presión  $P$ . Debido a que la cantidad de átomos de gas dentro de la burbuja se mantiene prácticamente constante durante toda la evolución temporal [39], debe cumplirse que

$$\bar{\rho} = \rho_0 \frac{R_0^3}{R^3} \quad (2.28)$$

Donde  $\bar{\rho}$  es la densidad media dentro de la burbuja. Para calcular la presión utilizamos la Ecuación 2.27 para obtener la densidad media (integrando en el volumen de la burbuja) y reemplazando en la Ecuación 2.28 despejamos  $P$ . Finalmente, reemplazando el valor de  $P$  en la Ecuación 2.27 obtenemos

$$\rho_{(r)} = \rho_0 \frac{R_0^3}{R^3} \frac{1}{f(T_0/T_{max}) \left( \frac{T_0}{T_{max}} + \sqrt[n]{1 - \left[\frac{r}{R}\right]^n} \right)} \quad (2.29)$$

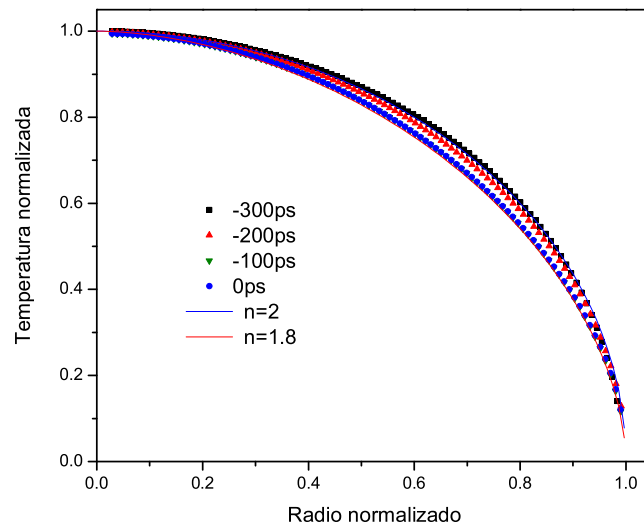
donde  $f(T_0/T_{max})$  es una función suave de  $T_0/T_{max} \equiv \beta$  dada por

$$f(\beta) = \frac{3}{4} \left[ 4\beta - 2\pi\beta^2 + \pi - 4\sqrt{\beta^2 - 1} \arctan \left( \frac{1}{\sqrt{\beta^2 - 1}} \right) - 2\pi\beta\sqrt{\beta^2 - 1} \right]$$

que varía en forma monótona entre  $3 - \frac{3}{4}\pi \sim 0,64$  para  $\beta = 1$  y  $\frac{3}{4}\pi \sim 2,35$  para  $\beta = 0$ . En este trabajo estamos interesados en el límite  $\beta \rightarrow 0$ , es decir, temperaturas centrales elevadas.

En la Figura 2.14 se muestran los resultados para el perfil de densidades correspondientes a las curvas de la Figura 2.12. En esta Figura se normalizó la densidad con la densidad del

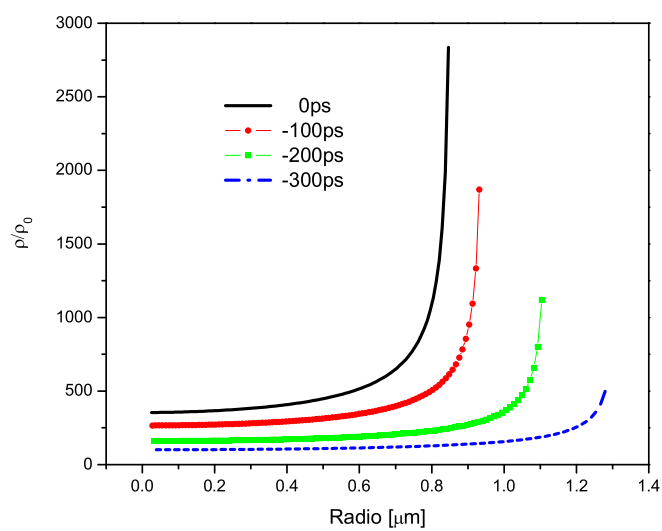




**Figura 2.13:** Perfil de temperaturas normalizado con la temperatura máxima y el radio de la burbuja. Se muestran además las curvas correspondientes a la Ecuación 2.26 para los valores de  $n = 1,8$  y  $n = 2$ .

gas a presión y temperatura ambiente. Aquí puede verse que la densidad crece rápidamente cerca de las paredes de la burbuja donde se encuentra más fría.

Una vez obtenidos los perfiles de temperatura y densidad, es posible calcular el perfil de índice de refracción dentro de la burbuja. Por último, utilizando el programa descrito en el Apéndice A se puede obtener la dispersión angular de luz dada por este perfil de índices de refracción.



**Figura 2.14:** Perfil de densidades normalizadas correspondientes a las curvas de la Figura 2.12. Se muestran las curvas para cuatro valores de tiempo antes del punto de máxima compresión.

# Capítulo 3

## Método experimental

En este capítulo describiremos los dispositivos utilizados y las técnicas experimentales comunes a los distintos experimentos realizados. Nos centraremos en el dispositivo base para conseguir una burbuja sonoluminiscente y los sistemas auxiliares comunes a la mayor parte de los experimentos. Luego, en cada capítulo se describirán las diferencias sobre este sistema base en el caso particular estudiado.

### 3.1. Dispositivo base

En esta sección describiremos el equipo básico que se utilizó para crear y mantener estable una burbuja sonoluminiscente. El dispositivo utilizado para conseguir sonoluminiscencia en agua es similar al utilizado en [40]. Describiremos aquí el sistema necesario para realizar sonoluminiscencia en otros líquidos en general corrosivos ( se realizaron experimentos con ácido sulfúrico y ácido fosfórico concentrado). En este caso el sistema debe estar completamente construido en vidrio, Teflon o algún otro material con alta resistencia química.

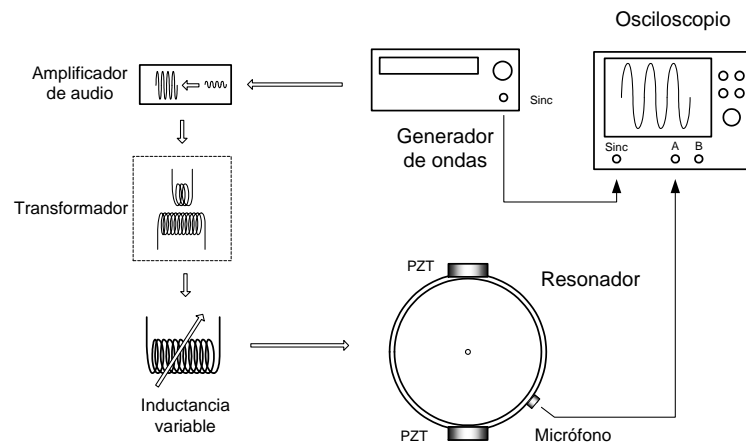
El fenómeno de sonoluminiscencia es sensible a los diferentes parámetros físicos del fluido (densidad, viscosidad, etc), que en general dependen de la temperatura. Además, depende del tipo y cantidad de gases disueltos en el fluido utilizado. Por este motivo se discutirán también los sistemas utilizados para estabilizar la temperatura del sistema y controlar la cantidad y el tipo de gases disueltos.

#### 3.1.1. Configuración básica

El dispositivo utilizado para producir sonoluminiscencia consta básicamente de un resonador esférico de vidrio pirex o cuarzo (Figura 3.1) el cual se llena con el fluido de interés previamente filtrado y desgasado al que se le agrega una cantidad conocida de algún gas, típicamente un gas noble o simplemente aire.

Cementados con epoxi a su superficie y colocados en forma diametralmente opuesta, la esfera tiene dos cerámicos piezoeléctricos (en adelante PZT piezo transductores) que son los encargados de generar la onda de presión estacionaria dentro del resonador. Estos PZT poseen la propiedad de deformarse cuando se aplica un voltaje, de modo que al excitarlos con una onda senoidal oscilan transmitiendo esta vibración a la pared del resonador. Otro

pequeño PZT pegado en la superficie del resonador funciona como sensor (micrófono) y su señal es registrada con un osciloscopio digital. La onda senoidal que excita a los PZT



**Figura 3.1:** Dispositivo base utilizado para producir sonoluminiscencia

posee una frecuencia entre los  $20kHz$  y  $50kHz$  (dependiendo del tamaño del resonador) que se ajusta para que coincida con la frecuencia natural de oscilación de alguno de sus modos esféricos (Capítulo 2.1.1) La amplitud necesaria para producir sonoluminiscencia varía desde unas pocas decenas de volts hasta casi 1000 volts dependiendo del modo utilizado y la presión acústica deseada.

Como un generador de ondas normalmente posee una salida del orden de  $1 - 10V$ , es necesario utilizar una etapa de amplificación para conseguir las altas tensiones necesarias para alimentar a los PZT. La etapa de amplificación está formada por un circuito amplificador (Power amplifier Radio Shack de  $100W$ ) que eleva la tensión a unos  $70V$  y por un circuito resonante RLC que eleva la tensión hasta su valor final. La parte capacitiva de este último circuito está formada por la propia capacidad de los PZT mientras que la parte inductiva la forma una inductancia variable de manera la frecuencia de resonancia del circuito  $\omega = \sqrt{\frac{1}{LC}}$  coincida con la frecuencia de resonancia del modo normal en el resonador. De esta manera se alcanzan voltajes de hasta  $500V$ .

En los casos en que se desea una tensión mayor, se utiliza además un transformador<sup>1</sup> que permite alcanzar los  $1000V$ . Para utilizar voltajes superiores se debe poner especial cuidado en todas las conexiones ya que fácilmente pueden formarse arcos eléctricos a través del aire.

Debido a que los cambios de temperatura ambiente producen diferentes modificaciones en los parámetros del sistema (velocidad del sonido, tamaño del resonador, etc), también se modificará la frecuencia de resonancia del sistema. Como el factor de calidad  $Q^2$  del sistema es muy alto ( $\sim 300 - 1000$ ), pequeños cambios de temperatura provocan apartamientos de la frecuencia de resonancia suficientes para modificar sensiblemente la presión

<sup>1</sup>Debido a las frecuencias de trabajo utilizadas, el núcleo del transformador debe ser construido de un material con muy baja histéresis como por ejemplo el ferrite

<sup>2</sup>Cociente entre la frecuencia de resonancia  $f_o$  y el ancho en frecuencia donde la intensidad decrece 3dB del máximo en  $f_o$

acústica en el centro del resonador.

Para evitar este problema, se implementaron dos técnicas de estabilización: Se diseñó un sistema de control de la temperatura del resonador y se implementó un método de seguimiento de la frecuencia de resonancia del sistema.

Este último dispositivo aprovecha el hecho de que la fase de la señal medida por el micrófono debe ser un valor fijo cuando el sistema se encuentra en resonancia. De esta forma, sensando la fase del micrófono y modificando la frecuencia para mantener este valor constante, el sistema permanecerá en resonancia. El dispositivo que cumple esta función está formado por un Lock-In que toma la señal del micrófono y un integrador que toma la salida de fase del Lock In y a su vez controla la frecuencia del generador de ondas (Voltage Controlled Oscillator VCO).

El Lock In mide la diferencia de fase con respecto a la referencia tomada del sincronismo del generador de ondas en el momento en que el sistema se encontraba en resonancia. El integrador modifica la frecuencia del generador de ondas hasta que la diferencia de fase es cero, momento en el cual la salida del Lock-In es nula, y el sistema permanece en resonancia.

Este sistema permite “seguir” la resonancia para cambios de temperatura del orden de  $1^{\circ}\text{C}$ , que equivalen a cambios en frecuencia del orden de 50 Hz para nuestro resonador.

### 3.1.2. Estabilización de la temperatura

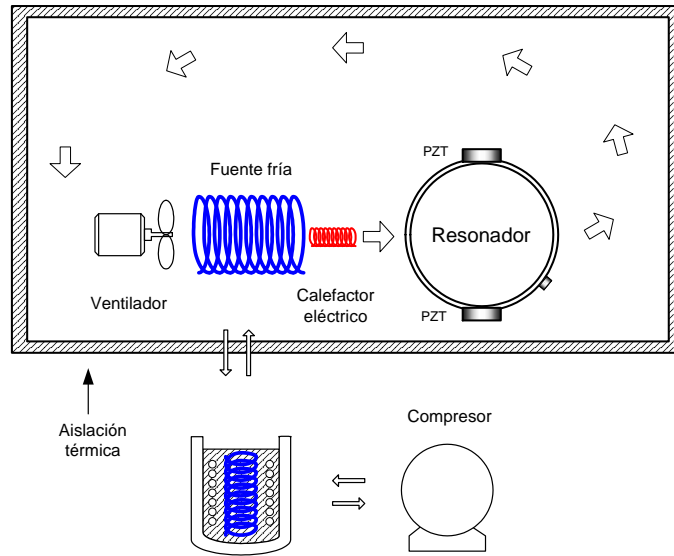
El control de la temperatura es fundamental para garantizar la estabilidad del sistema y la repetitividad en los experimentos. Por otro lado, la modificación de la temperatura permite explorar cambios en las propiedades físicas del fluido tales como la viscosidad, presión de vapor y en menor medida la tensión superficial o densidad.

El sistema de estabilización de temperatura consiste básicamente en controlar la temperatura del aire que rodea el resonador. En la Figura 3.2) se muestra un esquema del dispositivo utilizado. La temperatura del aire se controla por un conjunto refrigerador-calefactor. El refrigerador corresponde al circuito secundario de un compresor de freón comercial de  $1/2\text{Hp}$  adaptado para tal fin. El fluido dentro del circuito secundario está formado por una mezcla de agua y etilenglicol al 30 %. De esta manera se pueden alcanzar temperaturas de la mezcla de hasta  $-20^{\circ}\text{C}$ .

Mediante un controlador PID se regula la corriente en el calefactor eléctrico de modo de mantener la temperatura constante.

El resonador y los equipos de detección utilizados (fotodetectores, monocromador, etc) se colocan dentro de una caja oscura que funciona como aislante térmico y además disminuye la cantidad de luz del ambiente, que en general representa una fuente de ruido para las mediciones realizadas. De esta forma se puede mantener la temperatura estable dentro de esta caja con una precisión de  $\pm 0,1^{\circ}\text{C}$ . Cabe mencionar que al controlar la temperatura del aire, la inercia térmica del resonador funciona como un filtro pasabajos disminuyendo aún más las fluctuaciones en la temperatura.

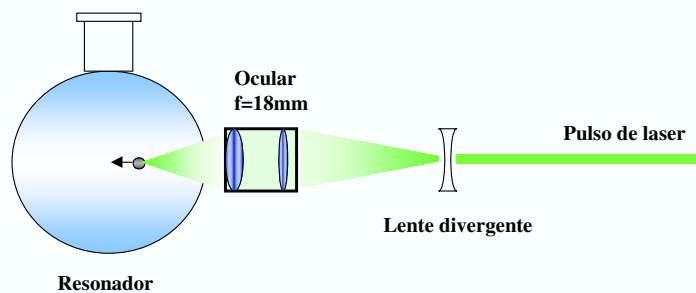
La caja aislante tiene una serie de orificios por donde entran los haces de luz láser necesarios para los distintos experimentos realizados: medición del radio en función del tiempo, medición del núcleo de plasma, o para crear la burbuja.



**Figura 3.2:** Dispositivo utilizado para estabilizar la temperatura del resonador. La temperatura del aire circundante se controla mediante una fuente fría y un calefactor eléctrico. Con este sistema se puede fijar la temperatura en un rango de  $-5$  a  $40^{\circ}\text{C}$ .

### 3.1.3. Creación de la burbuja

Para crear una burbuja en el resonador se focaliza un pulso láser Nd:Yag de alta potencia dentro de resonador (Figura 3.3) El campo eléctrico del haz en el punto de focalización aumenta lo suficiente como para superar el valor crítico de ruptura de dieléctrico del agua y generar un plasma opaco a la radiación[41] que se expande rápidamente. Durante el proceso de expansión absorbe una parte de los gases disueltos en el agua que formarán luego la burbuja. Una vez generada, la burbuja se desplaza hacia el centro del resonador debido a la presencia del campo de ultrasonido. Se utilizó un pulso del láser verde



**Figura 3.3:** Dispositivo utilizado para generar la burbuja dentro del resonador. Un pulso láser de alta potencia es focalizado en el interior del resonador provocando la ruptura del dieléctrico. Una pequeña burbuja se forma y es atrapada por el campo de ultrasonido

Neodimio-Yag de aproximadamente  $2\text{MW}$  de potencia que era expandido por una lente divergente para luego ser focalizado con un ocular de distancia focal  $18\text{mm}$  dentro del

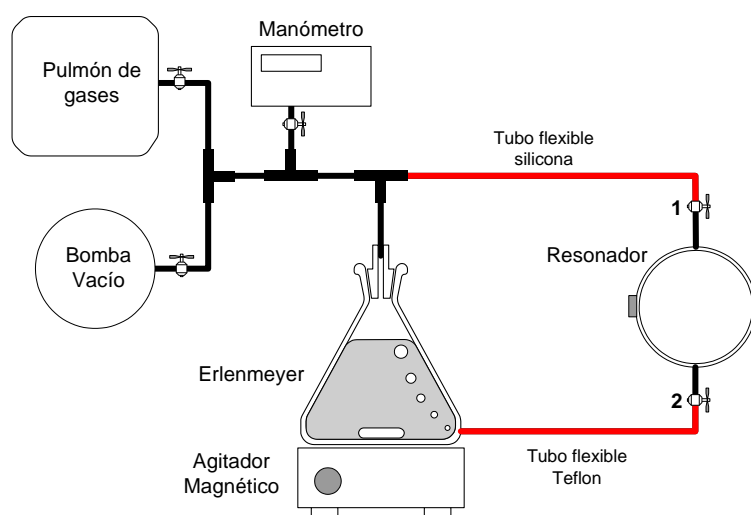
resonador. El motivo por el cual el láser es primeramente expandido es porque de esta manera se puede conseguir una focalización más efectiva con el ocular disminuyendo los efectos de difracción.

Por otro lado, en sistemas formados por ácido sulfúrico es posible generar la burbuja dentro del resonador aumentando la presión acústica hasta lograr que se produzca cavitación en las paredes del resonador. Luego, disminuyendo la presión acústica la burbuja puede ser atrapada en el centro del resonador. Esta diferencia con respecto a sistemas que utilizan agua como fluido radica en el hecho de que en agua, a valores altos de presión acústica, la burbuja se destruye en fragmentos, mientras que en el ácido (mucho más viscoso que el agua) esto no ocurre.

Por último cabe señalar que la cavitación en las paredes del resonador se puede conseguir aumentando la presión acústica o disminuyendo la presión externa.

### 3.1.4. Control del tipo y concentración de los gases disueltos

Para controlar la cantidad de gases disueltos en el líquido del resonador, se utilizó el dispositivo mostrado en la Figura 3.4. El proceso de obtención del fluido con los gases



**Figura 3.4:** Dispositivo utilizado para controlar la cantidad y el tipo de gases disueltos. Luego de desgasar durante algunas horas el fluido realizando vacío y agitando, se llenaba el resonador con gas y lentamente se hace burbujear el gas hasta alcanzar la presión deseada.

disueltos a la presión deseada constaba de varias etapas que describiremos a continuación. Luego de filtrar el líquido y colocarlo dentro del erlenmeyer (manteniendo cerrada la válvula 2 de la Figura 3.4), se procedía al completo desgasado del líquido. Para esto se realizaba vacío con la bomba mecánica ( $< 1\text{mbar}$ ) mientras se mantenía el líquido en agitación durante al menos 2 horas. Cuando se intentan disolver pequeñas cantidades de gas es conveniente desgasar aún más tiempo.

Una vez desgasado el líquido se llenaba el circuito (incluyendo el resonador) con el gas a disolver a una presión mayor a la deseada finalmente. Luego, cerrando la válvula 1

y abriendo la válvula 2, se procede al lento vaciado del circuito hasta que se alcanza la presión deseada. De esta manera el gas atrapado en el resonador irá escapando a través del líquido en el erlenmeyer en forma de burbujas. Este mecanismo favorece el establecimiento del equilibrio difusivo de la mezcla al mismo tiempo que minimiza la contaminación del gas con una posible pérdida de aire en una de las conexiones del manifold a la izquierda del erlenmeyer. Una vez alcanzada la presión deseada, se procede al llenado del resonador abriendo la válvula 1 y elevando el erlenmeyer de forma que el fluido escurra por efecto de la gravedad.

Finalmente se cerraba la válvula 1 dejando abierta la válvula 2 y se abría el manifold a la atmósfera. De esta forma se igualaba la presión dentro del resonador con la atmósfera a través del largo tubo de teflon inferior y por lo tanto se disminuía la difusión del aire atmosférico.

Una vez cerrado el resonador la concentración de los gases disueltos permanecía constante por varios días.

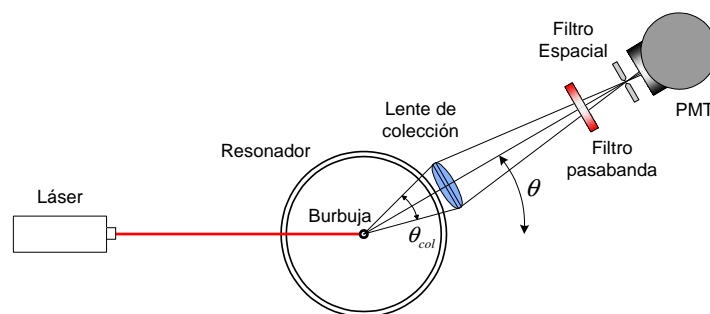
## 3.2. Medición del radio en función del tiempo

En la determinación del radio de la burbuja en función del tiempo se utiliza en general alguna de las propiedades que posee la dispersión de luz a partir de una esfera dieléctrica. La dispersión de luz producida por una esfera se conoce como Mie scattering (ver Sección 2.2.1). Las distintas características de esta dispersión pueden ser aprovechadas para estimar el radio de la burbuja que la produce. En esta Sección estudiaremos tres métodos diferentes para medir el radio de una burbuja que explotan diferentes propiedades de la dispersión de luz.

### 3.2.1. Mie scattering tradicional

Para determinar el radio de la burbuja en función del tiempo se utiliza normalmente una configuración como la que se muestra en la Figura 3.5.

La intensidad de luz dispersada puede relacionarse con el radio de la burbuja haciendo

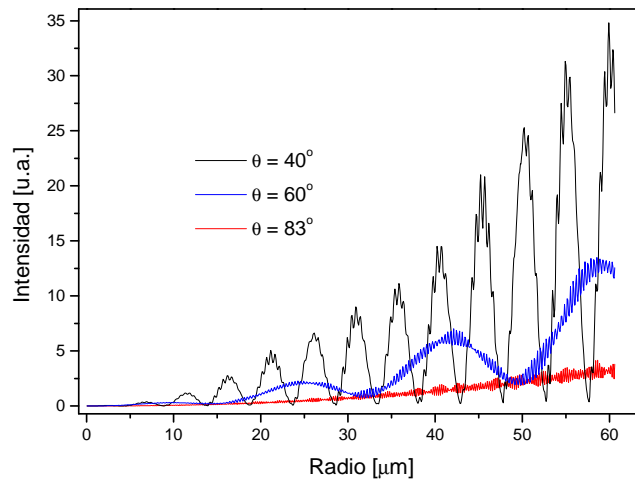


**Figura 3.5:** Configuración típica utilizada para la determinación del radio de la burbuja. Un haz láser ilumina la burbuja mientras que un detector sensa la luz dispersada a un ángulo central  $\theta$ . En general se utiliza una lente de colección que capta un ángulo sólido  $\theta_{col}$  y un filtro pasabanda sumado a un filtro espacial (iris) para mejorar la relación señal-ruido.



uso de la teoría de Mie para la dispersión de luz en una esfera dieléctrica (Sección 2.2). La Figura 3.6 muestra la intensidad de luz dispersada en función del radio de la burbuja calculada para distintos ángulos de detección  $\theta$  para un detector puntual ( $\theta_{col} \rightarrow 0$ ) y una longitud de onda de 632.8nm (láser He-Ne).

La intensidad de luz dispersada a un ángulo dado es la suma de la parte del haz que se



**Figura 3.6:** Intensidad de luz que mediría un detector infinitesimal para tres posiciones diferentes con respecto al ángulo de incidencia  $\theta$ . En este caso se calculó una burbuja de aire en agua con una longitud de onda de 632,8nm.

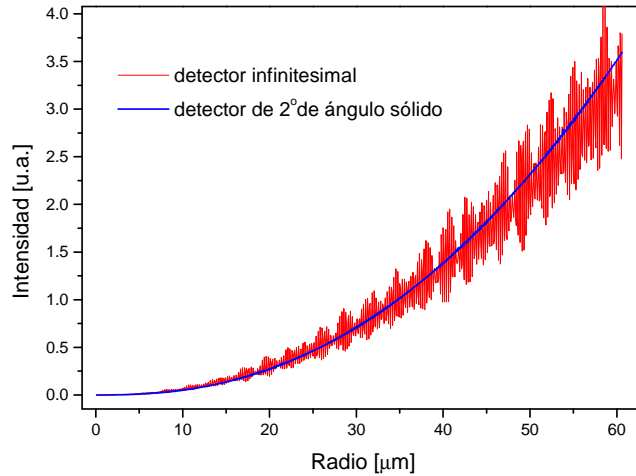
refleja en la superficie de la burbuja y llega directamente al detector, más la parte que entra a la burbuja y sale refractándose antes de llegar al detector, sumada a la parte que se refleja una vez dentro de la burbuja antes de salir y así sucesivamente. A medida que el número de reflexiones aumenta, la contribución a la suma total se hace más pequeña. La intensidad de luz dispersada en función del radio de la burbuja presenta un comportamiento oscilante denominado resonancias de Mie cuya frecuencia aumenta a medida que disminuye el ángulo  $\theta$  de detección. Se observa además la presencia de una estructura compleja cuyas variaciones son de menor amplitud y de una frecuencia mayor.

Para el ángulo crítico  $\theta = 83^\circ$  (ángulo de Brewster agua-aire) desaparecen las resonancias y sólo se observan las variaciones de alta frecuencia. Por otro lado, cuando se tiene en cuenta que el detector colecta luz en un ángulo sólido  $\theta_{col}$ , se encuentra que estas variaciones rápidas también desaparecen (Figura 3.7).

De esta forma, midiendo la dispersión de luz en este ángulo particular, obtenemos una forma sencilla de relacionar biunívocamente (sin las resonancias) la intensidad de luz captada con el tamaño de la burbuja.

En la bibliografía se ha aproximado extensamente esta dependencia por una relación cuadrática [17, 6, 42].

De esta manera, el radio de la burbuja se obtiene simplemente tomando la raíz cuadrada de la intensidad de luz detectada para un ángulo de dispersión correspondiente al ángulo



**Figura 3.7:** Intensidad de luz medida por un detector puntual ( $\theta_{col} \rightarrow 0$ ) y un detector con  $\theta_{col} = 2^\circ$  ambos ubicados en el ángulo de Brewster (la intensidad está normalizada para permitir la comparación). En este caso se calculó una burbuja de aire en agua con una longitud de onda de  $632,8nm$ .

de Brewster.

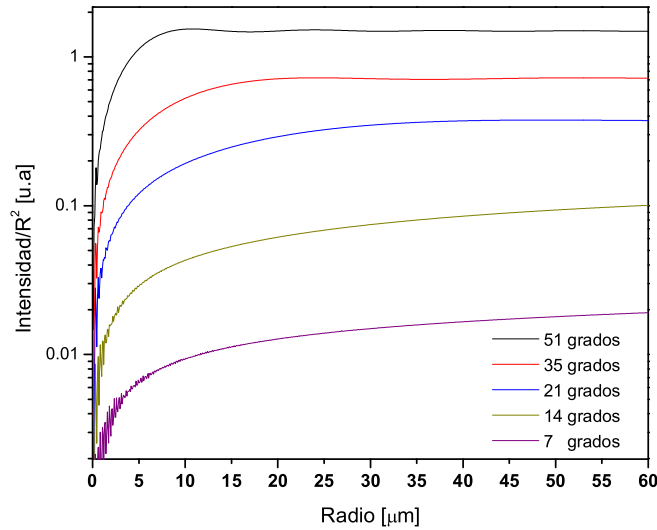
Sin embargo, queremos hacer notar en este punto que la dependencia cuadrática es cuestionable para burbujas pequeñas o ángulos de colección pequeños. En la Figura 3.8 se muestran los resultados para la intensidad de luz en función del tamaño de la burbuja para distintos ángulos de colección  $\theta_{col}$ .

La intensidad en esta figura ha sido normalizada con el radio de la burbuja al cuadrado, es decir que para una dependencia estrictamente cuadrática, el resultado debería ser una constante.

Los resultados indican que la aproximación cuadrática será buena sólo para ángulos de colección relativamente grandes y aún para el caso en que el ángulo sea tan grande como  $50^\circ$ , la aproximación sólo será satisfactoria para radios de burbuja mayores a  $5 - 10\mu m$ . Por debajo de este valor (en donde la longitud de onda comienza a ser comparable al tamaño de la burbuja) la intensidad medida será más baja. Por lo tanto utilizar la relación cuadrática producirá una subestimación del verdadero radio para burbujas menores a los  $5 - 10\mu m$ .

Por otro lado, debido a que el cálculo del radio implica realizar una operación de raíz cuadrada sobre los datos, la determinación precisa de los valores de señal de fondo son críticos. Un error en el valor de fondo, produce en este método de medición, grandes errores en la determinación del radio, principalmente para radios pequeños.

Por último, cabe mencionar que para ángulos de dispersión mayores al ángulo de Brewster (back scattering), la aproximación cuadrática se satisface mucho mejor aún para radios tan bajos como  $2\mu m$ . Sin embargo, la intensidad de luz dispersada disminuye rápidamente para ángulos mayores a  $90^\circ$  (ver Figura 2.9) y por lo tanto dificulta su detección.



**Figura 3.8:** Intensidad de luz medida en el ángulo de Brewster por un detector con  $\theta_{col}$  variable entre  $7^\circ$  y  $51^\circ$ . La intensidad está normalizada con el tamaño de la burbuja al cuadrado. En este caso se calculó una burbuja de aire en agua con una longitud de onda de  $632,8\text{nm}$ .

El método descrito hasta aquí es relativamente simple y ofrece una herramienta de diagnóstico muy poderosa, sin embargo, no es posible obtener a partir de este tipo de medición, el valor absoluto del radio de la burbuja. Tomando la raíz cuadrada de la intensidad como proporcional al radio de la burbuja, se puede obtener una estimación del radio a menos de una constante de proporcionalidad.

Normalmente se realiza un ajuste de la evolución temporal del radio medida con la solución de la ecuación de movimiento de la burbuja (ecuación de Rayleigh y Plesset Sección 2.1.2). Este método proporciona, además de la constante de proporcionalidad, información sobre la presión acústica  $P_a$  y el radio de equilibrio  $R_o$  de la burbuja. Llamaremos a este método el *método de ajuste* para distinguirlo de la medición directa del radio absoluto. La medición directa del radio absoluto se puede obtener de dos maneras diferentes que serán descritas en las siguientes dos secciones.

### 3.2.2. Método de dos detectores

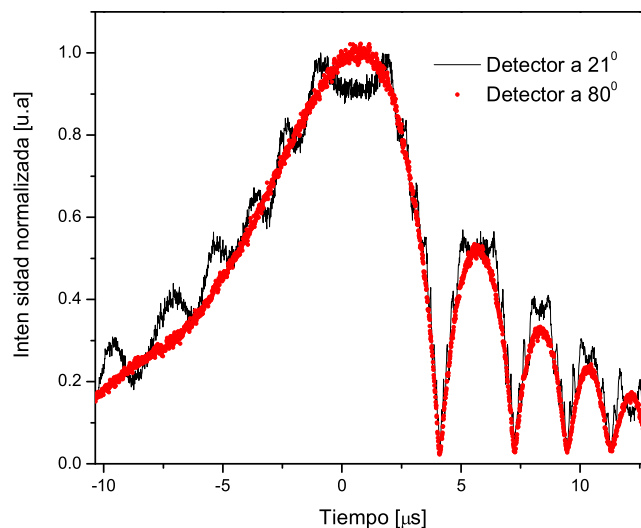
La intensidad de luz dispersada para ángulos menores al de Brewster presenta una modulación a medida que crece el radio de la burbuja dada por las resonancias de Mie (Figura 3.6). Este hecho puede utilizarse para relacionar la posición de los máximos en la intensidad medida con el tamaño de burbuja al cual se espera que aparezcan.

Delgadino et. al [17] propusieron un método para obtener el valor absoluto del radio de la burbuja que consiste en la utilización de *dos* detectores ubicados a diferentes ángulos,

uno en el ángulo de Brewster y el otro en un ángulo menor. Con el primer detector se obtiene una señal proporcional al cuadrado del radio de la burbuja, mientras que con el segundo se miden las resonancias de Mie. Comparando las posiciones de las resonancias con el valor esperado para el ángulo de medición del segundo detector es posible obtener la constante de proporcionalidad restante.

Para describir este mecanismo daremos un ejemplo concreto sobre una medición particular realizada.

En la Figura 3.9 se muestran los resultados de la medición de la intensidad de luz dispersada por una burbuja de aire en agua por dos detectores ubicados a  $80^\circ$  y a  $21,4^\circ$  respecto de la dirección de salida del haz.



**Figura 3.9:** Intensidad de luz normalizada dispersada por una burbuja de aire en agua medida utilizando dos detectores. El primero estaba ubicado a  $80^\circ$  con un ángulo de colección de  $60^\circ$ , mientras que el segundo estaba ubicado a  $21,4^\circ$  con un ángulo de colección de  $4^\circ$ . La longitud de onda utilizada fue de  $632,8nm$ .

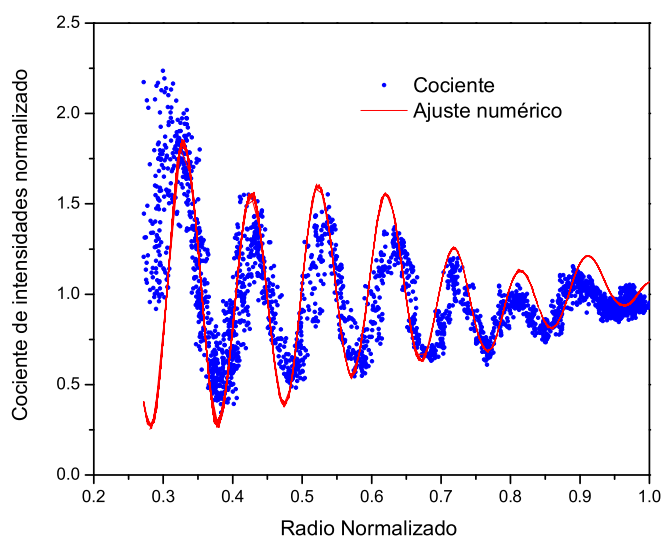
Los ángulos de colección eran  $60^\circ$  y  $4^\circ$  respectivamente. En la Figura se muestran los resultados normalizados de manera de poder comparar más fácilmente ambas curvas. La burbuja fue iluminada en este caso por un láser He-Ne y para estas mediciones se utilizó un fotomultiplicador Oriel modelo 77340 de  $2,1ns$  de tiempo de respuesta<sup>3</sup> (ubicado a  $80^\circ$ ) y un módulo fotomultiplicador Hamamatsu H950 de  $2ns$  (ubicado a  $21,4^\circ$ ). La señal de estos detectores era tomada por un osciloscopio Hewlet-Packard de  $1Gsample/segundo$  y almacenada en una computadora vía una tarjeta IEEE 488.

En la Figura pueden observarse las resonancias de Mie que se producen en el detector

<sup>3</sup> Ancho total a altura mitad del pico que produce como resultado de la excitación con una delta. Para una descripción más detallada de las características del fotomultiplicador consultar el Apéndice B

ubicado a  $21,4^\circ$ .

Para obtener una señal proporcional al radio de la burbuja se toma la raíz cuadrada de la señal del detector ubicado a  $80^\circ$  (señal suave) y dividiendo esta cantidad por el valor máximo, obtenemos el valor del radio adimensionalizado. Luego, se procede a calcular el cociente entre ambas señales de la Figura 3.9 y se lo grafica en función del radio adimensionalizado. Los resultados de esta operación se muestran en la Figura 3.10.



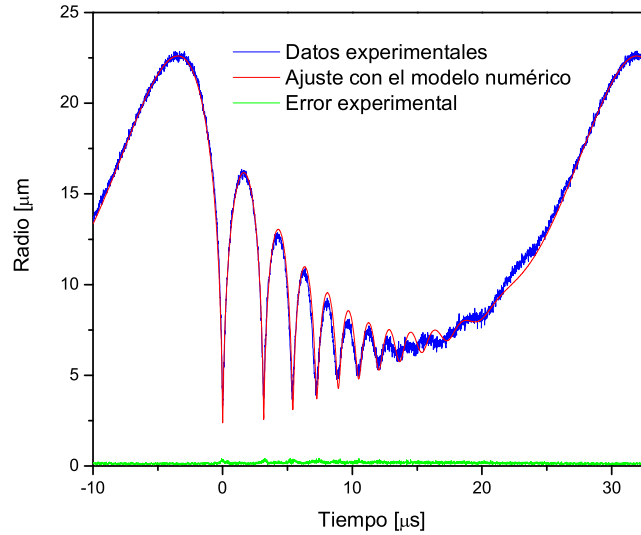
**Figura 3.10:** Cociente de las curvas mostradas en la Figura 3.10 en función del radio adimensionalizado. Se muestra en la Figura el ajuste realizado utilizando un radio máximo de  $21,6\mu m$ .

Aquí podemos ver que todas las oscilaciones que aparecen en la Figura 3.9 colapsan aquí en una sola curva. Esta curva es independiente de la dinámica particular de la burbuja y característica de un detector ubicado a  $21,4^\circ$ . El número de oscilaciones que se observan está directamente relacionado con el radio máximo que alcanza la burbuja.

El ajuste se realiza proponiendo distintos valores de radio máximo de forma tal de que coincidan las oscilaciones medidas. De esta manera obtenemos un valor de  $21,6 \pm 1\mu m$  para el radio máximo. En la Figura se muestran las oscilaciones de Mie esperadas para este caso.

El valor de radio máximo obtenido es sensible al ángulo utilizado en el cálculo para el detector que mide las oscilaciones. Un error en un grado en la posición del detector, produce un cambio en el radio máximo obtenido de aproximadamente el 5%. El ángulo central del detector es entonces un parámetro que debe ser medido con cuidado.

Por último, a forma de comparación, se muestran los resultados obtenidos a partir de realizar el ajuste de la curva obtenida sólo por el detector ubicado a  $80^\circ$  con la evolución de la burbuja calculada a partir del modelo numérico descrito en la Sección 2.1.2. En la Figura 3.11 se muestran los resultados de este ajuste.



**Figura 3.11:** Ajuste de los datos de la Figura 3.9 obtenidos con el detector ubicado  $80^\circ$  utilizando el modelo numérico de la Sección 2.1.2. Los parámetros del ajuste son  $R_0 = 8,1\mu m$ ,  $P_A = 0,923 atm$  lo que produce un radio máximo de  $22,6\mu m$ . Se muestra además, el error experimental en la determinación del radio

Allí podemos ver que el ajuste es excelente en todo el rango de medida. A partir de este ajuste obtenemos un valor de radio máximo de  $22,6\mu m$  que es compatible con el obtenido mediante el método de los dos detectores.

### 3.2.3. Método de las franjas

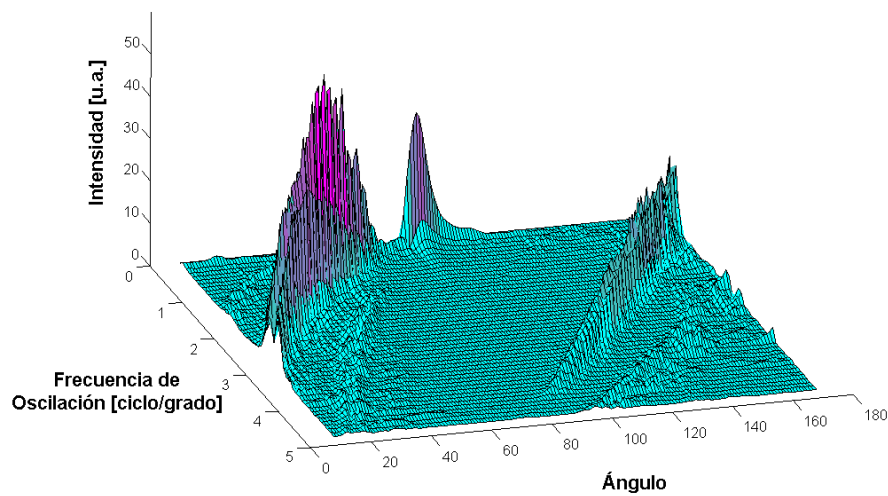
En esta sección describiremos un método de determinación del radio de la burbuja en forma absoluta desarrollado durante esta tesis.

En este caso se utiliza otra propiedad de la dispersión de luz por una esfera dieléctrica (Mie scattering, Sección 2.2). En la Figura 2.9 puede observarse que la dispersión de luz por una burbuja de  $15\mu m$  presenta oscilaciones en función del ángulo de dispersión. La frecuencia de oscilación (ciclos/grado) depende del ángulo de dispersión y aumenta para ángulos cercanos a cero.

En la Figura 3.12 se muestra la frecuencia de estas oscilaciones en el caso de una burbuja de  $100\mu m$  de diámetro en agua iluminada por un láser de He-Ne.

La frecuencia espacial de estas franjas está relacionada con el tamaño de la burbuja de forma tal que para un ángulo de dispersión fijo, esta frecuencia aumenta. Para ángulos de dispersión pequeños la frecuencia de las oscilaciones se puede considerar proporcional al tamaño de la burbuja.

Midiendo entonces la frecuencia espacial de estas oscilaciones (que se ven como franjas



**Figura 3.12:** Frecuencia de estas oscilaciones en la intensidad de luz dispersada por una burbuja de  $100\mu\text{m}$  de diámetro en agua iluminada por un láser de He-Ne en función del ángulo de dispersión.

luminosas), se puede estimar el tamaño de la burbuja.

La idea aquí es formar una imagen de estas franjas en el sensor de una cámara y de esta manera estimar el tamaño de la burbuja. Debido a que la burbuja está cambiando constantemente de tamaño, se ilumina a la burbuja sólo durante un breve instante. Para ello se utilizó un láser pulsado Nd-Yag de  $20\text{ns}$  de ancho de pulso. Mediante un ajuste de la fase del pulso de luz con respecto a la evolución de la burbuja es posible determinar el tamaño de esta en diferentes partes del ciclo de ultrasonido. Tomando varias fotografías en diferentes momentos es posible reconstruir el ciclo completo de evolución.

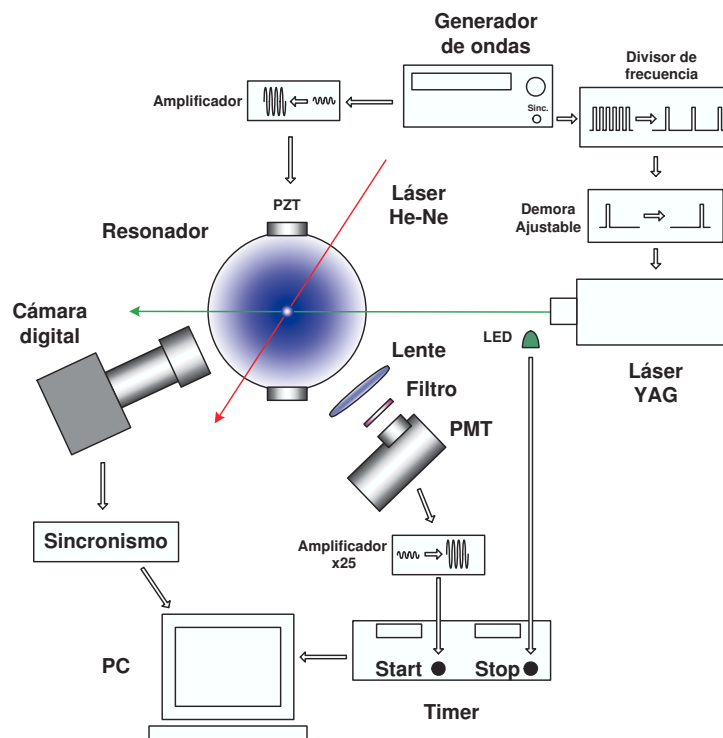
El método requiere de una gran estabilidad en el movimiento de la burbuja ya que la evolución completa se obtiene a partir de mediciones en diferentes ciclos de la misma.

En la Figura 3.13 se muestra un esquema del dispositivo utilizado para la determinación de la evolución temporal del radio de la burbuja utilizando este método.

La señal de sincronismo del generador de ondas utilizado para excitar los piezoeléctricos se utilizaba como entrada en un contador de manera tal de generar una secuencia de pulsos sincrónicos al generador de una frecuencia menor. La frecuencia de estos pulsos se elegía lo más cercana posible a los  $50\text{Hz}$ , frecuencia donde el láser Nd-Yag trabaja en forma más estable. Estos pulsos, luego de atravesar una demora ajustable, disparaban el láser Nd-Yag que iluminaba la burbuja.

Las franjas de emisión (oscilaciones de la Figura 2.9) eran medidas por una cámara CCD desenfocada cuyo tiempo de integración se tomaba igual a la inversa de la frecuencia de los pulsos. De esta manera, en cada imagen se imprime la dispersión proveniente de un pulso del láser (y sólo uno).

La fase relativa entre el pulso de luz y el colapso de la burbuja era medido con la ayuda de un Timer (SR 650) donde la señal de start provenía del pulso de sonoluminiscencia



**Figura 3.13:** Dispositivo experimental utilizado. Un pulso de luz láser de  $\sim 20\text{ns}$  ilumina la burbuja en diferentes fases del ciclo de ultrasonido. La luz dispersada es captada por una cámara CCD y mediante un timer se mide el tiempo entre el pulso de sonoluminiscencia y el pulso láser. Utilizando la señal de sincronismo de la cámara es posible asignar una fase a cada fotografía.

(medido con un fotomultiplicador y amplificado 25 veces) y el pulso de stop provenía del pulso de Nd-YAG. Un filtro pasabajos delante del fotomultiplicador prevenía la detección del pulso del láser en la señal de start.

La señal de trigger de la cámara era adquirida por la PC de forma tal que a cada imagen era posible asignarle una fase relativa.

Este método de determinación del radio absoluto de la burbuja tiene la ventaja sobre el método tradicional de Mie y el método de dos detectores, de ser robusto aún para grandes cantidades de ruido de fondo. En este caso no es necesario medir la intensidad de fondo ya que el parámetro relevante es la frecuencia espacial de las franjas.

Por otro lado, este método es preciso aún para burbujas pequeñas aunque en ese caso debe ser medido un ángulo de colección relativamente grande para asegurar que al menos se pueda obtener una franja completa.

La calibración del radio absoluto al igual que en el caso del método con dos detectores depende de una calibración geométrica del ángulo de dispersión captado por la cámara.



# Capítulo 4

## Validación del Modelo Numérico: Disociación

El radio de equilibrio de una burbuja sometida a una dada excitación depende de los procesos químicos y difusivos que se producen durante la dinámica de movimiento de la burbuja. Por lo tanto, la comparación de los resultados experimentales con las predicciones del modelo numérico descrito en la Sección 2.1.2 representan una validación del modelo utilizado. Esta validación es importante para poder utilizar el modelo como predictor de las condiciones dentro de la burbuja en zonas del diagrama de fases más difíciles de explorar experimentalmente. En este capítulo presentaremos los resultados obtenidos de esta comparación [43].

### 4.1. Introducción

Una de las características más importantes de la concentración de energía que se produce en sonoluminiscencia es la temperatura que se alcanza dentro de la burbuja durante la fase del colapso.

Si bien se ha realizado un gran esfuerzo para determinar la temperatura máxima en forma experimental [12, 6], este parámetro no ha podido ser determinado con exactitud. Por otro lado, los experimentos involucrados en la determinación de la temperatura, en general indirectos, dependen de los modelos que se utilicen para describir la dinámica de la burbuja.

Por este motivo, es importante desarrollar un modelo numérico que sea lo más preciso posible. La validación experimental de este modelo resulta fundamental antes de utilizarlo para estudiar la importancia relativa de los diferentes fenómenos físicos involucrados en sonoluminiscencia.

En este capítulo describiremos los resultados obtenidos para el análisis del espacio de fases para el sistema aire-agua. Estudiaremos el radio de equilibrio de una burbuja en función de la presión acústica de excitación y la concentración de aire disuelto.

Para ello determinaremos la evolución temporal de radio de la burbuja utilizando la técnica de Mie scattering y el método de medición del radio absoluto descrito en la Sección 3.2.2. Estas mediciones se realizarán en todo el rango de presiones acústicas desde el límite de disolución de la burbuja hasta la extinción a presiones elevadas.

Se presentarán los resultados obtenidos de esta manera para distintas concentraciones de aire disuelto en agua.

Por último se compararán los resultados obtenidos con el modelo numérico.

