



# Bachelorarbeit

---

## Ultraschall als Energieeintrag – Sonochemie und Sonolumineszenz

Bachelor of Science | Angewandte Chemie  
Fachbereich Chemie und Biotechnologie  
Fachhochschule Aachen  
Campus Jülich

von

**THOMAS BECKMANN**

Matrikelnummer | xxxxxxxx

Erstbetreuer

**PROF. DR. JAKOB G. LAUTH**

Zweitbetreuerin

**M.Sc. JACQUELINE KALUZA**

Jülich, 10. Februar 2022

## **Eidesstattliche Erklärung**

Diese Arbeit ist von mir selbständig angefertigt und verfasst. Es sind keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt worden.

---

Ort, Datum

---

Thomas Beckmann

# Inhaltsverzeichnis

ABKÜRZUNGS- UND SYMBOLVERZEICHNIS .....	V
<b>1 Einleitung und Ziel.....</b>	<b>1</b>
<b>2 Theorie.....</b>	<b>3</b>
2.1 Schwingungen und Wellen.....	3
2.1.1 Schwingungen.....	3
2.1.2 Überlagerung von Schwingungen.....	4
2.1.3 Wellen.....	4
2.1.4 Ausbreitung von Wellen.....	6
2.1.5 Beugung, Brechung und Reflexion von Wellen.....	7
2.2 Schall .....	7
2.2.1 Ultraschall.....	7
2.2.2 Erzeugung von Schall.....	8
2.2.3 Piezoelektrischer Effekt.....	8
2.2.4 Piezokeramiken.....	9
2.2.5 Ultraschallreinigungsbäder.....	9
2.2.6 Schallwechseldruck.....	10
2.2.7 Schallgeschwindigkeit in Flüssigkeiten .....	11
2.2.8 Energiedichte, Schallintensität und Schalleistung.....	11
2.2.9 Störung der Schallausbreitung.....	11
2.3 Akustische Kavitation.....	12
2.3.1 Nukleation von Kavitationsblasen .....	12
2.3.2 Implosion von Kavitationsblasen.....	12
2.3.3 Einfluss der Schallfrequenz auf die Kavitation .....	13
2.3.4 Zonen der Kavitationsblase.....	13
2.3.5 Chemische Reaktionen durch akustische Kavitation .....	14
2.3.6 Physikalische Effekte durch akustische Kavitation .....	15
2.4 Sonolumineszenz.....	16
2.4.1 Multi-Bubble-Sonolumineszenz (MBSL).....	16
2.4.2 Single-Bubble-Sonolumineszenz (SBSL).....	16
2.4.3 Licht.....	17
2.4.4 Molekulanregung.....	17
2.4.5 Emissionsspektren .....	17
2.4.6 Theorien zur Entstehung der Sonolumineszenz .....	18
2.4.7 Vergleich von Emissionsspektren der MBSL und SBSL.....	18
2.5 Chemikalien .....	19
2.5.1 Kaliumiodid.....	19
2.5.2 Schwefelsäure.....	20
2.5.3 Natriumhydroxid .....	21
2.5.4 Glycerin .....	21
2.5.5 Natriumchlorid .....	22
2.5.6 Kaliumchlorid.....	22

<b>3</b>	<b>Experimenteller Teil</b>	<b>23</b>
3.1	Verteilung der Ultraschalleistung	24
3.1.1	<i>Perforation von Aluminiumfolie</i>	24
3.1.2	<i>Kalorimetrische Messung des Energieeintrags</i>	25
3.2	Sonochemie	26
3.2.1	<i>Emulsionsbildung</i>	26
3.2.2	<i>Scherkräfte</i>	26
3.2.3	<i>Oxidation von Kaliumiodid</i>	27
3.3	Sonolumineszenz	27
<b>4</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>30</b>
4.1	Perforation von Aluminiumfolie	30
4.2	Kalorimetrische Messung des Energieeintrags	32
4.3	Emulsionsbildung	36
4.4	Scherkräfte	37
4.5	Oxidation von Kaliumiodid	38
4.6	Sonolumineszenz	39
4.6.1	<i>Stickstoff als Nukleationsgas</i>	40
4.6.2	<i>Argon als Nukleationsgas</i>	41
4.6.3	<i>Vergleich Stickstoff und Argon</i>	42
4.6.4	<i>Sonolumineszenz der Salzlösungen</i>	43
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>44</b>
<b>6</b>	<b>Ausblick</b>	<b>46</b>
	ANHANG	48
	ABBILDUNGSVERZEICHNIS	53
	TABELLENVERZEICHNIS	55
	LITERATURVERZEICHNIS	56

## Abkürzungs- und Symbolverzeichnis

$A$	Amplitude	
$c$	Ausbreitungsgeschwindigkeit	[m·s <sup>-1</sup> ]
$c$	Stoffmengenkonzentration	[mol/L]
$c_p$	Spezifische Wärmekapazität	[J·g <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]
$E$	Energie	[J]
$f$	Frequenz	[hz, s <sup>-1</sup> ]
$h$	Höhe	[cm]
$h$	Plancksches Wirkungsquantum	[J·s]
$I$	Schallintensität	[Watt/m <sup>2</sup> ]
$m$	Masse	[g]
$P$	Schalleistung	[Watt]
$p$	Druck	[Pa]
$\hat{p}$	Druckamplitude	[Pa]
$p_A$	Schallwechseldruck	[Pa]
$r$	Abstand zur Schallquelle	[m]
$T$	Periodendauer	[s]
$T$	Temperatur	[K, °C]
$t$	Zeit	[min, s]
$w$	Energiedichte	[J/m <sup>3</sup> ]
$W$	Schallenergie	[J]
$y$	Auslenkung	
$\alpha$	Schalldämpfungskoeffizient	[m <sup>-1</sup> ]
$\epsilon$	Einfallswinkel	[°]
$\epsilon'$	Ausfallswinkel	[°]
$\lambda$	Wellenlänge	[nm]
$\phi$	Nullphasenwinkel	[rad]
$\omega$	Kreisfrequenz	[hz, s <sup>-1</sup> ]
MBSL	Multi-Bubble-Sonolumineszenz	
PE-Flasche	Polyethylen-Flasche	
SBSL	Single-Bubble-Sonolumineszenz	
SL	Sonolumineszenz	
USB	Ultraschallbad	
USB 1	Emmi-30HC Ultraschallreiniger	
USB 2	SONOREX SUPER RK103H	

---

<i>Ar</i>	Argon
<i>C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>O<sub>3</sub></i>	Glycerin
<i>Cl<sub>2</sub></i>	Chlorgas
<i>H<sub>2</sub></i>	Wasserstoff
<i>H<sub>2</sub>O<sub>2</sub></i>	Wasserstoffperoxid
<i>H<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>7</sub></i>	Dischwefelsäure
<i>HCl</i>	Salzsäure
<i>HI</i>	Iodwasserstoffsäure
<i>HO·</i>	Hydroxyl-Radikal
<i>H·</i>	Wasserstoff-Radikal
<i>I<sub>2</sub></i>	Iod
<i>KCl</i>	Kaliumchlorid
<i>KI</i>	Kaliumiodid
<i>KIO<sub>3</sub></i>	Kaliumiodat
<i>KOH</i>	Kalilauge
<i>M</i>	Inertes Molekül
<i>NaCl</i>	Natriumchlorid
<i>NaOH</i>	Natriumhydroxid
<i>O<sub>2</sub></i>	Sauerstoff
PZT	Blei-Zirkonat-Titanat
<i>SO<sub>3</sub></i>	Schwefeltrioxid