## 4.2. Dispositivo Experimental

Los experimentos se realizaron en un sistema típico de sonoluminiscencia como el descrito en la Sección 3.1.

En este caso se utilizó un resonador de pirex de  $60mm$  de diámetro con una frecuencia de resonancia de aproximadamente  $28,3kHz$ . Este resonador se llenaba con agua destilada, filtrada ( $0,45\mu m$ ) a la cual se le disolvía una cantidad controlada de aire (Sección 3.1.4). La temperatura fue mantenida constante en  $22,3 \pm 0,1C$  durante todos los experimentos. La estabilidad de la temperatura en estos experimentos es muy importante para poder determinar con precisión el punto de disolución de la burbuja.

El radio en función del tiempo fue medido utilizando la técnica de los dos detectores descrita en la Sección 3.2.2. De esta manera se obtenía una estimación del radio en forma absoluta en función de la presión acústica y la concentración de gases utilizada. En estas mediciones utilizamos un láser He-Ne (Melles Griot 30mW) en polarización horizontal y el fotomultiplicador Oriel 77340 (Ver Apéndice B).

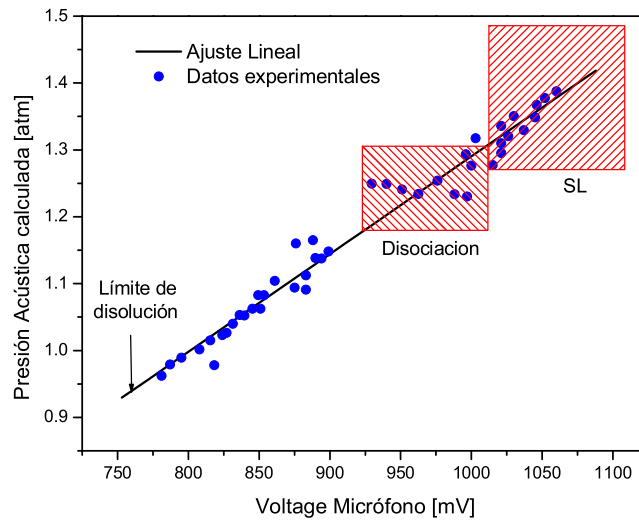
Para obtener una curva de radio en función del tiempo se realizaban 50 mediciones diferentes de la misma burbuja (tomadas cada  $\sim 4seg$ ). La variabilidad del tiempo de colapso depende de la región en el espacio de fases, pero en general es de  $\sim 200ns$ . De las 50 curvas tomadas se seleccionaban aquellas que tuviesen una dispersión de  $30ns$  o menos. El promedio de estas curvas constituía la estimación experimental de la evolución del radio. La desviación estándar de estas curvas se utilizó como error de las mediciones.

Las mediciones se realizaron a una frecuencia de muestreo de  $10^8 \frac{muestras}{seg}$ , es decir, los puntos estaban separados  $10ns$ .

Para determinar el valor absoluto de la presión acústica ( $P_a$ ) se procedió de la siguiente manera: Para una dada concentración de gas disuelto en el agua dentro del resonador, se utilizaba el modelo numérico para calcular los valores de  $P_a$  y  $R_0$  para el punto en el diagrama de fases correspondiente a la intersección entre la inestabilidad paramétrica y la curva de equilibrio difusivo. A este punto en el diagrama de fases lo denominamos “punto de disolución”. Para este punto, calculamos la evolución temporal del radio  $R(t)$  y esto representa nuestra predicción numérica. Experimentalmente, este punto puede ser hallado con mucha precisión ya que es el límite de presión acústica que puede utilizarse sin que la burbuja se disuelva. Utilizando el método de dos detectores obtenemos una determinación experimental de  $R(t)$  para este punto.

El acuerdo entre esta medición y la predicción teórica representa una forma robusta de estimar la presión acústica para un voltaje de excitación dado.

Para el resto de los puntos medidos, es posible utilizar una relación lineal entre la presión acústica y el voltaje del micrófono pegado en la pared del resonador. Esta relación lineal fue comprobada realizando ajustes con el modelo a diferentes valores de presión acústica.



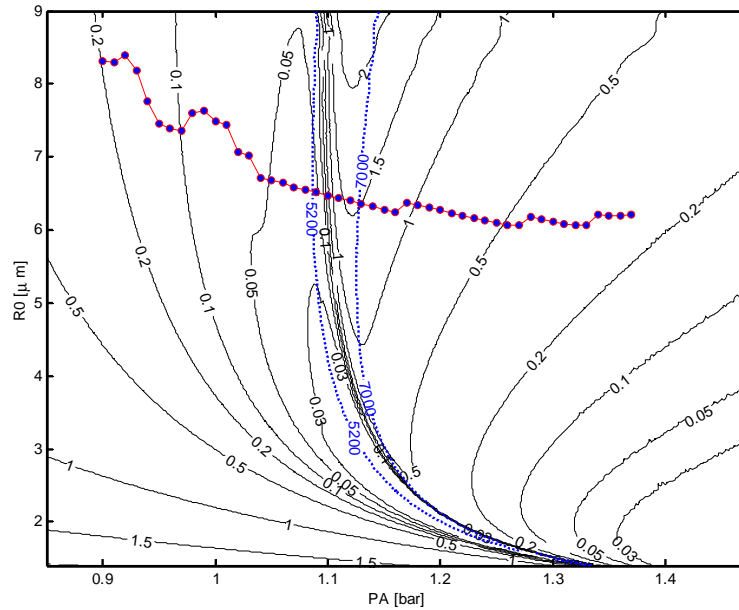
**Figura 4.1:** Presión acústica obtenida a partir del ajuste de la evolución temporal de la burbuja en función de la tensión registrada en el micrófono a la frecuencia de excitación. Se indican en los cuadros las distintas regiones del espacio de fases que fueron relevadas. Se muestra además el punto de disolución (presión acústica a la que la burbuja se disuelve) y un ajuste lineal de los puntos experimentales. La concentración de aire disuelto era de  $150\text{mb}$ .

### 4.3. Resultados

Para una dada concentración de aire disuelto en el agua, se espera que la presión acústica en el centro del resonador sea proporcional a la señal medida por el micrófono. Como primer prueba de consistencia con el modelo se ensayó esta dependencia (al mismo tiempo sirve como calibración de la presión acústica en el resonador).

A partir de mediciones de la evolución temporal de la burbuja como la mostrada en la Sección 3.2.2, Figura 3.11, se realizó el ajuste de los valores de  $R_0$  y  $P_a$  para una serie de puntos a diferentes voltajes de excitación. Los valores de  $P_a$  se compararon con los voltajes medidos en el micrófono a la frecuencia de excitación. Para ello la señal del micrófono era filtrada utilizando un amplificador lock-in cuya referencia estaba dada por la señal de sincronismo del generador de ondas. De esta manera se abstraen de la señal las componentes armónicas de alta frecuencia (ver Figura 1.1).

Los resultados obtenidos para este caso se muestran en la Figura 4.1. En esta figura podemos observar que la presión acústica obtenida a partir de los ajustes realizados con el modelo puede ser considerada como lineal respecto del voltaje del micrófono. Esta linealidad se cumple en los tres regímenes de la burbuja aunque en la región de disociación la dispersión de los datos es mayor. Por otro lado, la presión acústica del punto de disolución coincide razonablemente bien con el valor esperado a partir del modelo teórico ( $\sim 0,93\text{atm}$ ). Esto indica que el ajuste de este punto es una buena estrategia para obtener una calibración de la presión acústica para cada concentración de gases utilizada.



**Figura 4.2:** Diagrama de fases para sonoluminiscencia para el sistema agua-aire. Se muestran las curvas de estabilidad difusiva para distintas concentraciones de aire disuelto. Se indican además las posiciones en el diagrama de fases donde la temperatura dentro de la burbuja alcanzan los 5200 y 7000 grados. En línea de puntos se muestra la posición de la inestabilidad de forma.

En la Figura 4.2 se muestran las curvas de estabilidad difusiva para distintas concentraciones de aire. Estas curvas indican las posiciones en el diagrama de fases donde la evolución temporal de la burbuja produce un intercambio de neto de masa con el fluido igual a cero. Esto significa que la burbuja no crece o se disuelve a medida que transcurre el tiempo. Estas curvas están nombradas con la cantidad de gas disuelto en cada caso ( $c_0/c_\infty$ ). Un punto de equilibrio sobre estas curvas puede ser estable o inestable dependiendo de la derivada de la concentración de gas en este diagrama. De esta manera tenemos que para

$$\frac{\partial(c_0/c_\infty)}{\partial R_0} > 0$$

los puntos serán estables e inestables en caso contrario. De esta manera los puntos sobre la curva  $c_0/c_\infty = 0,1$  serán estables en la parte de la derecha de la Figura 4.2 e inestables en la parte izquierda.

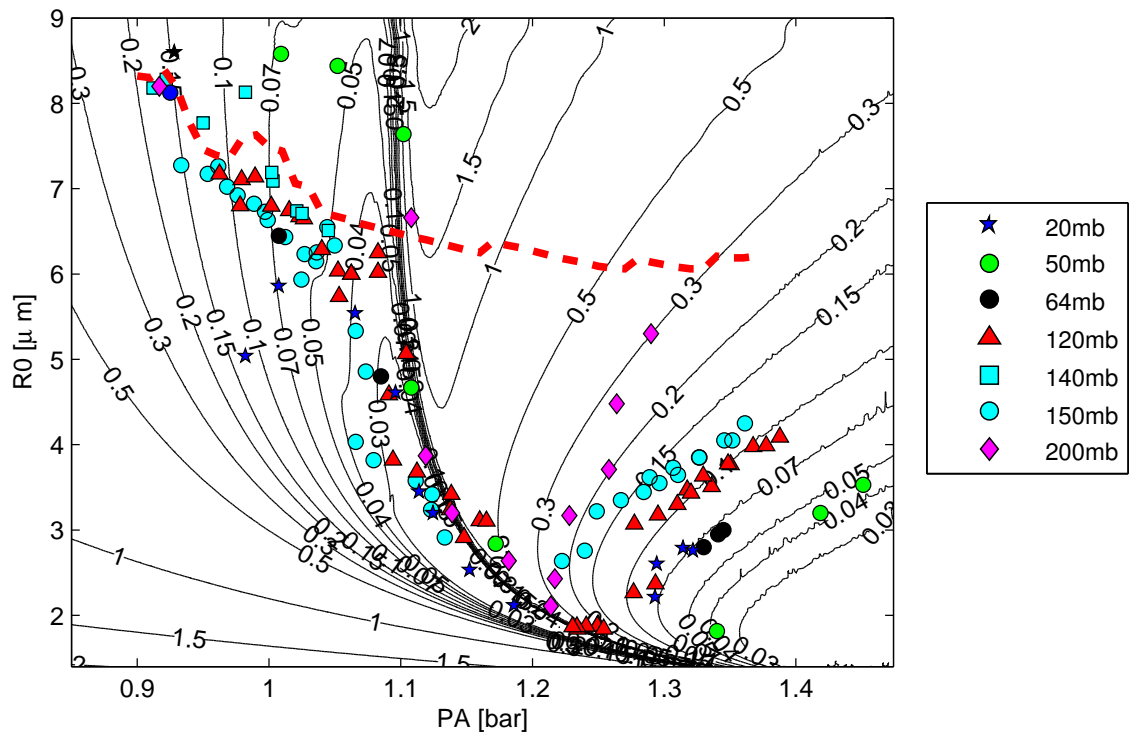
La inestabilidad de forma indicada en la Figura 4.2 representa la inestabilidad paramétrica de orden 2 que rompe a la burbuja en fragmentos [16]. De esta manera no se pueden alcanzar valores de  $R_0$  por encima de esta inestabilidad.

Los valores de temperatura de 5200 y 7000 grados corresponden a la disociación del oxígeno y del nitrógeno respectivamente. Para temperaturas superiores a estos valores las moléculas diatómicas de estos gases se disocian en átomos individuales que son altamente reactivos en contacto con el agua. Los productos de esta reacción química producen

compuestos que son muy solubles en agua y por lo tanto desaparecen del interior de la burbuja. A la derecha de estas curvas el gas remanente dentro de la burbuja está compuesto sólo por el argón que estaba presente en el aire (al ser un gas noble no se disocia). De esta manera, la posición de estas curvas en el diagrama de fases representan un termómetro muy preciso para el gas dentro de la burbuja.

Las curvas de equilibrio difusivo evidencian el efecto de la disociación como un “plegado” de las curvas de equilibrio en esa zona.

En la Figura 4.3 se muestran los resultados experimentales para una serie de concentraciones de aire en todo el rango de presión acústica accesible. En esta Figura se puede



**Figura 4.3:** Espacio de fases para el sistema agua-aire. Comparación entre los datos experimentales y el modelo numérico. La línea de trazos indica la posición de la inestabilidad de forma.

observar que el acuerdo de los datos experimentales con el modelo teórico es muy bueno en todo el rango de presiones acústicas y para todas las concentraciones de aire utilizadas. Diferencias un poco más grandes se encuentran para concentraciones de aire menores.

Este diagrama se puede dividir en tres regiones dependiendo de la presión acústica. Para bajas presiones acústicas, el tamaño de la burbuja está determinado por la posición de la inestabilidad de forma. En esta región las burbujas no emiten luz. La zona intermedia corresponde a la región en donde se produce la disociación del oxígeno y nitrógeno dentro de la burbuja. En esta zona las burbujas tampoco emiten luz. Por último, en la zona de altas presiones acústicas donde la burbuja es sonoluminiscente, la burbuja está compuesta casi exclusivamente por argón. En este caso su tamaño se corresponde con las curvas de

equilibrio difusivo estable calculadas por el modelo numérico.

## 4.4. Conclusiones

La determinación de la presión acústica utilizando el ajuste del punto de disolución ha producido resultados muy satisfactorios, constituyendo una prueba de validación para el modelo numérico.

La linealidad encontrada entre la presión acústica calculada con el modelo y la señal medida por el micrófono constituye una segunda confirmación de que el modelo produce resultados correctos para la dinámica de la burbuja.

Por otro lado, el acuerdo entre los experimentos y el modelo indica que se han tomado en cuenta los procesos físicos más relevantes para describir la evolución temporal de la burbuja en todo el rango de presiones acústicas.

Por otro lado, los puntos experimentales obtenidos a bajas presiones acústicas coinciden con la posición de la inestabilidad de forma. Sin embargo, se han medido algunos puntos por encima de esta inestabilidad para valores de concentración de aire menores a  $50mb$ .

El acuerdo entre los experimentos y el modelo teórico es muy bueno en todas las regiones del espacio de fases para el sistema agua-aire. En particular, la posición en donde ocurre la disociación en el diagrama de fases es reproducida con mucha precisión. Este hecho indica que el modelo puede reproducir correctamente las temperaturas que se producen dentro de la burbuja.

Esta validación del modelo numérico nos permite utilizar esta herramienta para calcular la temperatura dentro de la burbuja en zonas más extremas de presión acústica mientras se cumplan las hipótesis del modelo (temperaturas menores a  $100000K$ )

# Capítulo 5

## Frontera de Extinción en Sonoluminiscencia

Con el fin de analizar los límites de la concentración de energía en una burbuja sonoluminiscente es necesario estudiar la frontera en el espacio de fases de la existencia de la burbuja. En particular, estaremos interesados en la zona de extinción para las cuales la presión acústica sea máxima.

En este capítulo presentaremos el análisis de la frontera de extinción de una burbuja sonoluminiscente utilizando el sistema agua-aire [44]. Como espacio de fases tomaremos el determinado por el tamaño de la burbuja ( $R_0$ ) y por la presión acústica ( $P_A$ ). La frontera de extinción esta determinada por los puntos en este espacio de fases que dividen las zonas donde es posible encontrar una burbuja sonoluminiscente de las zonas donde por algún motivo esto no es posible. Encontrar esta frontera es importante para poder identificar el motivo por el cual no es posible alcanzar regiones de mayor presión acústica y por lo tanto de una concentración de energía mayor.

Para determinar la frontera de extinción se realizaron rampas crecientes en la presión acústica de manera tal de encontrar los valores para los cuales la burbuja desaparecía. Estas mediciones se realizaron para distintas concentraciones de gas disuelto (entre 5% y 100%) desde el comienzo de la sonoluminiscencia hasta la desaparición de la burbuja de forma tal de relevar el espacio de fases completo.

Para determinar la posición en el espacio de fases durante la rampa, se midieron la intensidad de sonoluminiscencia y el tiempo de colapso ( $T_c$ ) respecto a la presión acústica. Los valores de  $R_0$  se obtuvieron a partir del punto de equilibrio que predice el modelo numérico para los valores de  $T_c$  y  $P_A$  medidos.

La frontera de extinción fue comparada con las posiciones en el espacio de fase de las diferentes inestabilidades (de forma y de posición).

### 5.1. Introducción

El fenómeno de sonoluminiscencia se encuentra acotado principalmente por dos factores que lo limitan. Como primer limitante, el colapso de la burbuja debe ser lo suficientemente rápido para producir un calentamiento de los gases que contiene a temperaturas lo bastante altas como para poder emitir luz. Esto implica que la burbuja se encuentre en

un punto en el diagrama de fases por encima del umbral de Blake [23].

Como segundo limitante, la burbuja debe permanecer estable durante todo el proceso. Además de la estabilidad químicas y difusivas, que definen la posición en el diagrama de fases se deben satisfacer la estabilidad de forma y posición, esto es, que la burbuja no se rompa en pedazos y que permanezca atrapada en un antinodo de presión.

Holt y Gaitan [45, 46] estudiaron la frontera de estabilidad en sonoluminiscencia de una sola burbuja. Ellos encontraron que existían dos limitantes en el diagrama de fases donde se podía encontrar sonoluminiscencia estable. Uno de ellos estaba determinado por un valor máximo en el  $R_0$  de la burbuja y el otro por un valor máximo en la presión acústica. En su trabajo, ellos se concentraron en el límite existente en el valor de  $R_0$  que fue interpretado como consecuencia de la aparición de la inestabilidad paramétrica. Esta hipótesis fue corroborada luego por otra serie de experimentos en los cuales esta inestabilidad se encuentra en un acuerdo razonable con los datos experimentales [46, 10, 43]. Este límite se extiende incluso a regiones de baja presión acústica donde la burbuja no es sonoluminiscente .

En cuanto al límite en la presión acústica existe una controversia sobre cuál es el mecanismo responsable de la extinción de la burbuja [47].

Por otro lado, los datos experimentales existentes en la bibliografía han sido obtenidos en su mayoría en condiciones estáticas de presión acústica [45, 46, 10]. De esta manera, los puntos que se encuentran en las cercanías de la frontera de extinción son inaccesibles debido a que en general estos puntos en el diagrama de fases son inestables. La inestabilidad encontrada en la proximidad de la frontera de extinción está asociada a un "modo de reciclado"(recycling mode) [45, 46, 48, 49]. Más aún, este proceso ha sido dividido en dos clases diferentes dependiendo de la estructura temporal que presente. El tipo I está asociado con una rápida disminución de la intensidad de sonoluminiscencia y del tiempo de colapso ( $T_c$ ), seguido de una lenta recuperación de los valores originales en el lapso de algunos segundos. El tipo II es similar al primero pero la intensidad de sonoluminiscencia es diez veces menor y presenta además un espectro corrido hacia longitudes de onda mayores (mas frío) que el de sonoluminiscencia estable [49].

Estos modos de reciclado están asociados a la ruptura de la burbuja y a la formación de múltiples fragmentos. Estos fragmentos pueden disolverse o recombinarse para formar una nueva burbuja con una cantidad de aire renovada. En el reciclado de tipo I, el nitrógeno y el oxígeno son "quemados"dentro de la burbuja hasta que se recupera la estabilidad química y difusiva. En el reciclado de tipo II en cambio, la inestabilidad se alcanza antes de que el quemado de los gases se eficiente de manera tal que la burbuja se encuentra la mayor parte del tiempo llena de aire y por lo tanto fuera del equilibrio difusivo [49].

Dam *et al.* [49] observaron que ambos tipos de modo de reciclado son precedidos por un doblamiento de período en la intensidad de sonoluminiscencia (la intensidad fluctúa entre dos valores diferentes alternados). Este hecho, unido a la anisotropía espacial de los destellos de luz indican que la inestabilidad puede ser producida por una perturbación no esférica.

Por otro lado, An *et al.* [47] calcularon la posición de la inestabilidad bajo una perturbación no esférica en la presión acústica. Ellos eligieron el valor de la perturbación de manera tal de ajustar los datos experimentales sin especificar el origen de esta perturbación. En este sentido, puede mencionarse que Holzfuss *et al.* [50] mostraron que la onda



de compresión emitida por la burbuja durante el colapso genera un campo de ultrasonido muy complejo. Este campo esta formado por componentes armónicas de la excitación hasta frecuencias del orden del MHz y puede tener hasta un 10% de la amplitud de la excitación. Holzfluss *et al.* encontraron que la posición y la estabilidad de la burbuja estan determinadan por la presencia de este campo de ultrasonido de alta frecuencia.

En el este capítulo presentamos los resultados de la medición de los puntos del diagrama de fases explorados en forma continua mediante una rampa en la presión acústica hasta alcanzar la extinción de la burbuja. La repetición de este tipo de experimentos nos provee de una indicación estadística de la posición de la frontera de extinción. De esta manera es posible estudiar la región donde la dinámica de la burbuja es inestable y obtener una estimación de su intensidad.

Con el fin de entender los mecanismos que pueden dar origen a esta inestabilidad, los resultados experimentales se compararán con las predicciones teóricas de la posición de las diferentes inestabilidades de forma y posición.

Por ultimo, se propondrá una relación estrecha entre la extinción de la burbuja y la presencia del campo de ultrasonido generado por la emisión de la burbuja.

## 5.2. Dispositivo Experimental

Las mediciones se realizaron utilizando un sistema típico en sonoluminiscencia [43, 6]. Se utilizó en este caso un resonador de pirex de  $60\text{mm}$  de diámetro cuya frecuencia de resonancia se encuentra alrededor de los  $28.3\text{kHz}$ . Antes de ser ingresada al resonador, el agua utilizada era previamente destilada y filtrada (se usó un filtro de  $45\mu\text{m}$ ).

Todos los experimentos se realizaron a una temperatura controlada de  $23^\circ\text{C}$  y una presión ambiente de aproximadamente  $0.92\text{bar}$ .

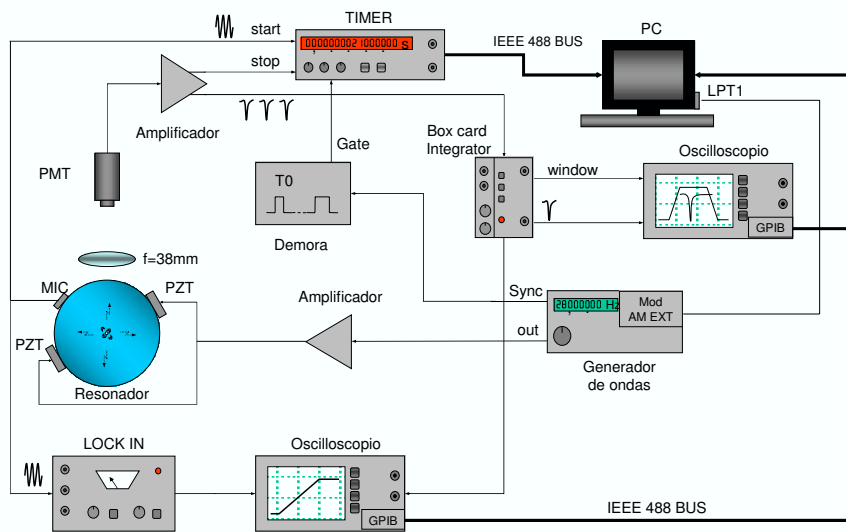
Para realizar la disolución del aire se utilizó un sistema similar al utilizado en [43, 40], donde el gas a disolver se administra en un sistema auxiliar y luego es trasvasado al resonador en el momento de la medición.

### 5.2.1. Intensidad de SL y tiempo de colapso

El diagrama de fases de la sonoluminiscencia fue relevado realizando una rampa ascendente lineal en el voltaje suministrado a los piezoeléctricos partiendo del valor al cual la intensidad de sonoluminiscencia era apenas detectada, hasta la extinción de la burbuja. Se utilizaron concentraciones de aire entre 5% y 100%.

Para determinar la posición en el diagrama de fases a cada momento durante la rampa de presión acústica medimos el tiempo de colapso de la burbuja. Este tiempo es definido como el tiempo entre el cruce por cero de la presión acústica con pendiente negativa y el colapso de la burbuja (máxima compresión). Se midió también la intensidad de sonoluminiscencia y la señal que produce un pequeño micrófono pegado en la pared del resonador.

La Figura 5.1 muestra el dispositivo experimental. Un generador de funciones es amplificado en dos etapas, primero por un amplificador de audio y luego por un circuito resonante RLC en el cual la capacitancia está formada por los piezoeléctricos del resonador. La salida del generador es controlada por computadora para generar una onda de



**Figura 5.1:** Dispositivo experimental. Sistema típico en sonoluminiscencia donde se aplica una rampa a la señal de excitación. Se midieron la señal del micrófono, la intensidad de sonoluminiscencia y el tiempo de colapso en función del tiempo

amplitud modulada que excita al resonador. Todo el sistema se encuentra térmicamente aislado y la temperatura se mantiene constante controlando la potencia de un calefactor. Se utilizó ventilación forzada dentro de la aislación para asegurar la uniformidad de la temperatura y la capacidad de un cambio rápido en las condiciones de trabajo. Todo el sistema de control de temperatura no se muestra en la figura.

En cada experimento se ajustó la frecuencia de trabajo a la de resonancia. Los cambios en la frecuencia de resonancia están asociados con pequeños cambios en la temperatura del resonador debido a las diferentes potencias suministradas por los piezoeléctricos.

Teniendo en cuenta que el cambio de la velocidad del sonido con la temperatura en el agua es de  $0.19\%/C$  [51] y que los cambios en la frecuencia de resonancia eran del orden de unos pocos Hz, esto impone una cota máxima de aproximadamente  $0.1^{\circ}C$  al cambio en la temperatura media del resonador.

En los experimentos realizados incrementamos linealmente la presión acústica desde el comienzo de la sonoluminiscencia en aproximadamente  $1.2\text{ bar}$  hasta la extinción de la burbuja en aproximadamente  $1.4\text{ bar}$ . Para elegir la velocidad de incremento de la rampa de presión acústica deben tenerse en cuenta dos factores, por un lado, la velocidad debe ser lo suficientemente baja para asegurar que se verifica el equilibrio difusivo a cada momento (constantes de tiempo del orden de un segundo). Por otro lado, la velocidad debe ser lo más alta posible de forma tal de poder explorar los puntos cercanos a la frontera de extinción que son inestables.

Para satisfacer estos requerimientos elegimos una velocidad de incremento para la rampa de  $4\frac{\text{mbar}}{\text{s}}$  lo que equivale a tomar un tiempo total de aproximadamente 50 segundos para cada experimento.

Los valores de presión acústica del comienzo y de la finalización del experimento dependen

de la concentración de aire particular utilizada, sin embargo, en todos los experimentos se utilizó la misma velocidad de crecimiento de la presión acústica .

Por otro lado, a partir de la señal de un fotomultiplicador (Oriel 33740) se obtiene la intensidad de sonoluminiscencia y el tiempo de colapso. El tiempo de colapso era obtenido utilizando un timer (SR620) donde la señal de comienzo provenía del micrófono y la señal de finalización provenía del pulso de sonoluminiscencia medido con el fotomultiplicador. La resolución temporal de estas mediciones está limitada por las fluctuaciones de la señal del micrófono (cerca de  $50ns$ ). El timer era operado a su máxima velocidad (cerca de 1200 muestras por segundo) con lo cual se medían aproximadamente uno de cada 25 pulsos de sonoluminiscencia emitidos por la burbuja.

Para obtener un valor que fuese proporcional a la presión acústica en el resonador se utilizó la señal del micrófono filtrada con un Lock-in cuya frecuencia de referencia se tomó igual a la de excitación. En todos los experimentos se utilizó una constante de integración de  $10ms$ .

Para obtener los valores de intensidad de sonoluminiscencia se utilizó un integrador de compuerta (Gated Integrator Box Car) que promediaba 1000 pulsos del fotomultiplicador a una frecuencia de aproximadamente  $14kHz$  (la mitad de la frecuencia de trabajo). Las salidas del Lock-in y del integrador fueron adquiridas mediante un osciloscopio conectado via GPIB a una computadora.

Un segundo osciloscopio era utilizado para monitorear la coincidencia temporal de la ventana de integración con el pulso de sonoluminiscencia .

Los pulsos de sonoluminiscencia eran amplificados por 25 (SR 244,  $300MHz$ ) antes de utilizarlos en el integrador y el timer.

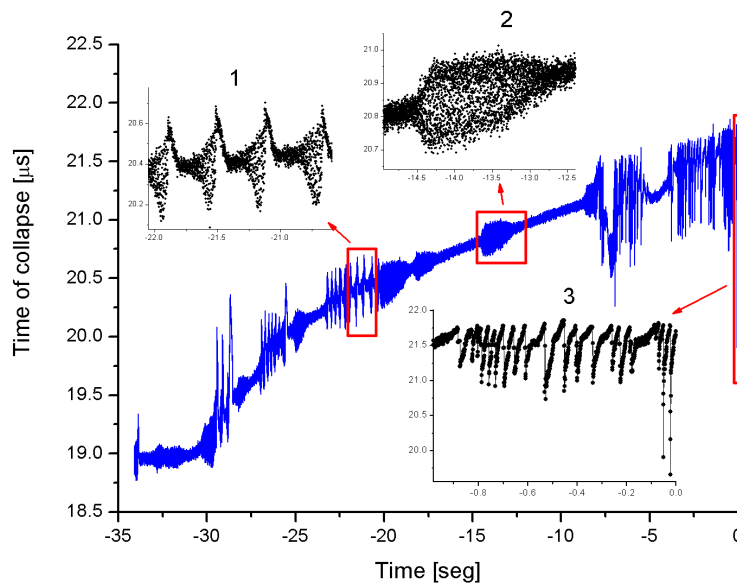
De esta manera, la computadora obtenía los valores de tiempo de colapso, intensidad de sonoluminiscencia y amplitud del micrófono en función del tiempo.

### 5.2.2. Evolución temporal del radio y presión acústica

Otra medición importante, necesaria para la calibración de la presión acústica y la verificación de la cantidad de aire disuelto, es la evolución temporal del radio de la burbuja en un ciclo de ultrasonido. A partir de esta medición y utilizando un modelo numérico para ajustar los valores de radio medidos, es posible hallar la presión acústica y la concentración de aire disuelto que produce esa evolución [43].

La evolución temporal del radio de la burbuja fue medida utilizando la técnica de Mie Scattering [43, 1, 42, 52] a diferentes valores de la presión acústica para cada concentración de aire utilizada. Durante estas mediciones los valores de presión acústica eran mantenidos constantes lo que permitía realizar repetidas mediciones en cada punto. El modelo numérico que utilizamos para realizar los ajustes fue desarrollado en nuestros laboratorios por la Dra. Puente y puede encontrarse una descripción detallada en [43, 16]. Los valores obtenidos para la presión acústica fueron utilizados para calibrar la señal del micrófono. Se realizó una calibración para cada valor de concentración de aire disuelto. Las distintas calibraciones no mostraron una variación significativa con la concentración de aire.

El valor de radio ambiente de la burbuja ( $R_0$ ) fue obtenido utilizando el mismo modelo numérico a partir de los valores de presión acústica y tiempo de colapso.



**Figura 5.2:** Evolución temporal del tiempo de colapso para un experimento realizado con 5 % de aire disuelto. Los insets muestran los detalles de algunas fluctuaciones y del momento de la extinción

Es importante notar en este punto, que mientras que el valor de presión acústica obtenido de esta manera es bastante confiable ( $\pm 0.05 \text{ bar}$ ), el valor de  $R_0$  en cambio será correctamente obtenido si se satisface la condición de equilibrio químico y difusivo dentro de la burbuja.

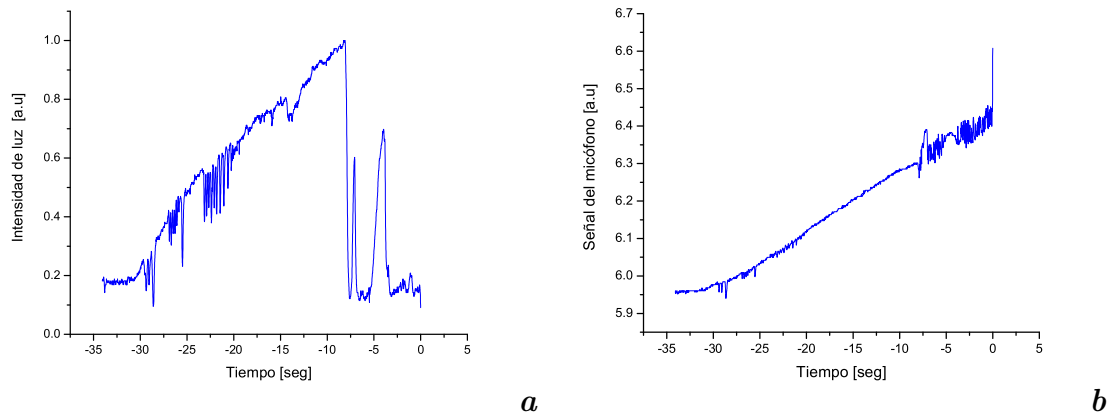
Finalmente, debe tenerse presente que debido al tipo de sistema utilizado en la medición, basado en la detección del pulso de luz, la zona medida del diagrama de fases es estrictamente de sonoluminiscencia.

### 5.3. Resultados

En las Figuras 5.2 y 5.3 se muestran la evolución del tiempo de colapso, la intensidad de sonoluminiscencia y la señal del micrófono para un experimento típico. Estos resultados corresponden a una concentración de aire de 5%. Para el origen de la escala temporal tomamos el momento de la extinción de la burbuja.

Inicialmente se puede apreciar una región donde el voltaje aplicado a los piezoeléctricos era constante. Luego, se aplicó una rampa lineal durante aproximadamente 30 segundos hasta la extinción de la burbuja.

En estas figuras puede observarse que el tiempo de colapso, la intensidad de sonoluminiscencia y el voltaje en el micrófono aumentan en forma monótona y presentan una serie de fluctuaciones de diferentes características a medida que la presión acústica aumenta. Durante los últimos 8 segundos de la evolución previos a la extinción de la burbuja se puede observar un comportamiento de reciclado.



**Figura 5.3:** Variables medidas durante el experimento de la Figura 5.2. a) Intensidad de sonoluminiscencia y b) Señal obtenida por el micrófono, filtrada a la frecuencia de excitación

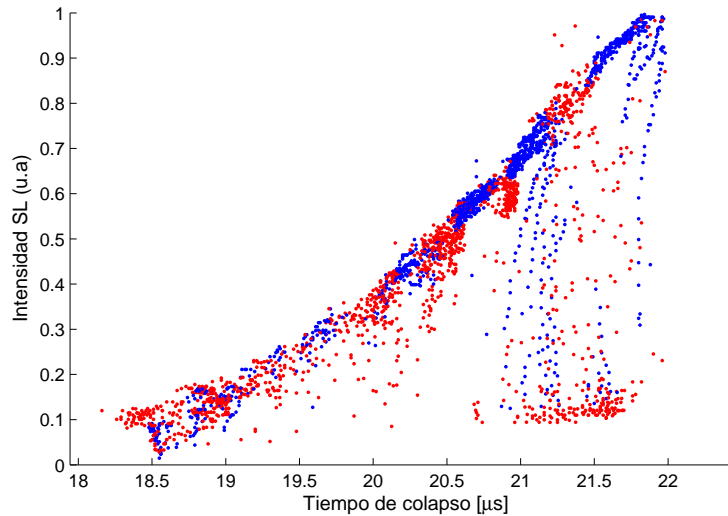
Las fluctuaciones en el tiempo de colapso mostradas en los detalles 1 y 2 de la Figura 5.2 se observaron para todas las concentraciones de aire utilizadas. La posición particular y la forma de estas fluctuaciones variaban para cada medición. Sin embargo, para una concentración de aire dada, las zonas en donde el tiempo de colapso presenta una dispersión baja, se mantienen relativamente fijas. Este hecho se analizará nuevamente más adelante. En los detalles 1 y 2 de la Figura 5.2 se puede observar que la forma de las fluctuaciones puede ser bastante compleja. En algunos casos (detalle 2) la estructura es similar a un doblamiento de período como el reportado anteriormente en la bibliografía [53]. El tipo de fluctuaciones observadas en el detalle 1, en cambio, no han sido reportadas previamente en la literatura.

La intensidad de sonoluminiscencia (Figura 5.3(a)) presenta una disminución en las posiciones en las que se producen las fluctuaciones, ya sea del tipo mostrado en los detalles 1 o 2 de la Figura 5.2.

Para presiones acústicas mayores, cercanas a la extinción de la burbuja, se producen una serie de rápidas caídas en el tiempo de colapso acompañadas de una disminución de un orden de magnitud en la intensidad de sonoluminiscencia (detalle 3 en Figura 5.2). Este tipo de comportamiento es similar al investigado por Dam [49] y denominado por este como modo de reciclado. En [49] este modo era precedido por un doblamiento de período en la intensidad de sonoluminiscencia. En las mediciones realizadas durante este trabajo no se pudo comprobar este comportamiento debido a la integración de 1000 pulsos que utilizábamos.

Durante los últimos 8 segundos de la evolución aparecen dos islas de estabilidad durante las cuales la intensidad de sonoluminiscencia se recupera lentamente hacia valores similares a los que mostraba antes de entrar en la zona de reciclado. Es importante notar que los tiempos característicos de este crecimiento están determinados por la dinámica de la burbuja (difusión de gases dentro de la burbuja) y no por la integración antes mencionada ( $\approx 70ms$ ).

En el detalle 3 de la Figura 5.2 se muestran los últimos momentos del modo de reciclado antes de la extinción de la burbuja. En esta región, la frecuencia de reciclado es bastante



**Figura 5.4:** Intensidad de sonoluminiscencia medida para 6 diferentes experimentos realizados con 5 % de aire disuelto como función del tiempo de colapso. Se han separado por colores los puntos “estables” (azul) e “ inestables” (rojos). Se consideran estables si la máxima diferencia entre los tiempo de colapso de 500 puntos consecutivos es menor a  $150ns$

alta (entre  $30Hz$  y  $100Hz$ ), determinando tiempos característicos mucho menores que los procesos difusivos.

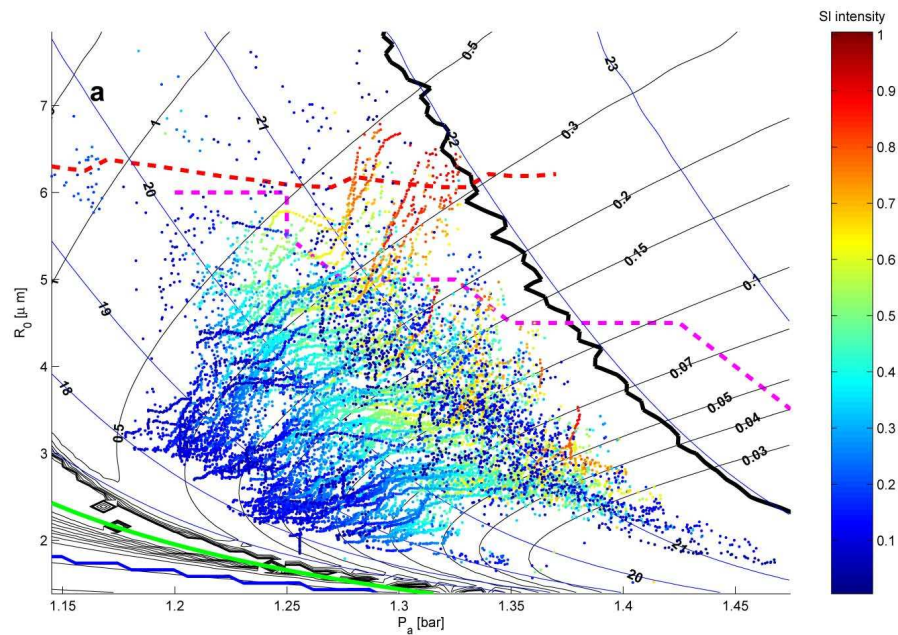
Al final, la amplitud del reciclado aumenta y la burbuja desaparece de en forma abrupta.

En la Figura 5.4 se muestra la intensidad de sonoluminiscencia como función del tiempo de colapso para 6 experimentos diferentes realizados todos con una concentración de aire disuelto del 5 %.

En la Figura 5.4 se han separado los puntos en dos colores que denotan la estabilidad de los puntos medidos. Esta estabilidad está asociada a la ausencia de las fluctuaciones observadas en los detalles de las Figura 5.2. De esta manera, se tomaron como estables los puntos que presentaban una baja dispersión en los tiempos de colapso. En particular se tomó como estables los puntos que presentaban una dispersión máxima de  $150ns$  en 500 puntos consecutivos.

En esta figura podemos ver que la intensidad de sonoluminiscencia aumenta monótonamente con el tiempo de colapso hasta casi la extinción de la burbuja. Sin embargo, momentos antes de la extinción, la intensidad presenta una disminución hasta valores del 10 % de la máxima intensidad. Esta disminución coincide con el modo de reciclado que se observa en el final de la Figura 5.2. La distinción de los puntos estables permite ver que existen zonas estables bien determinadas, sobre todo para presiones acústicas elevadas. Además, se observan puntos estables en la zona de reciclado, que corresponden a las islas de estabilidad en las cuales la intensidad de sonoluminiscencia se recupera lentamente, como las que se observan al final de la Figura 5.3(a).

En la Figura 5.5 se muestran los puntos en el diagrama de fases ( $R_0 - P_A$ ), obtenidos

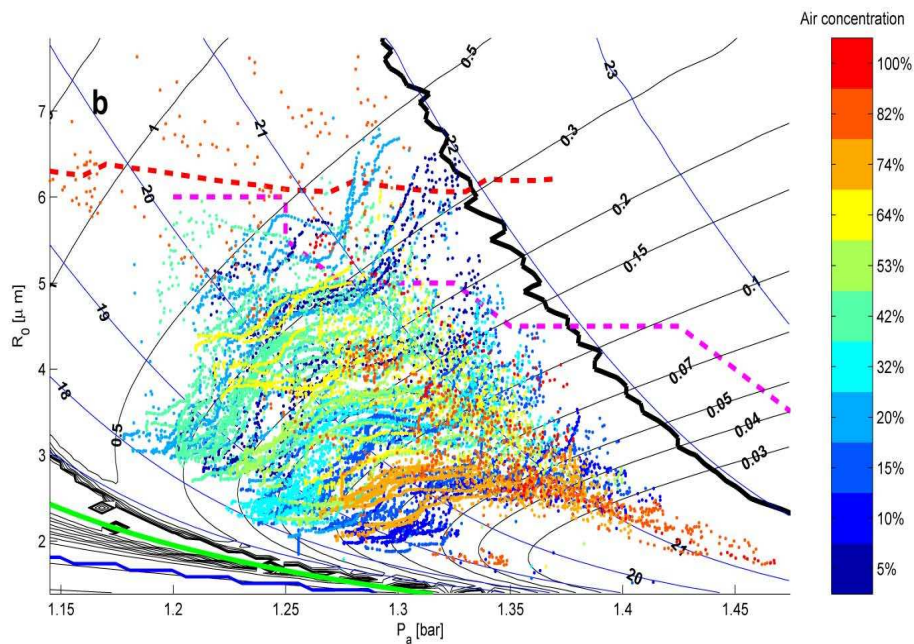


**Figura 5.5:** Diagrama de fases en sonoluminiscencia. Los puntos indican los resultados experimentales en donde el color indica la intensidad de sonoluminiscencia relativa a la escala mostrada a la derecha. Las líneas continuas negras son las curvas de estabilidad difusiva para diferentes concentraciones de aire disuelto como se indica sobre las líneas. Las líneas azules indican los valores de tiempo de colapso constantes. La línea roja a trazos muestra la inestabilidad paramétrica para el modo  $n = 2$ , la línea de trazos rosada indica la inestabilidad de Rayleigh-Taylor para el modo  $n = 2$  y la línea continua indica el umbral de Blake [6, 43]. La línea negra continua gruesa indica la posición de la inestabilidad de Bjerknæs cuando se tiene en cuenta una componente armónica de alta frecuencia del 10%.

a partir de las mediciones del tipo mostrado en las Figuras 5.2 y 5.3. Los valores de  $R_0$  se obtuvieron a partir del modelo numérico [43], utilizando el valor de tiempo de colapso medido. Se muestran los resultados de mediciones en 11 valores de concentración de aire disuelto entre 5% y 100% y un promedio de 10 mediciones para cada concentración. El color de los puntos indica la intensidad de sonoluminiscencia en la Figura 5.5 y la concentración del aire disuelto en la Figura 5.6.

Los errores experimentales asignados a los puntos medidos son de  $50ns$  en el tiempo de colapso y  $0.05bar$  en la presión acústica. El error asignado al valor de  $R_0$  depende de los errores en el tiempo de colapso, la presión acústica y la posición en el diagrama de fases. Estos errores pueden variar desde  $0.7\mu m$  para pequeños valores de  $R_0$ , hasta  $1.5\mu m$  para valores altos. Los errores en la presión acústica son mayores ( $0.1bar$ ) para concentraciones de aire disuelto grandes, debido a la menor estabilidad espacial de la burbuja. En esta figura se indican además de los puntos experimentales, las curvas de equilibrio difusivo, de tiempo de colapso y las diferentes posiciones de las inestabilidades paramétrica, de Rayleigh-Taylor y de Bjerknæs. Para cerrar el diagrama de fases se indica también la posición del umbral de Blake.





**Figura 5.6:** Diagrama de fases en sonoluminiscencia. Se muestran los mismos puntos de la Figura 5.5 donde el color indica la concentración de aire disuelto.

La inestabilidad de Bjerknes fue calculada teniendo en cuenta dos contribuciones al campo de ultrasonido que experimenta la burbuja. La primera y más importante, está formada por la excitación de los piezoeléctricos en la frecuencia de resonancia, la segunda en cambio, está formada por un armónico de la primera a una frecuencia 11 veces mayor y con una magnitud que es el 10% de la principal. La fase relativa entre ambas contribuciones se tomó igual a cero. Resultados similares se obtienen si se consideran otros armónicos de la frecuencia fundamental, sin embargo, la fase entre ambas contribuciones resulta ser un parámetro que modifica notablemente la posición de la inestabilidad. De todas formas el movimiento que produce no cambia la característica de que sigue la forma de las líneas de tiempo de colapso constante. En el caso de la Figura 5.5, la fase relativa fue elegida de forma tal que la posición de la inestabilidad aparezca para valores de tiempo de colapso tan bajos como sea posible.

En la Figura 5.6 puede observarse que la intensidad de sonoluminiscencia parece estar relacionada con el tiempo de colapso independientemente de la concentración de aire. Puede observarse en esta figura una tendencia a obtener valores de intensidad de sonoluminiscencia mayores a medida que el tiempo de colapso aumenta. Existe sin embargo una zona para valores de tiempo de colapso altos ( $\sim 21\mu\text{seg}$ ), donde la intensidad de sonoluminiscencia disminuye. Esta región denota la zona de reciclado que se observa al final de las Figuras 5.2 y 5.3.

La Figura 5.6 muestra que los valores de concentración de aire coinciden con los valores de equilibrio difusivo calculado por el modelo numérico sólo para concentraciones bajas. Para cantidades de gas disuelto mayores al 60%, los puntos calculados se encuentran en



posiciones del diagrama de fases que predicen concentraciones menores. Para concentraciones de aire mayores al 80 % los puntos medidos son siempre inestables y ocupan la zona del diagrama de fases con tiempos de colapso mayores a  $21\mu\text{seg}$ .

En cuanto a la posición de la frontera de extinción, puede observarse que para concentraciones de aire calculadas por el modelo mayores al 30 %, el límite en el diagrama de fases está determinado por un valor de  $R_0$  máximo ( $\sim 6\mu\text{m}$ ). Esto se encuentra en un acuerdo razonable con la posición de la inestabilidad paramétrica.

Para concentraciones menores al 30 % aparece una frontera de extinción que presenta una característica similar a la que presentan las líneas de tiempo de colapso constantes. Para estas concentraciones el tiempo de colapso máximo se encuentra entre los  $21.5\mu\text{seg}$  y  $22\mu\text{seg}$ .

La inestabilidad de Rayleigh-Taylor calculada según [43] no es consistente con la posición de la frontera de extinción encontrada experimentalmente.

## 5.4. Discusión

Desde el inicio de la sonoluminiscencia a presiones acústicas bajas, la emisión de luz es un proceso estable excepto por la existencia de algunas zonas donde aparecen pequeñas fluctuaciones en el tiempo de colapso (detalles 1 y 2 de la Figura 5.2). Las posiciones de estas zonas son reproducibles para diferentes experimentos con una concentración de aire disuelto fija. Estas fluctuaciones presentan una estructura bastante compleja, donde pueden observarse doblamientos de período en el tiempo de colapso. Por otro lado, se observaron cambios en la posición espacial de la burbuja en el resonador en coincidencia con estas fluctuaciones. Con la excepción de algunos trabajos hallados en la literatura [10, 50], estas interesantes estructuras han sido ampliamente ignoradas en sonoluminiscencia. Esto puede deberse al hecho de que este tipo de fluctuaciones se obtienen en pequeñas regiones del espacio de fase y son muy sensibles a los parámetros de control tales como la temperatura la concentración de aire disuelto y la frecuencia de trabajo.

Para presiones acústicas más elevadas y antes de la extinción de la burbuja, se desarrolla un mecanismo de reciclado (Figura 5.2, detalle 3). Es posible en esta zona identificar dos tipos de reciclado que difieren en frecuencia e intensidad de sonoluminiscencia como se explicó en la introducción. Al final de la Figura 5.2 se pueden observar dos islas del tipo I entre regiones del tipo II. El modo de reciclado de tipo I fue predominante para concentraciones de aire mayores y aparece en general, para valores de presión acústica menores que el de tipo II. Por otro lado, hemos encontrado que la extinción de la burbuja se produce una vez que el modo de reciclado de tipo II se desarrolla independientemente de la concentración de aire.

El rango de presiones para las cuales la burbuja se encuentra en el modo de reciclado aumenta para concentraciones de aire mayores, de hecho, para soluciones saturadas de aire (100 %), la burbuja se encuentra en el modo de reciclado para todas las presiones acústicas donde se observa sonoluminiscencia.

Hemos encontrado experimentalmente que la probabilidad de extinción es función principalmente del tiempo de colapso de la burbuja. Esto es cierto para concentraciones menores al 30 %, para concentraciones mayores, el mecanismo responsable de la extinción coincide

con la inestabilidad paramétrica.

Teniendo en cuenta estos hechos, la extinción de la burbuja puede ser interpretada como un evento estadístico en el cual cada vez que la burbuja se fragmenta en el modo de reciclado existe una posibilidad de que no vuelva a formarse produciendo su extinción. Esto es, si la cantidad y tamaño de los fragmentos es tal que se produce una disolución de todos ellos, la burbuja se extingue. Si en cambio la ruptura se produce de forma tal que alguno de los fragmentos es suficientemente grande (con una cantidad renovada de aire) la burbuja continúa en su modo de reciclado hasta la próxima ruptura.

Teniendo en cuenta que antes de la aparición del modo de reciclado se verifica la existencia de doblamiento de período y la anisotropía en la emisión de luz, podemos asociar el comienzo del modo de reciclado con la ruptura de la burbuja debido a una perturbación no esférica.

Por otro lado, realizamos un cálculo de la intensidad total de ultrasonido emitido por la burbuja debido a su dinámica. Consideramos a la burbuja en este caso como un pulsador esférico [23]. Los resultados indican que la emisión total de ultrasonido presenta valores que crecen de la misma manera que los valores de tiempo de colapso. El ultrasonido emitido por la burbuja se suma a la presión acústica impuesta exteriormente e interactúa con la misma burbuja. Este cálculo sugiere que esta interacción podría ser una fuente de perturbación no esférica que produce la ruptura de la burbuja. Más aún, existe evidencia de que la emisión de ultrasonido producida por la burbuja, afecta la posición y la estabilidad de la misma burbuja [50, 52, 54, 55]. An *et al.* [47] realizó el cálculo de la posición de la inestabilidad de Rayleigh-Taylor agregando una perturbación no esférica en la presión. El valor de presión era constante y su valor elegido de forma tal de representar los datos experimentales existentes hasta ese momento. En este trabajo no se indica cuál podría ser la fuente de esta perturbación. Los resultados indican que la nueva posición en el diagrama de fases de la inestabilidad es similar a la de tiempo de colapso fijo para valores de concentración de aire bajos. Esto estaría de acuerdo a los datos experimentales aquí presentados.

Por otro lado, en la Figura 5.5 presentamos los resultados obtenidos para la posición de la inestabilidad de Bjerknes cuando se consideran dos contribuciones al campo de ultrasonido que experimenta la burbuja. Este cálculo no pretende evaluar el valor exacto de la fuerza de Bjerknes que experimenta la burbuja en el campo de ultrasonido completo sino que muestra la factibilidad del mecanismo como responsable de la extinción. La posición de la inestabilidad se calculó utilizando un solo armónico de intensidad similar a la encontrada experimentalmente y de fase elegida de forma tal de obtener el menor tiempo de colapso para la extinción. La posición de la inestabilidad calculada de esta manera coincide relativamente bien con los datos experimentales.

Sin embargo, es importante notar que la posición de esta inestabilidad no predice la desaparición de la burbuja, sino que implica que la posición central ya no es un punto de equilibrio estable. De esta forma, si la posición en el diagrama de fases supera esta inestabilidad la burbuja se alejará del centro del resonador. Este comportamiento no se detectó en ninguno de los experimentos realizados para ninguna de las concentraciones de

aire

## 5.5. Conclusiones

En este capítulo estudiamos la evolución de una burbuja sonoluminiscente en un sistema agua-aire durante una rampa creciente en la presión acústica aplicada para diferentes concentraciones de aire disuelto.

Encontramos que existen dos mecanismos diferentes que limitan la zona accesible del diagrama de fases dependiendo de la concentración de aire disuelto. Para concentraciones mayores a 30 %-40 % respecto de saturación, la extinción de la burbuja está determinada por un límite en el valor de  $R_0$  que se puede alcanzar. Este hecho está en completa concordancia con la posición de la inestabilidad paramétrica.

Para concentraciones de aire menores a 30 %-40 % encontramos que la limitación en el diagrama de fases esta dada aproximadamente por un valor máximo en el tiempo de colapso de la burbuja.

Hemos propuesto dos mecanismos diferentes como posibles responsables de este comportamiento. El primero es la inestabilidad de Rayleigh-Taylor amplificada por una perturbación no esférica en la presión acústica. El segundo es la existencia de una fuerza que aleja a la burbuja del antinodo de presión en el centro de resonador (fuerza de Bjerknes). Para el cálculo de esta fuerza es necesario incluir en el campo de ultrasonido de excitación una componente armónica producida por la misma burbuja.

A pesar de que ambos mecanismos presentan una dependencia correcta (su posición esta determinada aproximadamente por un valor de tiempo de colapso constante) el segundo mecanismo no debería producir una extinción abrupta, sino que tendría que alejar a la burbuja del centro en forma gradual. Este comportamiento no se observó en ningún caso. De cualquier modo, en ambos mecanismos la reacción de la burbuja al ultrasonido que ella misma produce debido a su dinámica es esencial para la correcta predicción de la posición de la frontera de extinción para bajas concentraciones de aire.



# Capítulo 6

## Estabilidad Espacial en Sonoluminiscencia con Ácido Sulfúrico

En el capítulo 5 estudiamos los límites de la concentración de energía en una burbuja sonoluminiscente analizando la frontera en el diagrama de fases de la existencia de la burbuja. De la misma manera, en este capítulo estudiaremos las limitaciones que aparecen en el sistema que utiliza ácido sulfúrico como fluido de trabajo. Estudiaremos más precisamente un sistema compuesto por una solución acuosa de ácido sulfúrico (al 85 %) en la cual se ha disuelto argón.

En este sistema, a diferencia de lo que ocurre en agua, la posición de la burbuja ya no se encuentra fija sino que describe pseudo órbitas. Más aún, para presiones acústicas elevadas se aleja del centro del resonador.

En este capítulo presentamos los resultados obtenidos para la posición de la burbuja, el tamaño de las órbitas y la intensidad de luz emitida en función de la presión acústica aplicada para diferentes concentraciones de argón disuelto.

Se estudiarán los mecanismos responsables de este comportamiento y de qué manera limitan el diagrama de fases accesible en este sistema [56].

### 6.1. Introducción

El fenómeno de la sonoluminiscencia ha sido largamente estudiado desde su descubrimiento [57, 6]. Una gran cantidad de fluidos han sido ensayados desde entonces [58, 59] y también diversos contaminantes como surfactantes [60] o simplemente sales en disolución [61, 62]. A pesar de esto, el agua pura se ha mantenido como uno de los fluidos más adecuados para obtener sonoluminiscencia intensa y estable.

Un cambio en este escenario se produjo cuando Flannigan *et al.* [12] obtuvieron sonoluminiscencia en una única burbuja utilizando una solución concentrada de ácido sulfúrico. Ellos encontraron que podían conseguir una burbuja sonoluminiscente más de dos órdenes de magnitud más intensa que la obtenida en agua en condiciones óptimas. En este trabajo se reportaron valores de presión acústica aplicada de hasta  $6\text{ bar}$ . Hopkins *et al.* [63] ha reportado un incremento de 200 veces en la intensidad de sonoluminiscencia en una solución al 85 % de ácido sulfúrico con  $67\text{ mbar}$  de xenon en solución respecto a la misma concentración de Xe en agua a temperatura de congelación. Ellos también encontraron

que la concentración de gas utilizada afecta enormemente la emisión de luz.

Sin embargo, la estabilidad espacial de la burbuja en ácido sulfúrico es mucho más compleja que en agua pura. Una burbuja en ácido sulfúrico describe pseudo orbitas cuya amplitud y frecuencia varían con la presión acústica aplicada [14]. Además, cuando la presión acústica es incrementada por encima de un valor umbral, la posición media de la burbuja se mueve desde centro hacia las paredes del resonador. Un ulterior incremento en la presión acústica puede desarrollar una estructura de varias burbujas atrapadas simultáneamente en ciertas regiones del resonador [64].

En sistemas que utilizan agua, la existencia de un campo de ultrasonido compuesto por los armónicos de la frecuencia de excitación han demostrado jugar un papel de gran importancia en la estabilidad espacial de la burbuja [50]. Este campo de ultrasonido resulta de la excitación de los modos normales del resonador por los pulsos de presión que genera la burbuja en cada colapso.

En este capítulo estudiaremos la estabilidad espacial de una burbuja sonoluminiscente en ácido sulfúrico para un amplio rango de parámetros. La presión acústica se variará desde los comienzos de la sonoluminiscencia hasta valores en los cuales la burbuja se encuentra cerca de las paredes del resonador. La concentración de argón se tomará en todo el rango donde se pudo obtener sonoluminiscencia, esto es, desde 1 % hasta 20 %. Se compararán por último los datos experimentales con la posición de las diferentes inestabilidades en el diagrama de fases.

## 6.2. Dispositivo Experimental

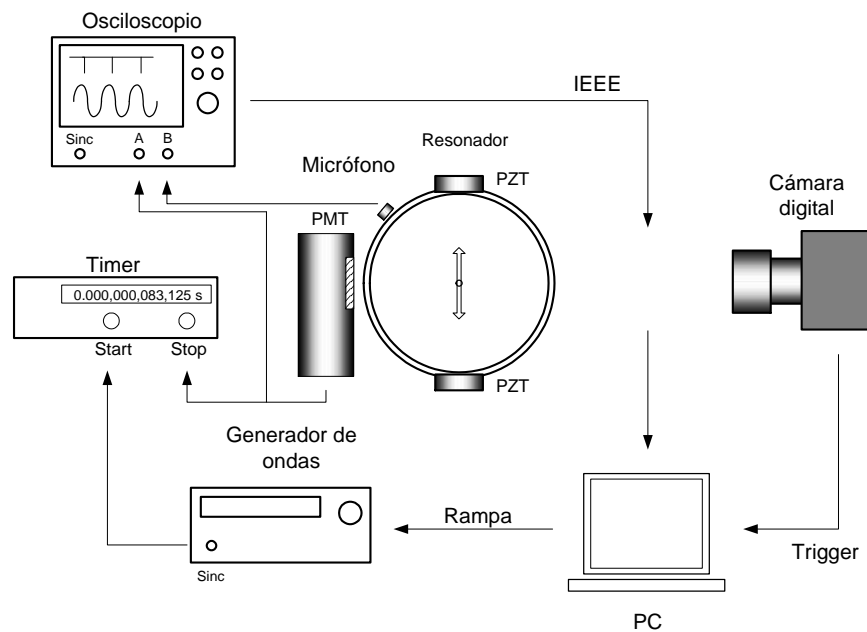
El dispositivo utilizado es similar al utilizado en el experimento de Extinción en agua (Capítulo 5, Figura 5.1). Aquí describiremos las diferencias principales.

En la Figura 6.1 se muestra un esquema del dispositivo utilizado.

Se utilizó en este caso un resonador esférico de Pyrex de  $89\text{mm}$  de diámetro exterior y aproximadamente  $250\mu\text{m}$  de espesor de pared, conteniendo una solución acuosa al 85 % de ácido sulfúrico. Durante los experimentos se utilizó el segundo modo esférico de resonancia resultando en una frecuencia de trabajo de aproximadamente  $33,7\text{kHz}$ . El argón se disolvía en la solución previamente desgasada durante al menos  $12\text{hs}$ . La mezcla era transferida al resonador en una atmósfera controlada a través de un tubo de teflon que se conectaba a la parte inferior del resonador (Figura 3.4). Una vez llenado el resonador se equalizaba la presión con la atmósfera a través del tubo de teflon lleno de ácido. El tubo era largo y de pequeño diámetro para evitar la difusión de los gases entre la atmósfera y el interior del resonador. Con este sistema se pueden realizar experimentos en el lapso de algunos días sin que la concentración de los gases cambie apreciablemente. La temperatura era controlada y mantenida fija durante todos los experimentos en  $23 \pm 0,1\text{C}$ .

La burbuja era sembrada utilizando la focalización de un pulso de láser de potencia Nd:YAG ( $20\text{mJ}$ ,  $20\text{ns}$ ) focalizado en las cercanías del centro del resonador. Alternativamente, si la cantidad de gas disuelto era grande, era posible generar también la primer burbuja aumentando la presión acústica hasta niveles en donde se produce cavitación en el seno del líquido o en las paredes del resonador.

Las variables medidas fueron la intensidad de sonoluminiscencia, la posición de la burbuja en el resonador, el tamaño de las órbitas y el tiempo de colapso con respecto a la



**Figura 6.1:** Dispositivo experimental. Sistema típico en sonoluminiscencia donde se aplica una rampa a la señal de excitación. Se midieron la señal del micrófono, la intensidad de sonoluminiscencia y el tiempo de colapso en función del tiempo

excitación en función de la presión acústica aplicada.

La intensidad de sonoluminiscencia fue medida con dos sistemas independientes. El primero estaba formado por un fotomultiplicador en conjunto con un integrador de ventana (gated integrator boxcar Figura 5.1). Normalmente se integraban entre 300 y 1000 pulsos de sonoluminiscencia en cada punto medido. Este sistema es efectivo mientras la burbuja se mantiene fija en el centro del resonador.

El segundo sistema estaba formado por una cámara CCD que fotografiaba el resonador con un tiempo de integración entre 100ms y 300ms. La cámara se utilizaba ligeramente desenfocada para prevenir la saturación del detector y para incrementar al mismo tiempo el rango dinámico del detector. A partir de la fotografía también era posible conocer la posición relativa de la burbuja en el resonador. Debido a que los desplazamientos de la burbuja se producen en general en una dirección particular siguiendo un radio de la esfera, es posible ubicar la cámara de forma tal que se encuentre siempre perpendicular al movimiento de la burbuja.

La posición de la burbuja registrada por la cámara era corregida por el efecto de refracción que produce la esfera del resonador. Para ello se utilizó un programa desarrollado en el laboratorio que permite realizar el seguimiento de rayos de luz (en la aproximación de óptica geométrica) en un espacio de índice de refracción arbitrario.

La señal de un pequeño micrófono pegado a la pared del resonador era filtrada por un amplificador Lock-in referenciado a la frecuencia de trabajo. De esta manera se obtenía una señal proporcional a la presión acústica aplicada.

El tiempo de colapso se media utilizando un timer (Stanford Research Systems SR620)

en el cual la señal de start provenía del micrófono y la señal de stop de la señal de sonoluminiscencia. La señal de sonoluminiscencia era medida por un fotomultiplicador Dantec X57 amplificado 25 veces (Stanford Research Systems SR145 300MHz amplifier).

Para determinar la evolución temporal del radio de la burbuja usamos la técnica de Mie scattering tradicional [6, 42, 65].

Los datos obtenidos fueron comparados con el modelo descrito en [43] para obtener todas las cantidades de interés ( $R_0$  y  $P_A$ ). En el modelo, y debido al hecho de que la presión de vapor de la solución está formada casi completamente por agua, utilizamos el coeficiente de acomodación del agua [66].

Se tomaron un grupo de mediciones en el rango de bajas presiones acústicas, donde la burbuja era espacialmente estable y no-sonoluminiscente. En este rango fue posible realizar medidas repetidas de una misma burbuja lo que conduce a resultados más precisos. Para verificar la linealidad de la señal del micrófono con la presión acústica se tomó otro grupo de mediciones en el rango de altas presiones acústicas. En esta región la burbuja se movía en orbitas y las mediciones se realizaban en una sola captura del osciloscopio.

### 6.3. Resultados

La Figura 6.2 muestra los resultados experimentales y el ajuste con el modelo numérico de la evolución temporal de la burbuja tomada en la region de bajas presiones acústicas donde la burbuja es estable espacialmente y no sonoluminiscente.

Los puntos mostrados son obtenidos a partir de la raíz cuadrada de la intensidad medida por el fotomultiplicador y en este caso se han promediado 30 mediciones. La curva ajustada es obtenida a partir del modelo numérico descrito en [43]. Los parámetros  $R_0$  y  $P_A$  para el ajuste se eligen de forma tal de minimizar el cuadrado del la integral de los errores absolutos (método de mínimos cuadrados  $\chi^2$ ).

Los resultados experimentales y el modelo están en excelente acuerdo y son de una calidad similar a la observada en sistemas que utilizan agua (Capítulo 5). En particular, presenta un buen acuerdo en la amplitud y el tiempo de colapso de cada uno de los rebotes.

La concentración de argón disuelto que resulta del ajuste para los valores de  $R_0$  y  $P_A$  obtenidos es de 2.3%. Por otro lado la presión de argón utilizada experimentalmente fue de 16.5mbar, lo que equivale a un 1.8%.

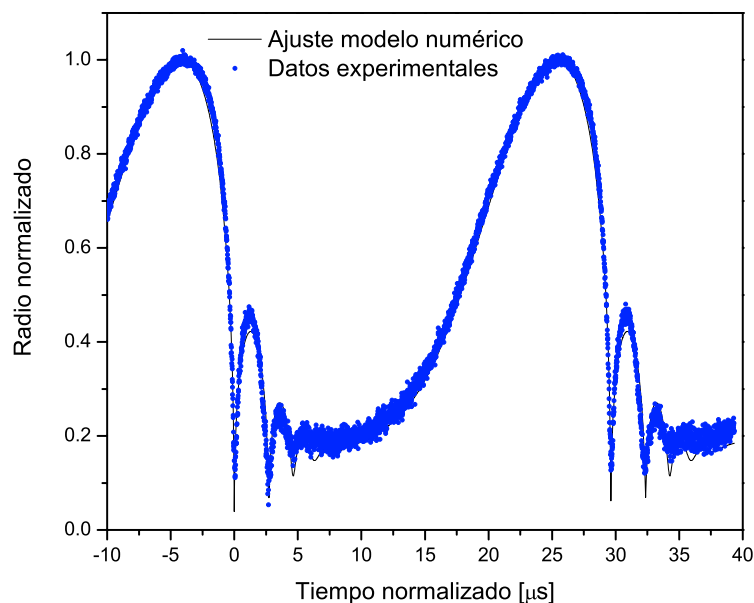
Con este mismo procedimiento hemos obtenido la presión acústica en todo el diagrama de fases y en ningún caso obtuvimos presiones acústicas mayores a 1.8bar. Esto indica que los valores obtenidos en la referencia [12] de hasta 6bar son incorrectos.

En la Figura 6.3 se muestran la posición de la burbuja en el resonador, el tiempo de colapso y la intensidad de sonoluminiscencia como función de la presión acústica en el centro del resonador. La cantidad de argón disuelto en este caso fue de 30mbar. Todos los puntos experimentales corresponden a condiciones de sonoluminiscencia.

En la Figura 6.3(a) las barras de error describen el tamaño de la órbita en la dirección radial. Debido a que la frecuencia de trabajo era de aproximadamente 33.7kHz, la posición del primer nodo de presión se encuentra a 22mm del centro del resonador (la velocidad del sonido en la solución es de  $\sim 1480 \frac{m}{s}$ ).

En la Figura 6.3(a) es posible observar que la burbuja se mueve desde el centro hacia las paredes del resonador en forma monótona a medida que se aumenta la presión acústica.





**Figura 6.2:** Evolución temporal del radio de la burbuja utilizando la técnica de Mie scattering. Los puntos azules provienen de la señal del fotomultiplicador (30 promedios) a la que se le substrajo el ruido de fondo y se tomó la raíz cuadrada. La curva continua es el resultado de un ajuste con el modelo numérico [43]. Los parámetros del ajuste son  $R_0 = 7,96 \pm 0,05 \mu m$  y  $P_A = 1,33 \pm 0,05 atm$ . El radio máximo es  $37.2 \mu m$  y el tiempo de colapso  $18.7 \mu s$ . La presión de argón utilizada en este experimento fue de  $16.5 mbar$ .

Sin embargo, la velocidad a la que se aleja del centro depende del valor de presión acústica aplicada. Para valores bajos de presión acústica, la burbuja permanece cerca del centro del resonador. Para presiones acústicas entre  $1.4 atm$  y  $1.7 atm$  se produce un gran incremento en distancia al centro. En esta región el tamaño de las órbitas de la burbuja alcanza su valor máximo. Para presiones mayores a  $1.7 atm$  la burbuja continua moviéndose hacia radios mayores pero lo hace a una velocidad cada vez menor.

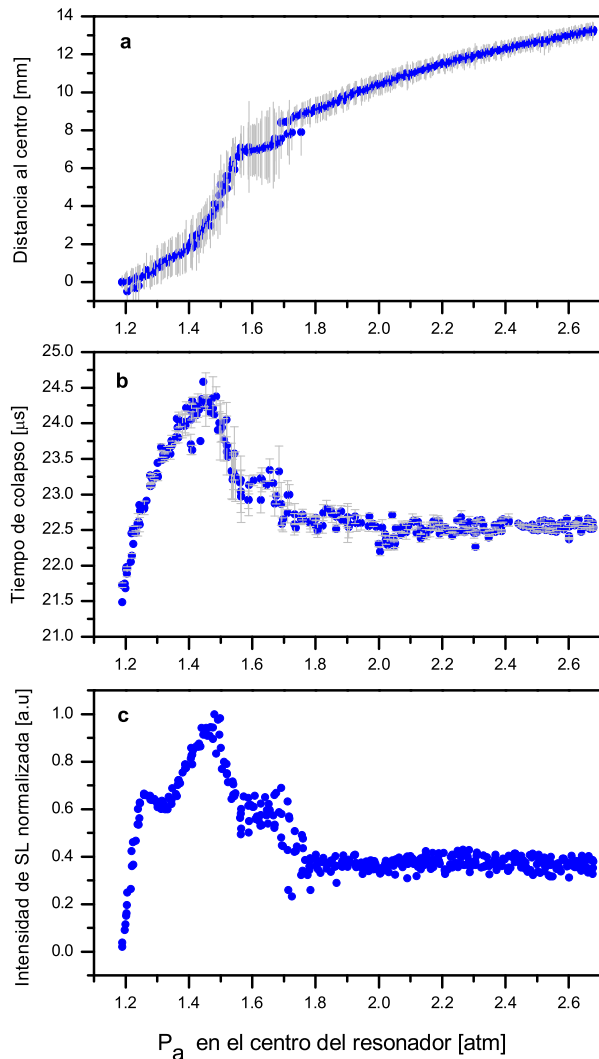
Las Figuras 6.3(a) y 6.3(b) muestran una estructura similar. Ambas muestran un máximo para presiones acústicas cercanas a  $1.45 atm$  y permanecen luego casi constantes para presiones mayores a  $1.8 atm$ . La mayor diferencia entre estas figuras es la presencia de un pequeño crecimiento en la intensidad de sonoluminiscencia para presiones cercanas a  $1.3 atm$ . Este aumento no se presenta en el tiempo de colapso.

Es importante notar, que la presión acústica en la posición de la burbuja es menor que la del centro del resonador y es por esto que se aclara en el eje en la figura 6.3.

Considerando un modo esférico de resonancia, la relación entre la presión en el centro y la presión en la posición de la burbuja está dada por la función de Bessel esférica de orden zero:

$$\frac{P_a(r)}{P_a(0)} = \frac{\sin \frac{2\pi fr}{c}}{\frac{2\pi fr}{c}} \quad (6.1)$$

donde  $r$  es la distancia al centro de la burbuja,  $f$  es la frecuencia de trabajo y  $c$  es la velocidad del sonido en el líquido.



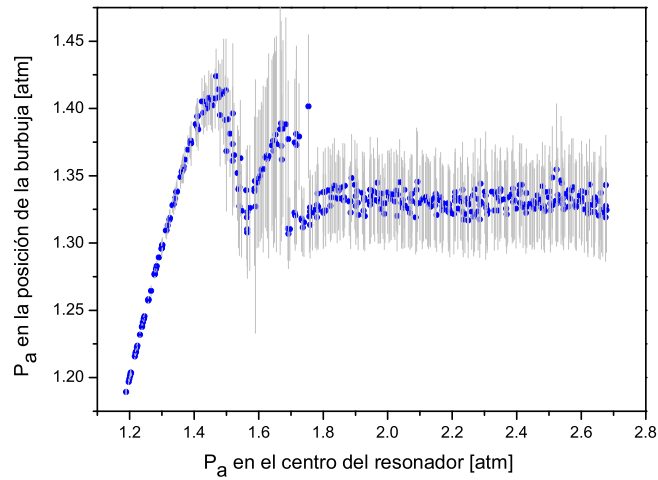
**Figura 6.3:** Posición de la burbuja (a), tiempo de colapso (b) e intensidad de sonoluminiscencia (c) como función de la presión acústica en el centro del resonador. En (a) las barras de error indican el tamaño de las órbitas en la dirección radial y en (b) la desviación estándar de 5 mediciones. En este caso se utilizó una concentración de Ar de  $37\text{ mbar}$ .

Teniendo en cuenta esta relación, es posible calcular la presión que experimenta la burbuja ( $P_{ab}$ ) en función de la presión acústica en el centro del resonador ( $P_{ac}$ ).

Este cálculo se muestra en la Figura 6.4.

En esta figura puede observarse que la  $P_{ab}$  se incrementa casi linealmente hasta un valor cercano a los  $1.4\text{ atm}$ . Este comportamiento es consistente con el hecho de que la burbuja permanece aproximadamente en el centro y por lo tanto ambas presiones son iguales. La  $P_{ab}$  presenta un máximo alrededor de  $1.43\text{ atm}$ . Además, este máximo coincide con el máximo de intensidad de sonoluminiscencia y tiempo de colapso. Entre  $1.4\text{ atm}$  y  $1.7\text{ atm}$ , la  $P_{ab}$  muestra algunas oscilaciones y para valores de  $P_{ac} > 1.7\text{ atm}$  alcanza un valor constante de aproximadamente  $1.33\text{ atm}$ . En esta última región, un cambio en la  $P_{ac}$  produce sólo un desplazamiento de la burbuja hacia zonas más alejadas del centro en las cuales la presión que experimenta la burbuja se mantiene constante.

La similitud entre las Figuras 6.3(b) y 6.3(c) sugiere una relación lineal entre el tiempo



**Figura 6.4:** Presión acústica en la posición de la burbuja calculada según la Eq. 6.1. Las barras de error muestran la variación de la presión acústica como consecuencia del movimiento de la burbuja (barras de error en la Figura 6.3(a)). El valor absoluto del error a partir de la calibración es de  $0.05 atm$  y es constante en todo el rango mostrado. Este error no se ha incluido para mayor claridad de la figura.

de colapso, la presión acústica y la intensidad de sonoluminiscencia.

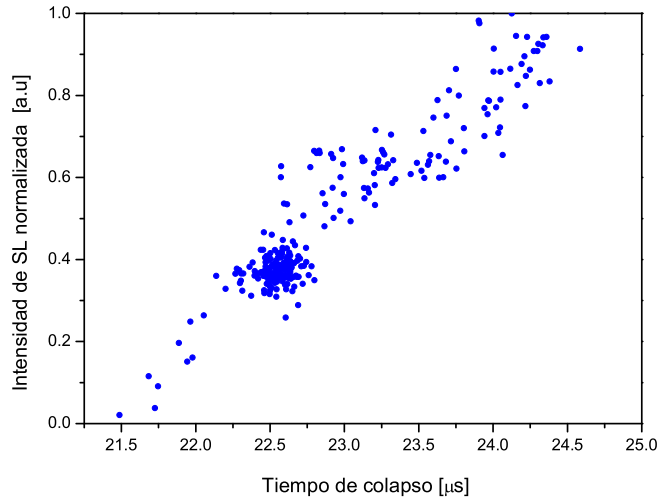
En la Figura 6.5 se dibuja la intensidad de sonoluminiscencia en función del tiempo de colapso.

La Figura 6.5 muestra que la relación entre el tiempo de colapso y la intensidad de sonoluminiscencia es bastante lineal excepto por una dispersión un poco mayor para intensidades de sonoluminiscencia más altas. Este comportamiento sugiere que si es posible aumentar de algún modo el tiempo de colapso, se pueden obtener mayores intensidades de luz.

La presión acústica muestra también un comportamiento similar pero con diferencias mayores. Este hecho puede relacionarse con la existencia de un campo de ultrasonido formado por componentes armónicas de la fundamental que se suma a la excitación impuesta exteriormente. Este complejo y rico espectro de frecuencias está determinado por la emisión de ondas de presión que produce la burbuja en el colapso.

La Figura 6.6 presenta el campo de ultrasonido de alta frecuencia ( $U_s^{HF}$ ) existente en el resonador en función de la presión acústica aplicada. Este  $U_s^{HF}$  es calculado a partir del valor rms (raíz cuadrada del valor cuadrado medio) del micrófono a la cual se le ha abstraído la componente en la frecuencia fundamental.

El valor máximo que aparece en esta curva, alcanzado a una presión de  $P_{ac} \sim 1.3 atm$ , representa cerca del 10 % del valor del primer armónico (excitación fundamental). El  $U_s^{HF}$  presenta una estructura compleja formada por armónicos de hasta 15 veces la frecuencia fundamental. Esto en realidad se debe a la limitación en el ancho de banda del micrófono utilizado. En otros experimentos realizados con hidrófonos más rápidos pueden observarse



**Figura 6.5:** Intensidad normalizada de sonoluminiscencia como función del tiempo de colapso para los puntos mostrados en la Figura 6.3. La relación que presenta es aproximadamente lineal, con una dispersión mayor para valores de intensidad de sonoluminiscencia más grandes.

componentes de hasta 50 veces la fundamental.

De la Figura 6.6 deben tenerse presente dos hechos fundamentales. El primero es que el valor del  $U_s^{HF}$  decrece para valores altos de presión acústica. El segundo es que esta cantidad es la única que presenta un comportamiento similar a la intensidad de sonoluminiscencia para valores de  $P_{ac} \sim 1.3 atm$  (Figura 6.3(c)). Esto puede ser interpretado como evidencia de que el crecimiento en la intensidad de sonoluminiscencia en esa región está relacionado con una modificación en la dinámica de la burbuja debido a la excitación con componentes de ultrasonido de alta frecuencia.

## 6.4. Discusión

En esta sección examinaremos un tratamiento simplificado de las fuerzas que actúan sobre la burbuja con la idea de retener las componentes más relevantes en cuanto a la determinación de la posición media de la burbuja en el resonador.

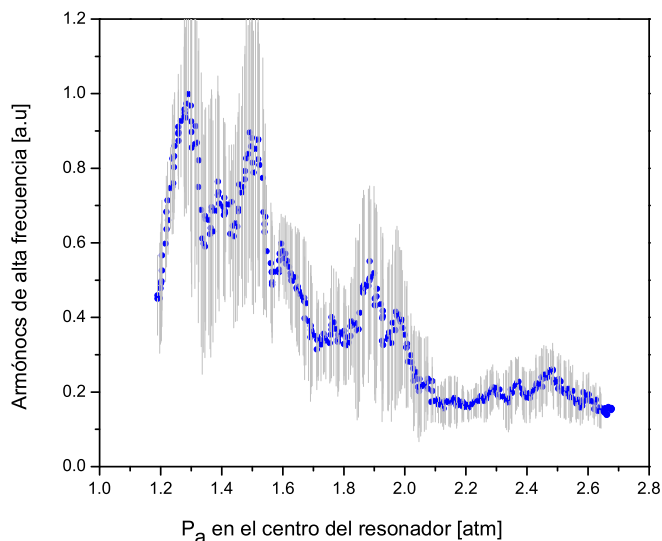
Con esta intención calculamos la fuerza de Bjerknes primaria en el espacio de fases  $R_0$ ,  $P_A$ . Buscamos los puntos en este diagrama de fases donde esta fuerza se hace cero.

La fuerza primaria de Bjerknes ( $F_B$ ) promediada en un ciclo de ultrasonido puede calcularse como [23]:

$$F_{B(r)} = \frac{1}{T} \int_0^T -\nabla P_{(t,r)} \cdot \frac{4\pi}{3} R_{(t)}^3 dt \quad (6.2)$$

donde  $P$  es la presión acústica,  $R$  es el radio de la burbuja y  $T$  es el período de un ciclo de ultrasonido.

La  $F_B$  depende de la posición en el resonador a través del  $\nabla P$ . La presión acústica en el



**Figura 6.6:** Componente de alta frecuencia del micrófono. La cantidad mostrada es el valor rms de la señal del micrófono a la que se le ha substraído la componente en la frecuencia fundamental. La curva es un promediado por ventana de 5 puntos adyacentes y la barra de error esta tomada igual a la desviación estándar de estos valores.

resonador la podemos escribir como

$$P_{(r,t)} = P_{\infty} + \frac{\sin(k \cdot r)}{k \cdot r} \cdot \sin(\omega t) \quad (6.3)$$

donde  $P_{\infty}$  es la presión exterior, en nuestro caso atmosférica ( $0.92 \text{ bar}$ ),  $\omega$  es la frecuencia de trabajo y  $k$  es el vector de onda y es igual a  $\omega/c$ , con  $c$  la velocidad del sonido en el líquido. De esta forma podemos calcular el gradiente de la presión acústica como:

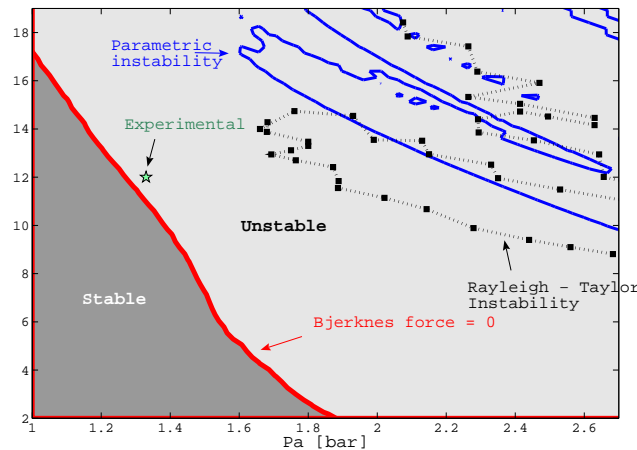
$$\nabla P_{(t,r)} = \left[ \frac{\cos(k \cdot r)}{r} - \frac{\sin(k \cdot r)}{k \cdot r^2} \right] \cdot \sin(\omega t) = f(r) \cdot \sin(\omega t) \quad (6.4)$$

Reemplazando la Ec. 6.4 en la Ec. 6.2 obtenemos para el cálculo de la fuerza de Bjerknes

$$F_{\mathbf{B}(r)} = \frac{4\pi}{3T} \cdot f(r) \cdot \int_0^T -\sin(\omega t) \cdot R_{(t)}^3 dt \quad (6.5)$$

La Ecuación 6.5 se anula en dos casos que han sido ampliamente estudiados en la bibliografía [67]: cuando  $\nabla P = 0$  (antinodo de presión) o cuando el radio de la burbuja es constante (nodo de presión). En este ultimo caso la fuerza se anula por ser cero la integral. La estabilidad de estos puntos está determinada por el tamaño de la burbuja [67]. Realizando un análisis lineal en la dinámica de la burbuja se puede demostrar que para burbujas más pequeñas que el tamaño de resonancia<sup>1</sup>, el antinodo de presión es un punto de equilibrio estable y el nodo es inestable. La inversa es cierta en el caso de burbujas de tamaño

<sup>1</sup>El tamaño de resonancia está dado por el radio la burbuja cuya frecuencia natural de oscilación es igual a la frecuencia de trabajo.



**Figura 6.7:** Diagrama de fases para los puntos fijos del sistema. Se incluyen en la figura la posición en donde la fuerza de Bjerknes se anula (línea roja continua), la inestabilidad paramétrica (línea punteada azul) y la inestabilidad de Rayleigh-Taylor (línea punteada negra con cuadrados). El círculo en el diagrama muestra la posición de punto medido al final de las Figuras 6.3 y 6.4 ( $1.33 \text{ atm}$  y  $22.5 \mu\text{s}$ ).

mayor al resonante.

Cuando se realiza un análisis completo de la dinámica de la burbuja, incluyendo los efectos no lineales de considerar presiones acústicas elevadas, la Ecuación 6.5 puede anularse también en una tercer circunstancia [52]. Esta condición aparece cuando la dinámica de la burbuja, es decir el  $R(t)$ , es tal que anula la integral de la Ecuación 6.5. Debe notarse que esto es independiente del valor del gradiente de presión particular y que sólo está relacionado con la presión a través de la dinámica de la burbuja.

En la Figura 6.7 se muestran las posiciones en el diagrama de fases en donde la  $F_{\mathbf{B}}$  se hace cero debido a este tercer mecanismo.

En este caso se utilizó para el cálculo el modelo descrito en [37]. En la misma figura se incluyen la posición de la inestabilidad paramétrica y la inestabilidad de Rayleigh-Taylor. También se incluyó en la figura, una marca que indica la posición del punto fijo (difusivamente estable) del final de las Figuras 6.3 y 6.4 cuyos parámetros medidos son  $1.33 \text{ atm}$  y  $22.5 \mu\text{s}$ .

Para este punto corresponde en el diagrama de fases una concentración de argón de  $3.4 \%$ , en acuerdo con la presión de gas utilizada ( $30 \text{ mbar}$ ) lo que equivale a una concentración de  $3.3 \%$ .

En la región denominada “estable” en la Figura 6.7, el único punto en el resonador donde la  $F_{\mathbf{B}} = 0$  y es estable, es en el centro del resonador (antinodo de presión). Por lo tanto, las burbujas que se encuentren en esta región del diagrama de fases experimentarán una fuerza hacia el centro del resonador.

En la región denominada “inestable”, los únicos puntos estables serán los que pertenezcan a un antinodo de presión y por lo tanto una burbuja que se encuentre en esta región del diagrama de fases experimentará una fuerza hacia las paredes del resonador.

Si comenzamos con una burbuja en el centro del resonador y en la región estable y aumentamos la presión acústica, la burbuja permanecerá en el centro hasta que se alcance la frontera indicada en la Figura 6.7 como  $F_{\mathbf{B}} = 0$ . Si la presión acústica es incrementada por encima de este valor y la burbuja ingresa a la zona inestable del diagrama, la fuerza apuntará ahora hacia el nodo de presión (en el caso del experimento esto es una esfera de  $22\text{mm}$  de radio).

Sin embargo, cuando la burbuja se mueve hacia las paredes, la presión acústica que experimenta disminuye debido al perfil espacial de la presión (Ec. 6.3) y esto significa que la posición *en el diagrama de fases* se modificará en sentido de regresar a la zona estable del diagrama. Este procedimiento continuará hasta que la burbuja alcance nuevamente la frontera de  $F_{\mathbf{B}} = 0$ .

Por este motivo, aparece una nueva posición estable en el resonador. Esta posición es la región del espacio en el resonador donde la presión acústica es tal que se encuentra sobre la curva  $F_{\mathbf{B}} = 0$  de la Figura 6.7. De aquí, si la presión acústica es incrementada el único efecto sobre la burbuja (luego de un transitorio) será que la posición estable se moverá a una esfera de radio mayor, pero la presión acústica que experimente permanecerá constante. Como consecuencia, una vez alcanzada la frontera de  $F_{\mathbf{B}} = 0$  la dinámica completa de la burbuja permanecerá constante frente a un aumento de la presión acústica en el centro del resonador. En particular, la intensidad de sonoluminiscencia y el tiempo de colapso permanecerán constantes lo cual se verifica experimentalmente en el final de las Figuras 6.3(b) y 6.3(c).

Cabe mencionar que en la Figura 6.4 sin embargo, pueden observarse puntos en los cuales la presión acústica es mayor que el valor final de  $1.33\text{atm}$ . Estos puntos poseen además una intensidad de sonoluminiscencia y un tiempo de colapso también mayores.

Este hecho puede entenderse debido a la existencia de armónicos de alta frecuencia presentes en el campo de ultrasonido. Estos armónicos modifican principalmente el valor del  $\nabla P$  debido a la alta frecuencia espacial que presentan. Estas modificaciones se tornan importantes en las regiones centrales del resonador, donde el  $\nabla P$  debido al modo fundamental es pequeño.

La modificación exacta que producen estos armónicos es compleja debido a que depende de la fracción de cada armónico presente y de sus fases relativas.

Sin embargo, en la región donde estos armónicos son bajos y el gradiente de presión del modo fundamental es alto, es decir, cuando la burbuja ocupa regiones alejadas del centro, el análisis realizado anteriormente es válido.

## 6.5. Conclusiones

Cuando la presión acústica es incrementada la burbuja se aleja del centro del resonador hacia regiones en donde la presión acústica es una fracción de la primera.

La ecuación de Rayleigh-Plesset como parte de un modelo completo para la dinámica [43, 37] representa correctamente los datos experimentales.

El tiempo de colapso en ácido sulfúrico se correlaciona linealmente con la intensidad de sonoluminiscencia.

Tomando únicamente la fuerza primaria de Bjerknes es posible explicar la evolución de la posición media de la burbuja en el resonador cuando la presión acústica es incrementada.

Este modelo sencillo predice que la posición de la burbuja permanece restringida a una esfera cuyo radio se incrementa al aumentar la presión acústica en el centro de forma tal de mantenerse constante sobre la superficie de dicha esfera.

No se encontró ninguna indicación de que la inestabilidad de Rayleigh-Taylor se produjese bajo ninguna condición experimental estudiada. La aparición de esta inestabilidad está relacionada con la ruptura de la burbuja en fragmentos y este comportamiento no fue detectado en ningún caso. Además, la posición predicha numéricamente en el diagrama de fases se encuentra alejada de los puntos experimentales. La alta viscosidad del ácido sulfúrico hace+ que esta inestabilidad aparezca a presiones acústicas más elevadas que en agua.

La fuerza de Bjerknes actúa sobre la burbuja alejándola del centro del resonador, pero no produce la extinción de la misma. En el caso del ácido sulfúrico la fuerza de Bjerknes actúa como un proceso limitante que evita alcanzar presiones acústicas más elevadas y por lo tanto mayores intensidades de emisión de luz.

Por otro lado, esta fuerza es extremadamente sensible a la existencia de armónicos de alta frecuencia debido a que depende de los gradientes de presión. De hecho, la emisión de ultrasonido que produce la burbuja, modifica la posición de la misma en el resonador.

Finalmente, el agregado de un armónico al campo de ultrasonido aplicado externamente podría ser incluido para incrementar el rango de presiones acústicas accesibles en sonoluminiscencia en ácido sulfúrico.

Esto se realiza en el capítulo 7 donde se estudian además las consecuencias sobre la estabilidad espacial de la burbuja del agregado de otro armónico a la excitación



# Capítulo 7

## Sonoluminiscencia Multiarmónica en Ácido Sulfúrico

Trabajos previos en sonoluminiscencia de una sola burbuja en soluciones de ácido sulfúrico han resaltado el hecho de que la intensidad de la emisión de luz en estos sistemas son las más altas jamás encontradas. Sin embargo, en este tipo de sistemas la burbuja se mueve en órbitas en vez de permanecer fija en un punto del espacio como ocurre en sistemas que utilizan agua.

En este capítulo estudiaremos las bases para obtener una burbuja fija en ácido sulfúrico y al mismo tiempo incrementar la intensidad de luz emitida [68].

La técnica consiste en agregar un armónico a la excitación ultrasónica. Excitando el resonador con otro armónico es posible obtener un incremento en la intensidad de sonoluminiscencia de hasta cuatro veces, alcanzando valores pico de  $40\mu W$  en una burbuja que describe órbitas y de  $15\mu W$  en una burbuja fija. Hasta donde se sabe, estos valores son los más altos obtenidos en un sistema sonoluminiscente.

La capacidad de fijar una burbuja tan intensa abre la posibilidad de realizar investigaciones más precisas en estos sistemas. En este capítulo describiremos una técnica para medir el radio de la burbuja en función del tiempo que hace uso de esta capacidad.

### 7.1. Introducción

El agua ha sido el líquido utilizado en sonoluminiscencia desde el descubrimiento de este fenómeno [57, 2]. Utilizando xenon como gas disuelto y trabajando a temperaturas cercanas al congelamiento, Hiller *et al.* [3] obtuvieron la burbuja sonoluminiscente más brillante conseguida en agua. La burbuja se encontraba en este caso, fija en una posición muy cercana al centro del resonador [3, 69].

Recientemente [12], se han reportado emisiones de luz en sistemas que utilizan ácido sulfúrico aproximadamente dos órdenes de magnitud más intensas que las obtenidas por Hiller. Entre las diferencias en sistemas que utilizan ácido sulfúrico y los que utilizan agua, pueden distinguirse algunas muy notables. Como se analizó en el Capítulo 5, en agua la extinción de la burbuja es abrupta, debido a la aparición de una inestabilidad de Rayleigh-Taylor. En cambio, en ácido sulfúrico la burbuja no desaparece cuando se incrementa la presión, sino que se aleja del centro del resonador manteniendo constante la presión acústica que

experimenta. Esto se estudia en detalle en el Capítulo 6.

Otra diferencia importante es que las burbujas sonoluminiscentes en ácido sulfúrico describen orbitas quasi-periódicas alrededor de un punto fijo en el resonador. Este punto se mueve hacia las paredes si la presión acústica es incrementada. Flannigan y sus colaboradores [12] han impuesto el término "moving Single Buble Sonoluminiscence" (mSBSL) para remarcar el hecho de que las burbujas en ácido sulfúrico se encuentran siempre en movimiento. Toegel *et al.* [14] propusieron que la inestabilidad espacial en líquidos viscosos como el ácido sulfúrico proviene de la fuerza de Basset. Esta fuerza depende de la historia del movimiento de la burbuja [22] (ver Sección 2.1.3).

Por otro lado, el uso de excitación con múltiples armónicos ya se ha ensayado en sistemas que utilizan agua, en general, para obtener un incremento en la intensidad de luz emitida. Moraga *et al.* [70] agregó una excitación en diez veces la fundamental en agua para duplicar la intensidad de sonoluminiscencia en las mejores condiciones.

Holzfuß *et al.* [50] demostraron que la estabilidad y posición de un burbuja sonoluminiscente en agua está determinada por la compleja estructura de armónicos que aparece en el campo de ultrasonido debido a la emisión de ondas de presión en el colapso de la burbuja.

Más aún, se han utilizado excitaciones compuestas de varios armónicos para tratar de conseguir un incremento en la emisión de luz en sonoluminiscencia en agua [54, 71, 72]. En el mejor de los casos se han conseguido aumentos de hasta tres veces en la intensidad de luz emitida.

Para sistemas que utilizan ácido sulfúrico, encontramos que la fuerza de Bjerknes es la responsable principal de la posición media de la burbuja y esto impone una limitación a la presión acústica máxima que puede aplicarse a la burbuja. En este sistema la inestabilidad de Rayleigh-Taylor se encuentra en regiones de presión acústica que no son accesibles a la burbuja con lo cual no representa una limitación en el diagrama de fases como en el caso del agua.

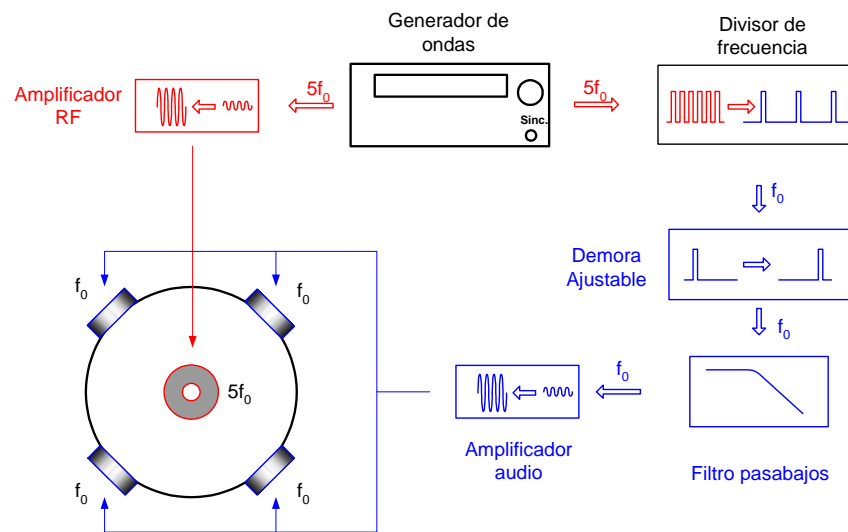
En este Capítulo mostramos cómo el agregado de un armónico en la excitación ultrasónica permite evitar la inestabilidad de posición en ácido sulfúrico. Se mostrarán resultados experimentales de la obtención de una burbuja estable utilizando un armónico de frecuencia cinco veces mayor a la fundamental. Con la aplicación de este armónico es posible además, alejar la inestabilidad causada por la fuerza de Bjerknes lo que permite incrementar la intensidad de luz en cuatro veces respecto del valor más alto encontrado en la bibliografía.