## 1 Einleitung und Ziel

Ultraschall ist Schall, dessen Frequenz nicht vom menschlichen Hörorgan wahrgenommen werden kann. Jedoch begegnet uns Ultraschall in der Natur als Medium zur Informationsübertragung bei Ratten, Hunden und Fledermäusen. Insbesondere die Fledermaus zeigt, dass Schall nicht nur zur Kommunikation über Geräusche und Sprache dient, sondern auch zur Ortung von Objekten genutzt werden kann. Hierbei nutzt die Fledermaus aus, dass Schall sich wellenförmig ausbreitet und an Oberflächen reflektiert wird. Durch die Zeit, die verstreicht bis eine von ihr ausgesendete Schallwelle wieder zurück gelangt, kann die Fledermaus die Entfernung ermitteln und sich so auch in der Dunkelheit orientieren. Die Adaption dieses Ortungsverfahrens durch den Menschen ist in Form des Sonar zur Unterwasserortung die erste technische Anwendung von Ultraschall. <sup>[1]</sup>

Innerhalb der letzten 100 Jahre wurden viele weitere Anwendungsmöglichkeiten des Ultraschalls entwickelt und verfeinert. Die Sonografie ist zentraler Bestandteil der medizinischen Diagnostik geworden. Hierbei wird der Unterschied zwischen der Reflexion von Ultraschallwellen an menschlichem Gewebe und Knochen oder Luft genutzt, um durch Umrechnung der gemessenen Reflexion Bilder des untersuchten Areal zu erzeugen. <sup>[2]</sup> Die Ultraschallreinigung ist nur eines von vielen Beispielen, in denen auch die physikalischen Effekte des Ultraschalls genutzt werden.

Diese Bachelorarbeit beschäftigt sich mit der Anwendung von Ultraschall in der Chemie. Dieses Themenfeld wird auch Sonochemie genannt. Die Sonochemie befasst sich hauptsächlich mit dem Effekt des Ultraschalls auf homogene und heterogene flüssige Systeme. Ausgelöst werden diese Effekte durch akustische Kavitation. Sonochemische Effekte sind vor allem die Bildung von Zonen mit hoher Temperatur und hohem Druck, das Erzeugen von reaktiven Fragmenten und Radikalen und die Beschleunigung von Wärme- und Stofftransportprozessen.

In breitem Maß werden die sonochemischen Effekte vor allem als vorbereitende Maßnahme genutzt. So eignet sich Ultraschall hervorragend zur Entgasung von Flüssigkeiten, da durch akustische Kavitation Blasen gebildet werden, die gelöste Gase aufnehmen und anschließend zur Flüssigkeitsoberfläche aufsteigen. In heterogenen Systemen hilft die akustische Kavitation die verschiedenen Phasen fein zu durchmischen, wodurch die Reaktionsfläche erhöht wird. Durch die feine Durchmischung können auch stabile Emulsionen erzeugt werden, die in der

Lebensmittel-, Kosmetik- und Pharmaindustrie für beispielsweise Mayonnaisen, Salatdressings, Cremes, Lotionen oder Salben sehr relevant sind. [3]

In der Elektrochemie führt die Anwendung von Ultraschall unter anderem durch verbesserten Stofftransport und effiziente Reinigung der Elektrodenoberfläche zu einer insgesamt effektiveren Anwendung elektrochemischer Prozesse. [4]

In der organischen Synthese spielen der verbesserte Stofftransport und die feine Verteilung von heterogenen Phasen eine große Rolle. Beispielsweise können Reaktionen, die unter Normalbedingungen die Zugabe von Phasentransferkatalysatoren erfordern, durch Beschallung ohne Katalysator ausgeführt werden. [5]

Von besonderem Interesse und bisher nicht gänzlich entschlüsselt ist die Sonolumineszenz (SL), die das Auftreten von Lichtemission in beschallten Flüssigkeiten beschreibt. Erstmals beobachtet wurde dieses Phänomen 1934 bei dem Versuch die Entwicklungszeit eines fotografischen Films durch Ultraschallbeschickung zu verkürzen. [6] Die nur kurz und unregelmäßigen auftretenden Lichtblitze, wurden in den folgenden Jahren weiter untersucht. Es wurde festgestellt, dass die Lumineszenz immer in Zusammenhang mit Kavitation und dem Bläschenkollaps auftrat. Diese erste Form der SL wird als Multi-Bubble-Sonolumineszenz (MBSL) bezeichnet. Die Entdeckung der Single-Bubble-Sonolumineszenz (SBSL), als reproduzierbares Phänomen 1990 [7] stellt einen wichtigen Wendepunkt für die Untersuchung der SL dar, da nun genauere Beobachtungen einzelner Kavitationsblasen möglich wurden. Hierzu wird eine einzelne Kavitationsblase in einer stehenden Schallwelle gefangen. [8]

Insbesondere die SL als Resultat der Kavitation kann aufschlussreiche Erkenntnisse zu den Eigenschaften der Kavitationsbläschen liefern. Demnach bietet die SL viel Potenzial für Fortschritt in der Sonochemie. [8]

Das Ziel dieser Bachelorarbeit ist es durch Experimente unter einfachen Laborbedingungen und der Verwendung handelsüblicher Ultraschallreinigungsbäder sonochemische Effekte und SL nachvollziehbar darzustellen.



## 2 Theorie

In den folgenden Kapitel werden die theoretischen Grundlagen von Schwingungen, Wellen und Schall und der Anwendung von Ultraschall in der Chemie erläutert.

### 2.1 Schwingungen und Wellen

Die Ausbreitung von Schall und Licht erfolgt in Form von Wellen. Dieses Kapitel gibt eine kurze Übersicht über die Grundlagen von Schwingungen und deren Ausbreitung als Welle.

#### 2.1.1 Schwingungen

Schwingungen sind zeitlich periodisch auftretende Änderungen physikalischer Größen in mechanischen oder elektromagnetischen Systemen. Schwingfähige Systeme werden Oszillatoren genannt. Die Abweichung von einer Gleichgewichtslage wird als zeitabhängige Auslenkung  $y(t)$  erfasst. Die Dimension der Auslenkung ist vom betrachteten System abhängig. Die maximale Auslenkung  $y_{\max}$  wird auch Amplitude  $A$  genannt. Die Zeit, nach der sich ein bestimmter Zustand wiederholt, ist die Periodendauer  $T$ . Der Kehrwert der Periodendauer ist die Frequenz  $f$ . Sie gibt an, wie oft sich ein periodischer Vorgang pro Sekunde wiederholt. Mathematische Beschreibungen der Schwingung orientieren sich am Modell der harmonischen Schwingung, die durch die in Gleichung (1) angegebene Cosinus-Funktion beschrieben werden kann.

$$y(t) = A \times \cos(2\pi f \times t + \phi) \quad (1)$$

Der Schwingungszustands des Oszillators zum Zeitpunkt  $t=0$  wird als Nullphasenwinkel  $\phi$  angegeben. Wird nur ein schwingendes System betrachtet kann für  $\phi$  der Wert  $\phi=0$  angenommen werden. Zur Vereinfachung wird die Kreisfrequenz  $\omega = 2\pi \times f$  eingeführt, sodass sich Gleichung (2) ergibt.

$$y(t) = A \times \cos(\omega t + \phi) \quad (2)$$

Die räumliche Ausbreitung von Schwingungen durch gekoppelte Oszillatoren erfolgt in Form von Wellen. [9]

### 2.1.2 Überlagerung von Schwingungen

Für harmonische Schwingungen gilt das Superpositionsgesetz. Wenn ein System mehrere Schwingungen gleichzeitig ausführt, ergibt sich die Auslenkung des Oszillators aus der Summe der Auslenkungen der einzelnen Schwingungen. Die Amplitude der Schwingung nimmt zu. Ist bei gleicher Frequenz der einzelnen Schwingungen die Differenz der Nullphasenwinkel  $\Delta\phi = 0$  addieren sich die Amplituden. Entspricht die Differenz der Nullphasenwinkel dem Wert von  $\pi$  heben sich die Schwingungen gegenseitig auf.

Bei Schwingungen ungleicher Frequenz gilt, unter der vereinfachenden Annahme, dass die Nullphasenwinkel und die Amplituden der einzelnen Schwingungen gleich sind, der in Gleichungen (3) bis (5) angegebene Zusammenhang.

$$y_1(t) = A \times \cos(\omega_1 \times t) \quad (3)$$

$$y_2(t) = A \times \cos(\omega_2 \times t) \quad (4)$$

$$y_{1+2}(t) = 2A \times \cos\left(\frac{\omega_1 - \omega_2}{2} t\right) \times \cos\left(\frac{\omega_1 + \omega_2}{2} t\right) \quad (5)$$

Bei geringen Frequenzunterschieden kommt es zur Schwebung. Hierbei ändert sich die Amplitude periodisch mit der Schwebungsfrequenz  $f_S = |f_1 - f_2|$ .<sup>[10]</sup>

### 2.1.3 Wellen

Wellen transportieren die Information des Schwingungszustandes eines Oszillators ohne Massentransport an weitere gekoppelte Oszillatoren. Bei mechanischen Wellen wird die Information durch die transportierte mechanische Energie der Oszillatoren übertragen. Abhängig vom Verhältnis der Schwingungsrichtung zur Ausbreitungsrichtung wird zwischen transversalen und longitudinalen Wellen unterschieden. Am Beispiel von Fadenpendeln, die durch Federn mit den nächsten Nachbarn gekoppelt sind, wird dieser Unterschied in Abbildung 2-1 veranschaulicht.

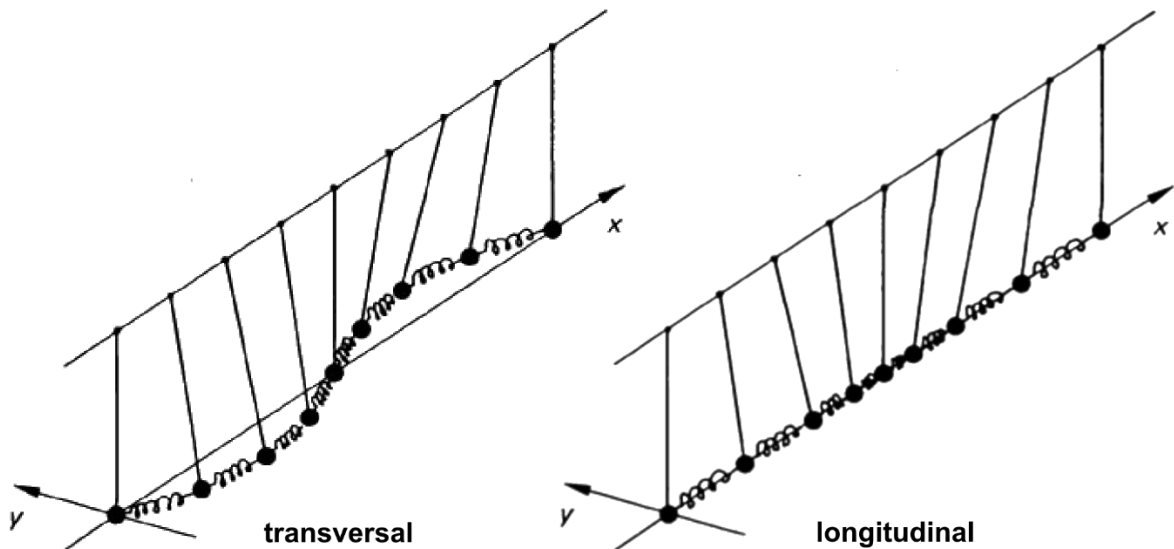


Abbildung 2-1: Transversalwelle und Longitudinalwelle am Beispiel gekoppelter Fadenpendel [9]

Wird das erste Pendel angestoßen, überträgt die koppelnde Feder die resultierende Schwingung zeitverzögert auf das nächste Pendel. So pflanzt sich die resultierende Schwingung entlang der gekoppelten Pendel in  $x$ -Richtung fort. Diese Richtung ist die Ausbreitungsrichtung der Welle. Bei transversalen Wellen schwingen die Pendel senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Bei longitudinalen Wellen schwingen die Pendel in Richtung der Ausbreitungsrichtung. [9]

Wird die Auslenkung  $y$  als Funktion des Orts  $x$  betrachtet, ergibt sich das in Abbildung 2-1 dargestellte Wellenbild. Die Darstellung zeigt Momentaufnahmen einer transversalen Welle in gleichmäßigen Intervallen.

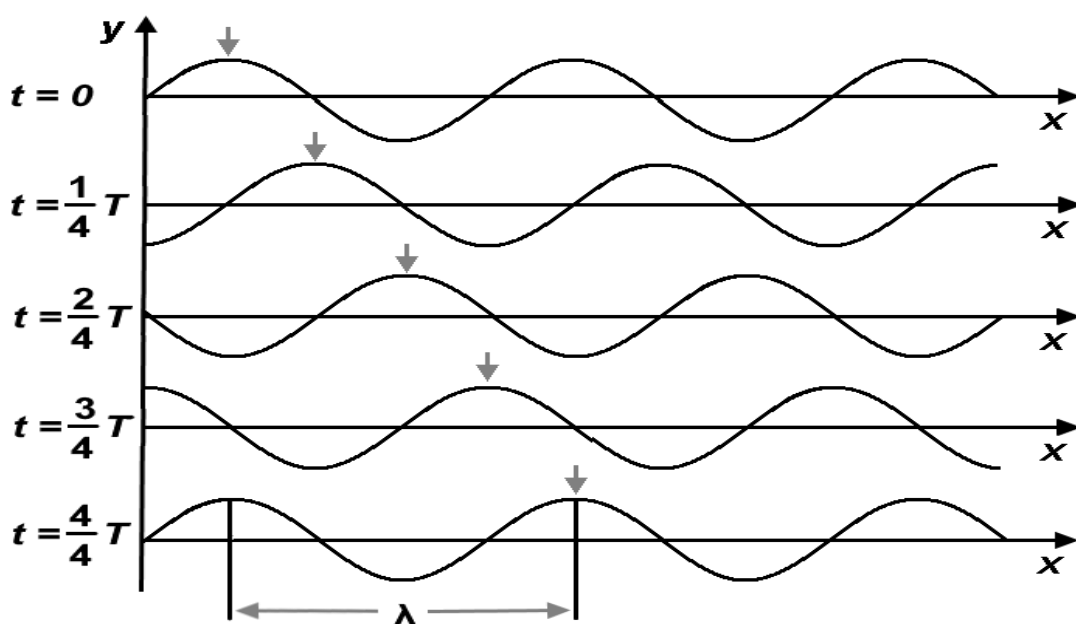


Abbildung 2-2: Momentaufnahmen einer transversalen Welle (in Anlehnung an [9])

Die Zeitspanne in der sich das Wellenbild reproduziert ist gleich der Periodendauer  $T$  der ursprünglichen Schwingung. Innerhalb dieser Zeit schreitet jedoch der markierte Wellenberg um die Strecke  $\lambda$  vor. Diese Strecke ist die Wellenlänge und beschreibt den Abstand zwischen zwei Zuständen gleicher Auslenkung. Die Geschwindigkeit, mit der sich eine Welle ausbreitet, lässt sich somit als Quotient aus Wellenlänge und Periodendauer beschreiben. Mit der Frequenz  $f$  als Kehrwert der Periodendauer ergibt sich für die Ausbreitungsgeschwindigkeit  $c$  die in Gleichung (6) dargestellte Formel. Bei Schall ist  $c$  die Schallgeschwindigkeit und bei Licht ist  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. <sup>[9]</sup>

$$c = \frac{\lambda}{T} = \lambda \times f \quad (6)$$

#### 2.1.4 Ausbreitung von Wellen

Ausgehend von ihrer Quelle breiten sich Wellen im zwei- und dreidimensionalen Raum in alle Raumrichtungen gleichartig aus. Alle Punkte der Wellen, die zum gleichen Zeitpunkt erzeugt wurden, bilden zusammenhängende Flächen, die Wellenfronten genannt werden. Der Abstand zwischen zwei Wellenfronten entspricht genau der Wellenlänge  $\lambda$ . Ausgehend von einer idealen punktförmigen Quelle sind die Wellenfronten Oberflächen von Kugeln, deren Mittelpunkt die Quelle ist. Die Bewegungsrichtung der Wellenfronten wird durch die Wellennormale, die vereinfacht als Strahl bezeichnet wird, beschrieben. Diese steht immer senkrecht auf der Wellenfront und wird zur Beschreibung der Ausbreitungsrichtung von Wellen genutzt. Abbildung 2-1 skizziert den Ausschnitt einer Kugelwelle.