## 7.2. Dispositivo Experimental

El dispositivo experimental ha sido descrito previamente en el Capítulo 6. Describiremos aquí las principales diferencias con este.

Se utilizó en este caso el mismo resonador esférico de Pyrex de 89mm de diámetro exterior y aproximadamente 250 $\mu$ m de espesor de pared, conteniendo una solución acuosa al 85% de ácido sulfúrico. Se utilizó en este caso gas xenon disuelto en el ácido sulfúrico en un rango de concentraciones entre 10mbar y 150mbar.

Durante los experimentos se utilizó como modo fundamental el segundo modo esférico de



**Figura 7.1:** Esquema de conexiones en el dispositivo utilizado. Un generador de ondas alimenta con una onda senoidal en  $5f_0$  a un amplificador de radiofrecuencia. Esta señal alimenta dos piezoeléctricos ubicados diametralmente opuestos. La señal de sincronismo del generador era dividida, demorada y filtrada para alimentar cuatro piezoeléctricos en la frecuencia fundamental  $f_0$ .

resonancia resultando en una frecuencia de trabajo de aproximadamente  $33.7\text{kHz}$ . Este modo fundamental era excitado por dos piezoeléctricos pegados diametralmente opuestos sobre el ecuador de la esfera (Figura 7.1). El resonador contaba además, con cuatro piezoeléctricos pegados de forma tal de formar un tetraedro con los dos primeros que eran excitados a una frecuencia cinco veces mayor a la primera ( $5f_0$ ).

Para esto se utilizó un solo generador de ondas a la frecuencia  $5f_0$  que alimentaba a un amplificador de radiofrecuencia y mediante el correcto acople de impedancias alimentaba a su vez a los cuatro piezoeléctricos descritos. Este conjunto constituía la generación de la presión acústica de alta frecuencia ( $P_A^{HF}$ ).

La señal de sincronismo del generador de ondas era dividida, demorada y filtrada para obtener una señal senoidal a la frecuencia  $f_0$ . Esta señal luego amplificada de amplificarse excitaba a los dos piezoeléctricos restantes. Este conjunto constituía la generación de la presión acústica de baja frecuencia ( $P_A^{LF}$ ).

La temperatura era controlada y mantenida fija durante todos los experimentos en  $22 \pm 0,1\text{C}$ .

La posición, tamaño de las órbitas y la intensidad de sonoluminiscencia fueron medidas en este caso con una cámara CCD ligeramente desenfocada para prevenir la saturación del sensor.

La cámara fue calibrada con un sensor de potencia patrón asumiendo un espectro típico para este tipo de sistemas [37, 12].

### 7.2.1. Método de las franjas

Usamos en este experimento dos formas diferentes para obtener la evolución temporal del radio de la burbuja. La primera consiste en la medición utilizando la técnica tradicional de Mie scattering descrita en detalle en la Sección 3.2.1 [6].

El segundo método está basado en la medición directa de las franjas de difracción que se producen al iluminar una burbuja y está descrito en detalle en la Sección 3.2.3.

Para determinar la posición espacial de las franjas de dispersión utilizamos un láser pulsado sincronizado con el generador de ondas como fuente de iluminación. Este láser emite pulsos de  $20ns$  y hasta  $80mJ$  formando una fuente pulsada de iluminación muy intensa. Utilizamos una cámara CCD con la óptica adecuada para tomar las imágenes de las franjas entre los 15 y 30 grados respecto de la dirección hacia adelante definida por el láser.

El método de determinación de franjas tiene la ventaja sobre el método tradicional de Mie, de ser robusto aún para grandes cantidades de ruido de fondo. El valor absoluto del radio es obtenido mediante una calibración geométrica y la respuesta en frecuencia equivalente del método está limitada sólo por el ancho del pulso láser ( $\sim 20ns$ ) y la estabilidad temporal del sistema.

Se utilizó un timer SRS 650 ( $5ps$  resolución) para determinar el tiempo entre el pulso de sonoluminiscencia (registrado por un fotomultiplicador) y el pulso del láser. La señal de sincronismo de la cámara era utilizada por la computadora para guardar el valor de tiempo correspondiente a cada imagen.

El disparo del láser era controlado mediante una demora sincrónica con el generador de ondas que produce el ultrasonido en el resonador. La señal de start del timer estaba determinada por el pulso de sonoluminiscencia medido con el fotomultiplicador y amplificado 25 veces. La señal de stop era generada por un LED ubicado en la trayectoria del láser.

En la misma figura también se indica la posición del láser continuo que se utilizó para la medición del radio de la burbuja mediante la técnica de Mie scattering tradicional. En este caso se midió la dispersión de luz integrada en un ángulo sólido grande ( $\sim 45^\circ$ ) para obtener un valor del radio en función del tiempo en forma relativa. Se utilizó un láser He-Ne ( $\lambda = 632,8nm$ ) y el mismo fotomultiplicador usado en la medición con la cámara.

### 7.2.2. Modelo numérico

El modelo numérico utilizado en este trabajo es el resultado de la tesis doctoral de la Ingeniera Puente y está descrito en detalle en su tesis [16] y en la bibliografía [19, 20, 73, 66, 74, 75, 76, 77]. En lo que sigue describiremos que fenómenos están considerados en el modelo.

La dinámica de la burbuja es modelada utilizando la ecuación modificada de Rayleigh-Plesset-Keller para tener en cuenta los efectos de condensación y evaporación [37, 73]. La ecuación de energía en el líquido y las especies químicas dentro de la burbuja se resuelve ya sea por un método de colocación [37, 75], o con un aproximación de capa límite [37, 76], dependiendo de la presión acústica aplicada. El coeficiente de acomodación es obtenido siguiendo la referencia [66]. La difusión de gas y vapor dentro de la burbuja y la difusión de gases en el líquido se resuelven utilizando técnicas numéricas similares a la ecuación

de energía.

La luz emitida (espectro resuelto temporalmente, número total de fotones y potencia radiada) se obtiene asumiendo condiciones de presión y temperatura constantes dentro de la burbuja [37, 77, 78, 79].

Todas las hipótesis han sido puestas a prueba comparando los resultados con una simulación completa de las ecuaciones de Navier-Stokes [37].

La principal diferencia con trabajos anteriores es que se incluyó una frecuencia adicional de excitación.

### 7.3. Resultados

Uno de los aspectos más importantes en la realización de este experimento consiste en la elección del armónico a ser excitado en conjunto con la frecuencia fundamental.

Para determinar el armónico más adecuado para constituir el campo de presión de alta frecuencia ( $P_A^{HF}$ ) procedimos de la siguiente manera:

Empezamos eligiendo el modo esférico de baja frecuencia que constituye el campo de presión de baja frecuencia ( $P_A^{LF}$ ). Durante este trabajo hemos usado el primer y segundo modo de resonancia esférico del resonador con este propósito.

Una vez establecido el campo de baja frecuencia, se atrapa una burbuja sonoluminiscente en el centro del resonador. Luego se mide la respuesta del micrófono pegado en la pared para varias amplitudes de presión acústica. Debido a que la burbuja emite un pulso de presión sincrónica con la excitación, el espectro medido serán componentes discretas en los valores de frecuencia múltiplos de la fundamental<sup>1</sup>. Las magnitudes relativas de cada componente dependen de la respuesta del resonador a esas frecuencias particulares obteniéndose un valor más alto para valores de frecuencia que coincidan con un modo de resonancia.

De esta manera se puede medir para qué armónico de la excitación fundamental la respuesta del resonador es máxima.

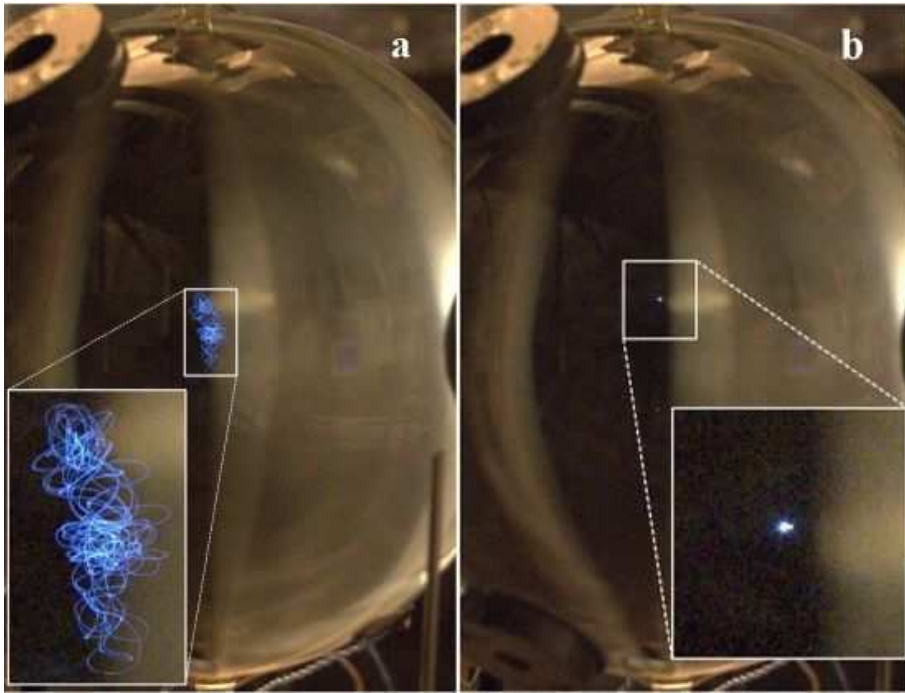
Para realizar esta medición es necesario calibrar la respuesta del micrófono. Esta calibración se realizó mediante la generación de un pulso de presión muy breve con la ayuda de un láser pulsado y la medición directa de la respuesta del micrófono.

Una vez elegido el armónico a utilizar, se ajustaba la fase entre ellos de manera tal de maximizar la intensidad de luz emitida y la estabilidad de la burbuja.

De esta manera conseguimos medir una burbuja sonoluminiscente de intensidad cuatro veces mayor ( $40\mu W$ ) a la burbuja más intensa hasta el momento reportada en la bibliografía [12]. Las condiciones utilizadas en este caso fueron: frecuencia fundamental en el primer modo esférico ( $\sim 17kHz$ ), frecuencia del armónico 10 veces la fundamental, concentración de Xe disuelto  $\sim 150mbar$ . En estas condiciones sin embargo, la burbuja no era espacialmente estable.

La máxima intensidad conseguida en una burbuja estable espacialmente fue de  $15\mu W$  (50% más intensa que en [12]) utilizando el segundo modo esférico como fundamental, frecuencia del segundo armónico 5 veces el fundamental y concentración de Xe disuelto  $\sim 150mbar$ .

<sup>1</sup>Esto será válido si la dinámica de la burbuja no presenta doblamiento de período



**Figura 7.2:** A la izquierda, fotografía de 6 segundos de exposición de una burbuja sonoluminiscente típica, utilizando sólo el segundo modo esférico del resonador ( $\sim 33kHz$ ). A la derecha, la misma burbuja cuando se agrega el quinto armónico del fundamental ( $\sim 165kHz$ )

El ancho a altura mitad (FWHM) del pulso de luz emitido fue de  $20ns$ , más del doble que el obtenido en [63] y más de 100 veces más ancho que los medidos en agua [8].

Encontramos además, que el ancho del pulso era prácticamente independiente de la longitud de onda.

La Figura 7.2(a), muestra las trayectorias de una burbuja típica en su condición normal de “moving SL” (mSBSL) cuando es excitada con un solo un campo de presiones ( $P_A^{LF}$ ) formado por el segundo modo esférico del resonador.

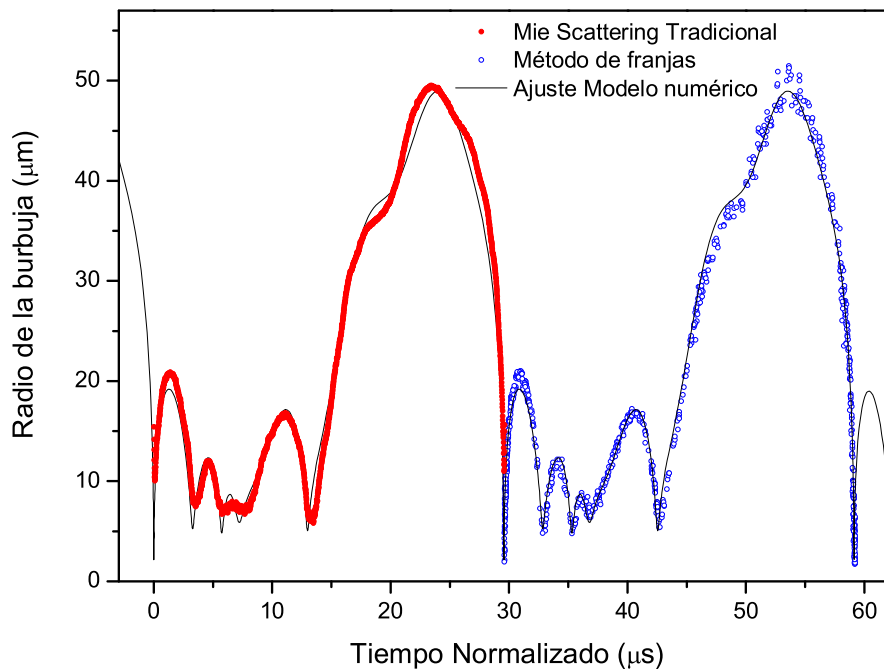
La imagen fue tomada con una cámara Nikon D50 con 6 segundos de exposición y una apertura de  $f/9$ .

La Figura 7.2(b), muestra una fotografía tomada de igual manera, cuando se agrega la excitación de alta frecuencia ( $P_A^{LF}$ ) utilizando un armónico de frecuencia cinco veces la fundamental.

En este caso, el tamaño de la burbuja está limitado sólo por la resolución de la óptica utilizada y el sensor de la cámara. La estabilidad observada en este caso es similar a la observada en experimentos realizados en agua ( $< 100\mu m$ ).

La Figura 7.3 muestra los resultados de la evolución temporal del radio de una burbuja espacialmente estabilizada utilizando como modo fundamental el segundo modo esférico y el quinto armónico de este. Aquí puede apreciarse el excelente acuerdo entre el experimento y el modelo numérico. Este tipo de mediciones en ácido sulfúrico es por primera vez asequible gracias a que se puede mantener espacialmente estable.

En el primer ciclo muestra los resultados de tomar la raíz cuadrada de la intensidad de luz



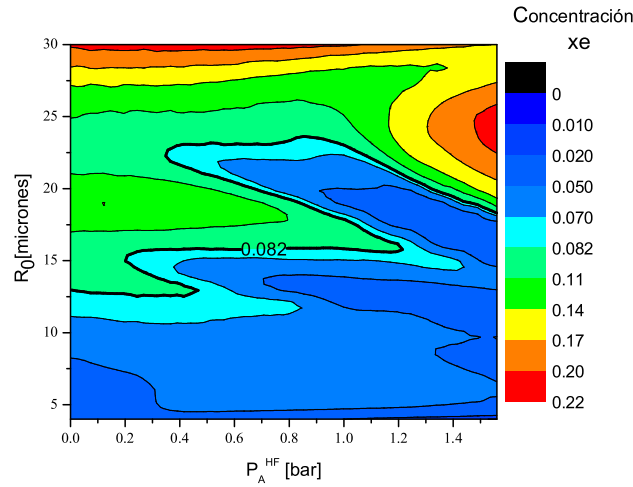
**Figura 7.3:** Evolución temporal del radio de la burbuja medido con dos técnicas diferentes. El primer ciclo muestra los resultados de utilizar Mie scattering tradicional. El segundo ciclo muestra los resultados obtenidos utilizando técnica descrita en la sección 7.2.1. Los valores ajustados con el modelo son  $R_0 = 9\mu m$ ,  $P_A^{LF} = 1,26bar$ ,  $P_A^{HF} = 1,56bar$  y fase =  $-2,05\mu s$

dispersada al ángulo de Brewster (Mie scattering tradicional). El segundo ciclo muestra los resultados obtenidos utilizando técnica descrita en la sección 7.2.1.

Utilizado el método de las franjas se utilizaron aproximadamente 8 minutos de medición para reconstruir la dinámica completa de la burbuja. Teniendo en cuenta que las fotos fueron tomadas a un ritmo de 2 fotos/seg y que la resolución temporal obtenida es de aproximadamente  $\sim 50ns$ , esta medición representa un incremento de 7 órdenes de magnitud en la frecuencia equivalente de medición. Este es un ejemplo de la gran capacidad de esta técnica experimental. Por otro lado, da cuenta de la increíble regularidad que se obtiene en este sistema a pesar de ser altamente no lineal.

En la Figura 7.4 se muestra un mapa de contornos de los puntos fijos del sistema (difusivamente estables) de una solución acuosa de ácido sulfúrico al 85 % para distintas concentraciones de xenón disuelto en función de la  $P_A^{HF}$  y el radio ambiente, para un valor fijo de  $P_A^{LF} = 1,23bar$  y fase relativa de  $9,1\mu s$ . El máximo valor en  $P_A^{HF}$  que alcanza esta figura coincide con el valor ajustado para la Figura 7.3 ( $1,56bar$ ).

La Figura 7.5 muestra los resultados del cálculo de la emisión de sonoluminiscencia en el rango visible ( $\lambda = 300nm - 700nm$ ) como función de  $P_A^{HF}$  aplicada. Al igual que en la



**Figura 7.4:** Puntos fijos del sistema (difusivamente estables) para una solución acuosa de ácido sulfúrico al 85 % para distintas concentraciones de xenón disuelto y para un valor fijo de  $P_A^{LF} = 1,23bar$

Figura 7.4, el cálculo se realizó para una  $P_A^{LF} = 1,23bar$  y una fase relativa de  $9,1\mu s$ . La concentración de xenón disuelto en esta figura se eligió igual a 8,25 %. En la Figura 7.4 esta concentración se dibujó en línea gruesa para mejor visualización.

Podemos observar, que la intensidad de sonoluminiscencia aumenta a medida que la  $P_A^{HF}$  se incrementa. Según este modelo numérico, la intensidad aumenta casi cuatro veces al aplicar una  $P_A^{HF}$  de aproximadamente  $1,2bar$ .

Por otro lado, los valores de potencia total que predice el modelo concuerdan en forma aproximada, con las magnitudes medidas experimentalmente.

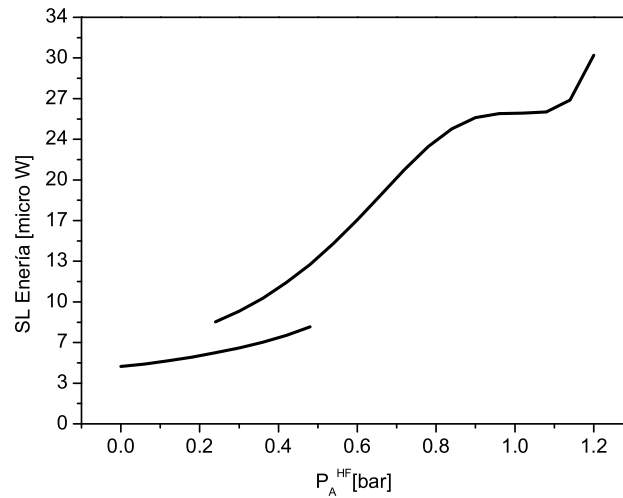
Para el rango de  $P_A^{HF}$  entre  $0,2bar$  y  $0,5bar$ , la curva es bivaluada. Esto proviene del hecho de que para una  $P_A^{HF}$  existen dos valores de  $R_0$  que son difusivamente estables. Esto se manifiesta en el diagrama de fases de la Figura 7.4 como un “pliego” en las líneas de contorno en ese rango de presiones para una concentración de 8,25 %.

La Figura 7.6 muestra los resultados de la medición del tamaño de las órbitas y la intensidad de luz emitida como función de la  $P_A^{HF}$  aplicada. Durante este experimento se utilizaron los valores de  $P_A^{LF} = 1,36$  (en el centro del resonador), frecuencia del modo fundamental  $33731Hz$  y fase  $-2,7\mu s$ . El segundo armónico se tomó con una frecuencia cinco veces la fundamental.

Para valores de  $P_A^{HF}$  pequeños, la burbuja se encuentra alejada del centro del resonador y es relativamente poco intensa. En esta posición la burbuja está constantemente en movimiento describiendo órbitas de aproximadamente  $1mm$ , como lo indican las barras de error en la Figura 7.6 y como se observa en la fotografía de la Figura 7.2(a).

Este comportamiento se mantiene prácticamente sin cambios hasta un valor umbral de  $P_A^{HF} \sim 1,1bar$  donde la intensidad de sonoluminiscencia se duplica al mismo tiempo que la posición de la burbuja se hace más cercana al centro del resonador. Luego de este um-





**Figura 7.5:** Potencia total de luz emitida como función de la  $P_A^{HF}$  aplicada. Se tomaron  $P_A^{LF} = 1,23bar$ , fase relativa de  $9,1\mu s$  y concentración de xenón 8.25 %

bral, la burbuja ya no describe un movimiento en órbitas sino que se fija en un punto de la misma manera que muestra la fotografía de la Figura 7.2(b).

Para valores de  $P_A^{HF}$  mayores a este umbral, la posición de la burbuja permanece casi constante. Esta región ha sido indicada en la figura como “burbuja estable”.

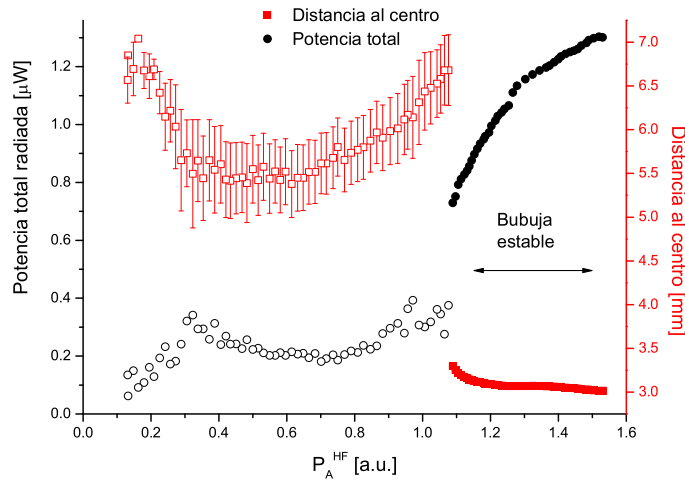
En esta región la intensidad de sonoluminiscencia se duplica nuevamente cuando la  $P_A^{HF}$  alcanza los  $1,5bar$ .

Es importante tener presente que el valor indicado en el eje de  $P_A^{HF}$  tiene sentido sólo para la región en donde la burbuja es estable (que es donde se hizo la calibración), para otras posiciones de la burbuja en el resonador la  $P_A^{HF}$  que experimente la burbuja dependerá de la magnitud del campo de presiones en ese lugar. Esto depende del modo particular que se excite a la frecuencia del armónico utilizado ( $5f_0$ ). Si bien la frecuencia de este armónico se encuentra cerca del décimo modo esférico del resonador, no se pudo verificar experimentalmente que fuera este modo en particular el que se estuviese excitando con el armónico utilizado.

Por último, cabe mencionar que en otros experimentos, con condiciones de similares de  $P_A^{LF}$  y fase, la transición conducía sólo a una disminución en el tamaño de la órbita, en general a valores mucho menores que el inicial pero todavía perceptibles ( $100\mu m - 200\mu m$ ).

## 7.4. Discusión

De la Figura 7.6 deben tenerse en cuenta tres características importantes que provienen del hecho de utilizar un campo de presión de alta frecuencia y que producen un aumento en la intensidad de sonoluminiscencia emitida. Primero, antes de la transición, la burbuja se encuentra alejada del centro del resonador donde la presión acústica de baja frecuencia es



**Figura 7.6:** Potencia total emitida (círculos negros) y posición de la burbuja en el resonador (cuadrados rojos) como función de la  $P_A^{HF}$  aplicada. El tamaño de las órbitas descritas por la burbuja se indican como barras de error en la posición (para altas  $P_A^{HF}$  es comparable al tamaño del punto). Esta curva fué obtenida realizando una rampa descendente en la  $P_A^{HF}$ .

menor que en la posición final de la burbuja (cerca del centro). Esto es debido simplemente al perfil de la presión acústica para este modo (Ec.6.3).

Este aumento de la  $P_A^{LF}$  produce a través de la transición, un aumento en la intensidad de luz emitida.

Segundo, en la región donde la burbuja se encuentra estable, su posición casi no cambia con lo cual la  $P_A^{LF}$  que experimenta es constante. Bajo estas condiciones el aumento de intensidad que se produce es debido sólo al hecho de que la  $P_A^{HF}$  aumenta. Esta región es comparable en cuanto a las hipótesis de cálculo realizadas en las Figuras 7.4 y 7.5. Al igual que en el cálculo, un aumento en la  $P_A^{HF}$  produce un aumento en la intensidad de luz emitida.

Tercero, la  $P_A^{HF}$  tiene un efecto estabilizante que se manifiesta en forma discontinua al producir un cambio en la posición de la burbuja.

Debe recordarse que la  $P_A^{HF}$  indicada en la Figura 7.6 tiene sentido sólo en la region de la burbuja estable. Esto quiere decir que el salto en la posición de la burbuja también puede implicar un cambio en la  $P_A^{HF}$ .

Por último, es importante notar que la dinámica de la burbuja también produce una excitación al campo de ultrasonido debido a las ondas de presión que emite en cada colapso. Esta emisión sincrónica con el campo de ultrasonido excita una gran cantidad de armónicos de alta frecuencia<sup>2</sup>. La intensidad de esta contribución aumenta al aumentar la violencia del colapso, o lo que es similar, la intensidad de luz emitida. Esto significa que en la transición cuando la burbuja duplica la intensidad de luz emitida, es de esperar que el campo de presión de alta frecuencia se vea modificado en forma importante.

<sup>2</sup>Con el micrófono pegado al resonador se pueden identificar al menos 30 armónicos en el rango de frecuencias limitadas por el ancho de banda del sensor.

## 7.5. Conclusiones

Hemos desarrollado una técnica que nos permite obtener una burbuja sonoluminiscente estable espacialmente en una solución de ácido sulfúrico al 85% para altas presiones acústicas.

Para esto utilizamos una excitación armónica de alta frecuencia sumada al campo de presiones fundamental. La presencia de este armónico, permite alcanzar intensidades de sonoluminiscencia de hasta cuatro veces mayores.

En condiciones óptimas (baja frecuencia de excitación fundamental, alta concentración de gas disuelto, máxima presión acústica de alta frecuencia aplicada y diferencia de fase óptima) obtuvimos una burbuja de  $40\mu W$  de potencia total emitida en el rango visible para una burbuja móvil y  $15\mu W$  de potencia total para una burbuja fija espacialmente.

La capacidad de tener una burbuja estable espacialmente nos permitió comprobar el modelo numérico utilizado con gran precisión.

Desarrollamos un método para medir la dinámica de la burbuja en forma absoluta que saca provecho de la gran estabilidad conseguida.

Los resultados obtenidos experimentalmente concuerdan con las predicciones obtenidas con el modelo numérico tanto para la dinámica de la burbuja como para la intensidad de luz emitida.

Queda pendiente aún encontrar una explicación para los diferentes grados de estabilidad espacial que puede presentar una burbuja cuando se aplica un campo de presión de alta frecuencia.



# Capítulo 8

## Temperatura de Plasma

En este capítulo describiremos los esfuerzos realizados en pos de la determinación experimental de la temperatura del plasma que se forma dentro de una burbuja sonoluminiscente en el momento de máxima compresión. Se describirá el experimento realizado en sus componentes individuales y el grado de avance alcanzado.

### 8.1. Introducción

La determinación de la temperatura del plasma interior en una burbuja sonoluminiscente ha sido un desafío experimental desde el momento de su descubrimiento en 1989 [57].

La dificultad en su determinación radica en que la generación del plasma se produce durante un tiempo muy breve ( $10^{-10} - 10^{-8}s$ ) en regiones espaciales muy reducidas ( $\sim 1\mu m$ ). Se han realizado esfuerzos para obtener estimaciones indirectas de su temperatura a partir de su espectro [3] o de la emisión de líneas espectrales que aparecen en el caso de utilizar ácido sulfúrico como fluido [12].

Debido a que las temperaturas alcanzadas son relativamente altas, el espectro de emisión presenta su máximo en longitudes de onda menores a  $200nm$ , por debajo del umbral de absorción del agua (y en general de la mayoría de los fluidos). Debido a esto, el espectro medido no presenta una estructura particular en el rango visible sino que aumenta monótonamente desde el infrarrojo al ultravioleta. Esto dificulta la estimación de la temperatura debido a que los ajustes producen curvas similares independientemente de la temperatura (son siempre similares a la cola de la emisión de cuerpo negro). Por otro lado, la emisión de luz en forma absoluta es muy dependiente del tamaño de la burbuja (de la cantidad de gas que contiene) y tratar de estimar la temperatura a partir de este valor resulta muy dependiente del modelo numérico para la evolución de la burbuja y del modelo de emisión utilizado en el cálculo [6].

En el caso en que se utiliza ácido sulfúrico como fluido, es posible realizar la determinación de líneas espectrales y la consiguiente estimación de la temperatura a partir de sus intensidades relativas [12]. Flannigan et al. [12] han utilizado este método para determinar la temperatura dentro de una burbuja sonoluminiscente en ácido sulfúrico a bajas presiones acústicas obteniendo valores de hasta  $15000K$ .

Este método presenta algunas limitaciones importantes. Las líneas de emisión son sólo

discernibles para presiones acústicas bajas, para intensidades más altas las líneas se ensanchan y se confunden en el espectro continuo (que de nuevo se asemeja a una cola de emisión de cuerpo negro). Además, las temperaturas estimadas de esta forma pueden ser menores a las del centro de la burbuja debido al apantallamiento que se produce en las distintas regiones del plasma. De esta manera puede formarse un núcleo más caliente rodeado de una porción más fría que emite las líneas observadas.

Un mecanismo utilizado comúnmente en la medición de la temperatura y la densidad de un plasma, es la determinación de su constante dieléctrica mediante la interacción con una onda electromagnética. Este método ha sido propuesto de hecho para la determinación de la existencia del plasma interior [26]. Una variación de esta propuesta ha sido implementada en un sistema formado por agua y aire durante la tesis de grado del autor [40]. En estos experimentos no fue posible determinar de la existencia de un plasma dentro de la burbuja.

Los trabajos realizados en ácido sulfúrico [12] han abierto la posibilidad de trabajar con burbujas mucho más intensas que en agua y con anchos de pulso mayores (10 a 100 veces mayor que en agua). Todo esto, sumado al hecho de poder fijar espacialmente la burbuja (ver Capítulo 7) han mejorado las posibilidades de realizar este experimento. En este capítulo se analizarán esta serie de ventajas sobre el experimento realizado en [40] y el grado de avance alcanzado.

## 8.2. Dispositivo Experimental

El experimento planteado consiste en iluminar la burbuja en el momento de máxima compresión utilizando un pulso láser muy breve ( $< 1ns$ ). La dispersión de la onda electromagnética, es decir, la intensidad de luz reflejada y refractada por la burbuja en función del ángulo, depende del perfil de índice de refracción dentro de la burbuja (Sección 2.2.1. A su vez, el índice de refracción depende de la temperatura y densidad del plasma ( Sección 2.2.2).

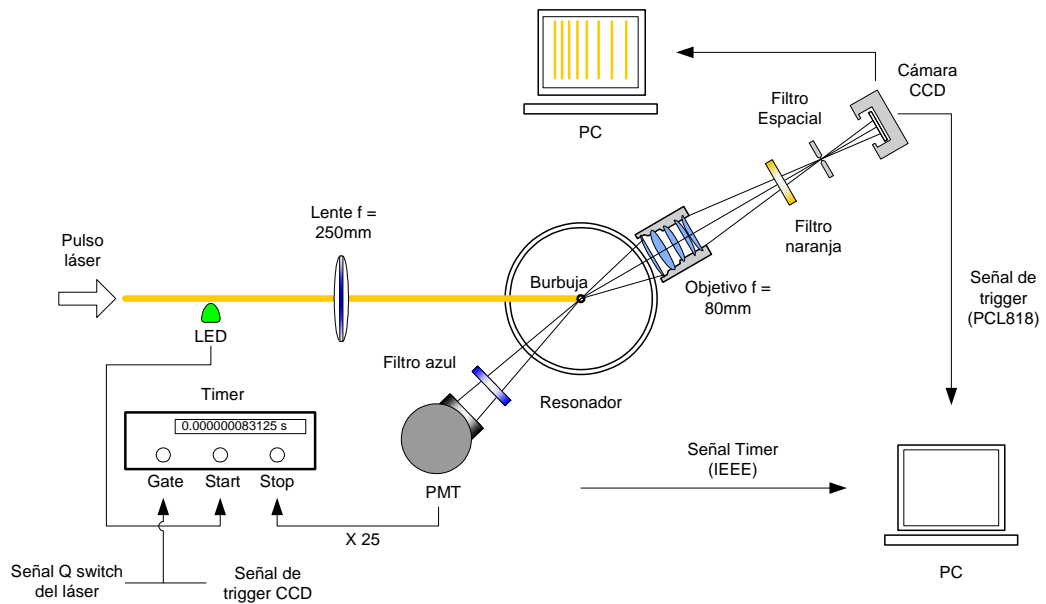
La idea detrás de este experimento es comparar la dispersión de luz proveniente del pulso láser, con la predicha para distintas temperaturas dentro de la burbuja. De esta manera se pretende realizar un ajuste de la temperatura alcanzada.

Para realizar la predicción teórica de la dispersión de luz se utilizó un grupo de modelos numéricos. Para la determinación del radio en función del tiempo de la burbuja sonoluminiscente se utilizó el programa descrito en la Sección 2.1.2. La distribución espacial de la temperatura y densidad dentro de la burbuja se calculó a partir del modelo numérico desarrollado por García durante su tesis de grado [36] (ver Sección 2.12). En este modelo se resuelven las ecuaciones de Navier-Stokes dentro de la burbuja.

Por último, el índice de refracción del plasma se calculó usando el modelo para el plasma interior descrito en la Sección 2.2.2 y utilizando el programa descrito en el Apéndice A se calculó la dispersión en función del ángulo. Allí se aproxima el perfil de índice de refracción por una sucesión de capas de índice de refracción constante.

El dispositivo experimental utilizado se muestra en la Figura 8.1.

Este sistema es similar al utilizado en la determinación del radio absoluto por el método de las franjas (Sección 3.2.3). El resonador utilizado es el mismo que se describió en el Capítulo 7 de forma tal de obtener una burbuja sonoluminiscente fija y muy intensa (Fi-



**Figura 8.1:** Dispositivo experimental utilizado. Un pulso láser ilumina la burbuja sonoluminiscente en el momento de máxima compresión. La dispersión angular del láser es registrada por una cámara CCD y almacenada en una PC. El momento de arribo del pulso respecto del pulso de sonoluminiscencia es medido por un timer y almacenado en otra PC. Una combinación de la señal de Q-switch del láser y la señal de trigger de la cámara genera una ventana que habilita al timer sólo cuando se toma la fotografía. De esta manera es posible asignar a cada fotografía un tiempo de arribo.

gura 7.1).

La señal de sincronismo del generador de ondas utilizado para excitar los piezoeléctricos se utilizaba como entrada en un contador de manera tal de generar una secuencia de pulsos sincrónicos al generador de una frecuencia menor. La frecuencia de estos pulsos se elegía lo más cercana posible a los  $50\text{Hz}$ , frecuencia donde el láser Nd-Yag trabaja en forma más estable. Estos pulsos, luego de atravesar una demora ajustable, disparaban el láser Nd-Yag de  $\lambda = 532\text{nm}$  y  $\sim 20\text{ns}$  de ancho de pulso. Este láser, a su vez, constituía la fuente de un láser de colorantes que disminuye el ancho del pulso a su valor final de  $\sim 500\text{ps}$  (descrito en la siguiente sección). Este pulso tiene una longitud de onda de  $\lambda = 590\text{nm}$ .

Este pulso de luz iluminaba la burbuja y las franjas de emisión (oscilaciones de la Figura 2.9) eran medidas por una cámara CCD. La imagen de las franjas se formaba sobre el sensor utilizando un objetivo Nikon de distancia focal  $f = 80\text{mm}$  y apertura  $f/1.4$ . Se utilizó un filtro pasabanda y un filtro espacial para mejorar la relación señal ruido. El tiempo de integración de la cámara se tomaba igual a la inversa de la frecuencia de los pulsos ( $20\text{ms}$ ). De esta manera, en cada imagen se imprime la dispersión proveniente de un pulso del láser.

La fase relativa entre el pulso de luz y el colapso de la burbuja era medido con la ayuda de un Timer (SR 650) donde la señal de start provenía del pulso láser y el pulso de stop provenía del pulso de sonoluminiscencia (medido con un fotomultiplicador y amplificado 25 veces). Un filtro pasabajos delante del fotomultiplicador prevenía la detección del pulso

del láser en la señal de stop.

Debido a que la cámara CCD toma las imágenes a  $\sim 2 \text{ fotos/seg}$  y la frecuencia del láser es de  $50 \text{ Hz}$  debemos sincronizar las medidas del timer y la cámara para poder asignar a cada foto la fase relativa a la que fue tomada. Para ello se utilizó la señal del Q-switch del láser Nd-Yag combinada con la señal del disparo de la cámara para generar una ventana (gate). Esta ventana habilita al timer a medir el valor de tiempo entre el pulso láser y el pulso de sonoluminiscencia.

Las imágenes de la cámara, así como también los valores del timer eran almacenados en dos computadoras.

En el caso de utilizar ácido sulfúrico, el tiempo durante el cual la burbuja se encuentra lo suficientemente caliente como para emitir luz varía entre  $1 \text{ ns}$  y  $18 \text{ ns}$ . Por este motivo, si estamos interesados en evaluar la temperatura máxima de la burbuja, debemos usar un pulso láser que sea más breve que estos valores.

En el laboratorio contamos con un láser pulsado Nd-Yag que emite pulsos de  $\approx 2 \text{ MW}$  y  $20 \text{ ns}$  de ancho. Para obtener un pulso de luz de  $\sim 1 \text{ ns}$  se construyó un láser de colorantes que es alimentado con el Nd-Yag. En el Apéndice C se describe en detalle su construcción.

### 8.3. Resultados

En esta sección presentaremos inicialmente las características de la burbuja sonoluminiscente que se estudió. A partir de esta generamos la estimación teórica de la dispersión angular del pulso láser. Luego se presentarán los resultados obtenidos de la medición directa de la dispersión de luz por esta burbuja y se compararán con las predicciones teóricas.

Inicialmente se generó una burbuja sonoluminiscente estable utilizando la técnica descrita en el Capítulo 7. Luego se caracterizó esta burbuja midiendo la evolución temporal del radio mediante la técnica de Mie scattering (Sección 2.2.1). A partir de esta, se realizó un ajuste de los parámetros relevantes (presión acústica,  $R_0$ , etc) y con estos datos se calculó la máxima temperatura en el momento del colapso.

La dispersión angular de luz se calculó siguiendo la técnica descrita en la Sección 2.2.3. Esto representa finalmente nuestra estimación teórica a la dispersión del haz.

En la Figura 8.2 se muestran los resultados de la medición de la evolución temporal de una burbuja sonoluminiscente en ácido sulfúrico para la cual se utilizaron dos excitaciones armónicas en los modos 2 y 10 del resonador. La frecuencia del modo 2 era igual a  $33695 \text{ Hz}$ . Se utilizó en este caso el fotomultiplicador Hamamatsu H957 de  $2 \text{ ns}$  de tiempo de respuesta conectado mediante una resistencia de  $300 \Omega$  a un Osciloscopio HP de  $1 \text{ Gs/s}$ . Los datos mostrados en la Figura son el resultado del promedio de 64 curvas.

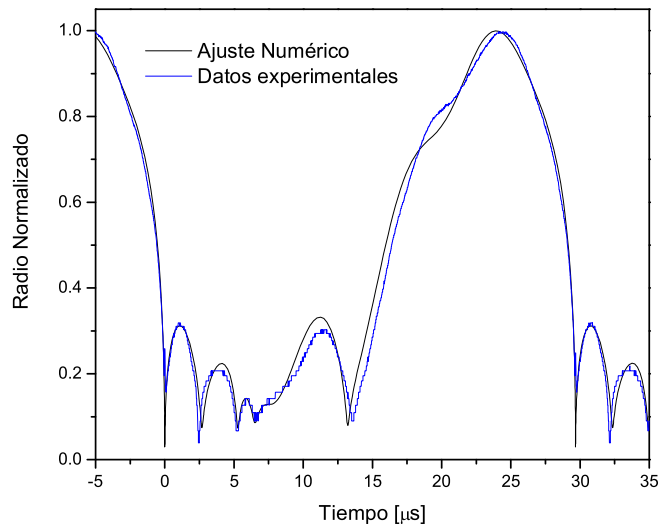
Durante estas mediciones la burbuja se encontraba ligeramente desplazada del centro ( $\sim 5 \text{ mm}$ ) en dirección hacia la cámara.

En la Figura podemos ver que el ajuste con el modelo numérico es razonable, especialmente en la zona del colapso, donde se produce el pulso de luz.

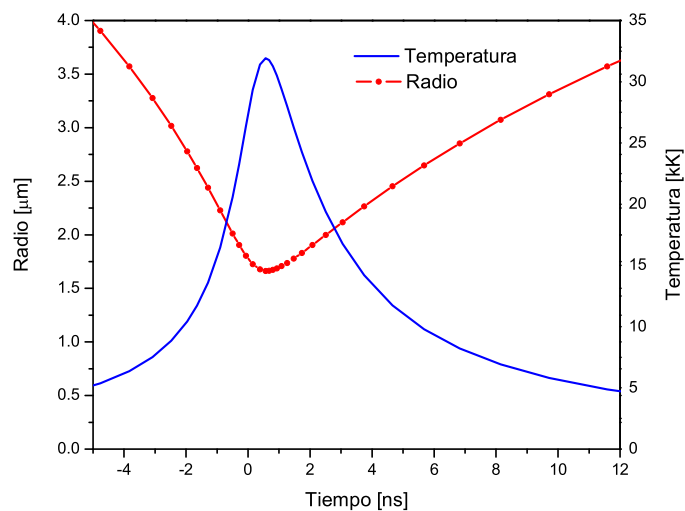
En la Figura 8.3 puede observarse una ampliación de la zona del colapso calculada con el modelo numérico con las mismas condiciones del ajuste de la Figura 8.2.

Aquí podemos ver que la predicción del modelo para la temperatura dentro de la burbuja





**Figura 8.2:** Evolución temporal del radio de una burbuja sonoluminiscente en ácido sulfúrico al 85% con excitación en los modos 2 y 10 del resonador. Los datos experimentales se tomaron utilizando la técnica de Mie scattering tradicional (Sección 3.2.1). El ajuste fue realizado utilizando el modelo numérico descrito en la Sección 2.1.2. Los valores obtenidos para este ajuste son  $R_0 = 8\mu m$ ,  $P_{a(2)} = 1,52bar$ ,  $P_{a(10)} = 1,75bar$ ,  $\Delta\phi_{2-10} = 8^\circ$  y  $R_{max} = 55,4\mu m$ .

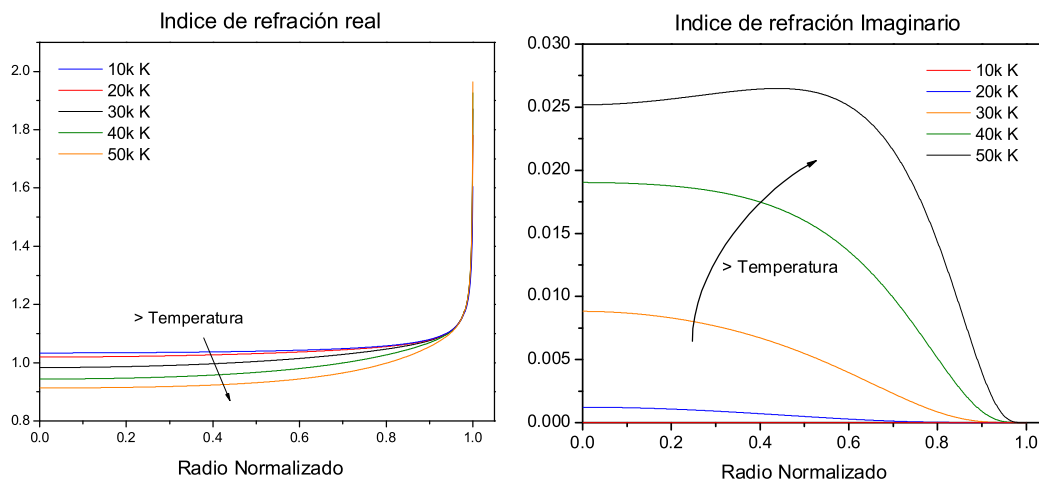


**Figura 8.3:** Detalle del colapso principal para una burbuja sonoluminiscente en ácido sulfúrico al 85%. Se muestra en la escala izquierda la evolución del radio y a la derecha la temperatura media del gas dentro de la burbuja. Aquí se utilizaron los mismos parámetros de la Figura 8.2

supera los 30000 grados.

El pulso de temperatura es ligeramente asimétrico (decae más lentamente) y el ancho altura mitad (FWHM) es de  $\sim 4,6ns$ . El radio mínimo alcanzado en el colapso es casi 5 veces menor que el radio de equilibrio ( $R_0$ ) y la presión media en ese momento es  $\sim 1,1 \cdot 10^4 bar$ . Utilizando estos valores para el radio de la burbuja y la cantidad de átomos que contiene (determinado por el  $R_0$ ) podemos calcular el perfil de índice de refracción utilizando la técnica descrita en las Secciones 2.2.2 y 2.2.3. En estos cálculos dejamos libre el parámetro correspondiente a la temperatura máxima y usamos un valor de  $n = 1,9$  para construir el perfil de temperatura (Ecuación 2.26).

De esta manera obtenemos los resultados mostrados en la Figura 8.4. Aquí podemos



**Figura 8.4:** Perfil de índice de refracción calculado para el momento de radio mínimo correspondiente a la Figura 8.3. Se muestra el índice de refracción real e imaginario para cuatro valores de temperatura máxima.

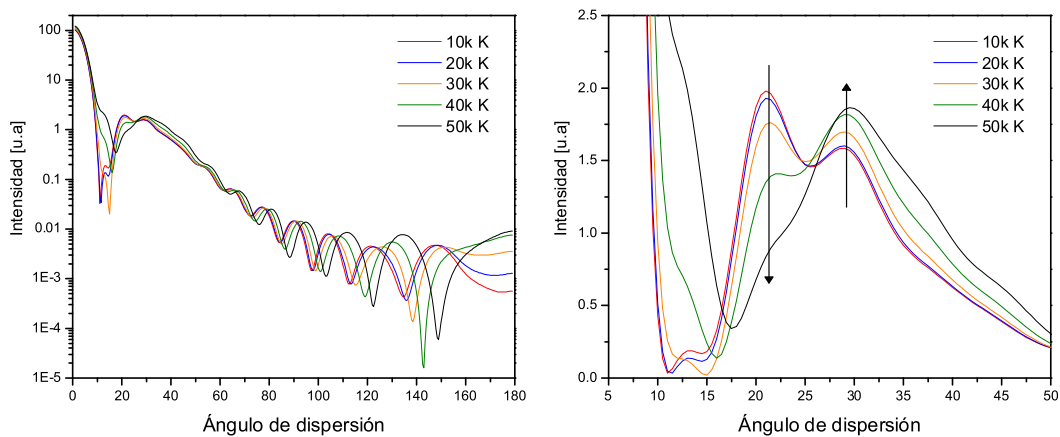
observar que la presencia del plasma en el interior de la burbuja no produce cambios significativos sobre el índice de refracción tanto real como imaginario excepto en una pequeña región cerca de la pared de la burbuja donde el índice de refracción real aumenta casi al doble. Esto se debe a la mayor densidad que existe en esa zona a causa de la relativamente baja temperatura que hay sobre la pared de la burbuja (Figura 2.12). Por este mismo motivo la parte imaginaria del índice de refracción disminuye cerca de la pared. Sin embargo, estos pequeños cambios en el índice de refracción ocasionan un cambio relativamente más importante en la dispersión angular de la luz incidente.

Por otro lado, el índice de refracción en el medio líquido (la solución de ácido sulfúrico al 85%) es de 1.438 en condiciones normales (300K y 1atm). Es importante notar aquí que el fluido que rodea a la burbuja en el momento del colapso está sometido a una presión relativamente elevada ( $\sim 11kbar$ ). Esta presión extrema comprime el líquido modificando de esta manera su índice de refracción. Podemos estimar el cambio de índice de refracción

utilizando la ecuación de Clausius -Mossotti (Ecuación 2.20). Allí se relaciona el índice de refracción con la densidad del medio. Utilizando la compresibilidad del ácido sulfúrico ( $2,59 \cdot 10^{-10} Pa^{-1}$ ) y la Ecuación 2.20 obtenemos que el índice de refracción se incrementa a 1.661 ( $\sim 15\%$ ) al aumentar la presión en 11kbar. En los cálculos de la dispersión angular utilizaremos este valor para el índice de refracción del medio infinito que rodea a la burbuja.

Para el cálculo de la dispersión angular se utilizó una discretización del índice de refracción en 200 capas (Ver Apéndice A). Esto aseguraba la convergencia del cálculo ( las capas tienen un espesor de  $\sim \lambda/70$ ).

En la Figura 8.5 pueden observarse los resultados obtenidos para la dispersión de una onda plana de 590nm que incide sobre los perfiles de índice de refracción dado por la Figura 8.4.



**Figura 8.5:** Dispersión angular de luz dada por un perfil de índice de refracción como el mostrado en la Figura 8.4 para distintos valores de temperatura máxima. El índice de refracción en el medio exterior es de 1.661. La longitud de onda para el cálculo se tomó igual a 590nm. En la Figura de la derecha se muestra una ampliación (en escala lineal) de la región de interés. Con flechas se indica la evolución a medida que aumenta la temperatura máxima.

Aquí vemos que la intensidad de luz dispersada presenta características similares en todos los casos. La intensidad disminuye rápidamente para ángulos más grandes (back scattering). Sin embargo, el detalle de las diferentes oscilaciones varía en forma apreciable al cambiar la temperatura máxima en el centro de la burbuja. Esta sensibilidad con la temperatura es la que se utilizará como “termómetro” para el plasma interior.

Si bien las oscilaciones que aparecen en la región de los 80 a 160 grados son muy convenientes para estimar el valor de temperatura (la medición de la posición de los máximos es muy robusta), la intensidad en esta región es muy baja (casi 3 órdenes de magnitud menor que a 20 grados). Por este motivo, se prefirió realizar la medición de la dispersión para ángulos menores. La parte derecha de la Figura 8.5 muestra un detalle de esta región.

La cámara se ubicó con ángulo central en  $31^\circ$ . El objetivo se colocó a  $15\text{mm}$  del resonador y la cámara a  $40\text{cm}$  del objetivo, de esta manera, se maximiza el ángulo sólido colectado. En este caso es  $\sim 28^\circ$ . Si bien esta configuración aumenta el ángulo sólido, es más sensible a deformaciones en la superficie del resonador.

Un punto muy importante en este experimento es que la iluminación de la burbuja se produzca durante el momento de máxima compresión. Dado que el ancho del pico de temperatura es de  $\sim 4\text{ns}$ , la medición debe realizarse con un error menor a esta cantidad. Por otro lado, la generación del pulso láser presenta una variabilidad temporal respecto del momento en que se produce el pulso de sonoluminiscencia. Esta variabilidad es la suma de las variaciones temporales de cada componente: el láser Nd-Yag, la generación del pulso láser corto (láser de colorantes) y la variación misma de la sonoluminiscencia. De todos estos el más importante es la variación del láser Nd-Yag y la variación total resulta de aproximadamente  $250\text{ns}$  FWHM. Esto significa que aproximadamente el 1% de los pulsos láser coincidirán en una ventana temporal de  $1\text{ns}$  alrededor del pulso de sonoluminiscencia.

Por otro lado, existe un retardo en la detección del pulso de sonoluminiscencia respecto del pulso de láser. Esto es debido a que las señales son medidas con distintos detectores, en distintas posiciones, e incluso debido a que están conectados con diferentes largos de cable<sup>1</sup>.

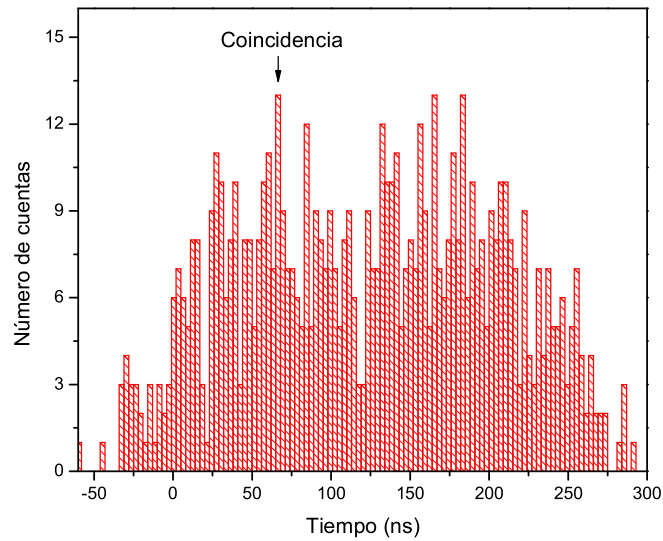
Para realizar la calibración temporal del sistema de medición se retiró el filtro azul delante del fotomultiplicador de forma que ambos detectores (el fotomultiplicador y el LED) midiesen el pulso láser. De esta manera se obtiene “tiempo cero” del sistema. Este tiempo está dominado por el tiempo de demora dentro del fotomultiplicador debido a su modo de funcionamiento (la avalancha de electrones de dínodo a dínodo). Además, esta medición provee una indicación de las fluctuaciones en el sistema completo de medición. Los resultados obtenidos de esta manera indican que el tiempo de demora es de  $68\text{ns} \pm 1,5\text{ns}$ . Para realizar la determinación de la dispersión angular se tomaron dos series de 800 fotografías. La primera cubriendo todas las fases de la evolución temporal de la burbuja y la segunda sólo en el tiempo de colapso. En la Figura 8.6 se muestra el histograma de los tiempos medidos por el timer para la segunda serie.

Aquí vemos que de las 800 fotos tomadas, un total de 13 fotografías se encuentran en una ventana temporal de  $3\text{ns}$  alrededor del tiempo de coincidencia ( $68\text{ns}$ ).

La primera serie de fotografías pueden ser utilizadas para determinar la intensidad de luz que se espera medir en la fase de colapso. Utilizando el hecho de que la intensidad dispersada es proporcional al cuadrado del radio (Sección 3.2.1) obtenemos que la intensidad medida en el colapso ( $R = 1,66\mu\text{m}$ ) será aproximadamente 1000 veces menor que durante la expansión ( $R = 55\mu\text{m}$ ).

Las 13 fotografías correspondientes a la ventana temporal del colapso presentaban una intensidad de luz muy baja (de unos pocos bits), consistente con la intensidad de luz medida para radios mayores (la cámara se saturaba en proximidades del radio máximo). Del total de 13 fotografías, todavía se puede realizar una ulterior selección teniendo en cuenta la intensidad de luz detectada. Las fotografías que se tomaron durante el momento

<sup>1</sup>Para un coaxil de  $50\Omega$  de impedancia característica ( $c_{coaxil} = 2 \cdot 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ ), un metro de cable produce  $5\text{ns}$  de demora.



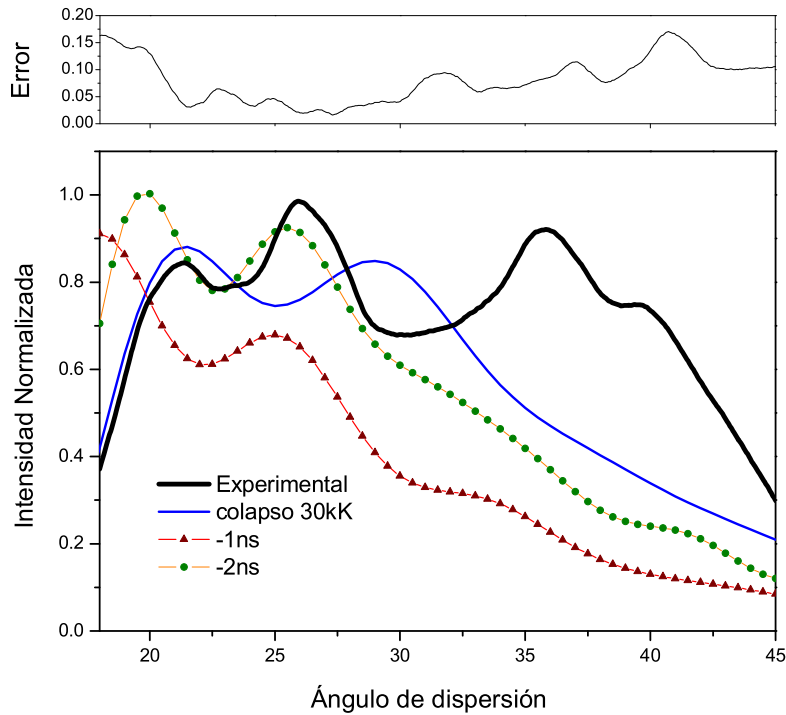
**Figura 8.6:** Histograma de los tiempos de arribo del pulso del láser respecto del pulso de sonoluminiscencia como son medidos por el timer. La coincidencia real de ambos pulsos ocurre para el valor de  $t = 68ns$  indicado en la figura con una flecha. El histograma está calculado con un bin de  $3ns$

del colapso tendrán una intensidad menor debido a que la burbuja es más pequeña. Por otro lado, el láser de colorantes presenta también fluctuaciones en intensidad que pueden enmascarar esta característica. Se decidió retirar del análisis sólo las fotografías que tenían una intensidad mucho mayor que la media (un total de 5). Las 8 fotografías restantes fueron promediadas sobre las columnas en un ancho de 50 filas. Se aplicó sobre el resultado un filtro pasabajos (moving average) de 70 píxeles ( $\sim 4^\circ$ ) para eliminar las fluctuaciones de la intensidad debidas a pequeñas deformaciones de la imagen por imperfecciones en la superficie del resonador.

El resultado de este procesamiento de los datos se muestra en la Figura 8.7. En esta Figura se muestran además distintas predicciones teóricas de la dispersión de luz en diferentes circunstancias.

Los resultados experimentales presentan cierta similitud con la curva esperada para el colapso, en la región de ángulos de dispersión bajos (entre  $18^\circ$  y  $25^\circ$ ). Las diferencias en el resto del gráfico son más grandes e incluso mayores a la dispersión de las 8 curvas utilizadas para el cálculo (mostrada en la parte superior de la Figura).

Debido a la incerteza de  $\pm 1,5ns$  en la determinación del tiempo de colapso es posible que la diferencia se deba a que las imágenes fueron tomadas cuando la burbuja tenía otro tamaño. Para ello se calculó cual sería la dispersión de luz momentos antes del colapso. Las dos curvas restantes de la Figura 8.7 son los resultados de la dispersión para la misma burbuja pero  $1ns$  y  $2ns$  antes del colapso. Se usaron para este cálculo las condiciones dentro de la burbuja dadas por la temperatura y densidad en esos instantes (Figura 8.3) así como también se tuvo en cuenta el cambio de índice de refracción del ácido sulfúrico



**Figura 8.7:** Resultado experimental de la dispersión angular del pulso láser. Se muestran también la curva correspondiente a la predicción teórica para el momento del colapso ( $T = 30kK$ ) y las predicciones para momentos anteriores al colapso. Las curvas fueron normalizadas de forma tal que la intensidad sea comparable. En la parte superior se muestra la varianza de las 8 curvas experimentales promediadas.

por el aumento de presión.

Estas curvas difieren aún más con la medición realizada y en este caso se pierde la similitud entre los  $18^\circ$  y  $25^\circ$ . Un promediado de estas curvas tampoco puede dar cuenta del pico ubicado en  $\sim 36^\circ$  que se obtiene en la medición experimental.

## 8.4. Discusión y Conclusiones

La determinación de las características de burbujas *grandes* utilizando la dispersión de luz con un laser ha sido muy exitosa. Este método fue utilizado en el Capítulo 7 para estimar el radio de la burbuja obteniendo un acuerdo muy bueno entre el experimento y el cálculo (Ver Figura 7.3).

Sin embargo, los resultados de la Figura 8.7 muestran un pobre acuerdo entre las mediciones realizadas y las predicciones teóricas para la dispersión de luz en el momento del colapso.

La determinación de la intensidad de luz para radios de burbuja mayores son consistentes con los obtenidos durante las mediciones en el colapso. A pesar de que esta intensidad

es muy baja (solo de algunos bits) el hecho de utilizar un detector CCD permite realizar un promediado sobre una gran cantidad de píxeles (3500 en el caso de la Figura 8.7). De esta forma es posible obtener una relación señal-ruido aceptable aún en circunstancias de muy baja intensidad, como ocurre en este caso.

Las diferencias obtenidas no parecen provenir de un error en la estimación de la temperatura dentro de la burbuja ya que ninguna de las curvas de la Figura 8.5 muestra un mejor acuerdo con los datos medidos.

Por otro lado, al evaluar la dispersión de luz en otros instantes distintos del colapso, queda claro que un error en este parámetro tampoco puede ser el responsable de las diferencias observadas. Más aun, una combinación de estas curvas (que puede surgir a partir del promediado que se realizó de las 8 curvas experimentales) en ningún caso puede producir el pico que se observa cerca de los  $36^\circ$ .

Una posible causa de diferencias respecto de las predicciones teóricas puede provenir de la formación de una onda de compresión en el líquido en el momento del colapso [38]. Esta onda de compresión puede modificar el índice de refracción del líquido produciendo una diferencia en la dispersión angular del pulso del láser.

En cualquier caso la técnica parece ser apropiada para determinar la temperatura de la burbuja, ya que presenta una gran sensibilidad a este parámetro (Figura 8.5) y es necesario seguir trabajando para encontrar una respuesta a las diferencias obtenidas.





# Capítulo 9

## Generación de pulsos de alta presión

Teniendo en mente obtener la máxima concentración de energía en un proceso sonoluminiscente es necesario contar con la capacidad experimental de lograr una compresión de las burbujas a presiones elevadas. La idea central en este tipo de aplicaciones es someter a una burbuja a un pulso de presión en forma transitoria para obtener la compresión rápida de los gases contenidos dentro de esta.

Una primera aproximación sencilla al problema se describe en este capítulo. Se analizan las capacidades y limitaciones en un sistema mecánico de compresión.

Además se realizan medidas de la evolución de una burbuja generada por un pulso láser sincronizada en diferentes fases respecto del pulso de presión.

### 9.1. Introducción

La primera aproximación al problema de obtener altos niveles de compresión del líquido que rodea a una burbuja es el uso de una compresión mecánica directa sobre el fluido. Los requerimientos para obtener una máxima concentración de energía incluyen obtener una elevación de la presión suficientemente rápida y la generación de presiones máximas que alcancen valores altos.

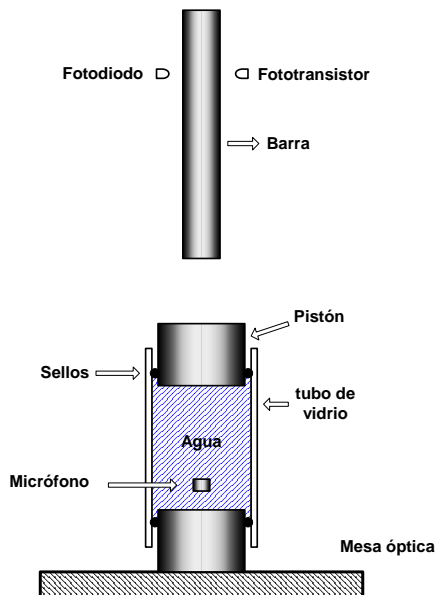
### 9.2. Dispositivo Experimental

En la Figura 9.1 se muestra un esquema del dispositivo utilizado para producir pulsos de alta presión. Se utilizó en este caso un cilindro de vidrio de  $2mm$  de espesor de pared y de  $25mm$  de diámetro interior. Este cilindro se cerró en ambos extremos con dos pistones de aluminio de  $30mm$  de largo con sellos de goma tipo O-ring que aseguraban la estanqueidad del dispositivo. La distancia entre los pistones (cantidad de agua) era de  $\sim 70mm$ . El pistón inferior estaba asegurado directamente a la mesa óptica mediante un espárrago pasante.

Una barra de acero de  $12mm$  de diámetro se dejaba caer de una altura específica sobre el pistón superior. De esta manera, el golpe de la barra sobre el pistón produce un aumento de la presión en el líquido contenido dentro del cilindro.

La barra se deslizaba sobre tres guías circulares y la altura desde la cual se liberaba estaba graduada con un tornillo que hacia las veces de tope. De esta manera se consiguieron pulsos de presión muy repetitivos.

La posición de la barra era medida mediante un conjunto fotodiodo-fototransistor ubicado



**Figura 9.1:** Dispositivo para producir pulsos de alta presión. Una barra de acero cae por acción de la gravedad sobre un pistón que comprime el líquido dentro de un cilindro de vidrio sellado. La medición directa de la posición de la barra mediante un conjunto fotodiodo-fototransistor permite calcular la fuerza ejercida por la barra en el golpe.

en el extremo libre de la barra cuando se encuentra en contacto con el pistón superior. La señal del conjunto era calibrada dejando caer la barra de una distancia conocida retirando el pistón para que siguiese descendiendo. De esta manera se podía calibrar la posición en función del tiempo conociendo la velocidad de la barra. Esta calibración se verificó con algunos valores medidos directamente con un micrómetro. Se usó finalmente un ajuste con un polinomio de grado tres de los valores medidos.

La señal del conjunto fotodiodo-fototransistor era adquirida en el primer canal de un osciloscopio. De esta manera era posible medir la posición de la barra en función del tiempo en el momento del golpe. Derivando esta señal se obtenían la velocidad y aceleración de la misma.

Una vez determinada la aceleración de la barra, y conociendo la masa de la misma, se podía estimar la presión en el líquido como función del tiempo.

Por otro lado, se introdujo dentro del cilindro, inmerso en el agua, un micrófono piezoelectrico. La señal de este micrófono era medida en el segundo canal del osciloscopio.

Por otro lado se utilizó una descarga de un pulso laser ( Nd:Yag  $532nm - 20mJ - 20ns$ ) para generar una burbuja en el seno del líquido. El pulso de luz era focalizado en el centro del cilindro utilizando un ocular de  $18mm$  de distancia focal. El láser fue disparado por la señal del fototransistor que determinaba la posición de la barra. El momento exacto de generación del pulso era ajustado utilizando una demora variable en el disparo, de manera de hacer coincidente la generación de la burbuja con el pulso de presión producido por la caída de la barra sobre el pistón.

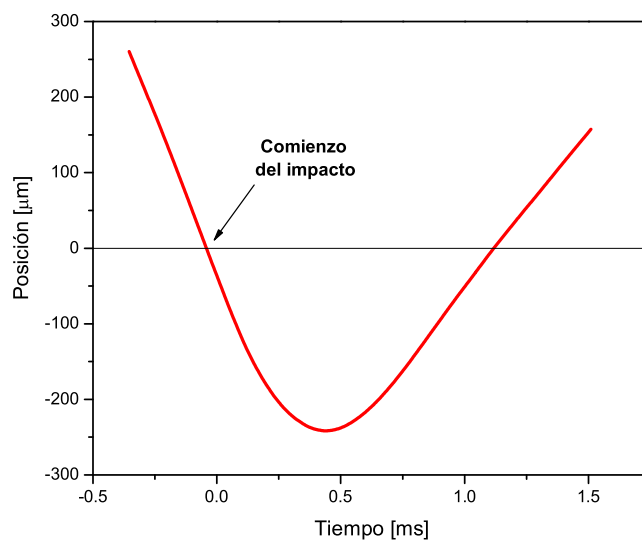
Para poder observar la evolución de la burbuja creada utilizamos la técnica de Mie scattering tradicional. Iluminamos con un haz láser continuo de He-Ne ( $632nm - 30mW$ ) la

zona de creación de la burbuja y medimos la luz dispersada con un fotomultiplicador. Se utilizó en este caso un filtro con corte en  $\lambda = 600nm$  para eliminar el pulso de luz verde del Nd:YAG.

### 9.3. Resultados

En la Figura 9.2 se muestran los resultados obtenidos para la posición de la barra en función del tiempo para el momento de contacto entre la barra y el pistón.

La distancia indicada como cero es la posición inicial del pistón. De esta manera el cruce



**Figura 9.2:** Posición de la barra en función del tiempo en el momento del golpe con el pistón. La distancia indicada como cero es la posición inicial del pistón. La barra en este caso pesaba  $300gr$  y se dejó caer de una altura de  $37,25mm$ .

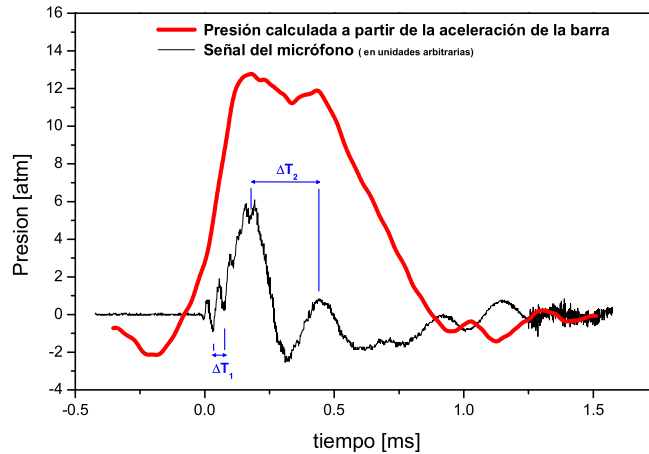
por cero de la posición de la barra indica el momento de contacto. La separación entre la barra y el pistón en cambio, puede producirse en otro punto diferente de cero dependiendo del movimiento del pistón. Veremos luego que la separación se produce de hecho un poco antes de este punto.

La velocidad a la que llega la barra al pistón, obtenida a a partir de la primera derivada de esta curva, es de  $0,87\frac{m}{s}$  que coincide muy bien con el valor calculado a partir de la altura de la caída y utilizando una aceleración de  $g = 9,8\frac{m}{s^2}$ . De esta manera obtenemos  $\sqrt{2gh} = 0,854\frac{m}{s}$ . La velocidad a la que vuelve la barra hacia arriba luego del impacto es de aproximadamente  $0,4\frac{m}{s}$ , lo que equivale a decir que en el impacto perdió cerca del 80 % de su energía ( $\sim 0,09J$ ).

A partir de los datos de la Figura 9.2, es posible obtener la velocidad y aceleración de la barra en función del tiempo, y conociendo la masa de la barra y el area de pistón es posible calcular el valor de la presión en función del tiempo dentro del cilindro necesaria

para producir esta fuerza sobre la barra.

En la Figura 9.3 se muestran los resultados obtenidos de este cálculo y la señal medida por el micrófono dentro del cilindro. En esta figura puede observarse que la presión generada



**Figura 9.3:** Presión dentro del cilindro calculada a partir de los datos de la Figura 9.2. Este cálculo se realizó considerando que la fuerza necesaria para cambiar la velocidad de la barra es producida por la presión en el líquido. Se muestra además la señal del micrófono dentro del cilindro en unidades arbitrarias.

de esta manera puede alcanzar valores del orden de las  $10\text{atm}$ . Los valores de presión negativa observados antes del impacto pueden asociarse a limitaciones en el sistema de medición utilizado, en particular, el cálculo de una derivada segunda de la señal introduce un error apreciable.

Un punto a notar es que la presión calculada vuelve a tomar valores cercanos a cero cerca de  $900\mu\text{s}$  después del comienzo del impacto. Esto significa que la barra se separa del pistón bastante antes de alcanzar nuevamente la posición igual a cero ( $\sim 1100\mu\text{s}$ ) como puede verse en la Figura 9.2. Dicho de otra manera, podemos ver que el pistón descendió  $\sim 150\mu\text{m}$  debido al impacto.

La señal medida con el micrófono inmerso en el líquido se incluyó también en la figura en unidades arbitrarias. En la figura se indicaron dos tiempos característicos de la señal del micrófono. El primero ( $\Delta T_1 \sim 44\mu\text{s}$ ) está asociado al tiempo necesario para que una onda de sonido recorra la distancia entre los pistones ( $d/c = 44,4\mu\text{s}$ ) donde se utilizó una velocidad del sonido de  $1575\frac{\text{m}}{\text{s}}$ .

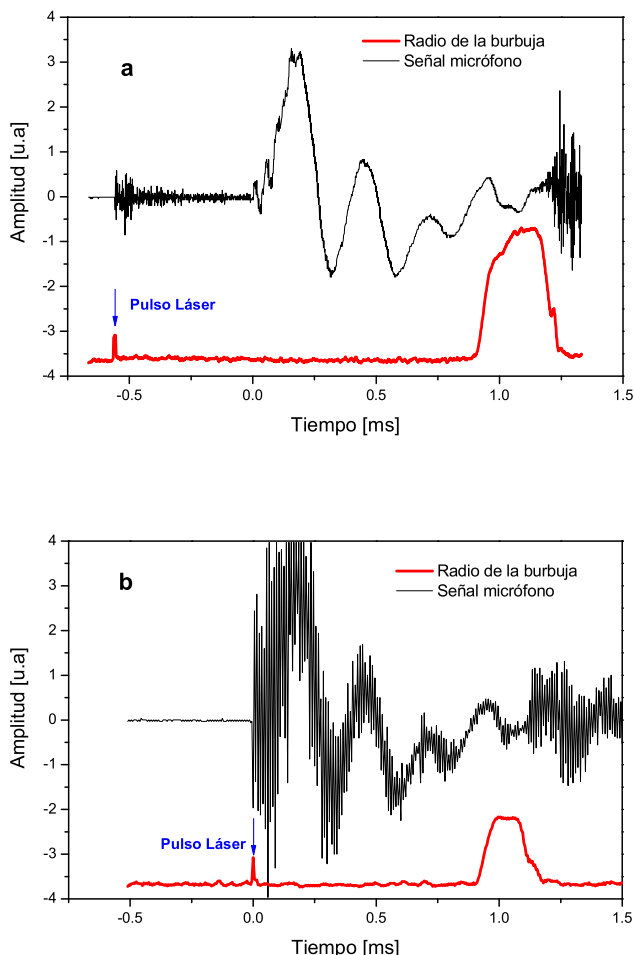
El segundo ( $\Delta T_2 \sim 265\mu\text{s}$ ) está asociado a la frecuencia de resonancia del conjunto ( $\sim 3760\text{Hz}$ ). Esta frecuencia de resonancia se puede recuperar con un buen grado de aproximación calculando el modo fundamental de oscilación de un cilindro de agua de  $70\text{mm}$  de largo que en uno de sus bordes está fijo y en el otro extremo desplaza una masa igual al peso del pistón superior de aluminio. De este cálculo se obtiene un valor de frecuencia de  $3805\text{Hz}$ .

De esta forma la señal del micrófono es la suma de varias contribuciones debido al estable-

cimiento de condiciones de presión dentro del cilindro en forma transitoria. Las primeras reflexiones de la onda de presión que genera el contacto con la barra se amortiguan rápidamente. Luego el líquido permanece oscilando en su frecuencia fundamental que también se amortigua en algunos ciclos. Si observamos el valor medio de la presión sin tener en cuenta estas variaciones de frecuencia relativamente elevada encontramos que la presión aumenta durante los primeros instantes del golpe pero luego se produce una disminución de la presión a valores negativos (tracción en el líquido).

En las Figuras 9.4a y 9.4b se muestra la evolución temporal del radio de burbujas generadas por un pulso láser  $500\mu s$  antes del pulso de presión y coincidente con el pulso de presión respectivamente. En estas figuras se muestra además la señal proveniente del micrófono.

Las condiciones en que fueron realizados estos experimentos coinciden con los de las Figuras 9.2 y 9.3, en tanto que se utilizó una barra que pesaba  $300gr$  y se dejó caer de una altura de  $37,25mm$ . En la Figura 9.4a la burbuja que se genera inicialmente es tan



**Figura 9.4:** Señal del micrófono dentro del cilindro y tamaño de la burbuja en unidades arbitrarias. El radio es obtenido a partir de la raíz de la señal del fotomultiplicador. Se generó una burbuja focalizando un pulso láser en el centro del cilindro aproximadamente  $500\mu s$  antes del pulso de presión (a) y coincidente con el pulso de presión (b). En ambas figuras se desplazó el valor del radio para facilitar la visualización.

pequeña que su tamaño se confunde con el nivel de fondo en la señal del fotomultiplicador. El pulso que puede observarse en el momento de la generación es debido al pulso del laser

verde. Debido a su elevada intensidad, no es filtrada completamente y es detectado por el fotomultiplicador.

En el micrófono puede observarse una señal de alta frecuencia en el momento del disparo del láser. Esto se debe a la emisión de una onda de presión que se produce durante formación de la burbuja.

Durante el pulso de presión que produce el golpe de la barra sobre el pistón no se distingue ninguna evolución de la burbuja mas allá del ruido de fondo del fotomultiplicador. Sólo luego de que la barra comienza a separarse del pistón aproximadamente  $900\mu s$  después del contacto, puede observarse el crecimiento de una burbuja que luego de unos  $320\mu s$  colapsa y aparentemente desaparece. Si bien no se realizó la calibración correspondiente debido al nivel de intensidad medida se puede indicar que el tamaño máximo de esta burbuja es del orden del milímetro.

En el momento del colapso de la burbuja puede notarse nuevamente una señal de alta frecuencia debida a la onda de presión emitida durante el colapso.

Cuando la burbuja es generada en coincidencia con el comienzo del pulso de presión (Figura 9.4b) la situación no presenta cambios significativos. La emisión de ultrasonido en alta frecuencia es mayor al principio, indicando que la burbuja formada por el láser presenta una dinámica más violenta, sin embargo, no se detecta la existencia de alguna burbuja en la señal del fotomultiplicador en esta parte del pulso de presión.

Nuevamente se detecta la expansión de una burbuja cuando la barra se separa del pistón. En este caso el tamaño y el tiempo de colapso ( $260\mu s$ ) son menores que en la Figura 9.4. También se detecta en este caso un incremento en la alta frecuencia del micrófono cuando la burbuja colapsa.

## 9.4. Discusión

Si bien el uso de esta técnica permite generar pulsos de presión relativamente intensos ( $\sim 10atm$ ), no se verifica en ninguno de los experimentos realizados la existencia de un pulso de sonoluminiscencia proveniente del colapso de una burbuja.

Este hecho está relacionado principalmente con la velocidad en la que se establecen los valores altos de presión dentro del cilindro. Teniendo en cuenta la fuerza realizada sobre la barra y despreciando efectos transitorios de la presión dentro del cilindro, el incremento de presión hasta valores cercanos a las  $10atm$  ocurre en aproximadamente  $150\mu s$ . Esta velocidad de crecimiento de la presión no es lo suficientemente alto como para producir un colapso violento de la burbuja y por lo tanto no conduce a la producción de luz por sonoluminiscencia.

Por otro lado, el sistema produce un pulso de tracción en el líquido que se evidencia en una expansión de la burbuja generada previamente con el láser. Este pulso de presión negativa se produce cuando la barra se despega del pistón y el sistema intenta recuperar su posición inicial.

La generación de esta expansión también podría producir un colapso lo suficientemente violento como para generar un pulso de sonoluminiscencia. Esto último no fue detectado en ninguno de los experimentos realizados. Es posible en este caso que la presión media en la cual se desarrolla el colapso no sea lo suficientemente alta como para producir un colapso violento.

## 9.5. Conclusiones

Se caracterizó la generación de pulsos de alta presión utilizando un sistema mecánico sencillo. Este sistema, compuesto de un conjunto cilindro-pistón recibe el impacto de una barra metálica que se acelera en caída libre sobre el pistón.

Se encontró que de esta manera se pueden generar de manera simple, pulsos de presión de  $\sim 10atm$  y  $800\mu s$  de duración. Se pudo observar que el establecimiento de la presión en el seno del líquido se produce a través de varios procesos transitorios donde intervienen las reflexiones entre las paredes de los pistones y el movimiento de oscilación natural del conjunto cilindro-pistón.

Con la intención de utilizar este sistema en la producción de pulsos de sonoluminiscencia, se generaron burbujas focalizando un pulso láser en el interior del cilindro. Estas burbujas eran sometidas entonces a estos pulsos de presión generados por el impacto. Se encontró que la velocidad de crecimiento de la presión en el líquido no era lo suficientemente rápida para producir el colapso violento de las burbujas.

Por último, se encontró que cuando la barra se despega del pistón en el rebote de la misma, se produce un pulso de tracción en el cilindro. Este pulso de tracción expande las burbujas generadas por el láser independientemente del momento en que hayan sido generadas, alcanzando tamaños del orden del milímetro. El posterior colapso de estas burbujas tampoco produce un pulso de sonoluminiscencia debido probablemente a la baja presión media a la que se encuentran.





# Capítulo 10

## Martillo Líquido

En el Capítulo 9 estudiamos un dispositivo sencillo para obtener pulsos de alta presión que utiliza una compresión mecánica directa del líquido contenido en un cilindro. Allí vimos que un limitante de este mecanismo era la velocidad relativamente baja en la que se establecían valores elevados de presión. En este capítulo se estudiará un sistema mecánico diferente que tiene la capacidad de eliminar esa limitación.

La forma de producir un cambio rápido en la presión se basa en la generación de una onda de compresión haciendo uso del fenómeno conocido como martillo líquido. Este fenómeno se produce cuando el líquido dentro de un conducto es desacelerado rápidamente por ejemplo por una válvula o el final del tubo mismo. En este capítulo se estudiarán las capacidades de un sistema de este tipo para producir la compresión rápida de burbujas y generar pulsos de sonoluminiscencia de alta intensidad [80].

### 10.1. Introducción

El fenómeno de martillo líquido o golpe de ariete se produce cuando el flujo dentro de una cañería es detenido en forma abrupta como por ejemplo con el cierre rápido de una válvula. Este tipo de fenómeno ha sido estudiado desde principios del siglo XIX por tener gran importancia en el diseño de sistemas hidráulicos, sobre todo en los de gran tamaño, donde los efectos de este fenómeno pueden ser muy destructivos.

La característica principal de este fenómeno se centra en que durante la desaceleración brusca de un fluido se produce un aumento de presión que compensa la pérdida de momento del fluido que se detiene. Debido a que la información del cierre de la válvula se propaga en el conducto a la velocidad del sonido en el líquido, la cantidad de líquido que se detiene por unidad de tiempo será proporcional a esta. Debido a ello, la presión sobre la válvula será proporcional a la velocidad del sonido en el líquido. Por último, la cantidad de momento que transporta el líquido es proporcional a la velocidad inicial y a la densidad de este. De esta forma, la presión máxima que puede alcanzarse estará dada por  $P_{Max} = \rho Vc$ . Para una deducción completa se puede consultar [81, 82].

En un caso típico con agua ( $\rho = 1000 \frac{Kg}{m^3}$ ,  $c \sim 1500 \frac{m}{s}$ ) a  $V = 1 \frac{m}{s}$  obtenemos un valor de  $P_{Max} \sim 15bar$ .

Este abrupto cambio de presión que se produce en la columna líquida puede ser utilizado para comprimir burbujas que se encuentran en el seno del líquido. Estas burbujas pue-

den alcanzar un gran tamaño y por lo tanto una gran energía mecánica acumulada. Esta energía acumulada es posible transferirla a los gases dentro de la burbuja en el momento de máxima compresión.

Si bien se conoce esta capacidad desde hace casi cinco décadas [83], sólo recientemente se ha considerado su utilización como una posible forma de aumentar la concentración de energía en sonoluminiscencia [84, 15].

En su trabajo, Su *et al.* [84] encontraron que utilizando agua con algunos milibares de xenon disuelto se registraban pulsos individuales de luz de hasta  $10^8$  fotones (cerca de 10 veces más que en sonoluminiscencia en resonadores). Sin embargo, los resultados eran muy difíciles de reproducir debido a que se formaban burbujas en toda la columna líquida y de una forma imprevisible.

Esta condición fue mejorada a partir de los experimentos de Chakravarty *et al.* [15]. En este trabajo mejoraron la estabilidad espacial de las burbujas haciendo girar el tubo que formaba el martillo líquido de forma tal que las burbujas eran confinadas en el eje de rotación vertical. Por otro lado, utilizando líquidos de viscosidad relativamente alta, pudieron obtener sonoluminiscencia estable de burbujas que emitían pulsos de luz en cada ciclo de la agitación.

Con un sistema de este tipo, utilizando ácido fosfórico concentrado como fluido y disolviendo cerca de  $30\text{mbar}$  de xenon obtuvieron pulsos de luz con una emisión de hasta  $10^{12}$  fotones por pulso, casi cuatro órdenes de magnitud por encima de los encontrados en sonoluminiscencia en agua.

Sin embargo, en su trabajo no profundizaron en las razones por las cuales podían conseguirse estas intensidades ni en la dinámica de las burbujas en este tipo de sistemas.

En este capítulo estudiaremos la producción de pulsos de luz en un sistema formado por ácido fosfórico concentrado en el cual se disolvió una pequeña cantidad de xenon. Este sistema es capaz de producir en forma repetitiva los pulsos de luz más intensos reportados hasta el momento.

### 10.1.1. Diferentes maneras de obtener sonoluminiscencia

La producción de pulsos de luz en un martillo líquido puede realizarse de varias maneras. La forma más simple es golpeando el tubo simplemente con la mano. Sosteniendo verticalmente el tubo con una mano, se golpea hacia abajo el tubo con la otra mano. Puede observarse en este caso la formación de una burbuja en la base del tubo que crece y luego colapsa. El colapso de esta burbuja es acompañado por un sonido seco que corresponde al pulso de presión que genera la detención abrupta del fluido dentro del tubo. La primer forma de obtener un pulso de luz es proveniente de la misma burbuja inferior en el momento del colapso. Estos pulsos se caracterizan por ser muy breves ( $< 10\text{ns}$ ) y no ser muy repetitivos.

Luego de varios golpes, algunas burbujas son atrapadas en la columna líquida, principalmente por el salpicado en la superficie libre. Estas burbujas pueden entonces producir también pulsos de luz en coincidencia con el colapso de la burbuja inferior. Estos pulsos de luz son en general más intensos y de mayor duración que los producidos en la burbuja inferior. En este caso se pueden detectar muchos pulsos de diferente intensidad en una ventana temporal de algunas decenas de microsegundos y aparecen entre  $50$  y  $150 \mu\text{s}$

luego del colapso de la burbuja inferior.

La forma de obtener los pulsos de luz más intensos y en forma repetitiva es montando el tubo en un dispositivo que lo mueva senoidalmente en forma vertical. El tubo debe estar girando para poder obtener un comportamiento estable de las burbujas. En este caso en la burbuja inferior obtenemos pulsos breves ( $< 10ns$ ) aunque más intensos que antes. Luego de un tiempo de funcionamiento, algunas burbujas son atrapadas en la parte media del tubo. Estas burbujas, a diferencia del caso en que el tubo no gira, son producidas por la coalescencia de pequeñas burbujas producidas en el colapso de la burbuja inferior. A medida que el martillo sigue funcionando, se pueden observar en unas pocas burbujas (las más grandes) pulsos de luz cuya intensidad y duración van aumentando. Luego de unos minutos se pueden obtener valores de hasta  $3 \cdot 10^{12}$  fotones por pulso y más de  $400ns$  de ancho altura mitad. Estos valores son los más grandes reportados hasta el momento en sonoluminiscencia. En este punto la burbuja ya no es mantenida en el centro del tubo y asciende hacia la superficie libre. Otra diferencia importante respecto del caso en que el tubo es simplemente golpeado con la mano es que la producción de luz aparece cerca de  $3ms$  luego del colapso de la burbuja inferior. En este trabajo nos concentramos en el estudio de la dinámica del martillo en la configuración de máxima emisión de luz.

## 10.2. Dispositivo Experimental

En la Figura 10.1 se muestra un esquema del dispositivo construido para estudiar la dinámica de burbujas en un martillo líquido.

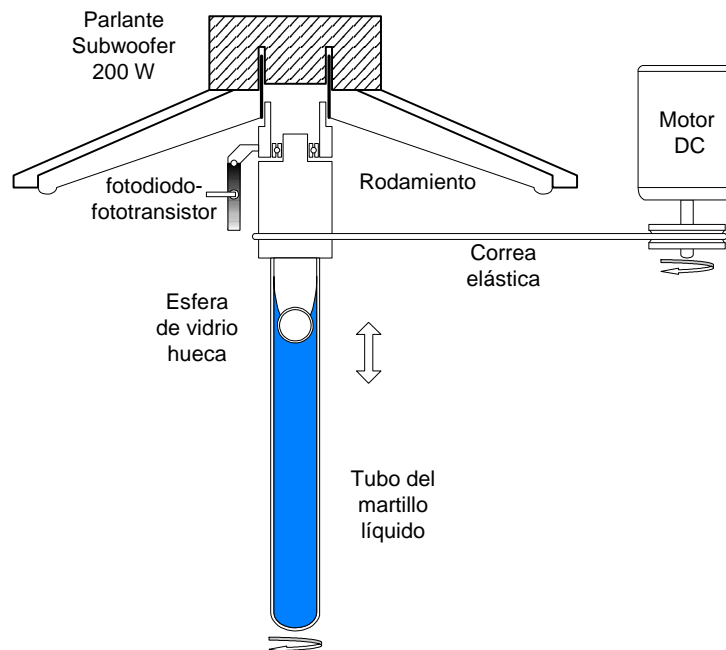
El sistema es similar al usado en [15]. Respecto de este aparato se realizaron tres modificaciones que deben notarse. Primero, el tubo en nuestro caso está suspendido del parlante, y no sostenido desde su base como en [15], de forma tal que es posible en todo momento acceder visualmente a la burbuja que se forma en la base del tubo.

Segundo, para evitar los problemas asociados a la superficie libre del líquido (atrapado de burbujas por salpicado y descenso del nivel central al girar el tubo), se utilizó una esfera de vidrio hueca que flotaba en la superficie. Esta esfera tiene un diámetro  $1mm$  menor que el del tubo. Esto permitió lograr mayor estabilidad en el sistema al evitar la introducción de burbujas a través de la superficie y se pudo aumentar la velocidad de rotación sin una disminución excesiva del nivel de líquido.

Por último, para realizar el movimiento de rotación del tubo, se utilizó un conjunto motor-correa en vez de montar el motor sobre el parlante como en [15]. Esto permite reducir los movimientos libres en la dirección vertical, al mismo tiempo que reduce el peso que debe mover el parlante, aumentando la respuesta en frecuencia del mismo.

Para la construcción de los tubos se utilizó un tubo de Pyrex de  $16mm$  de diámetro exterior y  $1,5mm$  de espesor de pared. El tubo era templado en un horno a  $500$  grados durante  $12$  horas antes del llenado y posterior sellado. Este procedimiento resultó de gran importancia para evitar la ruptura del tubo durante los experimentos.

En los experimentos realizados se utilizó ácido fosfórico como fluido dentro del tubo. Este ácido presenta características muy particulares que lo hacen apropiado para el uso en el martillo líquido. Este ácido tiene una alta densidad ( $1800 \frac{Kg}{m^3}$ ), alta tensión superficial ( $0.08N \cdot m$ ), la viscosidad se puede regular en márgenes bastante amplios variando la



**Figura 10.1:** Dispositivo construido para estudiar la evolución de burbujas durante un golpe de ariete. El tubo con el líquido era agitado utilizando un parlante sub-woofer de 200W. El tubo se montó sobre un rodamiento que le permite girar sobre su eje vertical. La posición vertical se mide utilizando una placa de transparencia gradual montada sobre el soporte del tubo. Un conjunto fotodiodo-fototransistor produce una señal proporcional a la posición.

temperatura o la concentración y sobre todo la presión de vapor es muy pequeña. Por otro lado, este ácido tiene la particularidad de que no se evapora, sino que se deshidrata [15]. Esto significa que el vapor de este ácido está compuesto casi totalmente por agua. Teniendo en cuenta las pruebas realizadas en [15] se utilizó para los experimentos una concentración de ácido superior al 100 % <sup>1</sup>. Partiendo de ácido fosfórico comercial (80 %) se procedía a su concentración calentando la mezcla a 200 grados y manteniendo la presión en aproximadamente 5mbares.

Para determinar la viscosidad del ácido obtenido se medía la velocidad terminal de una burbuja ascendiendo por fuerza boyante. Estas mediciones se realizaban haciendo uso del hecho de que durante el funcionamiento del martillo se producen burbujas en la base del tubo. La viscosidad se puede obtener a partir de la velocidad terminal mediante [85]

$$\mu = \frac{D^2 \rho g}{12V_t}$$

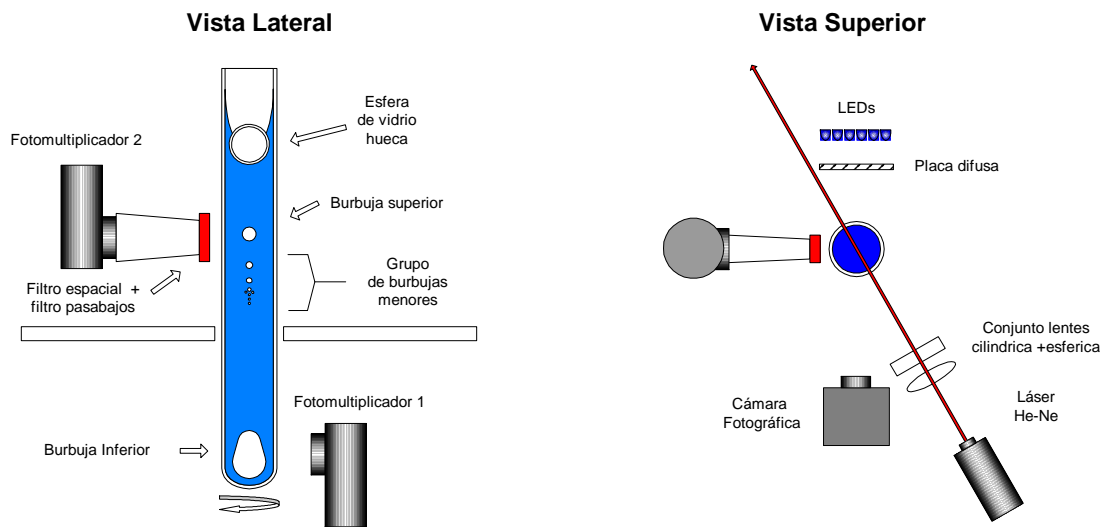
Donde  $V_t$  es la velocidad terminal de la burbuja,  $D$  el diámetro,  $g$  la aceleración de la gravedad y  $\rho$  es la densidad del líquido. Para determinar la concentración del ácido se

<sup>1</sup>Dos moléculas de ácido fosfórico ( $H_3PO_4$ ) se pueden combinar para formar una molécula de ácido pirofosfórico ( $H_4P_2O_7$ ) eliminando una molécula de agua. De la misma manera  $n$  moléculas de ácido pueden combinarse (por la extracción de  $n$  moléculas de agua) para formar  $H_{n+2}P_nO_{3n+1}$ . En el límite de  $n$  muy grande se obtiene el ácido metafosfórico ( $HPO_3$ )

utilizaron tablas que la relacionan con su viscosidad [51].

Por otro lado, para determinar la posición del tubo en función del tiempo, se utilizó una placa semitransparente cuya opacidad varía linealmente con la posición. Esta placa es solidaria al tubo y separa un conjunto fotodiodo-fototransistor fijo a la mesa óptica. De esta forma midiendo la señal obtenida por el fototransistor se puede conocer la posición del tubo.

Para medir la dinámica de las burbujas se utilizaron diferentes técnicas experimentales. Para la determinación de la evolución temporal de la burbuja inferior se utilizó fotografía estroboscópica (ver figura 10.2).



**Figura 10.2:** Esquema de la disposición de los diferentes dispositivos utilizados para determinar la dinámica de las burbujas inferior y superior. Se utilizaron las técnicas de Mie Scattering y fotografía estroboscópica. Las fotografías se tomaron con iluminación frontal de forma tal que las burbujas aparecen oscuras en un campo claro. Se utilizó un filtro espacial para captar la luz dispersada por una única burbuja. Se agregó un filtro rojo para evitar la saturación del fotomultiplicador con el pulso de sonoluminiscencia. Se utilizó otro fotomultiplicador para generar una señal de trigger sincrónica con el colapso de la burbuja superior

Iluminando el tubo a una frecuencia ligeramente menor a la de agitación es posible obtener imágenes en fases relativas de agitación crecientes. De esta manera es posible relevar el ciclo completo de oscilación sin necesidad de realizar todas las fotografías en un solo ciclo. Esta técnica se conoce como muestreo en tiempo equivalente y permite aumentar la frecuencia aparente de muestreo en sistemas periódicos.

Para medir la evolución de las burbujas superiores se utilizó el mismo método que para la inferior y dos técnicas más. La primera consiste en medir la luz dispersada con un fotomultiplicador de la misma manera que se hace en sonoluminiscencia (Sección 2.2.1). Para ello se iluminó la burbuja con láser He-Ne. Este láser se adaptó con un juego de lentes esférica y cilíndrica de forma de generar un plano de iluminación uniforme en la trayectoria vertical de la burbuja.