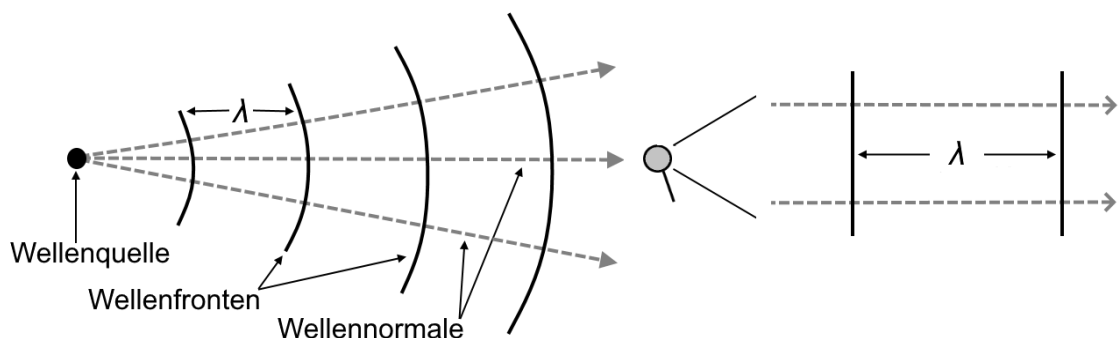


Abbildung 2-3: Wellenfronten einer Kugelwelle (Eigene Darstellung)

In genügend kleinen Ausschnitten können die Wellenfronten durch parallele Ebenen angenähert werden. Wellen mit parallelen ebenen Wellenfronten werden ebene Wellen genannt. Nach dem Huygensschen Prinzip dient jeder Punkt einer Wellenfront

als Ausgangspunkt für eine weitere Kugelwelle, die auch Elementarwellen genannt werden. <sup>[11]</sup>

### 2.1.5 Beugung, Brechung und Reflexion von Wellen

Trifft eine Welle auf ein Hindernis wird ihre Ausbreitungsrichtung geändert. Dieser Effekt wird Beugung genannt und kann durch das Huygenssche Prinzip erklärt werden, da der Punkt, an dem die Welle das Hindernis trifft, wieder Ausgangspunkt für eine Elementarwelle ist. Wenn das Hindernis eine Grenzfläche zwischen zwei Medien, in denen sich die Ausbreitungsgeschwindigkeit unterscheidet, ist, ändert sich die Ausbreitungsrichtung. Diese Änderung wird Brechung genannt. Nach dem Brechungsgesetz gilt der in Gleichung (7) dargestellte Zusammenhang zwischen Einfallswinkel  $\epsilon$ , Ausfallswinkel  $\epsilon'$  und den Ausbreitungsgeschwindigkeiten  $c_1$  und  $c_2$  im jeweiligen Medium.

$$\frac{\sin \epsilon}{\sin \epsilon'} = \frac{c_1}{c_2} \quad (7)$$

Die nach dem Huygensschen Prinzip an der Grenzfläche entstehenden Elementarwellen breiten sich zusätzlich auch im ursprünglichen Medium aus. In diesem Fall ist der Einfallswinkel gleich dem Ausfallswinkel, da die Ausbreitungsgeschwindigkeit unverändert bleibt. Dies wird Reflexion genannt. <sup>[10]</sup>

## 2.2 Schall

Die Akustik befasst sich mit der Ausbreitung von Schwingungen in Gasen, Flüssigkeiten und Festkörpern. Schwingungen breiten sich ausgehend von einer Schallquelle in Form von Druckschwankungen als Schallwelle aus. Abhängig von der Frequenz der Schallwelle wird zwischen Infraschall, Hörschall, Ultraschall und Hyperschall unterschieden.

### 2.2.1 Ultraschall

Der Frequenzbereich des Ultraschalls reicht von 20 kHz bis 10 GHz. Innerhalb dieses Frequenzbereichs wird zwischen Leistungultraschall und diagnostischem Ultraschall unterschieden. Für die physikalisch-technische Anwendung und die Sonochemie ist der Leistungultraschall, der im Frequenzbereich von 20 kHz bis 1 MHz mit hoher Intensität erzeugt werden kann, <sup>[12]</sup> besonders relevant.

### 2.2.2 Erzeugung von Schall

Schallquellen lassen sich in mechanische und elektroakustische Schallgeber einteilen. Zu den mechanischen Schallgebern zählen beispielsweise Saiten von Gitarren oder Klavieren und Blasinstrumente wie Pfeifen und Flöten. Elektroakustische Schallgeber werden durch elektrische oder magnetische Kräfte angetrieben. So wird bei beispielsweise bei Lautsprechern eine steife Membran von einer Schwingspule, die durch ein magnetisches Wechselfeld angetrieben wird, in Schwingung versetzt. <sup>[10]</sup>

Schallgeber, die zur Erzeugung von Ultraschall genutzt werden, zählen zu den elektroakustischen Schallgebern, da sie durch Umkehr des piezoelektrischen Effekts elektrische Spannung in mechanische Deformation wandeln.

### 2.2.3 Piezoelektrischer Effekt

Der piezoelektrische Effekt beschreibt das Auftreten einer elektrischen Ladung auf der Oberfläche eines Festkörpers, der mechanisch deformiert wird. Die Ursache des piezoelektrischen Effekts wird anhand einer vereinfachten Darstellung einer Kristall-Struktur-Zelle in Abbildung 2-4 veranschaulicht.

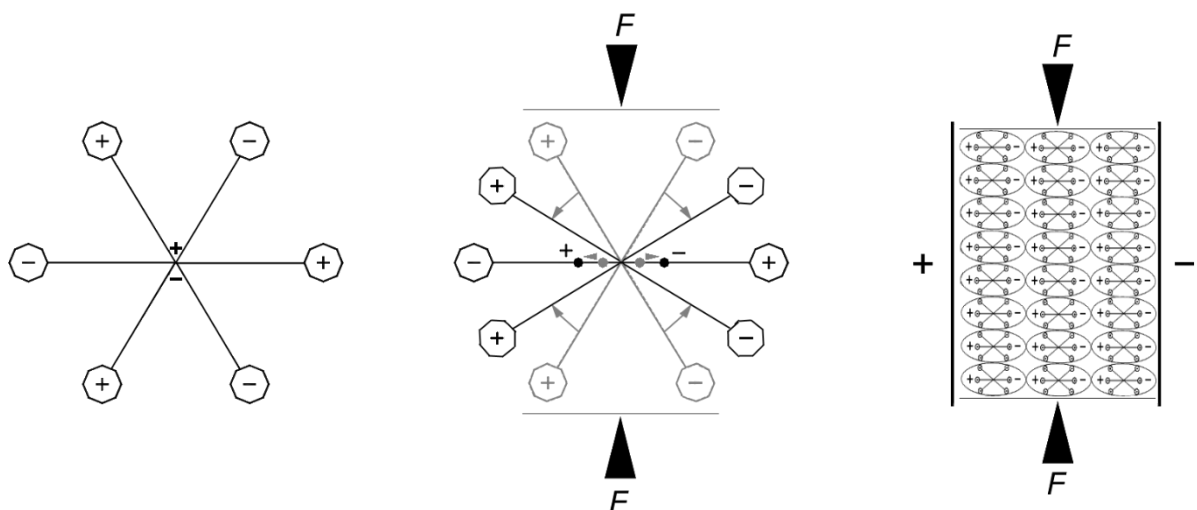


Abbildung 2-4: Vereinfachte Darstellung des Piezoelektrischer Effekt (in Anlehnung an [13])