Por otro lado, para tener una referencia temporal precisa del momento del colapso de

la burbuja inferior, se utilizó otro fotomultiplicador ubicado cerca de la base del tubo, separado mediante una pantalla de las burbujas superiores (ver Figura 10.2, ). Este fotomultiplicador detecta el breve pulso de luz que se produce durante el colapso de la burbuja inferior.

La segunda técnica consiste en utilizar una cámara que desplaza la imagen en forma horizontal a una velocidad controlable. Este tipo de cámaras se las conoce como “Streak camera”. La ventaja de este tipo de fotografías es que se puede obtener una secuencia temporal de imágenes en una sola fotografía y es otra forma de aumentar la velocidad efectiva de la cámara. Esta segunda técnica tiene la ventaja de que no es necesario que el fenómeno sea repetitivo pero reduce la resolución ya que cada fotografía se divide en muchas secuencias.

En una primera serie de experimentos destinados a investigar la evolución de la presión en la columna líquida se utilizó un micrófono piezoeléctrico adherido a la base del tubo. En estos casos no se realizaba la rotación simultánea del tubo alrededor de su eje vertical. La información del micrófono y de los fotomultiplicador eran registradas en un osciloscopio y adquiridas por computadora via conexión IEEE.

### 10.3. Modelo para la Dinámica del Martillo

En esta sección estudiaremos la dinámica de la columna líquida dentro del martillo líquido y de qué manera se producen los pulsos de presión en un sistema de este tipo. Atacaremos el problema inicialmente en una forma muy simplificada de forma tal de obtener una idea sencilla del funcionamiento del sistema. Para ello consideraremos que el líquido se comporta como un cuerpo rígido sin rozamiento, y que en el fondo del tubo puede formarse una burbuja vacía. Aquí encontraremos los parámetros más importantes que definen la producción de los pulsos de presión y obtendremos una estimación de las amplitudes que pueden obtenerse.

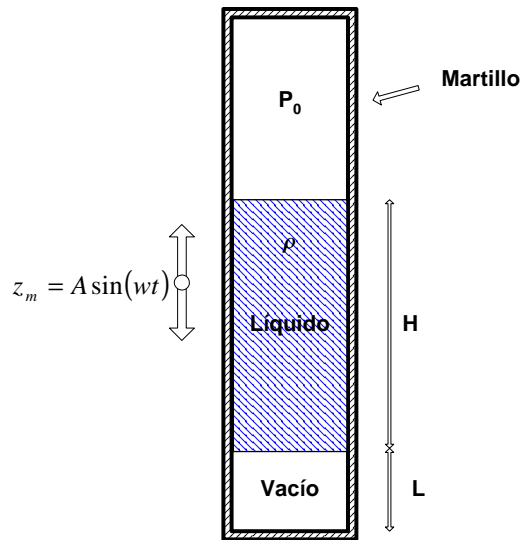
En una segunda etapa desarrollaremos un modelo más preciso, siendo aún una aproximación a la dinámica real, que describe la existencia de una burbuja en la base del tubo. Allí se tendrá en cuenta el efecto de tener una cantidad de gas atrapada dentro de la burbuja además de los efectos de tensión superficial y viscosos en la burbuja.

Finalmente estudiaremos como evoluciona la presión en la columna líquida teniendo en cuenta estos dos modelos de evolución para la burbuja inferior.

#### 10.3.1. Modelo de Cuerpo Rígido

En la Figura 10.3 se muestra un esquema simplificado del martillo líquido. Una columna de líquido se encuentra contenida dentro de un cilindro cerrado en ambos extremos. En el extremo superior del tubo hay una cierta cantidad de gas a una presión  $P_0$ . El líquido eventualmente puede separarse del fondo del tubo y en una primera aproximación podemos suponer que en ese caso se forma una cavidad vacía en la parte inferior del tubo. El movimiento del cilindro se impone exteriormente de forma tal que cumpla con la siguiente ecuación de movimiento

$$z_m = A \sin \omega t \quad (10.1)$$



**Figura 10.3:** Esquema simplificado de la dinámica del líquido dentro del martillo líquido. Se toma el tubo como completamente rígido y con un movimiento senoidal independientemente del movimiento del líquido interior. Se considera al líquido como un cuerpo rígido sin fricción que se puede separar del tubo si la presión en el fondo alcanza un valor umbral  $P_U$ .

donde  $z_m$  es la coordenada  $z$  del martillo,  $A$  es la amplitud de movimiento y  $w$  es la frecuencia de oscilación.

Si el líquido se mantiene adherido al tubo, entonces la presión en la columna líquida puede calcularse en la aproximación de fluido incompresible como

$$P = P_0 + \rho h \left( g + \frac{d^2 z_m}{dt^2} \right) \quad (10.2)$$

donde  $\rho$  es la densidad del líquido,  $g$  la aceleración de la gravedad y  $h$  es la distancia en la columna líquida desde la superficie superior. De esta forma, la presión en  $h = 0$  será siempre  $P_0$  y en  $h = H$  es donde las variaciones de presión serán máximas.

El líquido dentro del tubo puede separarse del fondo del recipiente (se produce el fenómeno de cavitación) cuándo la presión alcanza un valor umbral  $P_U$ .

El valor de esta presión depende de factores como la pureza del líquido, la rugosidad de la superficie interior del tubo y la concentración de gases disueltos. En condiciones apropiadas, la presión que puede soportar un líquido sin cavitarse (separarse) puede ser tan baja como  $200 \text{ atm}$  negativas [23]. Sin embargo, en el caso del martillo líquido es probable que las presiones a las que se despega el líquido no sean muy inferiores a cero. Esto será particularmente cierto cuando el sistema ya este funcionando de modo que en el fondo del recipiente existan pequeñas burbujas restantes del ciclo anterior. Estas burbujas pueden servir como “semilla” para producir la separación del líquido.

Para calcular en qué momento el líquido se separa del recipiente debemos hallar cuando la presión en el fondo del tubo alcanza el valor  $P_U$ . Reemplazando el valor de la derivada segunda en la Ecuación 10.2 obtenida a partir de la Ecuación 10.1 y despejando el tiempo al cual se alcanza la presión  $P_U$  en  $h = H$  obtenemos

$$T_U = \frac{1}{w} \arcsin \left( \left( g + \frac{P_0 - P_U}{H \rho} \right) \frac{1}{A w^2} \right) \quad (10.3)$$

A partir de este instante el líquido describirá una trayectoria determinada por las fuerzas aplicadas sobre el mismo. Si consideramos despreciables los esfuerzos viscosos que aparecen

en el contacto del líquido con la pared del tubo<sup>2</sup>, las fuerzas restantes son la volumétrica de gravedad y la de presión en la superficie superior del líquido. En la superficie inferior la presión es cero, ya que consideramos que la presión de vapor del líquido es despreciable y que la difusión de los gases disueltos en el líquido es lenta comparada con el período del sistema.

Si consideramos además que el cambio de volumen en la parte superior es pequeña y por lo tanto la presión en la parte superior es básicamente constante, el líquido experimentará una aceleración uniforme hacia abajo de magnitud<sup>3</sup>  $g + \frac{P_0}{\rho H}$ . De esta manera podemos describir el movimiento de líquido con una ecuación cuadrática en el tiempo.

$$z_l(t) = z_l(T_U) + V_l(T_U)(t - T_U) + \frac{1}{2} \left( g + \frac{P_0}{\rho H} \right) (t - T_U)^2$$

Teniendo en cuenta que las condiciones iniciales de posición y de velocidad para el líquido en  $t = T_U$  son iguales a las del tubo, tenemos finalmente

$$z_l(t) = A \sin(wT_U) + wA \cos(wT_U)(t - T_U) + \frac{1}{2} \left( g + \frac{P_0}{\rho H} \right) (t - T_U)^2$$

En la Figura 10.4, se muestra un esquema de las cantidades de interés durante un ciclo de movimiento del martillo líquido.

Cuando la presión en el fondo del recipiente alcanza el valor umbral  $P_U$  el líquido y el tubo se separan siguiendo trayectorias diferentes. Este momento es indicado en la figura como una línea vertical en  $t = T_U$ . A partir de ese momento, el líquido comienza a describir una parábola semejante a una caída libre con aceleración  $g + \frac{P_0}{\rho H}$ . Desde ese momento y hasta que el líquido impacta nuevamente con el tubo en  $t = T_I$ , la presión en el líquido será aproximadamente cero. Sólo debido al término  $\frac{P_0}{\rho H}$  en la aceleración, la presión aumentará linealmente en la columna de líquido entre cero y  $P_0$  desde el fondo hasta la superficie respectivamente. Puede verse que esto es necesario para respetar las condiciones de borde para la presión en ambas superficies de la columna líquida.

Es por este motivo que en la Figura 10.4 la presión se dibuja en línea de trazos entre  $T_U$  y  $T_I$  y representa en ese intervalo a la presión en el fondo del tubo si el líquido no se separara.

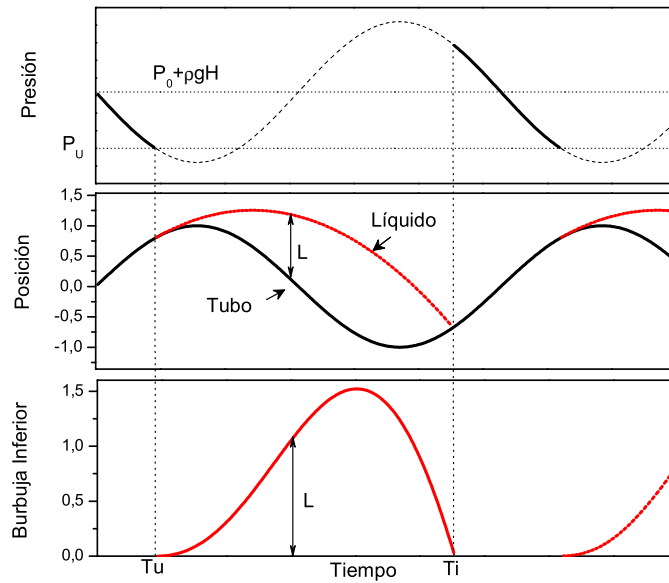
La distancia  $L$  indicada en la figura representa el tamaño de la burbuja inferior como se indica en la Figura 10.3. El ciclo completo se repite en cada oscilación del martillo siempre que  $T_i - T_U$  sea menor al período de oscilación. Si este tiempo supera el período de oscilación probablemente se produzca un doblamiento en el período de emisión.

### 10.3.2. Modelo de Burbuja Inferior

En esta sección describiremos el modelo que desarrollamos para describir la dinámica de la burbuja inferior. En la Figura 10.5 se muestra un esquema simplificado de la disposición del tubo y la burbuja inferior.

<sup>2</sup>El espesor de capa límite se puede estimar considerando una placa plana infinita moviéndose a frecuencia  $w$  sobre un líquido de viscosidad  $\nu$  resultando  $\sqrt{\frac{2\nu}{w}}$  [85]. Para un caso típico ( $w = 150 \frac{1}{s}$  y





**Figura 10.4:** Esquema de la evolución temporal de la presión en el fondo del tubo en relación con la separación del líquido en el fondo del recipiente. Esta separación se produce cuando la presión en el fondo alcanza un valor umbral  $P_U$  en  $t = T_U$ . Luego el líquido describe una parábola e impacta nuevamente con el tubo en  $t = T_I$ . La presión se dibuja en línea de trazos entre  $T_U$  y  $T_I$  debido a que durante ese tiempo la presión en el líquido es  $\sim 0$ .

Aquí  $P_0$  es la presión del gas sobre la superficie libre del líquido,  $P_b$  es la presión dentro de la burbuja,  $\rho$  es la densidad del líquido y  $a$  es la aceleración del tubo.

Consideramos que en el caso en que el tubo se encuentra en reposo, la burbuja inferior posee un radio  $R_0$ . La presión del gas dentro de la burbuja es en ese caso  $P_0 + \rho gh_b + \frac{2\sigma}{R_0}$  donde se han tenido en cuenta el aumento debido a la presión hidrostática de la columna líquida y debido a la tensión superficial ( $\sigma$ ). Esta presión define la cantidad de gas que contiene la burbuja.

Comenzamos planteando la conservación de la energía en un sistema de referencia fijo al tubo (sistema no inercial). El incremento de la energía cinética y potencial del fluido será igual al trabajo realizado por las fuerzas de presión. En este punto despreciamos las pérdidas de energía por esfuerzos viscosos y al final del desarrollo incluiremos una estimación de sus efectos. De esta manera tenemos:

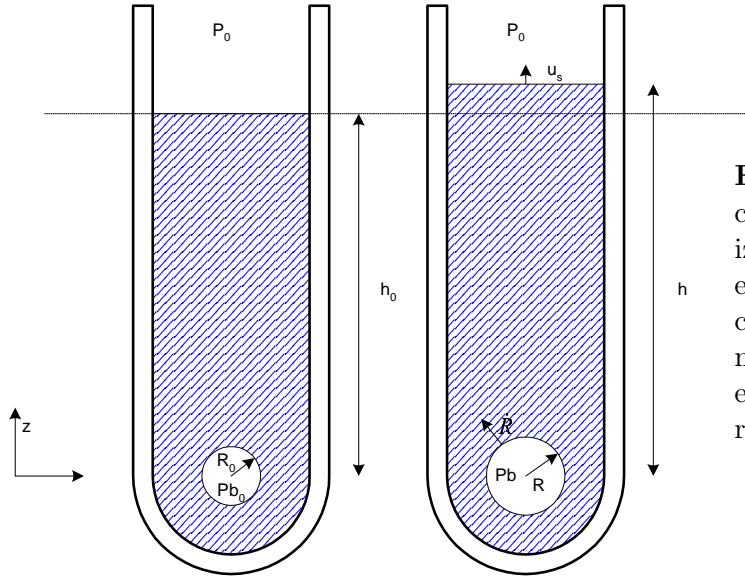
$$d \left[ \frac{1}{2} \int_{\Omega} \rho u^2 dV + (g + a) \int_{\Omega} \rho z dV \right] = (P_b - P_0) 4\pi R^2 dR \quad (10.4)$$

donde  $\Omega$  representa el volumen ocupado por el líquido y  $u$  es la velocidad del líquido (suponemos la masa de gas dentro de la burbuja despreciable).

Si consideramos al fluido como incompresible, la segunda integral del primer miembro la

$\nu = 8 \cdot 10^{-6} \frac{m \times 2}{s}$ ) obtenemos  $\sim 350 \mu m$  que es mucho menor que el diámetro del tubo

<sup>3</sup>En los casos estudiados, la cantidad  $\frac{P_0}{\rho H}$  es de una magnitud comparable a  $g$



**Figura 10.5:** Esquema simplificado de la burbuja inferior. A la izquierda se indica la situación de equilibrio cuando el tubo no se encuentra acelerado. A la derecha se muestra la burbuja en la etapa de expansión. Se indican las variables relevantes del problema.

podemos expresar como

$$\int_{\Omega} \rho z dV = S\rho \int_{-h_b}^h z dz - \int_{\Omega_b} z dV \quad (10.5)$$

donde  $S$  es la sección transversal del tubo, y  $\Omega_b$  es el volumen ocupado por la burbuja. Durante este desarrollo consideraremos que la burbuja permanece esférica y con su centro en  $z = 0$  a todo tiempo por lo que la última integral se anulará (la integral es impar). Por otro lado, utilizando la conservación de masa podemos relacionar el  $dR$  con el  $dh$  mediante

$$4\pi R^2 dR = S dh \quad (10.6)$$

Definiendo

$$\beta \equiv \frac{1}{S} \int_{\Omega} \frac{u^2}{u_s^2} dV \quad (10.7)$$

donde  $u_s$  es la velocidad de la superficie libre del líquido.

Reemplazando las Ec. 10.5 y 10.6 en la Ec. 10.4 y utilizando 10.7 obtenemos

$$d \left[ \frac{1}{2} \rho \beta S \dot{h}^2 + (g+a) \frac{S\rho}{2} (h^2 - h_b^2) \right] = (P_b - P_0) S dh \quad (10.8)$$

Aquí usamos el hecho de que  $u_s = \dot{h}$ . Dividiendo a ambos lados de la Ec. 10.8 por  $S dh$  obtenemos

$$\frac{1}{2} \rho \dot{h}^2 \frac{d\beta}{dh} + \frac{1}{2} \rho \beta \frac{d\dot{h}^2}{dh} + (g+a) \rho h = (P_b - P_0) \quad (10.9)$$

Notando que

$$\frac{d\dot{h}^2}{dh} = \frac{1}{\dot{h}} \frac{d\dot{h}^2}{dt} = 2\ddot{h}$$

Obtenemos finalmente

$$\frac{1}{2} \rho \dot{h}^2 \frac{d\beta}{dh} + \rho \beta \ddot{h} + (g+a) \rho h = (P_b - P_0) \quad (10.10)$$

Para relacionar  $P_b$  con el tamaño de la burbuja inferior usamos la ecuación de los gases ideales con un índice politrópico  $\gamma$

$$P_b = (P_0 + \rho gh_0 + \frac{2\sigma}{R_0}) \left( \frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} \quad (10.11)$$

Reemplazando la Ec.10.11 en la Ec.10.10 obtenemos

$$\frac{1}{2} \rho \dot{h}^2 \frac{d\beta}{dh} + \rho \beta \ddot{h} + (g + a) \rho h = (P_0 + \rho gh_0 + \frac{2\sigma}{R_0}) \left( \frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} - P_0 \quad (10.12)$$

Utilizando nuevamente la conservación de masa podemos reemplazar en esta ecuación la dependencia en  $R$  por la altura de la columna  $h$ . De esta manera tenemos que

$$\frac{4\pi}{3} (R^3 - R_0^3) = S(h - h_0) \quad (10.13)$$

despejando el valor de  $R$  de esta ecuación y reemplazándola en 10.12 obtenemos

$$\frac{1}{2} \rho \dot{h}^2 \frac{d\beta}{dh} + \rho \beta \ddot{h} + (g + a) \rho h = (P_0 + \rho gh_0 + \frac{2\sigma}{R_0}) \left( \frac{S(h - h_0)}{V_0} + 1 \right)^{-\gamma} - P_0 \quad (10.14)$$

Donde tomamos  $V_0 = \frac{4\pi R_0^3}{3}$  como el volumen inicial de la burbuja inferior.

La ecuación 10.14 es una ecuación diferencial para  $h$  y describe la dinámica de la superficie libre del líquido dentro del tubo .

Hasta aquí no se consideraron los efectos de la pérdida de energía por fuerzas viscosas. Incluiremos en este punto el efecto de la viscosidad sobre la dinámica de una burbuja en un medio infinito [23]. En este caso se puede demostrar que la viscosidad introduce sólo una modificación en las condiciones de borde del problema, de forma tal que la presión del gas dentro de la burbuja se puede considerar como una presión equivalente dada por

$$P_b^{vis} = P_b - \frac{4\mu \dot{R}}{R}$$

Reescribiendo las variables  $R$  y  $\dot{R}$  en función de  $h$  y  $\dot{h}$  y reemplazando esta expresión en 10.14 obtenemos la ecuación diferencial para  $h$ .

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \rho \dot{h}^2 \frac{d\beta}{dh} + \rho \beta \ddot{h} + (g + a) \rho h = & (P_0 + \rho gh_0 + \frac{2\sigma}{R_0}) \left( \frac{S(h - h_0)}{V_0} + 1 \right)^{-\gamma} \\ & - P_0 - \frac{4\mu}{3} \left( \frac{\dot{h}}{h - h_0 + \frac{V_0}{S}} \right) \end{aligned} \quad (10.15)$$

Cabe notar que de esta manera se están subestimando las pérdidas de energía debido a que sólo considera una parte de estas. El fluido disipará además energía en su seno debido a esfuerzos viscosos y contra las paredes del tubo. De todas formas consideramos que aún podremos preservar las características fundamentales de la dinámica.

En esta descripción resta conocer la dependencia de  $\beta$  en función de la variable  $h$ .<sup>4</sup> Para estimar el valor de  $\beta$  en circunstancias similares a la esquematizada en la Figura 10.5 procedemos de la siguiente manera: Consideramos al líquido en el tubo como dividido en dos regiones diferentes. En la primera, que ocupa la mayor parte del tubo, la velocidad es constante e igual a  $u_s$ . Consideramos que esta región se extiende hasta una profundidad  $h_0$ . La segunda región es una esfera que contiene a la burbuja inferior (y es concéntrica a esta) donde la velocidad sigue una ley  $u_{(r)} = \dot{R} \frac{R_2^2}{r^2}$ . El radio de esta esfera lo tomaremos de forma tal que en su superficie la velocidad sea  $u_s$ . Por conservación de masa el radio de esta segunda región ( $R_2$ ) deberá cumplir que  $S = 4\pi R_2^2$ . Si llamamos  $R_t$  al radio interior del tubo, tendremos entonces que  $R_2$  será constante e igual a  $1/2R_t$ .

De esta manera, obtenemos para  $\beta$  la siguiente aproximación

$$\beta \approx h_0 + \frac{1}{S} \int_R^{R_2} \frac{u_{(r)}^2}{u_s^2} 4\pi r^2 dr$$

Notando que para valores de radio entre  $R$  y  $R_2$  la velocidad puede escribirse como  $u_{(r)} = u_s \frac{R_2^2}{r^2}$ , entonces obtenemos para la integral

$$\int_R^{R_2} \frac{u_{(r)}^2}{u_s^2} 4\pi r^2 dr = \int_R^{R_2} \frac{R_2^4}{r^2} 4\pi dr = 4\pi R_2^4 \left( \frac{1}{R} - \frac{1}{R_2} \right) = S R_2^2 \left( \frac{1}{R} - \frac{1}{R_2} \right)$$

Esta expresión diverge cuando  $R \rightarrow 0$ .

Utilizando la conservación de masa, (Ec. 10.13) para eliminar la variable  $R$  obtenemos finalmente

$$\beta = h_0 + R_2^2 \left( \frac{1}{R_0} \left( \frac{S(h-h_0)}{V_0} + 1 \right)^{-1/3} - \frac{1}{R_2} \right) \quad (10.16)$$

Derivando esta expresión con respecto a  $h$  obtenemos

$$\frac{d\beta}{dh} = - \frac{R_2^2 S}{3R_0 V_0 \left( 1 + \frac{S(h-h_0)}{V_0} \right)^{4/3}} \quad (10.17)$$

Reemplazando las ecuaciones 10.16 y 10.17 en la ecuación 10.15 obtenemos la ecuación diferencial para el movimiento de la superficie del líquido, y por lo tanto, para el radio de la burbuja inferior.

## 10.4. Resultados

### 10.4.1. La Burbuja Inferior

La primera serie de experimentos fueron realizados para evaluar la dinámica del tubo y de la burbuja inferior. Inicialmente se estudió la dinámica del tubo sin rotación. Esto permite determinar la aceleración del tubo mediante el uso de un micrófono adherido a

<sup>4</sup>Es interesante notar que consideramos el caso en que la burbuja inferior es plana, (Figura 10.3) entonces  $\beta \approx H$  y si  $S(h-h_0) \gg V_0$  (volumen inferior casi vacío) la Ec. 10.14 se reduce a  $\ddot{h} = (g+a) + P_0/(\rho H)$  recuperando el valor antes obtenido.

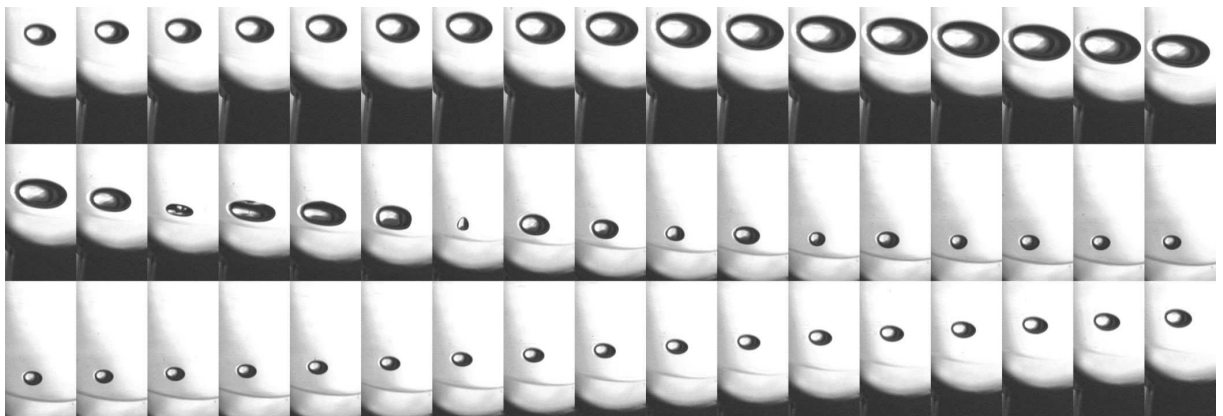
su base. En este caso no es posible confinar las burbujas en el centro del tubo y en este caso no se obtuvo sonoluminiscencia repetitiva en las burbujas superiores.

La segunda serie de experimentos se realizó con el tubo girando sobre su eje. En este caso no se pudo utilizar el micrófono en la base del tubo pero se obtuvo sonoluminiscencia estable y repetitiva.

### Sin rotación sobre el eje del tubo

En la Figura 10.6 se muestra una secuencia de imágenes de la burbuja inferior en un ciclo completo del movimiento del tubo para una oscilación de amplitud relativamente pequeña. En este caso se muestran los resultados obtenidos utilizando ácido fosfórico al 85 % con 30mbar de xenon disuelto. El largo de la columna líquida es de 12cm y el largo del tubo completo es de 18cm. En este caso se utilizó un tubo de cuarzo de 16mm de radio exterior y 3mm de espesor de pared. La frecuencia de excitación en este caso se tomó igual a 17.2Hz.

Estas imágenes fueron tomadas utilizando la técnica de muestreo en tiempo equivalente



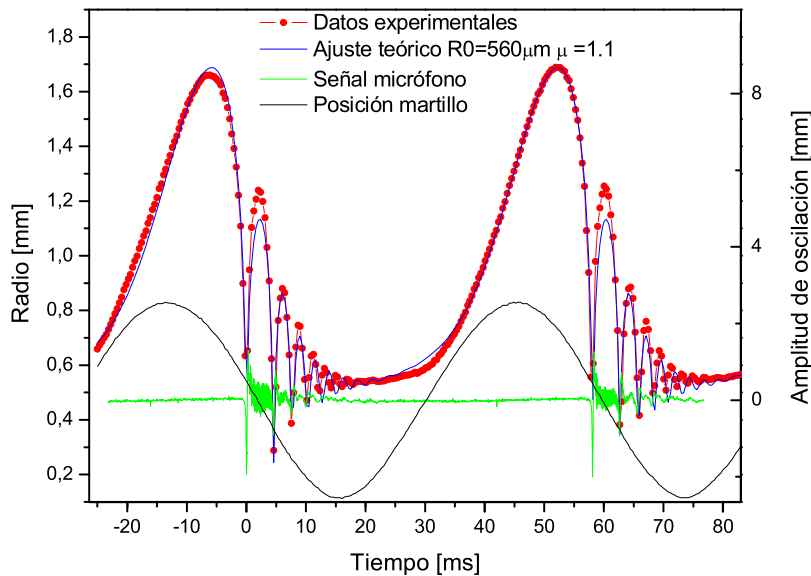
**Figura 10.6:** Secuencia de imágenes de la burbuja inferior en el martillo líquido para un ciclo de agitación. En este caso las fotos están separadas  $\sim 1,095ms$  y el ancho de una de las imágenes individuales es de 4,6mm.

de forma que las imágenes presentadas no corresponden a un solo ciclo de agitación (se realizaron a una velocidad de  $\sim 3$  fotos/seg). Sin embargo, dado a que el sistema es suficientemente repetitivo, las imágenes reconstruyen en forma adecuada la dinámica de la burbuja.

Debido a que la cámara se encuentra solidaria a la mesa, el movimiento vertical de la burbuja corresponde al movimiento del tubo y al movimiento relativo de la burbuja dentro del tubo sumados. El fondo del tubo se puede ver en cada foto como una pequeña línea horizontal aproximadamente 2mm por encima de la región más oscura.

En esta secuencia puede verse que la burbuja inferior permanece en el fondo del tubo durante todo el ciclo de oscilación. En particular, en la región proxima al colapso, parece acercarse más a la pared del fondo que durante el resto del ciclo.

A partir de estas imágenes es posible obtener un radio equivalente<sup>5</sup> para la burbuja en función del tiempo. En la Figura 10.7 se muestran los resultados de este cálculo para dos de los ciclos de la evolución. En esta figura puede observarse que la evolución de esta burbuja



**Figura 10.7:** Evolución temporal del radio equivalente de la burbuja inferior en función del tiempo obtenida a partir de la secuencia de imágenes de la Figura 10.6. Se muestran además la posición del tubo en función del tiempo (función senoidal) y la señal obtenida por el micrófono pegado en la base del tubo en unidades arbitrarias. Se muestra también el ajuste realizado con el modelo descrito en la Sección 10.3.2.

recuerda en gran medida a la obtenida en sonoluminiscencia para burbujas mucho menores con presiones acústicas más grandes.

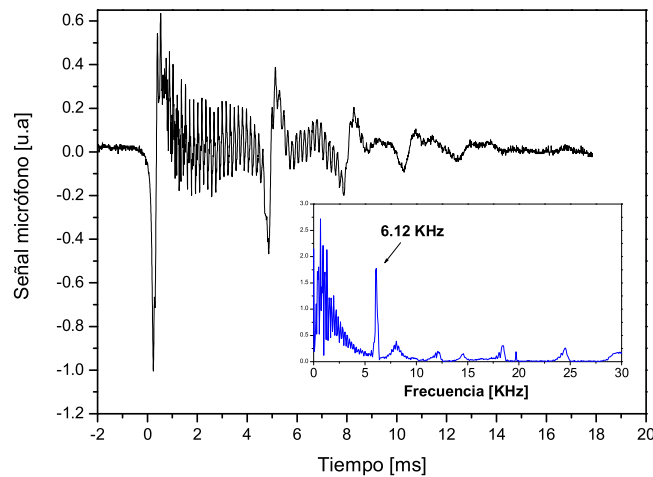
En este caso, el colapso de la burbuja se produce cuando el tubo se encuentra casi en su posición de equilibrio.

Observando el tamaño de la burbuja en el momento en que la posición pasa por su punto de equilibrio (y por lo tanto la presión es sólo hidrostática, ver Figura 10.4) podemos evaluar la cantidad de gas que contiene esta burbuja. En esta posición el radio de la burbuja será similar al  $R_0$  de la burbuja.

El ajuste de los datos con el modelo numérico descrito en la Sección 10.3.2 se realizó utilizando como parámetros libres el  $R_0$  de la burbuja y la viscosidad del líquido. Ajustar la viscosidad del líquido en este caso pretende incluir las pérdidas de energía que no están consideradas en el modelo (rozamiento del líquido con las paredes del tubo). Cabe señalar que la viscosidad que mejor ajusta los datos medidos es aproximadamente 3.2 veces mayor a la real medida en el líquido ( $0,34 Pa \cdot s$ ).

<sup>5</sup>Radio de la esfera que ocupa el mismo volumen que la burbuja. La burbuja es considerada como un elipsoide de dimensiones que pueden medirse directamente de la fotografía.

Por otro lado, en el momento del colapso de la burbuja, el micrófono pegado en la pared detecta la aparición de un pulso negativo seguido por una componente de alta frecuencia en la señal. En cada uno de los rebotes posteriores de la burbuja puede observarse también la aparición de un pulso de intensidad decreciente. En la Figura 10.8 puede observarse una ampliación de esta señal en el momento del colapso. En la señal



**Figura 10.8:** Señal del micrófono pegado en el fondo del tubo en el momento del colapso de la burbuja mostrada en la Figura 10.7. Se muestra en el detalle el cálculo de las componentes en frecuencia de la señal entre  $2ms$  y  $4ms$ . El pico en frecuencias indicado en el detalle coincide con el desarrollo de una onda estacionaria en la columna líquida.

del micrófono pueden identificarse cada uno de los rebotes de la burbuja que ocupan una región de aproximadamente  $15ms$ . Luego del primer colapso, se detecta una componente de alta frecuencia de aproximadamente  $6,12kHz$ . También aparecen algunas componentes armónicas de esta frecuencia pero con amplitud bastante menor.

La frecuencia del pico principal coincide con la frecuencia del primer modo de oscilación de una columna líquida de longitud  $11,4cm$  con condiciones de borde de presión constante<sup>6</sup>. Este valor coincide muy bien con el valor medido de  $\sim 12cm$  para la cantidad de líquido dentro del tubo.

Esto sugiere que el colapso producido por la burbuja excita una onda estacionaria en la columna líquida. Además, la presencia de la burbuja inferior es suficiente para establecer una condición de borde de presión constante.

Esta onda estacionaria que se genera en la columna líquida tendrá consecuencias importantes sobre la posición de equilibrio de la burbuja superior. Como vimos en la Sección 2.1.3, la fuerza ejercida por los gradientes de presión en el líquido (Fuerza de Bjerknes) son los que determinan la posición de las burbujas en un resonador. Cabe notar que la

<sup>6</sup>Se utilizó una velocidad del sonido  $1400\frac{m}{s}$  que corresponde a la velocidad de propagación de ondas longitudinales en un tubo de las características mencionadas que contiene un líquido cuya velocidad del sonido es de  $1500\frac{m}{s}$ . Para más detalles consultar [82].

frecuencia de este resonador está determinado por la longitud de la columna líquida y es independiente de la frecuencia de excitación del parlante.

Un hecho importante a notar para comprender la evolución temporal de la dinámica del martillo líquido es que el líquido dentro del tubo se encuentra en equilibrio difusivo con el gas sobre la superficie. Por lo tanto, la concentración de los gases disueltos en el líquido es siempre igual al 100%. Dicho de otra manera, el líquido se encuentra siempre "saturado" por el gas utilizado.

Esto tiene consecuencias directas sobre la dinámica de las burbujas: Estas sólo pueden aumentar la cantidad de gas que contiene a medida que pasa el tiempo, esto es, *no pueden disolverse*. De hecho, debido a la difusión rectificadora producida por la dinámica de la burbuja, la cantidad de gas debe incluso aumentar con el tiempo. La única manera de que una burbuja disminuya su tamaño es dividiéndose en burbujas más pequeñas. Sin embargo, estos fragmentos sólo pueden crecer a medida que pasa el tiempo.

La presencia de pequeñas burbujas en el líquido puede aumentar aún más este proceso si la fuerza resultante en un ciclo es en dirección al fondo. En estas condiciones las pequeñas burbujas se van sumando a la burbuja inferior aumentando la cantidad de gas total que hay en el fondo. En particular, puede observarse en la Figura 10.7 que el radio máximo de la burbuja se incrementó de un ciclo al siguiente. Debe recordarse aquí que los puntos de esa figura fueron obtenidos utilizando la técnica de tiempo de muestreo equivalente, con lo cual los puntos de radio máximo en cada ciclo están tomados en tiempos separados aproximadamente por un minuto. Esto significa que el incremento en el radio máximo que se observa en la Figura 10.7 corresponde al aumento de la cantidad de gas en la burbuja inferior durante un minuto de evolución ( $\sim 1000$  ciclos).

En el caso de los experimentos realizados sin rotación, en que la superficie del líquido no era estabilizada, la velocidad de crecimiento de la burbuja inferior es incrementada por las pequeñas burbujas que ingresan desde la superficie libre del líquido. Estas burbujas se unen a la inferior hasta que su tamaño es tal que la fuerza boyante se vuelve predominante y asciende a la superficie. En ese momento se forma una nueva cavidad relativamente vacía en el fondo y el proceso se repite con un período relativamente grande (desde decenas de segundos a varios minutos, dependiendo de la amplitud de oscilación).

En la Figura 10.9 se muestran los resultados de la medición de la señal del micrófono en función de la amplitud de oscilación. Se dibujan la intensidad pico a pico de la señal completa, del segundo colapso y el valor rms <sup>7</sup> de los primeros 10ms después del colapso.

Aquí vemos que la intensidad de emisión de ultrasonido tanto en valor pico a pico como en el valor rms en el colapso, detectado por el micrófono, aumenta rápidamente con la amplitud de oscilación del parlante.

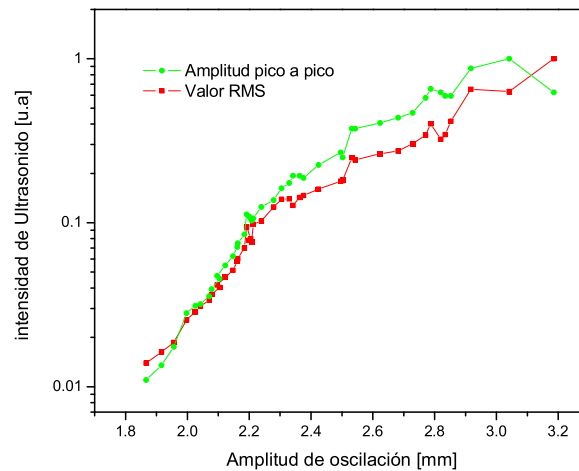
En la Figura 10.10 se observa la fase relativa de colapso en el ciclo de oscilación en función de la amplitud de movimiento del parlante.

El tiempo de colapso en esta figura está definido como el tiempo entre el cruce por cero con pendiente negativa de la posición del parlante y el momento del primer colapso de la burbuja.

Aquí puede observarse que el tiempo de colapso aumenta al aumentar la amplitud de oscilación. Este hecho se encuentra en acuerdo con el modelo planteado en la Sección 10.3.1. En esta figura, se pueden observar dos cambios en la pendiente de la curva en 2,2mm y

<sup>7</sup>Raíz cuadrada del valor cuadrático medio





**Figura 10.9:** Señal del micrófono en función de la amplitud de oscilación. Se dibujan la intensidad pico a pico de la señal completa y el valor rms de los primeros  $10ms$  después del colapso.

$2,9mm$ . Estos cambios en la pendiente coinciden con la incorporación de gas dentro de la burbuja inferior por la coalescencia con otras burbujas.

En este sistema no estudiamos la burbuja superior ya que al no rotar el tubo sobre su eje, las burbujas no eran confinadas al centro del tubo y no fue posible obtener sonoluminiscencia repetitiva en las burbujas superiores.

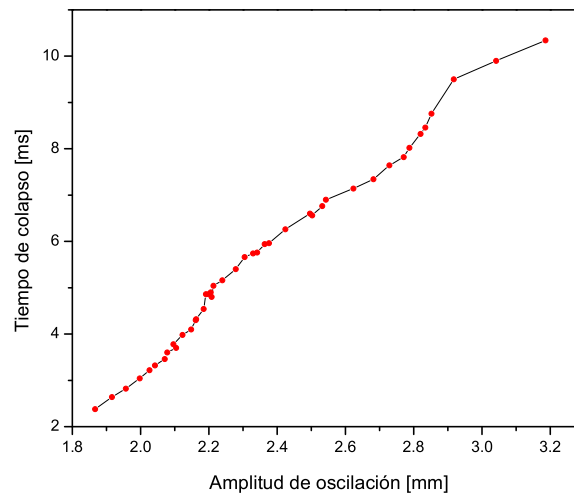
### Con rotación sobre el eje del tubo

La segunda secuencia de experimentos se realizó haciendo rotar el tubo alrededor de su eje de forma tal que las burbujas eran confinadas al centro. En este caso no se pudo conectar un micrófono en la base del tubo. La velocidad de rotación se tomó lo más grande posible de manera que la disminución de la altura de la columna líquida en el centro no fuese excesiva. Para a una frecuencia de rotación de  $\sim 33Hz$  y con el uso de una boya esférica de pirex en la superficie (Figura 10.1) la longitud de la columna líquida era de  $\sim 12cm$ . En este caso se utilizó un tubo de pirex de  $20cm$  de largo. El espesor de las paredes del tubo en este caso era de  $1.5mm$  y la frecuencia de excitación utilizada fue en todos los casos de  $16.55Hz$ .

La velocidad de propagación de ondas longitudinales es en este sistema es de aproximadamente  $1230\frac{m}{s}$ .

La viscosidad medida para el ácido utilizado es de  $\mu = 0,35 \pm 0,01 Pa \cdot s$ , lo cual implica una concentración de  $\sim 103\%$ .

De la misma manera que en el caso anterior, (Figura 10.6) se determinó la evolución de la burbuja inferior realizando fotografía estroboscópica y utilizando la técnica de tiempo equivalente de muestreo. En la Figura 10.11 se muestra una secuencia de fotografías to-



**Figura 10.10:** Fase relativa de colapso en el ciclo de oscilación en función de la amplitud de movimiento del parlante.

madras de una parte del período de evolución en donde se puede ver el colapso principal de la burbuja inferior. La velocidad de fotografiado fue de 13 fotos por segundo. Esto equivale a sacar aproximadamente una foto por período. Debido al ligero desfase entre la frecuencia de excitación y la frecuencia a la que se toman las fotografías, el tiempo equivalente entre fotos es de  $315 \mu s/foto$ .

A diferencia del caso anterior, la burbuja presenta un colapso mucho más pronunciado, casi desapareciendo luego del primer mínimo. La forma de la burbuja es también muy distinta a la observada en la Figura 10.6. Debido a la fuerza centrífuga la burbuja adopta una forma más cilíndrica que antes.

A partir de estas imágenes, suponiendo simetría azimutal de las burbujas y teniendo en cuenta los efectos de refracción en el tubo, se calculó el volumen de la burbuja inferior en función del tiempo. En la Figura 10.12 se muestra la evolución del volumen calculado de esta manera en función del tiempo. A partir de esta figura (parte *a*) es posible estimar la velocidad de la columna líquida antes del colapso de la burbuja. Realizando un ajuste lineal de los últimos 12 puntos experimentales medidos antes del primer colapso, obtenemos una estimación de  $0,24 \frac{m}{s}$ . A partir de este valor, podemos estimar el aumento de presión que se producirá en el tubo debido a la abrupta detención de la columna líquida. Utilizando una velocidad efectiva del sonido en el tubo de  $1230 \frac{m}{s}$  obtenemos (Sección ??)

$$\Delta P = V \rho c \sim 5,3bar$$

Este valor de presión es relativamente alto comparado con la presión estática en la parte superior del tubo ( $\sim 0,027bar$ ) y formará la excitación primaria sobre las burbujas superiores

En la segunda parte de la figura se muestran el radio equivalente de una burbuja esférica que tiene el mismo volumen que la burbuja inferior. Allí pueden observarse con más de-



**Figura 10.11:** Secuencia de imágenes de la burbuja inferior en el martillo líquido en el momento del colapso con el tubo girando a una velocidad de  $\sim 33Hz$  y una excitación vertical de  $16.55Hz$ . En este caso las fotos están separadas un tiempo equivalente de  $315\mu s/foto$ . La altura de una imagen individual corresponde a  $15,5mm$ . La secuencia completa de fotos muestra aproximadamente la mitad de un período.

talle los rebotes de la burbuja luego del primer colapso. Estos rebotes son apenas visibles en la parte *a* de la figura (y en la secuencia de imágenes de la Figura 10.11). Este segundo colapso también producirá un aumento en la presión sobre la columna líquida y como veremos más adelante, este segundo pulso de presión juega un rol esencial en la producción de los pulsos de sonoluminiscencia de alta intensidad.

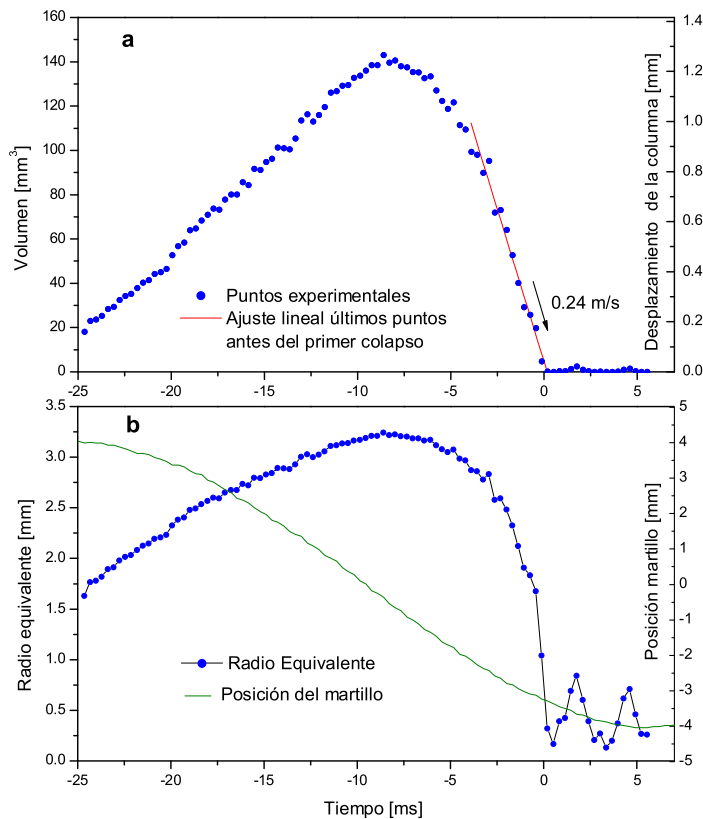
En la Figura 10.12*b* se muestra también la posición del tubo en función del tiempo (escala de la derecha). En este caso la amplitud de oscilación del tubo es aproximadamente  $4mm$  y por lo tanto la aceleración máxima alcanza los  $4,4g$ . En el momento del colapso de la burbuja, el tubo se mueve hacia abajo y por lo tanto su aceleración es hacia arriba (comparar con el esquema de la Figura 10.4).

Un parámetro importante de esta burbuja es la cantidad de gas que contiene ( $R_0$ ). Este valor se puede obtener deteniendo el martillo y midiendo el radio de la burbuja que asciende desde el fondo. De esta manera obtenemos para esta burbuja un valor de  $170 \pm 20\mu m$ . Este valor es bastante menor al medido en la burbuja de la Figura 10.7 y se mantiene relativamente constante durante la evolución del sistema. Esto es posible gracias a la fragmentación en el colapso de la burbuja inferior. Algunos de estos fragmentos se pueden observar como pequeños puntos oscuros en la fotografía correspondiente al primer colapso en la Figura 10.11.

### 10.4.2. La Burbuja Superior

Las mediciones de la burbuja superior fueron realizadas en todos los casos con el tubo girando. Los datos presentados aquí corresponden a las mismas condiciones experimentales que las utilizadas en las medidas de la burbuja inferior.

Al igual que en el caso de la burbuja inferior, se determinó la evolución de la burbuja superior realizando fotografía estroboscópica y utilizando la técnica de tiempo equivalente de muestreo. En la Figura 10.13 se muestra una secuencia de fotografías tomadas en el momento en que la burbuja inferior está colapsando.

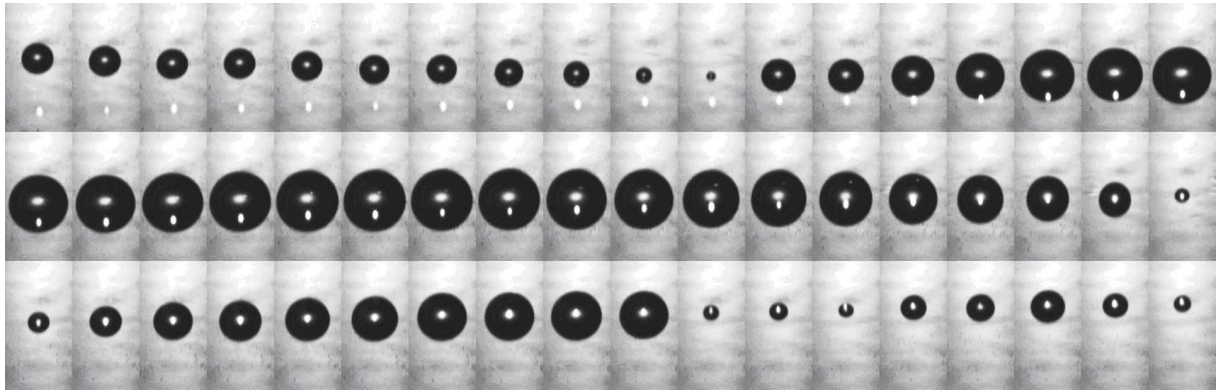


**Figura 10.12:** a) Volumen de la burbuja inferior calculado a partir de las fotografías de la Figura 10.11. La escala de la derecha indica el desplazamiento de la columna líquida teniendo en cuenta el área del tubo. Se muestra además un ajuste lineal de los últimos puntos de la evolución antes del colapso. b) Radio equivalente de la burbuja (escala izquierda) y posición del tubo (escala derecha).

Las imágenes de la burbuja son en todos los casos muy similares a una esfera. Esto significa que la rotación no es suficientemente intensa como para deformar la burbuja. En esta secuencia se puede observar que la burbuja superior presenta una primera contracción, luego una expansión hasta un radio mayor al inicial seguida de un segundo colapso y posteriores rebotes. Debido a la técnica de muestreo equivalente, en todas las imágenes se puede observar el pulso de luz emitido por la burbuja. Este pulso de luz se puede observar en las imágenes como un punto claro cuya posición muestra una pequeña deriva hacia arriba a lo largo de la secuencia completa. En las primeras fotografías este punto se encuentra por debajo de la imagen de la burbuja. Este punto luminoso indica la posición de la burbuja en el momento en que emite el pulso de luz. En las primeras fotografías de la secuencia, la luz estroboscópica utilizada para iluminar la burbuja fue disparada antes de la emisión de luz y por lo tanto la imagen de la burbuja aparece por encima del punto luminoso<sup>8</sup>. El colapso de la burbuja inferior coincide aproximadamente con la décima fotografía de la primera fila.

En esta secuencia de imágenes puede apreciarse que el pulso de emisión de luz *no* coincide

<sup>8</sup>Debe recordarse que en la secuencia de imágenes el movimiento de la burbuja es el resultante de la suma del movimiento del tubo como un todo con el movimiento de la burbuja dentro del tubo. En el momento del colapso el tubo se mueve hacia abajo.



**Figura 10.13:** Secuencia de imágenes de la burbuja superior en coincidencia con el colapso de la burbuja inferior. En este caso las fotos están separadas por un tiempo equivalente de  $129,3\mu s$  y la altura de una de las imágenes individuales representa  $3,5mm$ . La imagen ha sido corregida por efectos de refracción en las paredes del tubo.

con el primer colapso de la burbuja. En cambio, coincide con el segundo colapso de la burbuja en la última fotografía de la segunda fila. Este hecho notable se encuentra en aparente contradicción con el hecho de que el pulso de presión emitido por la burbuja inferior es más intenso durante el primer colapso.

Por otro lado, el segundo colapso de la burbuja coincide con el segundo colapso de la burbuja inferior (Figura 10.3b).

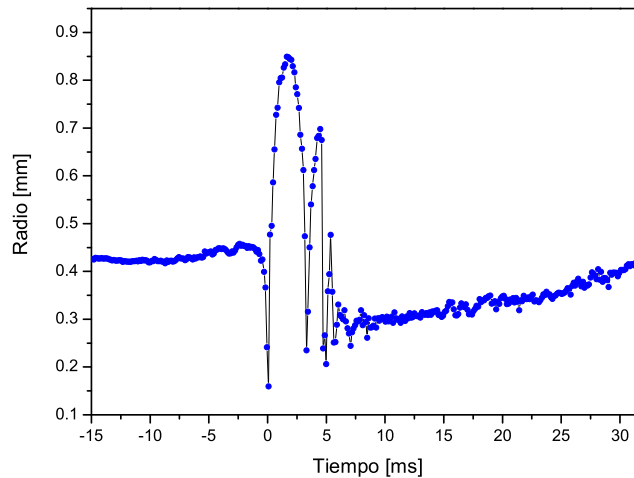
A partir de estas imágenes es posible obtener el radio de las burbujas en función del tiempo por medición directa. En la Figura 10.14 se muestran los resultados obtenidos de esta manera. Aquí podemos observar que la burbuja superior, que inicialmente tiene un radio de  $\sim 450\mu m$  alcanza un radio máximo de  $\sim 850\mu m$  antes de colapsar por segunda vez. Luego de unos pocos rebotes la burbuja presenta un radio bastante menor al inicial ( $\sim 300\mu m$ ) lo cual es consistente con el hecho de que la presión estática del fluido es mayor en esa parte del ciclo (en ese momento el tubo se está acelerando hacia arriba, ver Figura 10.12b).

Por otro lado, se realizaron mediciones del radio de la burbuja utilizando la técnica de Mie Scattering (ver Figura 10.2). Esta técnica tiene la ventaja de que permite medir la evolución del radio de la burbuja en un solo ciclo de oscilación con muy buena resolución temporal aunque tiene el inconveniente de que no proporciona un valor absoluto del radio de la burbuja. Sin embargo, combinando esta técnica con el método de imágenes (Figura 10.13) es posible realizar una calibración del radio y obtener de esa manera una medición en forma absoluta del radio sin perder resolución temporal. Debido a que estas dos técnicas implican formas diferentes de iluminación no se pueden realizar simultáneamente.

En la Figura 10.15 se muestran los resultados obtenidos utilizando las dos técnicas descritas.

En este caso se midió la evolución temporal usando primero la técnica de imágenes e inmediatamente después utilizando la técnica de Mie scattering.

Como puede observarse, el acuerdo entre las dos técnicas es muy bueno. Por otro lado, la gran resolución temporal obtenida utilizando la combinación de ambas técnicas permite



**Figura 10.14:** Radio de la burbuja superior obtenida a partir de las imágenes de la Figura 10.13 (esta figura comprende el intervalo  $[-1,2ms - 5,7ms]$ ). Las líneas en el gráfico se agregaron sólo para ayudar a la visualización.

analizar con más detalle la dinámica de la burbuja en los momentos del primer y segundo colapso.

Un hecho a notar, es que el segundo colapso de la burbuja superior coincide con el primer rebote de la burbuja inferior (Figura 10.12). Cabe esperar entonces que la burbuja superior sea impulsada por el segundo pulso de presión que emite la burbuja inferior.

Durante el segundo colapso, el pulso de luz emitido por la burbuja ha sido eliminado casi por completo utilizando un filtro pasabajos ( $650nm$ ).

Para las mediciones realizadas se utilizó un segundo fotomultiplicador que detecta el pulso de luz emitido por la burbuja inferior en el momento de su colapso. Esta señal era utilizada como trigger en el sistema de adquisición.

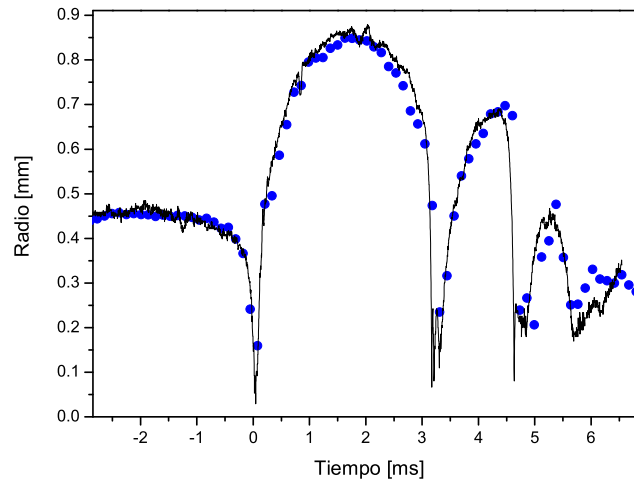
Analizaremos ahora en más detalle los dos primeros colapsos de la burbuja superior utilizando esta técnica.

En la Figura 10.16 se muestra un detalle del primer colapso de la burbuja superior. En esta figura podemos observar que el colapso no se produce en forma violenta sino que el radio de la burbuja va disminuyendo mucho antes de que la burbuja inferior alcance su mínimo. Este aumento de la presión previo al colapso, está asociado con el aumento de la velocidad del fluido en las proximidades de la burbuja inferior en el momento en que se contrae.

La máxima compresión de la burbuja superior se alcanza cerca de  $80\mu s$  después de que la burbuja inferior colapsa. Este tiempo coincide aproximadamente con el tiempo requerido por una onda de presión en llegar desde el fondo hasta la burbuja superior ( $65\mu s$ ).

En estas condiciones de trabajo, no se detectó la emisión de luz durante el primer colapso de la burbuja.

La burbuja permanece con un tamaño relativamente pequeño durante aproximadamente



**Figura 10.15:** Radio de la burbuja superior obtenida con el método de Mie scattering. Se muestran también los resultados obtenidos con fotografía estroboscópica para una burbuja similar (Figura 10.14)

$60\mu s$  antes de expandirse nuevamente. Cabe notar que este tiempo es consistente con el requerido por una onda de presión en recorrer dos veces la distancia entre la burbuja superior y la superficie libre.

Si consideramos una compresión isotérmica desde el radio inicial ( $460\mu m @ \sim 2000 Pa$ ) hasta el radio mínimo, obtenemos que es necesario aplicar una presión de aproximadamente  $2 bar$  para mantener la burbuja en su radio mínimo.

Por otro lado, durante la expansión se alcanzan valores de radio mucho mayores al inicial. Esto significa que la presión debe ser menor a la inicial luego de la compresión. En la Sección 10.4.3 analizaremos más cuantitativamente la evolución de la presión.

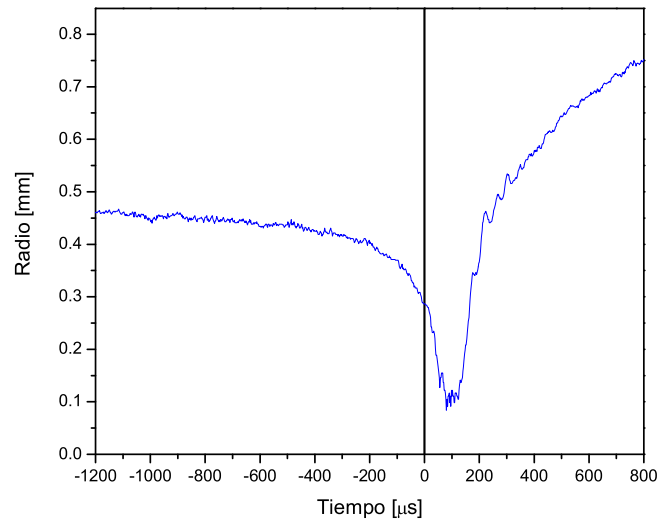
Analizaremos ahora el segundo colapso de la burbuja superior que es donde se producen los pulsos de luz más intensos. En la Figura 10.17 se muestra un detalle del segundo colapso.

En esta figura podemos observar la presencia del pulso de luz emitido por la burbuja en el colapso. Esto es debido a que en este caso el pulso de luz es tan intenso que a pesar de estar utilizando el filtro pasabajos, la señal producida en el fotomultiplicador es comparable a la que genera la dispersión de luz con el láser He-Ne.

En esta figura puede observarse que inicialmente el radio de la burbuja es relativamente grande comparado con el valor de  $R_0$ . Por otro lado, este valor es casi constante durante casi  $1 ms$ . Esto implica que la presión experimentada por la burbuja en ese momento es menor a la presión del gas sobre la superficie del líquido<sup>9</sup>. Esto se encuentra en contradicción con el hecho de que en la columna líquida se está acelerando hacia arriba en ese momento, resultando una gravedad efectiva mayor y por lo tanto una presión (hidrostática-

<sup>9</sup>Suponiendo una expansión isotérmica desde  $460\mu m @ \sim 2000 Pa$  obtenemos una presión de  $\sim 300 Pa$  que es casi 10 veces menor a la presión del gas sobre la superficie.





**Figura 10.16:** Detalle de la evolución de la burbuja superior en las proximidades del primer colapso. Se indica con una línea vertical el momento en el que la burbuja inferior colapsa.

tica) mayor. Esta discrepancia no ha podido ser resuelta hasta el momento.

En la Figura 10.17 puede verse además que el colapso de la burbuja se produce en forma abrupta en los últimos  $100 - 150 \mu s$  antes de la emisión del pulso de luz. Este comportamiento implica el aumento de la presión a valores cercanos a  $2 \text{ bar}$  en ese momento (Ver Sección 10.4.3). La burbuja permanece pequeña luego del colapso cerca de  $\sim 80 \text{ ns}$  antes de volver a expandirse nuevamente. Este tiempo coincide nuevamente con el tiempo requerido para que una onda de presión recorra dos veces la distancia a la superficie libre.

### 10.4.3. Evolución Temporal de la Presión

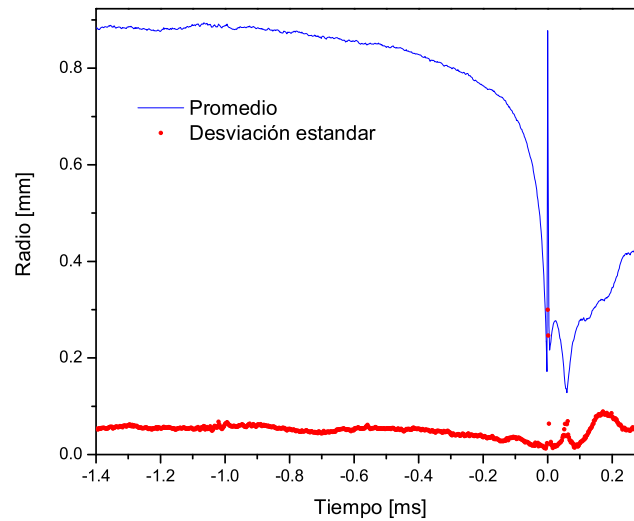
En esta sección estudiaremos en forma cuantitativa cómo evoluciona la presión dentro del líquido durante un período de oscilación del sistema.

La idea aquí es utilizar la dinámica de la burbuja superior como un sensor de la presión en el líquido.

Esto se realiza utilizando la ecuación diferencial que relaciona la evolución del radio de la burbuja con la presión en el líquido (Ecuación de Raileigh-Plesset Sección 2.1.2). Utilizando esta ecuación diferencial y las condiciones iniciales, se estima la presión por tramos de forma tal de reproducir la evolución temporal del radio. La elección del ancho temporal de estos tramos así como también la amplitud de cada tramo se ajustan en un proceso iterativo minimizando la diferencia entre el valor calculado y el determinado experimentalmente.

Se estudiaron en detalle los dos colapsos principales de la burbuja superior. El primer colapso de la burbuja inferior produce un pulso de presión que comprime la burbuja superior. El estudio de la dinámica de la burbuja superior en su primer colapso nos da





**Figura 10.17:** Detalle de la evolución de la burbuja superior en las proximidades del segundo colapso. En este caso se promediaron 8 curvas experimentales y se indica en la figura la desviación estándar de los puntos medidos.

información acerca de las características de este pulso.

En la Figura 10.18 se muestran los resultados obtenidos para este caso. En esta figura podemos ver que el pulso de presión producido por la burbuja inferior supera los  $5bar$  de presión pico. Esto está de acuerdo a la estimación realizada midiendo al velocidad a la que la columna se acerca al fondo del tubo (Figura 10.12).

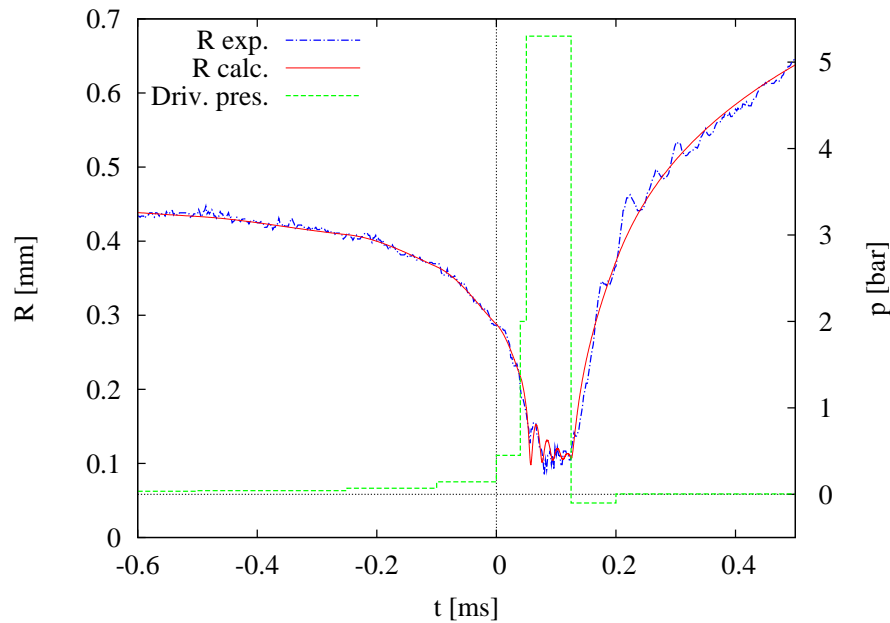
Por otro lado, la presión comienza a aumentar mucho antes del colapso de la burbuja inferior. Este aumento gradual se origina en la forma particular en que colapsa la burbuja inferior. Esto se refleja en el hecho de que el radio de la burbuja superior comienza a disminuir más de  $200\mu s$  antes del colapso.

Por otro lado, luego del pulso de presión se observan presiones negativas seguidas de una zona constante a baja presión ( $\sim 5,5mb$ ) durante aproximadamente  $5ms$  antes del segundo colapso. La existencia de presiones negativas son razonables debido a que el pulso de compresión emitido por la burbuja inferior se refleja como una onda de tensión en la superficie libre que produce presiones negativas al reflejarse luego en el fondo del tubo.

El incremento suave de la presión antes de la máxima compresión y la presión negativa luego de esta, son muy importantes para determinar cuál de los colapsos (el primero o el segundo) emitirán luz (Ver Figura 10.20).

En la Figura 10.19 se muestran los resultados obtenidos para para el segundo colapso de la burbuja superior. Aquí vemos que el ajuste realizado con la estimación de la presión es muy bueno, aún en la zona del rebote luego del colapso principal.

En esta figura puede observarse que el segundo pulso de presión tiene una amplitud cerca de 3 veces menor al primero y que además está un poco mas ensanchado temporalmente.



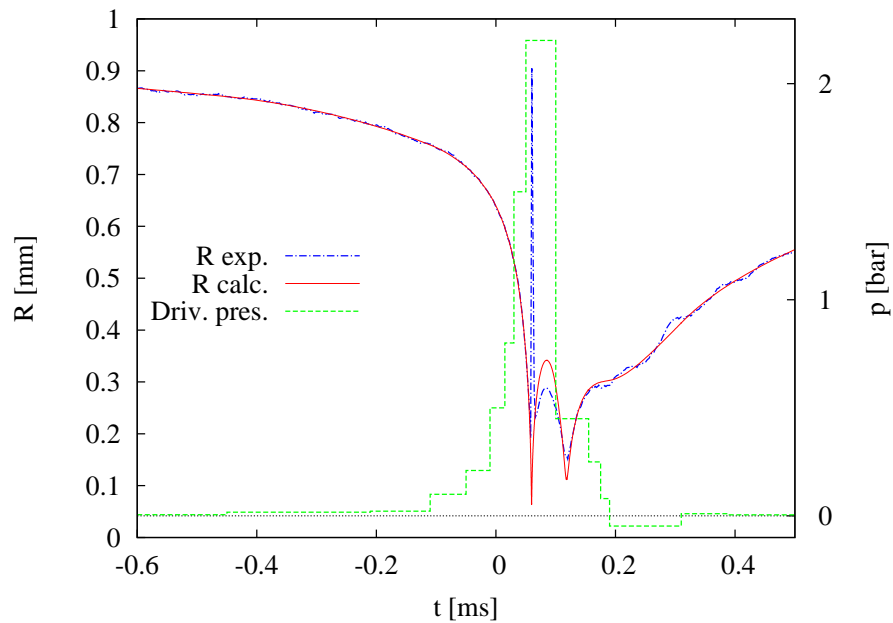
**Figura 10.18:** Evolución temporal de la presión en el líquido a partir del ajuste de la dinámica de la burbuja superior. Se muestran también la evolución temporal de radio medida experimentalmente del primer colapso y de la evolución temporal calculada a partir del perfil de presión propuesto.

Sin embargo, debido a que la burbuja inicialmente es mayor que en el caso anterior, el colapso producido es mucho más violento que el primero. Utilizando el modelo numérico para examinar las condiciones en el colapso (Sección 4) encontramos que la temperatura máxima alcanzada es aproximadamente  $2000K$  en el primer colapso (no suficiente para producir luz) y  $11500K$  en el segundo colapso. Allí se produce la emisión de  $0,14 \cdot 10^{12}$  fotones, obteniéndose una potencia pico de  $0,38W$  con una duración del pulso de  $160ns$ . La emisión de luz medida experimentalmente para pulsos similares a los mostrados en la Figura 10.19 producen  $10^{12}$  fotones con una duración de  $200 \pm 50ns$  de FWHM. Estos valores son comparables a los presentados en la bibliografía [15].

En un colapso de Rayleigh (colapso de una burbuja a presión constante), la energía mecánica transferida a la burbuja es proporcional a la presión del líquido y el volumen inicial [23]. Los colapsos que se producen en la burbuja superior (Figuras 10.18 y 10.19) difieren de un colapso de Rayleigh debido a que la presión no es constante durante la compresión de la burbuja. En particular, el incremento suave de la presión antes del primer colapso, reduce el tamaño de la burbuja y evita la transferencia de energía en forma eficiente cuando la presión es alta. Esto puede verse en la Figura 10.18, donde el pulso de alta presión alcanza a la burbuja en un radio muy pequeño.

En cambio, durante el segundo colapso el pulso de presión alcanza a la burbuja en un tamaño mucho mayor y a pesar de que el pulso es menos intenso, es capaz de transferir más energía mecánica a la burbuja.

De esta manera un pulso de presión más intenso no necesariamente implica un colapso más violento, como en un colapso de Rayleigh.



**Figura 10.19:** Evolución temporal de la presión en el líquido a partir del ajuste de la dinámica de la burbuja superior. Se muestra también un detalle del segundo colapso medido experimentalmente y de la evolución temporal calculada a partir del perfil de presión propuesto.

Para analizar más cuantitativamente la relación entre el radio inicial, la amplitud del pulso de presión y la violencia del colapso, utilizamos el modelo numérico para calcular las condiciones alcanzadas en el colapso en función de estos parámetros. En la Figura 10.20 se muestran los resultados obtenidos para la máxima temperatura, potencia pico y ancho temporal del pulso de luz en función del radio inicial de la burbuja y la amplitud del pulso de presión.

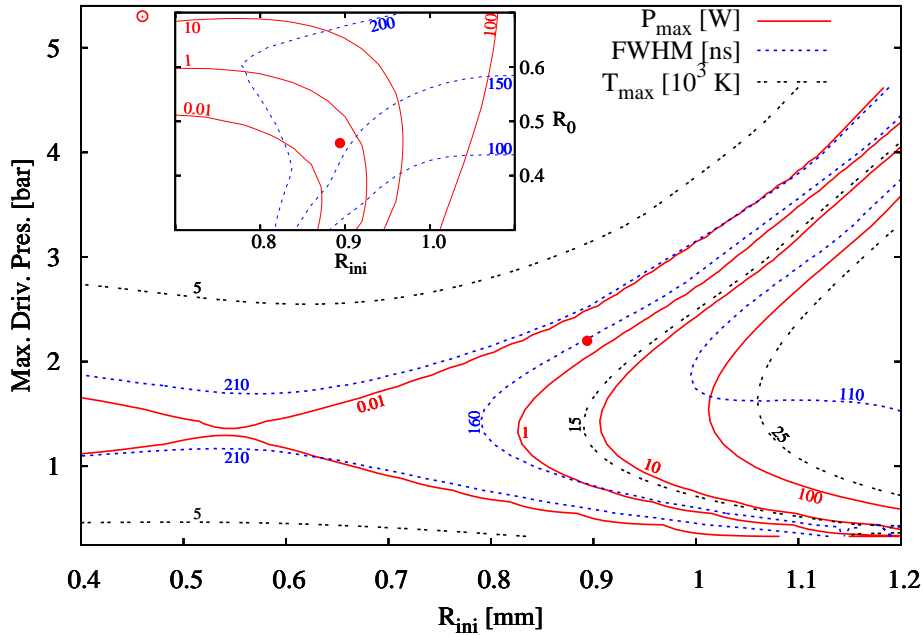
Cada punto en esta Figura corresponde al colapso de una burbuja con un determinado radio inicial (eje  $x$ ) sometida a un pulso de presión como el mostrado en la Figura 10.19 multiplicado por un factor constante (eje  $y$ , donde se indica el valor de la presión máxima del pulso).

El punto lleno en la Figura 10.20 indica la posición de segundo colapso ( $R_{ini} = 0,89mm$ ,  $P_{max} = 2,2bar$ ), mientras que el punto vacío indica la posición del primero ( $R_{ini} = 0,46mm$ ,  $P_{max} = 5,3bar$ ).

Puede observarse que, en general, un incremento del radio inicial produce un aumento en la temperatura máxima y la emisión de luz (colapso más violento). El aumento de la presión en cambio, presenta un valor óptimo que produce la burbuja más brillante ( $\sim 1,5bar$ ).

Los cálculos realizados hasta aquí corresponden a una burbuja con la misma cantidad de gas inicial. Esta cantidad de gas fue fijada de forma tal que forme una burbuja de  $0,46mm$  de radio ( $R_0$  a temperatura ambiente y presión  $27mbar$ ). Este valor surge a partir de las condiciones iniciales medidas para la burbuja antes del arribo de los pulsos de presión (Figura 10.14).

Esta cantidad de gas va aumentando con el transcurso del tiempo y por lo tanto también



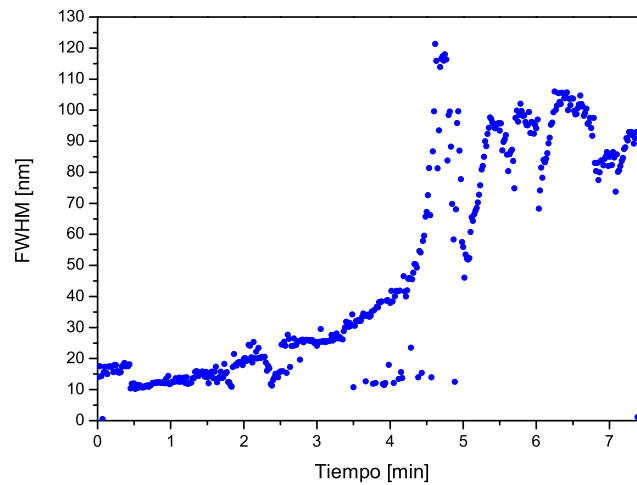
**Figura 10.20:** Potencia total emitida ( $P_{max}$ ), FWHM y temperatura máxima como función del radio inicial y la magnitud del pulso de presión. El detalle en la figura muestra la potencia pico y el FWHM cuando la cantidad de gas dentro de la burbuja es variada ( $R_0$  vs  $R_{ini}$ ) mientras la presión del pulso es mantenida constante (en 2.2 bar).

cambian los resultados mostrados en la Figura 10.20.

El efecto de incrementar la cantidad de gas dentro de la burbuja se muestra en el detalle de la Figura 10.20. Allí se dibujan los contornos de la potencia total y el ancho de pulso (FWHM) en función del radio inicial y la cantidad de gas inicial ( $R_0$ ). En este caso se utilizó la presión sin factor multiplicativo (presión de la Figura 10.19). En este detalle podemos ver que a medida que la burbuja crece los pulsos de luz son más intensos y más anchos. Estos resultados se encuentran en acuerdo con las mediciones experimentales de la evolución de la intensidad y el ancho de los pulsos (Ver Sección 10.4.4).

#### 10.4.4. La Emisión de Luz

En la Figura 10.21 se muestran los resultados obtenidos para el ancho del pulso de luz emitido por la burbuja superior en función del tiempo de funcionamiento del sistema. Aquí podemos ver que el ancho de los pulsos va aumentando monótonamente desde el comienzo de la operación. Al principio los pulsos que son mas breves que el mínimo detectable con el sistema de medición utilizado en este caso ( $\sim 10ns$  provenientes del fotomultiplicador conectado a una resistencia de  $300\Omega$ ). Luego de aproximadamente 4-5



**Figura 10.21:** Ancho a altura mitad (FWHM) del pulso de luz emitido por la burbuja superior. El ancho mínimo detectable es en este caso de  $10ns$ . Los descensos abruptos en el valor del ancho del pulso  $q$  corresponden a la pérdida de la burbuja principal y al reemplazo por una nueva más pequeña proveniente de la parte inferior del tubo

minutos de funcionamiento, el ancho de pulso aumenta en forma muy rápida superando los  $100ns$ . Inmediatamente después disminuye abruptamente hasta cerca de  $50ns$ . Esta disminución coincide con la pérdida de la burbuja superior (asciende hasta la superficie). La burbuja es reemplazada por una más pequeña proveniente de la base del tubo y el mecanismo se repite de la misma manera durante los siguientes minutos.

Los descensos en el valor del ancho del pulso que se suceden luego de  $t = 5min$  corresponden a la pérdida de la burbuja principal y al reemplazo por una nueva mas pequeña proveniente de la parte inferior del tubo.

## 10.5. Conclusiones

La dinámica de la burbuja superior esta regida por la evolución de la presión en función del tiempo en la columna líquida. A su vez, la presión en el líquido está determinada principalmente por la evolución de la burbuja inferior. El colapso y posterior rebote de la burbuja inferior produce una secuencia de pulsos de presión de amplitud decreciente. Estos pulsos de presión transfieren energía mecánica a la burbuja superior en una forma no tan obvia.

Debido a la forma del pulso de presión, se produce una compresión previa al pulso principal. Si el pulso de presión es muy intenso, esta compresión previa disminuye el tamaño de la burbuja de forma tal que cuando la presión es grande la transferencia de energía es poco eficiente. Existe entonces una presión máxima óptima. De esta manera, resulta más efectivo el segundo pulso de presión, que encuentra a la burbuja con un tamaño mayor y la presión es más cercana a la óptima.

Utilizando la burbuja superior como un sensor de la presión en el líquido y utilizando el modelo numérico para predecir las condiciones en el colapso, hemos reproducido las principales características de la emisión de luz en este tipo de sistemas. Por otro lado, teniendo en cuenta el crecimiento de la burbuja hemos podido entender la evolución temporal de las características del pulso de luz.

Es importante notar que a pesar de que el número de fotones por pulso puede ser más de cuatro órdenes de magnitud superiores a los encontrados en sonoluminiscencia en agua, las temperaturas máximas alcanzadas no superan los  $20000K$ . Esto se debe principalmente que la cantidad de gas contenida en la burbuja es mucho mayor en el caso del martillo líquido, generando un emisor de luz más grande que emite luz por más tiempo, pero que no necesariamente está más caliente.

Por último, quisiéramos mencionar que las condiciones dentro de la burbuja inferior pueden ser más extremas que en la superior, en el sentido de mayores temperaturas. En este caso, los pulsos de luz emitidos son mucho menos intensos ( $\sim 10^9$  fotones por pulso) y más breves ( $< 10ns$ ), pero la cantidad de gas dentro de la burbuja es menor ( $R_0 \sim 200\mu m$ ). Sin embargo, la estimación de la temperatura en este caso es mucho más compleja debido a la asimetría que produce en el colapso la presencia de la pared del fondo del tubo.

# Capítulo 11

## Conclusiones

En este trabajo se estudiaron las diferentes limitaciones que aparecen en la concentración de energía en un sistema sonoluminiscente.

En el Capítulo 4 se validó experimentalmente un modelo numérico que incluye los fenómenos físicos más relevantes en sonoluminiscencia. Para ello se realizó una exploración experimental del espacio de fases en un sistema agua-aire. Un aspecto importante de esta validación es que en este caso el modelo debe reproducir correctamente las temperaturas en el interior de la burbuja para describir correctamente la posición en el diagrama de fases de la disociación del oxígeno y del nitrógeno dentro de la burbuja.

Los resultados obtenidos concuerdan con las mediciones experimentales en todo el diagrama de fases.

Este modelo fue utilizado en el resto del trabajo como predictor de las diferentes inestabilidades y para estimar las máximas temperaturas alcanzadas.

Al estudiar la extinción de la burbuja sonoluminiscente en el sistema agua-aire en el Capítulo 5 se encontró que la limitación en la obtención de presiones acústicas elevadas se ajusta a la hipótesis de la presencia de la inestabilidad de Rayleigh-Taylor. Esta inestabilidad produce la fragmentación de la burbuja en la fase de compresión. Estos fragmentos luego se disuelven de forma que la burbuja desaparece del sistema. En este caso las temperaturas máximas alcanzadas predichas por el modelo numérico alcanzan valores de  $\sim 50000K$ . Esta limitación no puede evitarse sin modificar alguno de los parámetros físicos del fluido. Esto resulta en una cota superior a la concentración de energía en este tipo de sistemas.

En el Capítulo 6 se estudió el sistema ácido sulfúrico-aire. Debido a su mayor viscosidad, la posición de la inestabilidad de Rayleigh-Taylor se desplaza a un valor de presión acústica más alta. Se pudo determinar que en este sistema la inestabilidad que limita el incremento de la presión acústica es la inestabilidad de posición (inestabilidad de Bjerknes). Superada una determinada presión acústica la burbuja se aleja del centro del resonador y no es posible confinarla en una zona de alta presión acústica en forma estable. Se determinó de esta manera que la presión acústica máxima que puede aplicarse a una burbuja en este tipo de sistemas es similar al sistema agua-aire, y que es mucho menor que las presiones presentadas en trabajos previos [12, 62, 13].

Por otro lado, las burbujas en este sistema no se encuentran fijas en el espacio sino que describen órbitas.

En el Capítulo 7 se estudió la manera de desplazar la inestabilidad de posición en el sistema sulfúrico-xenon utilizando una excitación en varios armónicos. Se consiguió de esta manera fijar espacialmente las burbujas por primera vez en ácido sulfúrico y obtener las mayores emisiones de luz en un sistema sonoluminiscente hasta la fecha. Sin embargo, la gran intensidad de luz emitida proviene del hecho de obtener una burbuja sonoluminiscente con mayor cantidad de gas que se encuentra caliente por más tiempo y no por un incremento de la temperatura máxima alcanzada. Las temperaturas máximas predichas por el modelo para este tipo de sistemas utilizando una excitación en varios armónicos alcanzan los 30000K.

No existe hasta hoy una manera directa de determinar la temperatura dentro de una burbuja sonoluminiscente. En el Capítulo 8 se desarrolló un método para la medición directa de la temperatura utilizando la dispersión angular de luz proveniente de un pulso laser de corta duración. Si bien la técnica es practicable teniendo en cuenta la sensibilidad del sistema de medición utilizado, los resultados experimentales obtenidos no coinciden con las predicciones teóricas para la dispersión en el momento del colapso.

Por último, en los Capítulos 9 y 10 se estudió un sistema alternativo al utilizado normalmente en sonoluminiscencia. En este sistema se pueden explorar regiones del espacio de fases que son inaccesibles en sistemas que utilizan resonadores (debido a limitaciones prácticas en el tamaño del resonador).

Utilizamos un sistema similar al desarrollado por Chakravarty [15] y pudimos determinar que la dinámica de estos sistemas es bastante peculiar. Luego de un primer colapso que no produce emisión de luz, se produce la expansión de la burbuja y un segundo colapso. Sólo en este caso se produce la concentración de energía necesaria para emitir luz.

Optimizando los parámetros del sistema obtuvimos pulsos de luz individuales hasta 4 ordenes de magnitud más intensos que en ácido sulfúrico (10 veces mayor a los obtenidos por Chakravarty). Estos son los pulsos de luz de mayor intensidad reportados hasta el momento para una burbuja sonoluminiscente. Sin embargo, pudo determinarse que (nuevamente) el incremento de intensidad no se condice con un aumento de la temperatura máxima. En este tipo de sistemas la temperatura máxima alcanzada es de aproximadamente 15000K a 20000K.

Finalmente, podemos concluir que de los sistemas que hemos analizando, el que alcanza las mayores temperaturas es el mismo que presenta las menores intensidades de luz (el sistema que utiliza agua). Sin embargo, este sistema se encuentra acotado por una inestabilidad de forma que no puede evitarse para altas presiones acústicas. El sistema sonoluminiscente que utiliza ácido sulfúrico retrasa esta inestabilidad (el fluido es más viscoso) pero se encuentra limitado por la inestabilidad de posición. Esta inestabilidad puede modificarse mediante el uso de otros armónicos en la excitación acústica. Sin embargo, las temperaturas máximas alcanzadas utilizando esta técnica no superan los 30000K.

Por otro lado, en el sistema de martillo líquido utilizando ácido fosfórico, si bien las temperaturas obtenidas hasta el momento son muy bajas, se encuentra limitado sólo por la dinámica propia del sistema. Si se pueden superar estas dificultades es posible obtener en



este tipo de sistemas una concentración de energía aún mayor y por lo tanto temperaturas mayores incluso a los 50000K.



# Apéndice A

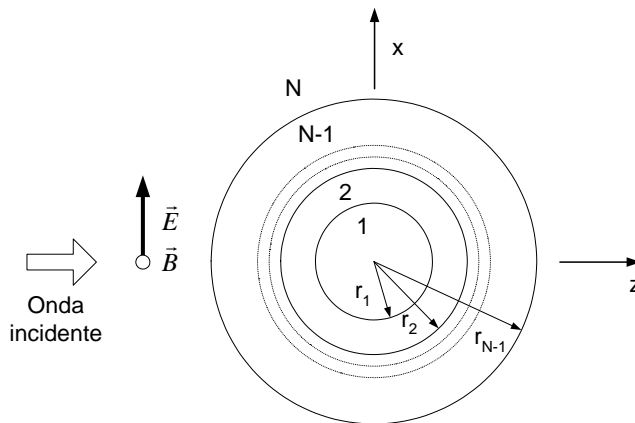
## Mie Scattering Multicapa

El problema de la dispersión de luz por una esfera dieléctrica (dos medios) fue estudiado por primera vez por Mie [24] en 1908. Este cálculo fue ampliado por Aden et al. [86] al caso de dos esferas concéntricas (3 medios). Recientemente Volkov et al. [87] generalizaron el cálculo para  $N$  medios diferentes. En este apéndice derivaremos las expresiones para la dispersión de luz siguiendo el trabajo de Volkov de forma tal de que nos permita realizar una implementación eficiente del cálculo. En particular analizamos una forma recursiva de obtener los coeficientes de la serie resultante.

Por último implementaremos el cálculo para una variación continua del índice de refracción en una zona acotada del espacio y analizamos la convergencia en función del número de capas utilizadas para el cálculo.

### A.1. El Cálculo

En este apéndice analizaremos la dispersión de una onda electromagnética que incide sobre una esfera compuesta por  $N - 1$  capas dieléctricas concéntricas (Figura A.1). De esta manera tendremos  $N$  medios diferentes, cada uno de ellos con constantes  $k_i$ ,  $\epsilon_i$ , y  $\mu_i$  (vector de onda, constante dieléctrica y permeabilidad magnéticas complejas respectivamente) que dependen del medio  $i$ .



**Figura A.1:** Una onda electromagnética incide desde  $-\hat{z}$  con polarización en la dirección  $\hat{x}$  sobre una esfera compuesta por  $N - 1$  capas concéntricas de diferentes materiales.

Consideremos la onda incidente a partir de su descomposición en armónicos esféricos<sup>1</sup>:

$$\vec{E}_{incidente} = \vec{E}_0 \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( M_{o1n}^{(1)} + iN_{e1n}^{(1)} \right) \quad (\text{A.1})$$

$$\vec{B}_{incidente} = -\vec{E}_0 \sqrt{\epsilon_N \mu_N} \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( M_{e1n}^{(1)} - iN_{o1n}^{(1)} \right) \quad (\text{A.2})$$

donde  $M_{emn}^{(1)}$ ,  $N_{emn}^{(1)}$ ,  $M_{omn}^{(1)}$  y  $N_{omn}^{(1)}$  son los armónicos esféricos vectoriales de primera clase definidos como<sup>2</sup>

$$M_{on}^{(1)} = \frac{Z_n^{(1)}(r)}{\sin(\theta)} P_n^{(1)}(\cos(\theta)) \cdot \cos(\phi) \hat{\mathbf{i}}_2 - Z_n^{(1)}(r) \frac{dP_n^{(1)}(\cos(\theta))}{d\theta} \cdot \sin(\phi) \hat{\mathbf{i}}_3 \quad (\text{A.3})$$

$$M_{en}^{(1)} = -\frac{Z_n^{(1)}(r)}{\sin(\theta)} P_n^{(1)}(\cos(\theta)) \cdot \sin(\phi) \hat{\mathbf{i}}_2 - Z_n^{(1)}(r) \frac{dP_n^{(1)}(\cos(\theta))}{d\theta} \cdot \cos(\phi) \hat{\mathbf{i}}_3 \quad (\text{A.4})$$

$$\begin{aligned} N_{on}^{(1)} &= \frac{n(n+1)}{r} Z_n^{(1)}(r) P_n^{(1)}(\cos(\theta)) \cdot \sin(\phi) \hat{\mathbf{i}}_1 + \frac{[rZ_n^{(1)}(r)]'}{r} \frac{dP_n^{(1)}(\cos(\theta))}{d\theta} \cdot \sin(\phi) \hat{\mathbf{i}}_2 \\ &+ \frac{[rZ_n^{(1)}(r)]'}{r \sin(\theta)} P_n^{(1)}(\cos(\theta)) \cdot \cos(\phi) \hat{\mathbf{i}}_3 \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

$$\begin{aligned} N_{en}^{(1)} &= \frac{n(n+1)}{r} Z_n^{(1)}(r) P_n^{(1)}(\cos(\theta)) \cdot \cos(\phi) \hat{\mathbf{i}}_1 + \frac{[rZ_n^{(1)}(r)]'}{r} \frac{dP_n^{(1)}(\cos(\theta))}{d\theta} \cdot \cos(\phi) \hat{\mathbf{i}}_2 \\ &- \frac{[rZ_n^{(1)}(r)]'}{r \sin(\theta)} P_n^{(1)}(\cos(\theta)) \cdot \sin(\phi) \hat{\mathbf{i}}_3 \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

donde  $r$  representa el radio adimensionalizado ( $r = K_N R$ ),  $\hat{\mathbf{i}}_1$ ,  $\hat{\mathbf{i}}_2$  y  $\hat{\mathbf{i}}_3$  son los versores en las direcciones de  $R$ ,  $\theta$  y  $\phi$  del sistema de coordenadas esférico con el origen ubicado en el centro en las esferas. En el segundo término de las Ecuaciones A.5 y A.6, el símbolo  $[]'$  representa la derivación con respecto al argumento ( $K_N R$ ).

$P_n^{(1)}$  es el polinomio de Legendre de primera clase, primer orden y grado  $n$  y  $Z_n^{(1)}$  es la función de Bessel esférica de primera clase la cual se relaciona con la función de Bessel ordinaria de primera clase y orden semientero por

$$Z_n^{(1)}(r) = \sqrt{\frac{\pi}{2r}} J_{n+\frac{1}{2}}(r) \quad (\text{A.7})$$

De la misma manera, debemos construir ahora el campo secundario inducido por la onda incidente en cada uno de los medios presentes, es decir, en las  $N - 2$  casquetes esféricos, en la esfera interior y en el medio infinito exterior.

Para la esfera interior construimos el campo de la misma forma que para el campo incidente en donde los coeficientes de la serie deben ser determinados. Usamos en este caso

<sup>1</sup>La dependencia temporal del tipo  $e^{i\omega t}$  no interviene en el análisis y por lo tanto se abrevia su escritura

<sup>2</sup>El valor de  $m$  es en este caso siempre igual a 1 (polarización en  $x$ ) y por lo tanto en adelante no lo escribiremos explícitamente en la derivación.

los armónicos esféricos que poseen un buen comportamiento en el origen. De esta manera tenemos para  $R \leq r_1$

$$\vec{E}_1 = \vec{E}_0 \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( a_{1n} M_{on}^{(1)} + i b_{1n} N_{en}^{(1)} \right) \quad (\text{A.8})$$

$$\vec{B}_1 = -\vec{E}_0 \sqrt{\epsilon_N \mu_N} \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( b_{1n} M_{en}^{(1)} - i a_{1n} N_{on}^{(1)} \right) \quad (\text{A.9})$$

Donde el subíndice en  $\vec{E}$  y  $\vec{B}$  indican la región en que se calcula.

Para los  $N - 2$  casquetes esféricos la serie puede ser construida también utilizando los armónicos esféricos de tercera clase, ya que aquí no es necesario evitar divergencias en el origen y en infinito. De esta forma tendremos para  $r_1 \leq R \leq r_{N-1}$

$$\vec{E}_j = \vec{E}_0 \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( a_{jn}^1 M_{on}^{(1)} + a_{jn}^2 M_{on}^{(3)} + i b_{jn}^1 N_{en}^{(1)} + i b_{jn}^2 N_{en}^{(3)} \right) \quad (\text{A.10})$$

$$\vec{B}_j = -\vec{E}_0 \sqrt{\epsilon_N \mu_N} \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( b_{jn}^1 M_{en}^{(1)} + b_{jn}^2 M_{en}^{(3)} - i a_{jn}^1 N_{on}^{(1)} - i a_{jn}^2 N_{on}^{(3)} \right) \quad (\text{A.11})$$

$\forall j \quad / \quad 2 \leq j \leq N - 2$

Finalmente, para el medio infinito que rodea la esfera tendremos una descomposición en armónicos esféricos que se comporten bien en infinito, por lo tanto para  $R \geq r_{N-1}$

$$\vec{E}_N = \vec{E}_0 \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( a_{Nn} M_{on}^{(3)} + i b_{Nn} N_{en}^{(3)} \right) \quad (\text{A.12})$$

$$\vec{B}_N = -\vec{E}_0 \sqrt{\epsilon_N \mu_N} \sum_{n=1}^{\infty} -i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left( b_{Nn} M_{en}^{(3)} - i a_{Nn} N_{on}^{(3)} \right) \quad (\text{A.13})$$

Los coeficientes a obtener entonces para definir completamente el campo son  $a_{1n}$ ,  $b_{1n}$ ,  $a_{jn}^1$ ,  $a_{jn}^2$ ,  $b_{jn}^1$ ,  $b_{jn}^2$ ,  $a_{Nn}$  y  $b_{Nn}$ . Es decir, debemos hallar los  $4(N - 1)$  coeficientes que componen cada término de la serie. En particular, como nos interesa calcular la dispersión de luz en el medio circundante, deseamos obtener las expresiones sólo para los últimos dos coeficientes  $a_{Nn}$  y  $b_{Nn}$ , que definen el campo en esa región.

Para resolver estas  $4(N - 1)$  incógnitas haremos uso de las condiciones de borde impuestas en cada una de las  $(N - 1)$  interfaces (son necesarias 4 ecuaciones de contorno por interface). Para todas las interfaces excepto la última tendremos como condición de borde

$$\left. \begin{aligned} \hat{\mathbf{i}}_1 \times \vec{E}_j &= \hat{\mathbf{i}}_1 \times \vec{E}_{j+1} \\ \frac{\hat{\mathbf{i}}_1 \times \vec{B}_j}{\mu_j} &= \frac{\hat{\mathbf{i}}_1 \times \vec{B}_{j+1}}{\mu_{j+1}} \end{aligned} \right\} \forall R = r_j \quad \text{con} \quad 1 \leq j \leq N - 2 \quad (\text{A.14})$$

Para la última interface debemos tener en cuenta también el campo incidente y por lo tanto tendremos

$$\left. \begin{aligned} \hat{\mathbf{i}}_1 \times \vec{E}_{N-1} &= \hat{\mathbf{i}}_1 \times \left( \vec{E}_N + \vec{E}_{\text{incidente}} \right) \\ \frac{\hat{\mathbf{i}}_1 \times \vec{B}_{N-1}}{\mu_{N-1}} &= \frac{\hat{\mathbf{i}}_1 \times \left( \vec{B}_N + \vec{B}_{\text{incidente}} \right)}{\mu_N} \end{aligned} \right\} R = r_{N-1} \quad (\text{A.15})$$

Analicemos la primera interface. De la primera ecuación, desarrollando el producto vectorial obtenemos

$$-(\vec{E}_1 \cdot \hat{\mathbf{i}}_3)\hat{\mathbf{i}}_2 + (\vec{E}_1 \cdot \hat{\mathbf{i}}_2)\hat{\mathbf{i}}_3 = -(\vec{E}_2 \cdot \hat{\mathbf{i}}_3)\hat{\mathbf{i}}_2 + (\vec{E}_2 \cdot \hat{\mathbf{i}}_2)\hat{\mathbf{i}}_3$$

Como cada componente debe igualarse en esta ecuación obtenemos dos ecuaciones que deben satisfacerse,

$$\vec{E}_1 \cdot \hat{\mathbf{i}}_3 = \vec{E}_2 \cdot \hat{\mathbf{i}}_3 \quad y \quad \vec{E}_1 \cdot \hat{\mathbf{i}}_2 = \vec{E}_2 \cdot \hat{\mathbf{i}}_2$$

Estas dos ecuaciones sin embargo, resultan en la misma condición de borde. Tomemos por ejemplo la primera, usando el hecho de que los armónicos esféricos de diferente  $n$  son ortogonales, encontramos entonces que debe cumplirse para todo valor de  $n$  que

$$(a_{1n}M_{on}^{(1)} + ib_{1n}N_{en}^{(1)})\hat{\mathbf{i}}_3 = (a_{2n}^1M_{on}^{(1)} + a_{2n}^2M_{on}^{(3)} + ib_{2n}^1N_{en}^{(1)} + ib_{2n}^2N_{en}^{(3)})\hat{\mathbf{i}}_3$$

Para que se cumpla esta ecuación deben satisfacerse dos condiciones

$$\left. \begin{aligned} (a_{1n}M_{on}^{(1)})\hat{\mathbf{i}}_3 &= (a_{2n}^1M_{on}^{(1)} + a_{2n}^2M_{on}^{(3)})\hat{\mathbf{i}}_3 \\ (b_{1n}N_{en}^{(1)})\hat{\mathbf{i}}_3 &= (b_{2n}^1N_{en}^{(1)} + b_{2n}^2N_{en}^{(3)})\hat{\mathbf{i}}_3 \end{aligned} \right\} R = r_1 \quad (\text{A.16})$$

Escribiendo explícitamente estas ecuaciones obtenemos

$$a_{1n}Z_n^{(1)}(K_1r_1) - a_{2n}^1Z_n^{(1)}(K_2r_1) - a_{2n}^2Z_n^{(3)}(K_2r_1) = 0 \quad (\text{A.17})$$

y

$$b_{1n} \frac{[K_1r_1Z_n^{(1)}(K_1r_1)]'}{K_1r_1} - b_{2n}^1 \frac{[K_2r_1Z_n^{(1)}(K_2r_1)]'}{K_2r_1} - b_{2n}^2 \frac{[K_2r_1Z_n^{(3)}(K_2r_1)]'}{K_2r_1} = 0 \quad (\text{A.18})$$

De la misma manera, a partir de la segunda ecuación de A.14 obtenemos otras dos ecuaciones de borde completando las cuatro ecuaciones necesarias para la primer interface. Estas son

$$a_{1n} \frac{[K_1r_1Z_n^{(1)}(K_1r_1)]'}{\mu_1r_1} - a_{2n}^1 \frac{[K_2r_1Z_n^{(1)}(K_2r_1)]'}{\mu_2r_1} - a_{2n}^2 \frac{[K_2r_1Z_n^{(3)}(K_2r_1)]'}{\mu_2r_1} = 0 \quad (\text{A.19})$$

y

$$b_{1n} \frac{K_1}{\mu_1} Z_n^{(1)}(K_1r_1) - b_{2n}^1 \frac{K_2}{\mu_2} Z_n^{(1)}(K_2r_1) - b_{2n}^2 \frac{K_2}{\mu_2} Z_n^{(3)}(K_2r_1) = 0 \quad (\text{A.20})$$

Donde usamos el hecho de que  $\sqrt{\epsilon_j\mu_j} = K_j \frac{C_0}{w}$  y donde aquí  $C_0$  la velocidad de la luz en el vacío y  $w$  es la frecuencia de oscilación de la onda incidente.