Die unberührte Strukturzelle ist nach außen elektrisch neutral. Bei der Deformation durch eine Kraft  $F$  verschieben sich die Schwerpunkte der positiven und negativen Ladungen, sodass sich Dipole bilden. Die benachbarten Strukturzellen ordnen sich entsprechend um und der Kristall wird polarisiert. <sup>[13]</sup>

Umgekehrt kann durch das Anlegen einer elektrischen Spannung die Deformation erzeugt werden. Dieser Effekt wird inverser piezoelektrischer Effekt genannt. Durch das Anlegen einer Wechselspannung oszilliert die Oberfläche des piezoelektrischen

Materials und die resultierende Schwingung wird als Ultraschallwelle abgestrahlt. Neben natürlich vorkommenden piezoelektrischen Kristallen wie Quarz werden industriell hergestellte Piezokeramiken verwendet. <sup>[14]</sup>

#### **2.2.4 Piezokeramiken**

Piezokeramiken werden meist aus Bariumtitanat oder Blei-Zirkonat-Titanat (PZT) gefertigt. Die Rohstoffe werden zunächst gemahlen und vermischt und anschließend durch Erhitzen entwässert. Aus dem entwässerten Granulat werden Rohkörper gepresst, die bei 1200 °C gesintert werden. Sintern ist ein Fertigungsverfahren, bei dem durch Temperaturbehandlung unterhalb der Schmelztemperatur aus Pulver gepresste Rohkörper verdichtet werden. <sup>[15]</sup> Die verwendeten Rohstoffe kristallisieren in der Perowskit-Struktur. Diese ist oberhalb einer materialspezifischen Temperatur kubisch. Diese materialspezifische Temperatur ist die Curie-Temperatur, oberhalb derer das Material keine elektrischen Eigenschaften zeigt. Unterhalb der Curie-Temperatur verzerrt sich die Perowskit-Struktur. Hierdurch entstehen Dipole, die nach dem Sinterprozess noch ungeordnet sind. Nachdem die gesinterten Rohkörper in die gewünschte Form gebracht wurden, können durch das Erhitzen bis knapp unter die Curie-Temperatur bei gleichzeitigem Anlegen einer elektrischen Gleichspannung die Dipole geordnet werden. Durch die Ordnung der Dipole kann eine Polarisationsrichtung, die nach dem Abkühlen erhalten bleibt, bestimmt werden. <sup>[9] [13]</sup>

#### **2.2.5 Ultraschallreinigungsbäder**

Ultraschallbäder (USB) zur Reinigung kleiner Bauteile genutzt. Abbildung 2-5 zeigt den generellen Aufbau eines USB. An einer im Regelfall mit Wasser gefüllten Edelstahlwanne sind Piezokeramiken als Schallquelle angebracht. Typischerweise werden diese am Boden angeklebt, sodass sich die Schallwellen vertikal in Richtung der Wasseroberfläche ausbreiten.

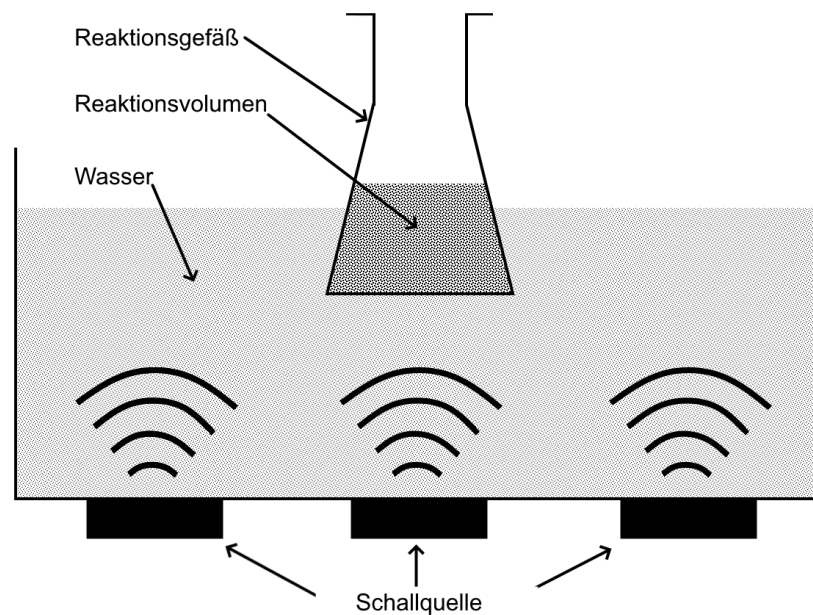


Abbildung 2-5: Ultraschallreinigungsbad (Eigene Darstellung)

Auf Grund der breiten Verfügbarkeit, geringer Anschaffungskosten und der einfachen Handhabung eignen sich USB für den Einstieg in die Sonochemie, da schon vorhandene Versuchsanordnungen durch das USB erweitert werden können. Ein flacher Boden des Reaktionsgefäß ermöglicht den Schallwellen einen einfacheren Übergang in das Reaktionsvolumen.<sup>[16]</sup>

### 2.2.6 Schallwechseldruck

Schallwellen breiten sich in idealen Flüssigkeiten und Gasen als Longitudinalwellen aus. Eine Illustration der Ausbreitung ist in Abbildung 2-6 gegeben.

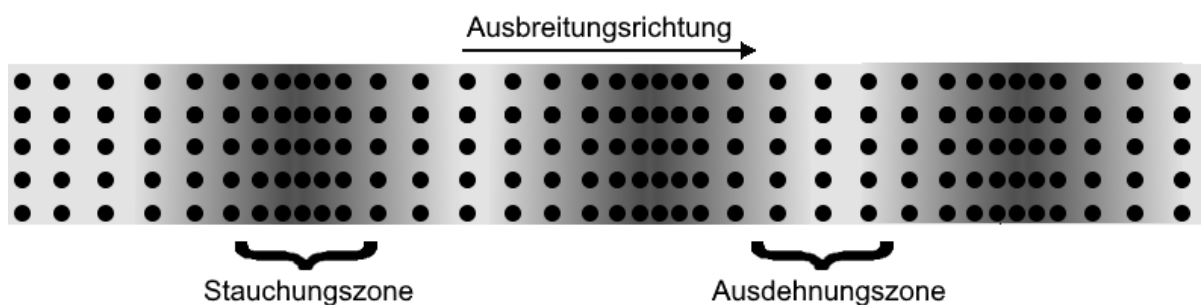


Abbildung 2-6: Longitudinalwelle in idealen Flüssigkeiten und Gasen (Eigene Darstellung)