Por otro lado, para todas las interfaces intermedias ( $R = r_j$  con  $2 \leq j \leq N - 2$ ), las cuatro ecuaciones de contorno son ligeramente diferentes ya que en el desarrollo en serie de los campos internos existe un término más. De esta forma para la primer ecuación de A.14 tendremos

$$a_{jn}^1 Z_n^{(1)}(K_j r_j) + a_{jn}^2 Z_n^{(3)}(K_j r_j) - a_{j+1n}^1 Z_n^{(1)}(K_{j+1} r_j) - a_{j+1n}^2 Z_n^{(3)}(K_{j+1} r_j) = 0 \quad (\text{A.21})$$

y

$$b_{jn}^1 \frac{[K_j r_j Z_n^{(1)}(K_j r_j)]'}{K_j r_j} + b_{jn}^2 \frac{[K_j r_j Z_n^{(3)}(K_j r_j)]'}{K_j r_j} - b_{j+1n}^1 \frac{[K_{j+1} r_j Z_n^{(1)}(K_{j+1} r_j)]'}{K_{j+1} r_j} - b_{j+1n}^2 \frac{[K_{j+1} r_j Z_n^{(3)}(K_{j+1} r_j)]'}{K_{j+1} r_j} = 0 \quad (\text{A.22})$$

En este punto conviene definir dos nuevas funciones para simplificar la notación

$$\eta_n^{(1)}(x) \equiv \frac{[x Z_n^{(1)}(x)]'}{x} \quad \text{y} \quad \eta_n^{(3)}(x) \equiv \frac{[x Z_n^{(3)}(x)]'}{x}$$

De esta forma utilizando la segunda ecuación de A.14 tendremos

$$a_{jn}^1 \frac{K_j}{\mu_j} \eta_n^{(1)}(K_j r_j) + a_{jn}^2 \frac{K_j}{\mu_j} \eta_n^{(3)}(K_j r_j) - a_{j+1n}^1 \frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}} \eta_n^{(1)}(K_{j+1} r_j) - a_{j+1n}^2 \frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}} \eta_n^{(3)}(K_{j+1} r_j) = 0 \quad (\text{A.23})$$

y

$$b_{jn}^1 \frac{K_j}{\mu_j} Z_n^{(1)}(K_j r_j) + b_{jn}^2 \frac{K_j}{\mu_j} Z_n^{(3)}(K_j r_j) - b_{j+1n}^1 \frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}} Z_n^{(1)}(K_{j+1} r_j) - b_{j+1n}^2 \frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}} Z_n^{(3)}(K_{j+1} r_j) = 0 \quad (\text{A.24})$$

Para la última interfase ( $R = r_{N-1}$ ) tendremos un término independiente de los coeficientes debido a la presencia del campo externo. Utilizando la primer ecuación de A.15 tendremos

$$a_{N-1n}^1 Z_n^{(1)}(K_{N-1} r_{N-1}) + a_{N-1n}^2 Z_n^{(3)}(K_{N-1} r_{N-1}) - a_{Nn} Z_n^{(3)}(K_N r_{N-1}) = Z_n^{(1)}(K_N r_{N-1}) \quad (\text{A.25})$$

y

$$b_{N-1n}^1 \eta_n^{(1)}(K_{N-1} r_{N-1}) + b_{N-1n}^2 \eta_n^{(3)}(K_{N-1} r_{N-1}) - b_{Nn} \eta_n^{(3)}(K_N r_{N-1}) = \eta_n^{(1)}(K_N r_{N-1}) \quad (\text{A.26})$$

y finalmente utilizando la segunda ecuación de A.15 tendremos

$$a_{N-1n}^1 \frac{K_{N-1}}{\mu_{N-1}} \eta_n^{(1)}(K_{N-1} r_{N-1}) + a_{N-1n}^2 \frac{K_{N-1}}{\mu_{N-1}} \eta_n^{(3)}(K_{N-1} r_{N-1}) - a_{Nn} \frac{K_N}{\mu_N} \eta_n^{(3)}(K_N r_{N-1}) = \frac{K_N}{\mu_N} \eta_n^{(1)}(K_N r_{N-1}) \quad (\text{A.27})$$

y

$$b_{N-1n}^1 \frac{K_{N-1}}{\mu_{N-1}} Z_n^{(1)}(K_{N-1} r_{N-1}) + b_{N-1n}^2 \frac{K_{N-1}}{\mu_{N-1}} Z_n^{(3)}(K_{N-1} r_{N-1}) - b_{Nn} \frac{K_N}{\mu_N} Z_n^{(3)}(K_N r_{N-1}) = \frac{K_N}{\mu_N} Z_n^{(1)}(K_N r_{N-1}) \quad (\text{A.28})$$

De esta manera el grupo de ecuaciones dado por A.17 a A.28 forman  $2(N-1)$  ecuaciones para los coeficientes  $a_n$  y otras  $2(N-1)$  ecuaciones para los coeficientes  $b_n$ . Este grupo

de ecuaciones se pueden escribir en forma matricial para facilitar la visualización de los términos. En lo que sigue se muestra la matriz resultante en el caso de que contar con 4 medios diferentes (3 interfaces) para el caso del coeficiente  $a_n$ .

$$\begin{array}{cccccc}
 a_{1n} & a_{2n}^1 & a_{2n}^2 & a_{3n}^1 & a_{3n}^2 & a_{4n} \\
 \left[ \begin{array}{cccccc}
 Z_n^{(1)}(K_1r_1) & -Z_n^{(1)}(K_2r_1) & -Z_n^{(3)}(K_2r_1) & 0 & 0 & 0 \\
 \frac{K_1}{\mu_1}\eta_n^{(1)}(K_1r_1) & -\frac{K_2}{\mu_2}\eta_n^{(1)}(K_2r_1) & -\frac{K_2}{\mu_2}\eta_n^{(3)}(K_2r_1) & 0 & 0 & 0 \\
 0 & Z_n^{(1)}(K_2r_2) & Z_n^{(3)}(K_2r_2) & -Z_n^{(1)}(K_3r_2) & -Z_n^{(3)}(K_3r_2) & 0 \\
 0 & \frac{K_2}{\mu_2}\eta_n^{(1)}(K_2r_2) & \frac{K_2}{\mu_2}\eta_n^{(3)}(K_2r_2) & -\frac{K_3}{\mu_3}\eta_n^{(1)}(K_3r_2) & -\frac{K_3}{\mu_3}\eta_n^{(3)}(K_3r_2) & 0 \\
 0 & 0 & 0 & Z_n^{(1)}(K_3r_3) & Z_n^{(3)}(K_3r_3) & -Z_n^{(3)}(K_4r_3) \\
 0 & 0 & 0 & \frac{K_3}{\mu_3}\eta_n^{(1)}(K_3r_3) & \frac{K_3}{\mu_3}\eta_n^{(3)}(K_3r_3) & -\frac{K_4}{\mu_3}\eta_n^{(3)}(K_4r_3)
 \end{array} \right] = \left[ \begin{array}{c}
 0 \\
 0 \\
 0 \\
 0 \\
 Z_n^{(1)}(K_4r_3) \\
 \frac{K_4}{\mu_3}\eta_n^{(1)}(K_4r_3)
 \end{array} \right]
 \end{array}$$

Aquí se indica en la fila superior los coeficientes de la serie que corresponden a cada columna. Una matriz similar resulta para los coeficientes  $b_n$ . Esta matriz puede obtenerse a partir de la anterior intercambiando  $a_n \rightarrow b_n$  y realizando un “enroque” entre las funciones  $Z_n$  y  $\eta_n$ , es decir, en donde aparece  $Z_n^{(i)}$ , reemplazar por  $\eta_n^{(i)}$  y donde aparece  $\eta_n^{(i)}$ , reemplazar por  $Z_n^{(i)}$ .

Para resolver esta matriz y hallar el valor de  $a_{Nn}$  notamos que por la reducción de las primeras dos columnas obtenemos nuevamente una matriz similar a la anterior. De esta forma podemos hallar el valor de  $a_{Nn}$  comenzando la reducción desde la última columna en forma recursiva hasta finalizar en la resolución de las primeras dos columnas. La expresión final obtenida de esta forma se puede expresar de la siguiente manera

$$a_{Nn} = \frac{Z_n^{(1)}(K_N r_{N-1})B_{N-1} - \frac{K_N}{\mu_N}\eta_n^{(1)}(K_N r_{N-1})A_{N-1}}{\frac{K_N}{\mu_N}\eta_n^{(3)}(K_N r_{N-1})A_{N-1} - Z_n^{(3)}(K_N r_{N-1})B_{N-1}} \quad (\text{A.29})$$

donde

$$\left. \begin{array}{l}
 A_{j+1} = Z_n^{(1)}(K_{j+1}r_{j+1}) + Aux \cdot Z_n^{(3)}(K_{j+1}r_{j+1}) \\
 B_{j+1} = \frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}}\eta_n^{(1)}(K_{j+1}r_{j+1}) + Aux \cdot B_{j+1} = \frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}}\eta_n^{(1)}(K_{j+1}r_{j+1})
 \end{array} \right\} 1 \leq j \leq N-2 \quad (\text{A.30})$$

y

$$\begin{aligned}
 A_1 &= Z_n^{(1)}(K_1r_1) \\
 B_1 &= \frac{K_1}{\mu_1}\eta_n^{(1)}(K_1r_1)
 \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

donde hemos introducido la variable  $Aux$  definida mediante

$$Aux = \frac{\frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}}\eta_n^{(1)}(K_{j+1}r_j)A_j - Z_n^{(1)}(K_{j+1}r_j)B_j}{Z_n^{(3)}(K_{j+1}r_j)B_j - \frac{K_{j+1}}{\mu_{j+1}}\eta_n^{(3)}(K_{j+1}r_j)A_j} \quad (\text{A.32})$$

De esta manera, comenzando por resolver la ecuación A.31, obtenemos los valores iniciales de  $A$  y  $B$ , utilizando luego la Ecuación la A.30 podemos encontrar los  $N-2$  valores restantes. Utilizando la Ecuación A.29 obtenemos entonces los coeficientes  $a_{nN}$  (y realizando



los reemplazos antes indicados también obtenemos  $b_{nN}$ ). Finalmente estos coeficientes son reemplazados en la serie de las Ecuaciones A.12 y A.13 para obtener el campo dispersado. Cabe notar que esta descripción recupera los cálculos realizados por Aden [86] para el caso en que se toman dos interfaces (3 medios). También se puede verificar que el mismo resultado se obtiene si se utilizan más interfaces pero de forma tal que sólo existan 3 medios diferentes (utilizando valores de  $K$  y  $\mu$  iguales a cada lado de la interface).

## A.2. La Implementación

Una vez definido el número de capas y sus características una  $(K_j, \mu_j, r_j)$  y fijada la frecuencia de la onda incidente, debemos estimar el número de términos necesarios de la serie (Ecuaciones A.12 y A.13) necesarios para asegurar su convergencia.

La elección de esta cantidad es muy importante y en el caso de muchas capas es no existe una manera sencilla de estimarla. Durante este trabajo se tomó como criterio el valor conservativo utilizado por Volkov et al. [87] en su trabajo. De esta forma el número de terminos se calculó a partir de

$$n = x + 4x^{\frac{1}{3}} + 6$$

donde  $x$  es el radio externo de la esfera normalizado con el vector de onda incidente es decir,

$$x = K_n r_{N-1} = \frac{2\pi r_{N-1}}{\lambda_0}$$

El cálculo del campo dispersado se implementó utilizando rutinas en MATLAB.

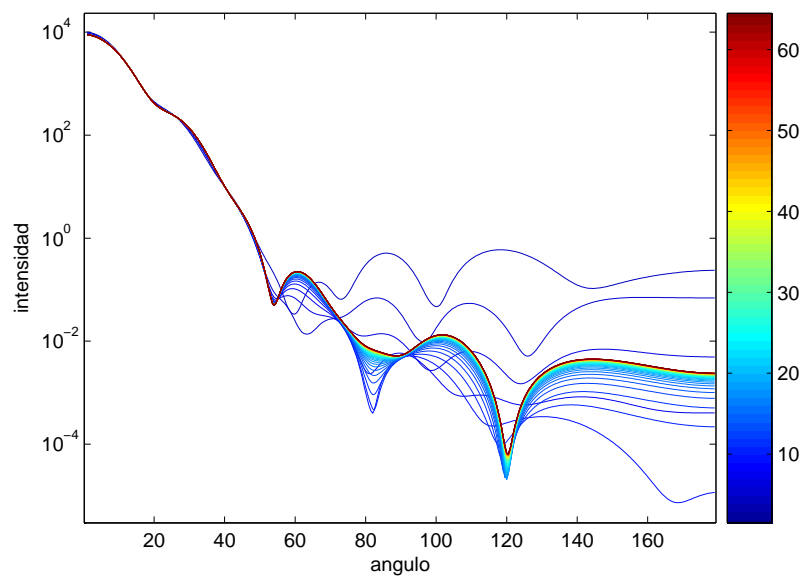
Se ensayó el cálculo suponiendo un perfil de índices de refracción como sigue: Desde el centro y hasta una distancia de  $1\mu m$  se consideró un índice que varía linealmente entre 1 y 2 respectivamente. Desde  $1\mu m$  en adelante el medio es uniforme y de índice 2. En todo el espacio se consideró  $\mu = 1$ . Se consideró como onda incidente un haz de longitud de onda  $\lambda = 632,8nm$  en el vacío (láser He-Ne).

En la Figura A.2 se muestra el resultado de ir aproximando este perfil con un número creciente de capas.

En esta figura puede verse que la convergencia es bastante rápida para este caso.

El error relativo disminuye con una potencia igual a 2 y gracias al método iterativo para el cálculo de los coeficientes, el tiempo utilizado para el cálculo resulta lineal con el número de capas.

Un hecho a tener en cuenta es que la convergencia es más rápida cuando se eligen las distintas capas de forma tal que la integral de volumen del índice de refracción sea igual a la del perfil de índice de refracción que se desea calcular.



**Figura A.2:** Dispersión de un haz plano de  $\lambda = 632,8nm$  en el vacío sobre un perfil de índice de refracción que varía desde 1 a 2 linealmente en el primer  $\mu m$ . Para radios mayores a  $1\mu m$  el índice de refracción es 2. Se tomó  $\mu = 1$  en todas partes. Se muestran en tonos de colores el número de capas utilizadas para cada cálculo

# Apéndice B

## El fotomultiplicador

El fotomultiplicador ha estado presente en muchos de los experimentos de este trabajo y por lo tanto ciertas características particulares de este tipo de detectores merece una especial atención.

En este apéndice estudiaremos dos casos de interés que son muy frecuentes en el uso de un fotomultiplicador.

### B.1. La medición del ancho de pulso

El tiempo de respuesta de un fotomultiplicador está determinado por una suma de factores que afectan a la cadena completa de medición, desde la fuente, el fotomultiplicador y la tarjeta de adquisición o el osciloscopio. Para un estudio detallado de las diferentes contribuciones se puede consultar la bibliografía al respecto [88, 89].

Estamos interesados en este punto en determinar el ancho de un pulso de luz que se encuentra en los límites de detección del sistema.

La técnica común en estos casos es determinar la respuesta en frecuencia del detector y realizar una deconvolución de los datos medidos.

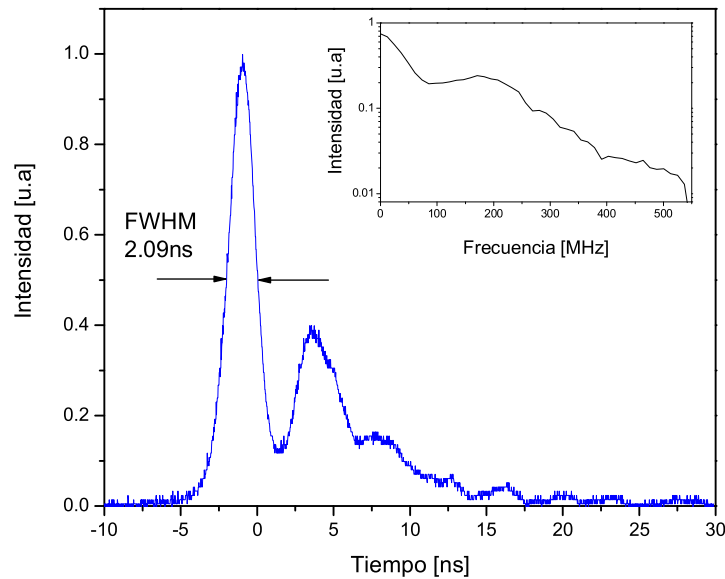
Para hallar la respuesta en frecuencia del fotomultiplicador basta con medir la respuesta de todo el sistema a un pulso de luz extremadamente breve (el ancho del pulso debe ser mucho menor que el tiempo de respuesta del detector). Para esto utilizamos dos formas diferentes de excitación: Un pulso láser de ancho menor al  $ns$  (ver Apéndice C) y la respuesta a un fotoelectrón.

La respuesta a un fotoelectrón se puede conseguir disminuyendo el nivel de iluminación en el fotomultiplicador hasta que pueda separarse la respuesta a la producción de un solo electrón en el primer dínodo. Este fotoelectrón producirá una avalancha y por lo tanto una señal que es equivalente (salvo por variaciones espaciales en el primer dínodo) a un pulso de luz muy breve.

En la Figura B.1 se muestra la respuesta típica de un fotomultiplicador (Oriol 77340) a un fotoelectrón.

El fotomultiplicador se conectó en este caso a un osciloscopio HP54616B de 1Gs/seg y 500MHz con terminal de  $50\Omega$  y  $12pf$  de capacidad mediante un cable coaxial de  $50\Omega$  y 1 metro de longitud.

El ancho del pulso obtenido es  $\sim 2ns$  y puede observarse además una estructura con forma



**Figura B.1:** Respuesta normalizada del fotomultiplicador Oriel 77340 a un fotoelectrón con el alto voltaje en 750V. Se utilizó en este caso un osciloscopio HP54616B de 1Gs/seg con terminal de  $50\Omega$  y  $12pf$  de capacidad. En el detalle se muestra la transformada de fourier que representa la respuesta al impulso del sistema.

de un segundo pulso unos  $5ns$  más tarde. Esta estructura es propia del fotomultiplicador utilizado y no es una reflexión en los cables (la impedancia está ajustada). La corriente integrada de este pulso representa una cantidad de  $\sim 1,5 \cdot 10^6$  electrones, es decir, en estas condiciones la avalancha amplifica más de un millón de veces el fotoelectrón inicial.

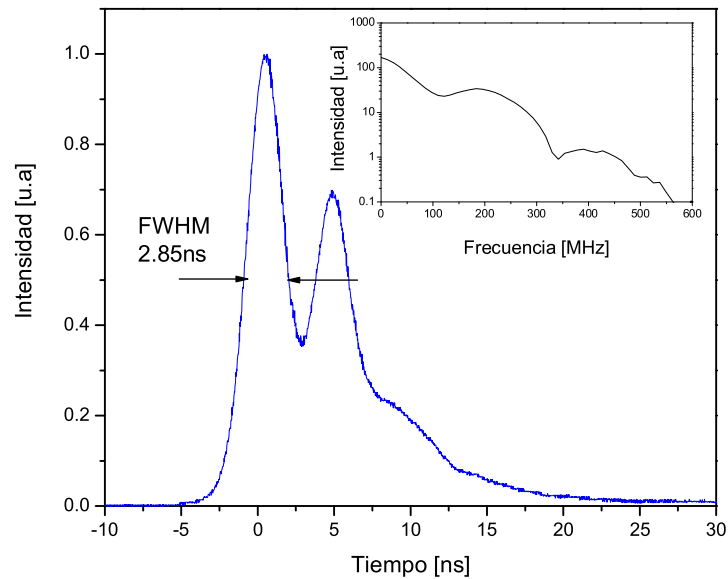
La transformada de fourier que se muestra en el detalle de la Figura representa la respuesta al impulso del sistema completo de medición. Allí puede verse que la respuesta del conjunto disminuye rápidamente por encima de los  $540MHz$ , lo cual es compatible con la respuesta del Osciloscopio utilizado ( $500MHz$ ).

Una vez determinada la respuesta al impulso del sistema procedemos al cálculo del ancho de pulso en un caso particular. Analizaremos un pulso de sonoluminiscencia en ácido sulfúrico para una concentración de argón de  $30mb$ . Este pulso se encuentra en el límite de detección del sistema.

En la Figura B.2 se muestra la respuesta del sistema a un pulso de sonoluminiscencia en ácido sulfúrico de máxima intensidad cuando la burbuja está todavía en el centro.

En esta Figura puede observarse como la respuesta es un poco más ancha que en el caso del fotoelectrón alcanzando un valor de  $2,85ns$  FWHM en el primer pico.

Para realizar la deconvolución del pico medido con la respuesta del sistema se procede a calcular el cociente de las transformadas de fourier (señal/impulso). En este punto es necesario tener en cuenta que debe utilizarse una frecuencia de corte para evitar realizar el cociente en regiones donde los coeficientes son muy pequeños.



**Figura B.2:** Respuesta normalizada del fotomultiplicador Oriel 77340 a un pulso de sonoluminiscencia en ácido sulfúrico con el alto voltaje en 750V. En el detalle se muestra la transformada de fourier de la señal.

Una vez calculado el cociente se obtiene el pulso original realizando la antitransformada de fourier del cociente. En la Figura B.3 se muestra la respuesta del sistema a un pulso de sonoluminiscencia en ácido sulfúrico de máxima intensidad cuando la burbuja está todavía en el centro.

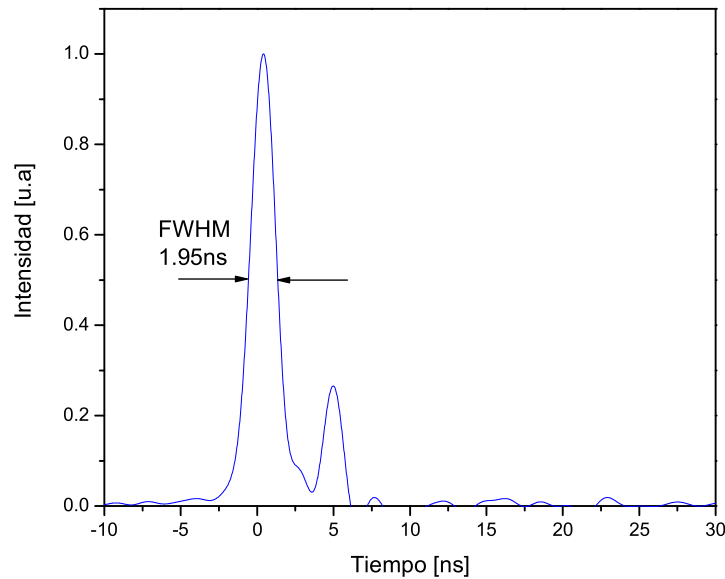
En esta Figura vemos que el pulso deconvolucionado tiene un ancho de  $\sim 1,95ns$  FWHM y es simétrico. Esto está de acuerdo al valor predicho en estas condiciones por el modelo numérico de la Sección 2.1.2.

El pequeño pulso que aparece a la derecha no puede entenderse a partir de la teoría lineal que implica el proceso de deconvolución.

Por último, cabe señalar que el resultado obtenido para el ancho de pulso medido se ajusta bien a la regla práctica de suma de cuadrados (que es estrictamente válida para pulsos y respuesta gaussiana) en la que el ancho del pulso puede estimarse mediante

$$H_{pulso} = \sqrt{H_{medido}^2 + H_{impulso}^2}$$

donde  $H$  representa el ancho a altura mitad de los picos mostrados en las Figuras B.1 a B.3. Usando esta ecuación se obtiene para el pulso de sonoluminiscencia un FWHM de  $2ns$  que está en muy buen acuerdo con los  $1,95ns$  del pulso obtenido por deconvolución.



**Figura B.3:** Deconvolución del pulso de sonoluminiscencia obtenido a partir del cociente de las transformadas de fourier de la señal y el impulso (y posterior antitransformada). El pulso a la derecha es el producto de efectos no-lineales en el fotomultiplicador.

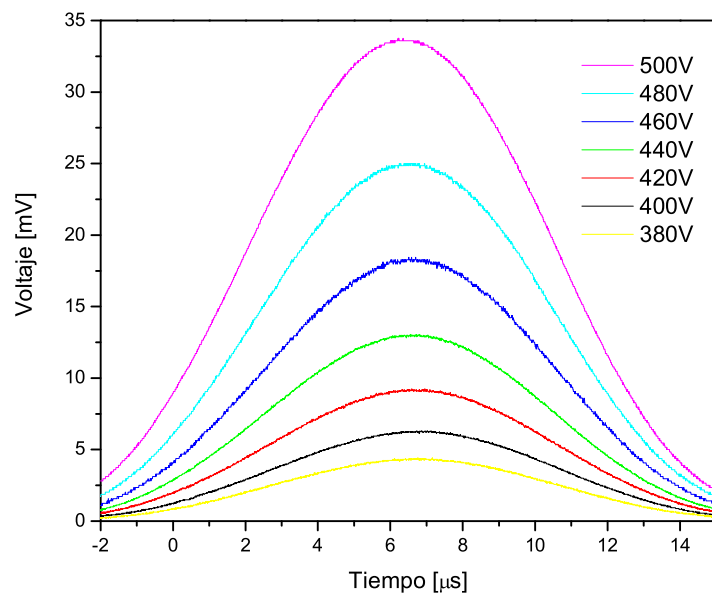
## B.2. La saturación del fotomultiplicador

Un parámetro importante a tener en cuenta en el fotomultiplicador es la posible saturación de la señal. Este efecto no-lineal se produce para valores altos de corriente sobre los dínodos del fotomultiplicador y puede ocasionar modificaciones en los valores de intensidad medidos.

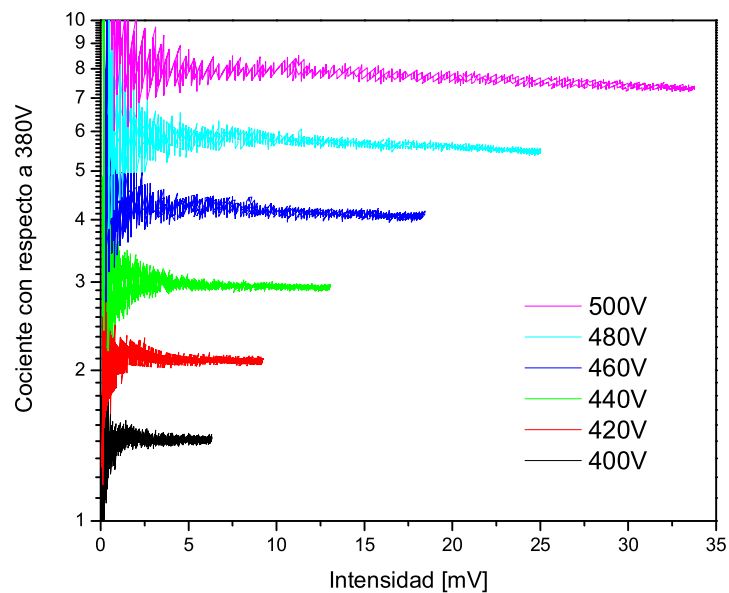
Para evaluar experimentalmente la saturación en el fotomultiplicador se midió una fuente luminosa pulsada a diferentes valores de tensión de alto voltaje. En la Figura B.4 se muestran los resultados obtenidos para 7 valores diferentes de alto voltaje. Estos pulsos fueron medidos con un osciloscopio HP54616B de  $1\text{Gs/seg}$  y  $500\text{MHz}$  con terminal de  $50\Omega$  y  $12\text{pf}$  de capacidad mediante un cable coaxial de impedancia característica  $50\Omega$  y 1 metro de longitud.

Aquí se puede observar que para este pulso ( $\text{FWHM} \sim 10\mu\text{s}$ ) la amplitud máxima obtenida aumenta rápidamente a medida que se incrementa la tensión utilizada. Por otro lado, la forma del pulso no cambia apreciablemente con el valor de alta tensión.

A partir de estas mediciones se calculó el cociente entre la señal obtenida a un determinado voltaje y la medida al voltaje mas bajo ( $380\text{V}$ ). En la Figura B.5 se muestra el cociente calculado de esta manera en función del voltaje medido en el osciloscopio. En esta Figura puede observarse que el cociente va aumentando a medida que crece el alto voltaje aplicado. Para voltajes pequeños el ruido en la medición se hace más notable debido al cociente de cantidades pequeñas.



**Figura B.4:** Pulso luminoso medido a diferentes tensiones de alto voltaje en fotomultiplicador Oriel 77340.

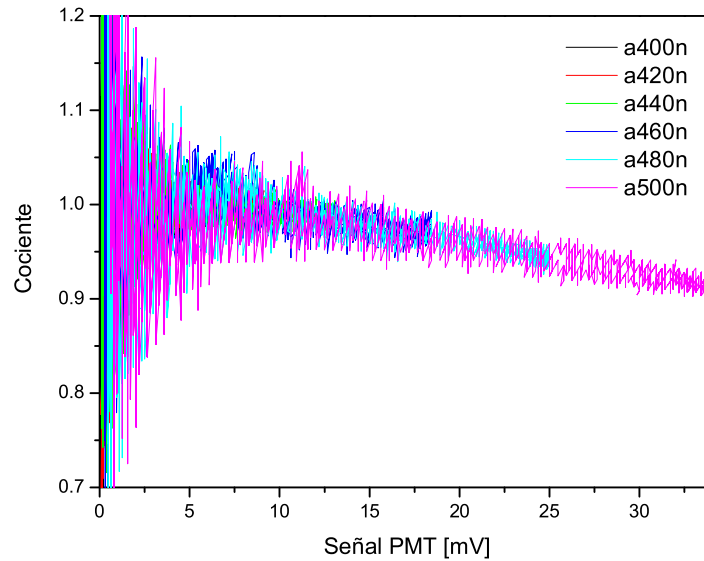


**Figura B.5:** Cociente de las diferentes curvas de la Figura B.4 con el valor medido usando 380V. Se muestra el cociente en función del voltaje medido en el osciloscopio.

Aquí puede apreciarse que para voltajes bajos, los cocientes son rectas horizontales como es de esperarse en un detector lineal. Sin embargo, para voltajes mayores los cocientes disminuyen ligeramente indicando que el detector esta saturando.

Para una mejor visualización de este fenómeno se han dibujado en la Figura B.6 los cocientes normalizados con el valor que poseen para bajos voltajes en el osciloscopio.

Aquí puede observarse que todos los cocientes parecen colapsar en una sola curva. Esto



**Figura B.6:** Cocientes de la Figura B.5 normalizados con el valor a bajos voltajes. Estas curvas representan la saturación del fotomultiplicador Oriel 77430.

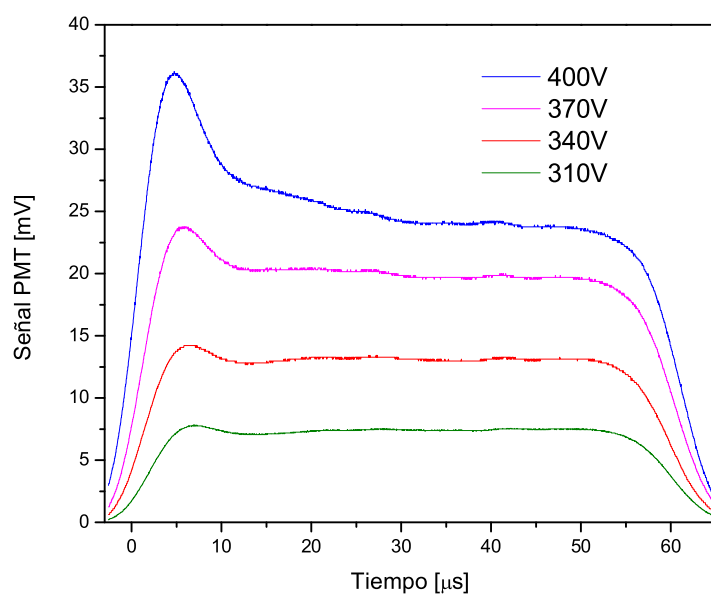
significa que el porcentaje de saturación de la señal depende de la *corriente* que circula por el fotomultiplicador.

La disminución de la señal en este fotomultiplicador puede alcanzar aproximadamente el 8% de la señal para valores de voltaje de  $40mV$  ( $\sim 800\mu A$  sobre el último dínodo). Sin embargo, debido a que sólo depende de la corriente en el fotomultiplicador, los valores medidos pueden ser corregidos utilizando esta curva.

La saturación del fotomultiplicador se vuelve más crítica para pulsos de mayor duración. En la Figura B.7 se muestran resultados para un pulso de luz más ancho. Aquí vemos que la saturación para un pulso de  $\sim 60\mu s$  FWHM no es sólo función del valor de la señal medida sino que también depende de los valores de corriente anteriores (depende de la historia de la señal). A diferencia del caso anterior en que la señal podía ser corregida fácilmente utilizando la curva de la Figura B.6, aquí la corrección debe depender de la evolución temporal de la señal.

Como conclusión general se puede tomar como norma de seguridad no superar los  $100\mu A$  de corriente en el fotomultiplicador para evitar los problemas de saturación. Sin embargo, para pulsos breves ( $< 10\mu s$ ) se puede superar este valor teniendo en cuenta la curva de saturación de la Figura B.6.





**Figura B.7:** Pulso luminoso de  $\sim 60\mu\text{s}$  FWHM medido a diferentes tensiones de alto voltaje en fotomultiplicador Oriel 77340.



# Apéndice C

## Láser de colorantes

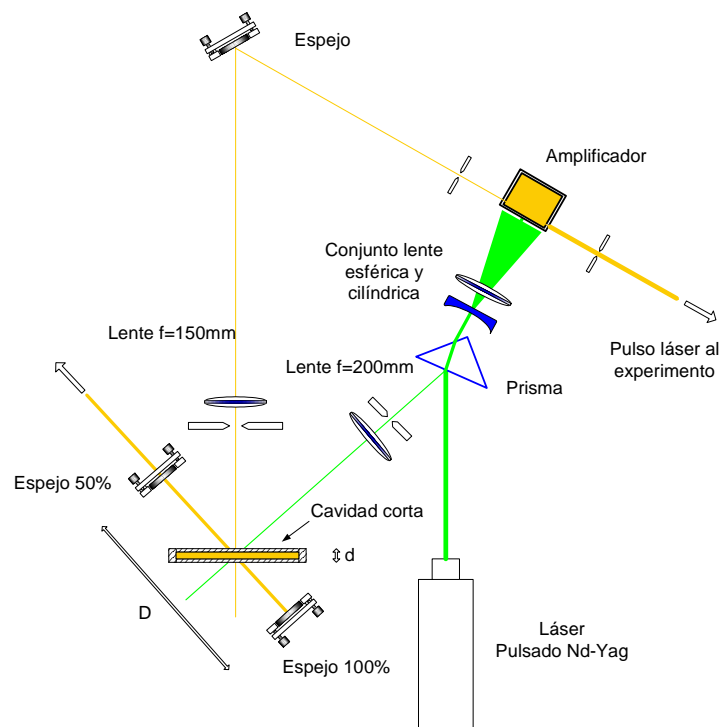
Este láser estaba formado por una cavidad resonante de bajo Q (sus caras reflejaban la luz sólo por reflexión en el dieléctrico) que se construyó para tal fin (Figura C.1). Por esta cubeta circulaba el colorante donde se producía la inversión de población (Rodamina 6G  $10^{-4}$  molar). Se colocó además otra cavidad que utiliza el mismo medio activo pero que posee un Q muy alto (una de las caras es un espejo 99.9% de reflectividad y la otra es un espejo semitransparente que permitía alinear las caras).

Aún a pesar de que la cavidad de bajo Q posee un umbral de laseo más alto que la cavidad de alto Q debido al bajo nivel de realimentación, alcanza este valor crítico antes gracias a que las reflexiones deben recorrer una distancia más corta y comienza a lasear. Luego de que la cavidad de alto Q alcanza su umbral de laseo, la inversión de población baja a los valores de inversión crítica determinados por el alto Q de la cavidad larga. Debido a que esta inversión es mucho más baja que el umbral para la cavidad corta, esta última deja de lasear. Ajustando el tamaño de la cavidad de alto Q podemos obtener pulsos de diferentes largos [90]. Para una cavidad de alto Q de 10cm es de esperar que se obtengan pulsos de  $\approx 500ps$ .

Como este pulso posee una energía muy pequeña, se agregó una etapa amplificadora que aumentaba la intensidad del pulso.

Este amplificador básicamente es una cubeta donde se consigue inversión de población con la parte más energética del pulso YAG y donde el pulso corto forma la *semilla* que produce el laseo.

Utilizando este sistema se consiguieron pulsos de  $\sim 750ps$  de ancho y hasta  $2\mu J$  de energía por pulso.



**Figura C.1:** Láser de colorantes desarrollado para obtener pulsos cortos. Un láser pulsado YAG de ancho de pulso  $20\text{ns}$  excita una celda delgada con colorante. El pulso generado en esta celda de bajo  $Q$  es “apagado” por la excitación de otra cavidad más grande de alto  $Q$ . El pulso es luego amplificado en otra celda donde se produjo inversión de población.

# Bibliografía

- [1] Barber, B. P. and Putterman, S. J. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3839 (1992).
- [2] Barber, B. P. and Putterman, S. J. *Nature (London)* **352**, 318–320 (1991).
- [3] Hiller, R. *The Spectrum of Single Bubble Sonoluminescence*. PhD thesis, University of California at Los Angeles, (1992).
- [4] Barber, B. P. and Putterman, S. J. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 5276 (1994).
- [5] Gaitan, F. D. PhD thesis, The University of Mississippi, (1990).
- [6] Brenner, M. P., Hilgenfeldt, S., and Lohse, D. *Rev. of Mod. Phys.* **74**, 425 (2002).
- [7] Hiller, R. A., Putterman, S. J., and Weninger, K. R. *Phys. Rev. Lett.* **80**(5), 1090 (1997).
- [8] Gompf, B., Gunther, R., Nick, G., Pecha, R., and Eisenmenger, W. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1405–1408 (1997).
- [9] Hilgenfeldt, S., Brenner, M., and Lohse, D. *Phys. Fluids* **8**(11), 2808 (1996).
- [10] Ketterling, J. A. and Apfel, R. E. *Phys. Rev. E.* **61**(4), 3832 (2000).
- [11] Ketterling, J. A. and Apfel, R. E. *Acoustics Research Letters Online* **107**(3), 13 (2000).
- [12] Flannigan, D. J. and Suslick, K. S. *Nature (London)* **434**, 52 (2005).
- [13] Flannigan, D. J. and Suslick, K. S. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 044301 (2005).
- [14] Toegel, R., Luther, S., and Lohse, D. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 114301 (2006).
- [15] Chakravarty, A., Georghiou, T., Phillipson, T. E., and Walton, A. J. *Phys. Rev. E.* **69**, 066317 (2004).
- [16] Puente, G. F. *Sonoluminiscencia y Cavitación en Burbujas: Análisis Dinámico y de Estabilidad en Regiones Altamente no Lineales*. Doctorado en ciencias de la ingeniería, Instituto Balseiro, (2005).
- [17] Delgadino, G. *The Dynamics of Single Bubble Snoluminescence*. PhD thesis, Rensselaer Polytechnic Institute, (1999).

- [18] Timoshenko, S. P. *Theory of Plates and Shells*. (1940).
- [19] Rayleigh, L. *Philos. Mag* **34**(94) (1917).
- [20] Plesset, M. *J. App. Mech.* **16**, 277 (1949).
- [21] Matula, T. J. *Acoustical Society of America* **114**(2), 775–781 (2003).
- [22] Magnaudet, J. and Legendre, D. *Phys. of Fluids* **10**(3), 550 (1997).
- [23] Leighton, T. *The Acoustic Bubble*. Academic London, (1994).
- [24] Mie, G. *Physik* **25**, 377 (1908).
- [25] Stratton, J. A. *Dye Lasers*. Mc Graw Hill, New York, (1941).
- [26] Villareal, C., Esquivel-Sirvent, R., and Jáuregui, R. *Phys. Rev. E.* **21**(1) (2000).
- [27] Wu, C. C. and Roberts, P. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5434 (1998).
- [28] Kondic, L., Gersten, J., and Yuan, C. *Phys. Rev. E.* **52**, 4976 (1995).
- [29] Tse, W. K. and Leung, P. *Phys. Rev. E.* **73**, 056302 (2006).
- [30] Jackson, J. *Classical Electrodynamics*. Wiley, New York, (1999).
- [31] Feynman, R. and Leighton, R. *Física Vol.2 Electromagnetismo y Materia*. Addison Wesley, second edition, (1987).
- [32] Montixi, G., Occelli, R., and Coulon, R. *J. Optics (Paris)* **11**(5), 331–335 (1980).
- [33] Sinnok, A. *J. Phys. C: Solid St. Phys.* **13**, 2375–2391 (1980).
- [34] Itoh, N., Sakamoto, T., and Kusano, S. *The Astrophysical Journal Supplement Series* **128**, 125–138 (2000).
- [35] Zeldovich, Y. B. and Raizer, Y. P. *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena*. Academic Press, (1966).
- [36] Martinez, P. G. Tesis de grado en ingeniería nuclear, Instituto Balseiro, (2002).
- [37] Puente, G. F., García-Martínez, P., and Bonetto, F. J. *Phys. Rev. E.* **75**, 016314 (2007).
- [38] H.Lin, Storey, B., and Szeri, A. *J. Fluid Mech.* **452**, 145–162 (2002).
- [39] Storey, B. and Szery, A. *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **456**, 1685–1709 (2000).
- [40] Urteaga, R. Tesis de grado en licenciatura en física, Instituto Balseiro, (2000).
- [41] Felix, M. P. and Ellis, A. T. *Applied Physics Letters* **19**(11) (1971).
- [42] Gompf, B. and Pecha, R. *Phys. Rev. E.* **61**(5), 5253 (2000).

- [43] Puente, G. F., Urteaga, R., and Bonetto, F. J. *Phys. Rev. E* **72**, 046305 (2005).
- [44] Urteaga, R., Dellavale, D., Puente, G. F., and Bonetto, F. J. Enviado a *J. Acoust. Soc. Am.* para publicación, (2007).
- [45] Holt, R. G. and Gaitan, D. F. *Phys. Rev. Lett.* **77**(18), 3791 (1996).
- [46] Gaitan, D. F. and Holt, R. G. *Phys. Rev. E* **59**(5), 5495 (1999).
- [47] An, Y., Lu, T., and Yang, B. *Phys. Rev. E* **71**, 026310 (2005).
- [48] Dam, J. S., Levinsen, M. T., and Skogstad, M. *Phys. Rev. E* **67**, 026303 (2003).
- [49] Dam, J. S., Levinsen, M. T., and Skogstad, M. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 174301 (2005).
- [50] Holzfuss, J. and Rugeberg, M. *Phys. Rev. E* **66**, 046630 (2002).
- [51] *Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, 83 edition, (2003).
- [52] Matula, T. J., Cordry, S. M., Roy, R. A., and Crum, L. A. *Acoustical Society of America* **102**(3), 1522 (1997).
- [53] Holt, R. G., Gaitan, D. F., Atchley, A., and Holzfuss, J. *Phys. Rev. Lett.* **72**(9), 1376 (1994).
- [54] Holzfuss, J., Rugeberg, M., and Billo, A. *Phys. Rev. Lett.* **81**(24), 5434 (1998).
- [55] Matula, T. J. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **357**, 225 (1997).
- [56] Urteaga, R., Dellavale, D. H., Puente, G. F., and Bonetto, F. J. *Phys. Rev. E* **76**, 056317 (2007).
- [57] Gaitan, D. F., Crum, L. A., Church, C. C., and Roy, R. A. *J. Acoust. Soc. Am.* **91**(6), 3166–3183 (1992).
- [58] Weninger, K. R., Hiller, R. A., Barber, B. P., Lacoste, D., and Putterman, S. J. *J. Phys. Chem.* **14**, 195 (1995).
- [59] Didenko, Y. T., McNamara, W. B., and Suslick, K. S. *Nature (London)* **407**, 6806 (2000).
- [60] Asaki, T. J. and Marston, P. L. *J. Acoust. Soc. Am.* **102**, 3372 (1997).
- [61] Matula, T. J., Roy, R. A., Mourad, P. D., McNamara, W. B., and Suslick, K. S. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2602–2605 (1995).
- [62] Flannigan, D. J., Hopkins, S. D., and Suslick, K. S. *J. of Org. Met. Chem.* **690**, 3513 (2005).
- [63] Hopkins, S. D., Putterman, S. J., Kappus, B. A., Suslick, K. S., and Camara, C. G. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 254301 (2005).

- [64] Troia, A., Ripa, D. M., and Spagnolo, R. *Ultrasonics* **13**, 278–282 (2006).
- [65] Weninger, K. R., Evans, P., and Putterman, S. J. *Phys. Rev. E* **61**, 1020 (2000).
- [66] Puente, G. F. and Bonetto, F. J. *Phys. Rev. E* **71**, 056309 (2005).
- [67] Leighton, T. G., Walton, A. J., and Pickworth, M. J. W. *Eur. J. Phys.* **11**, 47–50 (1990).
- [68] Urteaga, R. and Bonetto, F. J. *Phys. Rev. Lett.* **100**(7), 074302 (2008).
- [69] Hiller, R., Weninger, K., Putterman, S. J., and Barber, B. P. *Science* **266**, 248–250 (1994).
- [70] Moraga, F. J., Taleyarkhan, R., Lahey, R. T., and Bonetto, F. J. *Phys. Rev. E* **62**(2), 2233 (2000).
- [71] Lu, X., Prosperetti, A., Toegel, R., and Lohse, D. *Phys. Rev. E* **67**, 056310 (2003).
- [72] Thomas, J. L. *Phys. Rev. E* **70**, 016305 (2004).
- [73] Yasui, K. *Phys. Rev. E* **63**, 035301 (2001).
- [74] Yasui, K. *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 2911 (1997).
- [75] Hao, Y. and Prosperetti, A. *Phys. of Fluids* **11**, 1309 (1999).
- [76] Toegel, R., Gompf, B., Pecha, R., and Lohse, D. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3165 (2000).
- [77] Hilgenfeldt, S. and Lohse, D. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1036–1039 (1999).
- [78] Hilgenfeldt, S., Grossmann, S., and Lohse, D. *Nature (London)* **409**, 783 (2001).
- [79] Hilgenfeldt, S., Grossmann, S., and Lohse, D. *Nature (London)* **398**, 402–405 (1999).
- [80] Urteaga, R. and Bonetto, F. J. Enviado a *Phys. Rev. E* para publicación, (2008).
- [81] Joukowsky, N. *Water Hammer*. Hilger, Philadelphia, (1987).
- [82] Moody, F. J. *Introduction to Unsteady Thermofluid Mechanics*. Wiley Interscience, (1990).
- [83] Schmid, J. *Acustica* **9**, 321 (1959).
- [84] Su, C. K., Camara, C., Kappus, B., and Putterman, S. J. *Phys. of Fluids* **15**(6), 1457–1461 (2003).
- [85] Landau, L. D. and Lifshitz, E. M. *Fluid Mechanics*. Pergamon Press, second english edition edition, (1987).
- [86] Aden, A. L. *Journal of Applied Physics* **22**(10) (1951).



- 
- [87] Volkov, N. G. and Kovach, V. Y. *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics* **25**(5), 381–385 (1990).
- [88] Saleh, B. E. A. and Teich, M. C. *Fundamental of Photonics*. Jhon Wiley and Sons, (1991).
- [89] Knoll, G. F. *Radiation Detection and Measurement*. Jhon Wiley and Sons, (1979).
- [90] Schafer, F. P. *Electromagnetic Theory*. 3 edition, (1989).