Die Teilchen oszillieren in Richtung der Ausbreitungsrichtung, sodass sich im Medium Stauchungs- und Ausdehnungszonen bilden. In den Stauchungszonen herrscht höherer Druck und in den Ausdehnungszonen niedrigerer Druck. Der mit diesen Druckschwankungen zusammenhängende Druck wird Schallwechseldruck  $p_A$  genannt. Dieser ist nach Gleichung (8) sinusförmig von der Frequenz  $f$  und der Zeit  $t$  abhängig.  $\hat{p}$  ist die Druckamplitude.<sup>[17]</sup>



$$p_A = \hat{p} \times \sin(2\pi ft) \quad (8)$$

### 2.2.7 Schallgeschwindigkeit in Flüssigkeiten

Die Ausbreitungsgeschwindigkeit  $c$  einer Welle hängt immer von den Eigenschaften des Mediums, in dem sie sich ausbreitet, ab. Für Schallwellen in Flüssigkeiten ist eine Abhängigkeit von dem Kompressionsmodul  $K$  und der Dichte  $\rho$  der Flüssigkeit nach Gleichung (9)(19) gegeben.

$$c = \sqrt{\frac{K}{\rho}} \quad (9)$$

Der Kompressionsmodul ist eine druck- und temperaturabhängige Materialkonstante und gibt den Druck an, der pro relativer Volumenänderung erforderlich ist. <sup>[10]</sup>

### 2.2.8 Energiedichte, Schallintensität und Schalleistung

Die Energiedichte  $w = dW/dV$  einer Schallwelle gibt die transportierte Energie  $dW$  pro Volumenelement  $dV$  an und ist nach Gleichung (10)(19) proportional zum Quadrat der Druckamplitude  $\hat{p}$ .

$$w = \frac{1}{2} \times \frac{\hat{p}^2}{\rho \times c^2} \quad (10)$$

Die Schallintensität  $I$  ist die durch eine Fläche tretende Schallenergie  $W$ . Sie ist das Produkt aus der Energiedichte  $w$  und der Schallgeschwindigkeit  $c$ .

$$I = w \times c \quad (11)$$

Die Schalleistung  $P$  ist die durch eine Schallquelle abgegebene Schallenergie  $W$  pro Zeiteinheit. <sup>[10]</sup>

### 2.2.9 Störung der Schallausbreitung

Die Ausbreitung von Schallwellen wird durch Beugung, Brechung, und Reflexion der Wellen gehindert. Diese Hinderung wird als Schalldämmung zusammengefasst. Zusätzlich erfahren Schallwellen einen Energieverlust durch Schallabsorption. Die Schallenergie wird in großen Teilen durch innere Reibung und Kompression des Ausbreitungsmediums in Wärmeenergie umgewandelt. Die Umwandlung in Wärmeenergie und weitere Effekte, die einen Energieverlust verursachen werden als Schalldämpfung zusammengefasst und nehmen mit zunehmenden Abstand  $r$  von der Schallquelle zu, sodass die Schallintensität  $I$  nach Gleichung (12) abnimmt.

$$I(r) = I(r_0)e^{-\alpha(r-r_0)} \quad (12)$$

Der Schalldämpfungskoeffizient  $\alpha$  ist abhängig von der Schallfrequenz und den Absorptionseigenschaften des Mediums.<sup>[10]</sup> Bei Flüssigkeiten steigt der Schalldämpfungskoeffizient mit der Viskosität, da die innere Reibung zunimmt.

## 2.3 Akustische Kavitation

Akustische Kavitation beschreibt die Bildung, das Wachstum und die Implosion von Blasen in Flüssigkeiten, durch eine akustische Welle.

Werden die Kohäsionskräfte einer beschallten Flüssigkeit, durch hohen negativen Schallwechseldruck überwunden, bilden sich Hohlräume. Dieser Vorgang heißt Nukleation.

### 2.3.1 Nukleation von Kavitationsblasen

Die entstandenen Hohlräume wachsen in den Ausdehnungszonen einer longitudinalen Welle über einige Schwingungszyklen durch Diffusion von Gas- und Dampfmolekülen aus der umgebenden Flüssigkeit und bilden Bläschen. Dieser Prozess wird durch Unreinheiten und gelöste Gase unterstützt, da diese durch die vorhandene Grenzfläche als Nukleationskeime dienen.<sup>[4]</sup>

### 2.3.2 Implosion von Kavitationsblasen

Die Akustische Kavitation ist in Abbildung 2-7 gegenüber der Druckänderung durch eine Schallwelle dargestellt.

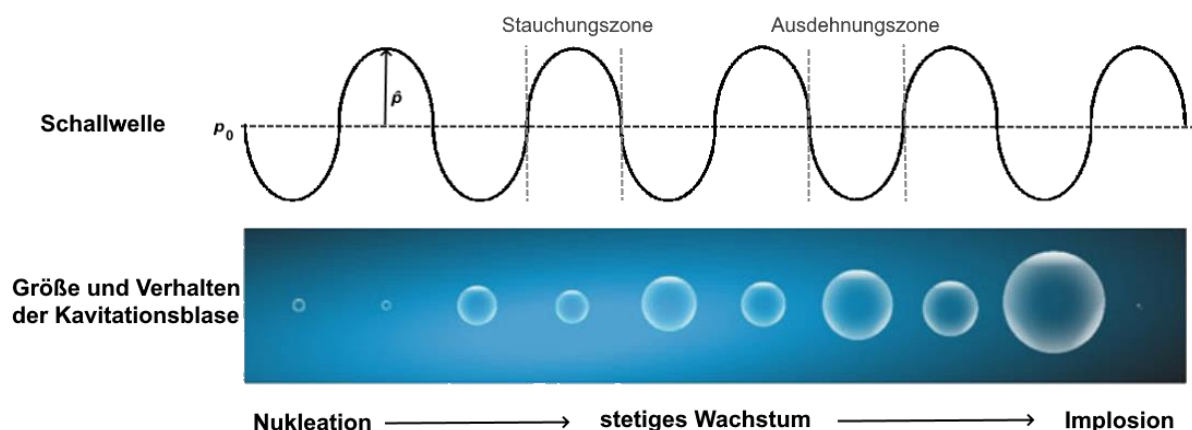


Abbildung 2-7: Zyklus einer Kavitationsblase (In Anlehnung an [4])

In den Stauchungszonen der longitudinalen Welle werden Gas- und Dampfmoleküle teilweise ausgestoßen, sodass sich die Kavitationsblasen teilweise zusammenziehen. Durch den Wechsel von Stauchungs- und Ausdehnungszonen pulsieren die

Kavitationsblasen und wachsen stetig an bis ihre Oszillationsschwingung mit der Ultraschallschwingung resoniert.

Durch die aus der Resonanz resultierenden Erhöhung der Amplitude implodieren die Bläschen schließlich. Unter der Annahme, dass dieser Prozess adiabatisch ist, da er innerhalb weniger Nanosekunden stattfindet, werden lokale Temperaturen von bis zu 5000 K und ein Druck von bis zu 150 MPa abgeschätzt. <sup>[4]</sup>

### **2.3.3 Einfluss der Schallfrequenz auf die Kavitation**

Die Schallfrequenz nimmt großen Einfluss auf die akustische Kavitation. Hohe Schallfrequenzen führen zur Verkürzung der Bereiche höheren und niedrigeren Schallwechseldrucks, in denen die Kavitationsblasen wachsen können, sodass durch höheren Energieaufwand die Druckamplitude erhöht werden muss, um die Kavitation zu gewährleisten. Oberhalb einer Schallfrequenz von einem MHz sind die Bereiche so kurz, dass keine Nukleation stattfinden kann. Bei zu hohen Druckamplituden bilden sich größere Kavitationsblasen, die durch die Reflexion und Absorption des Schalls schalldämmend wirken und so die Ausbreitung der Schallwelle verhindern. Für Anwendungen in der Sonochemie wird üblicherweise der Frequenzbereich von 20 kHz bis 40 kHz gewählt. <sup>[18]</sup>

### **2.3.4 Zonen der Kavitationsblase**

Bei der Betrachtung einer implodierenden Kavitationsblase lassen sich drei Zonen, die als Reaktionsstellen dienen können, definieren. Diese in Abbildung 2-8 dargestellten Zonen sind das Zentrum der Kavitationsblase mit extrem hohen lokalen Temperatur- und Druckwerten, die Oberfläche der Kavitationsblase, die sich durch steile Temperatur- und Druckgradienten auszeichnet, und die umgebende Flüssigkeit, die starke Strömungen aufweist und deren Temperatur nahezu unverändert bleibt. <sup>[19]</sup>

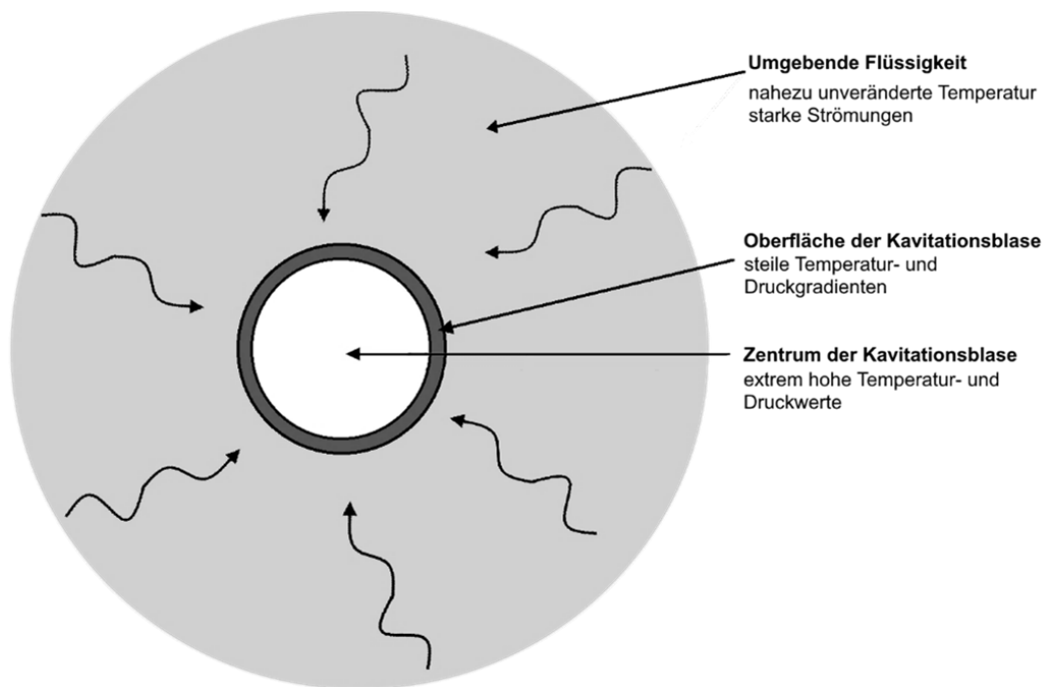


Abbildung 2-8: Zonen der Kavitationsblase (in Anlehnung an [17])

Die akustische Kavitation ist der Ausgangspunkt für alle physikalischen und chemischen Vorgänge in der Sonochemie.

### 2.3.5 Chemische Reaktionen durch akustische Kavitation

Im Inneren der implodierenden Kavitationsblase werden durch die extremen Bedingungen Fragmente und Radikale von enthaltenen Molekülen erzeugt. Die Spaltung der Moleküle durch Ultraschall wird auch Sonolyse genannt. So werden beispielsweise Wassermoleküle in Wasserstoff- und Hydroxyl-Radikale gespalten.



Die Erzeugten Radikale können zu Wasserstoff  $H_2$ , Wasserstoffperoxid  $H_2O_2$  und wieder zu Wasser reagieren.



In der Flüssigkeit gelöste dimere Gase wie zum Beispiel Sauerstoff  $O_2$  können auch sonolytisch gespalten werden und mit den erzeugten Radikalen reagieren. <sup>[4]</sup>



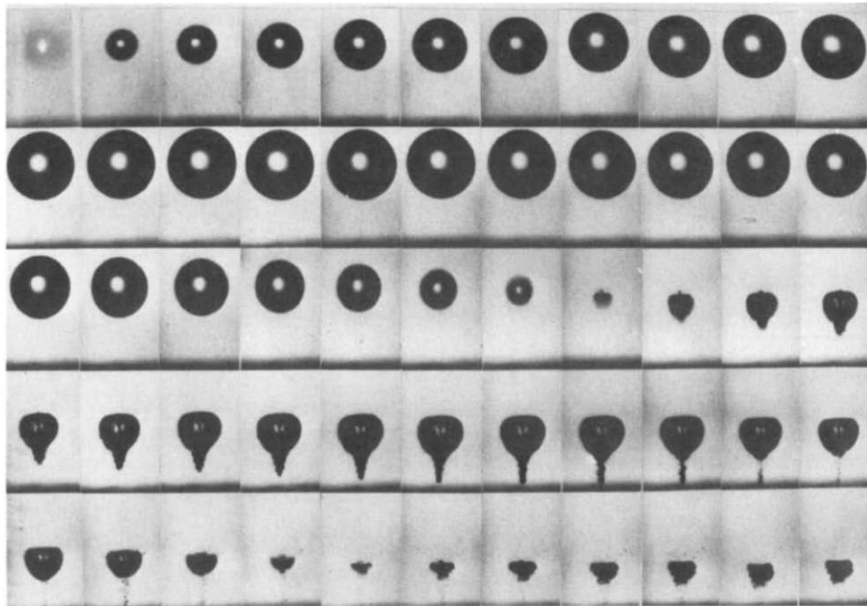


Abbildung 2-10: Kavitation in der Nähe einer Oberfläche, Aufnahme mit 75000 Bildern pro Sekunde [22]

## 2.4 Sonolumineszenz

SL beschreibt das Phänomen der Lichtemission durch Kavitation. Es wird zwischen MBSL, bei der die Lichtemission aus vielen unregelmäßig über das gesamte Flüssigkeitsvolumen verteilten implodierenden Kavitationsblasen resultiert und SBSL, bei der die Lichtemission einer einzelnen pulsierenden Kavitationsblase betrachtet wird, unterschieden.

### 2.4.1 Multi-Bubble-Sonolumineszenz (MBSL)

Die MBSL ist mit einfachen, weit verbreiteten technischen Möglichkeiten, wie beispielsweise einem handelsüblichen Ultraschallreinigungsgerät reproduzierbar und eignet sich daher sehr gut für die Präsentation und Beobachtung der SL. Die entstehenden Druckwellen bereits implodierter Kavitationsblasen, die unregelmäßige Verteilung der Lumineszenz, sowie die Überschneidung mehrerer Einzelereignisse stellen jedoch eine Hürde für die Analyse und Beschreibung der SL dar.

### 2.4.2 Single-Bubble-Sonolumineszenz (SBSL)

Zur Erzeugung von SBSL werden zwei Piezokeramiken als Schallgeber auf gegenüberliegenden Seiten eines mit Wasser gefüllten Reaktionsgefäßes angebracht. Durch Einstrahlen des Ultraschalls bildet sich eine stehende Schallwelle aus, die eine einzelne Luftblase, die eingebracht wird, über mehrere Stunden fixieren kann und zur Oszillation anregt. Die SBSL eignet sich auf Grund der leichten Reproduzierbarkeit und dem Umstand, dass die Lichtemission immer an der gleichen Stelle auftritt und somit leicht zu beobachten ist, zur Analyse und Beschreibung der SL. [8]

### 2.4.3 Licht

Die natürliche Faszination der SL besteht darin, dass durch akustische Wellen Licht erzeugt wird. Licht umfasst den Wellenlängenbereich elektromagnetischer Strahlung, den das menschliche Auge wahrnehmen kann. Für die Ausbreitung von Licht gelten auf Grund des Wellencharakters die in Kapitel 2.1 beschriebenen Regeln. Die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum  $c$  ist eine Naturkonstante.

Nach der Quantentheorie breitet sich Licht in unteilbaren Paketen aus. Diese Pakete werden Photonen oder Lichtquanten genannt. Die Energie  $E$  eines Photons wird nach Gleichung (13) aus dem Produkt des planckschen Wirkungsquantums  $h$  mit der Frequenz  $f$  bestimmt.

$$E = h \times f \quad (13)$$

### 2.4.4 Molekulanregung

Atome und Moleküle können durch zugeführten Energie ihre Elektronenstruktur und ihren Schwingungs- oder Rotationszustand verändern. Diese Veränderung führen zu einem angeregten Molekülzustand, der durch Abgabe spezifischer Energiequanten wieder in den Grundzustand übergeht. Die abgegebenen Energiepakete haben nach Gleichung (13)(19) eine spezifische Frequenz  $f$  und entsprechend nach Gleichung (6)(6) auch eine spezifische Wellenlänge  $\lambda$ .

Die emittierten Energiequanten werden in Emissionsspektren als scharfe Intensitätsmaxima erfasst und Spektrallinien genannt.

### 2.4.5 Emissionsspektren

Emissionsspektren sind die grafische Darstellung spektrometrisch gemessener Strahlung einer Strahlungsquelle. Die gemessene Strahlungsintensität wird nach der Wellenlänge aufgegliedert.

In weißem Licht kommen alle Wellenlängen des sichtbaren Spektralbereichs vor. Das Emissionsspektrum des weißen Lichts zeigt daher keine scharfen Spektrallinien oder Intensitätsmaxima. Das Spektrum wird als kontinuierliches Spektrum bezeichnet.

Aus der Untersuchung von Emissionsspektren können Rückschlüsse auf die Strahlungsquelle gemacht werden, daher ist die Spektroskopie ein wichtiges Instrument zur Analyse der SL.

### 2.4.6 Theorien zur Entstehung der Sonolumineszenz

Seit der Entdeckung durch FRENZEL und SCHULTES 1934<sup>[6]</sup> wurden zahlreiche Theorien zum Ursprung der SL entwickelt. Zunächst wurde aus Beobachtungen, die einen Zusammenhang zwischen Dipolmoment und Viskosität der beschallten Flüssigkeit und der Lichtintensität herstellten,<sup>[23] [24]</sup> geschlossen, dass die SL auf der Tribolumineszenz beruht. Tribolumineszenz ist die von Festkörpern ausgehende Lichtemission durch mechanische Belastungen. Weitere Theorien umfassen die Anregung von Edelgasatomen durch elektrische Effekte<sup>[25]</sup>, reine thermische Schwarzkörperstrahlung<sup>[26]</sup> und Bremsstrahlung durch Rekombination von Elektronen mit Ionen oder Atomen<sup>[27]</sup>. Aktuelle Theorien<sup>[28] [29] [30]</sup> gehen davon aus, dass im Zentrum der Kavitationsblasen Plasma erzeugt wird.

Da die SBSL leichter zu reproduzieren ist, beruhen die meisten entwickelten Theorien auf Beobachtungen der SBSL. Bei der vergleichenden Betrachtung von Emissionsspektren der SBSL und MBSL fallen jedoch Unterschiede auf, die Zweifel an einem gemeinsamen Ursprung der SL wecken.

### 2.4.7 Vergleich von Emissionsspektren der MBSL und SBSL

Abbildung 2-11 stellt die Emissionsspektren einer Natriumchlorid-Lösung unter Bedingungen der MBSL und SBSL gegenüber. Während bei der MBSL zwei deutliche Intensitätspeaks bei 590 nm und 310 nm zu sehen sind, gleicht das Spektrum der SBSL einem kontinuierlichen Spektrum. Dieser Unterschied wird darauf zurückgeführt, dass bei der MBSL durch die hohe Anzahl an Phasengrenzflächen häufiger ein asymmetrischer Kollaps auftritt, der zu zusätzlichem Energieverbrauch und zum Eintrag der Flüssigkeit in die Kavitationsblasen führt. Durch die in der Kavitationsblase vorherrschenden Bedingungen werden die eingetragenen Moleküle zur Lichtemission angeregt. Da in der SBSL ein solcher Eintrag nicht stattfindet, kann im betrachteten Emissionsspektrum keine Emission durch Anregung der Natriumionen bei 590 nm beobachtet werden.<sup>[31]</sup>



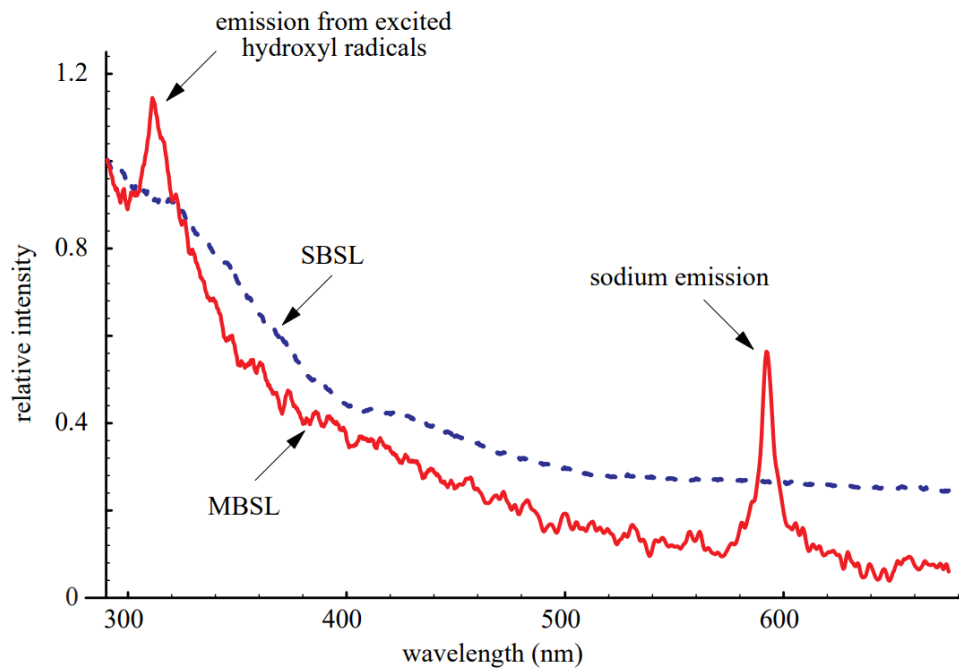


Abbildung 2-11: Gegenüberstellung der auf 290 nm normalisierten Spektren beschallter 0,1 M Natriumchlorid-Lösung unter SBSL- und MBSL-Bedingungen <sup>[31]</sup>

## 2.5 Chemikalien

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über die verwendeten Chemikalien und deren Funktion.

### 2.5.1 Kaliumiodid

Kaliumiodid *KI* ist ein farb- und geruchloses Salz. Die Strukturformel ist in Abbildung 2-12 gegeben.

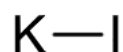
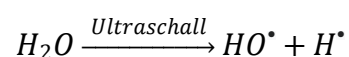


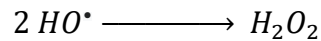
Abbildung 2-12: Strukturformel Kaliumiodid (KI) (Eigene Darstellung)

Es wird durch die Reduktion von Kaliumiodat  $KIO_3$  oder durch die Neutralisation von Iodwasserstoffsäure  $HI$  mit Kalilauge  $KOH$  gewonnen. Die Wasserlöslichkeit beträgt 1430 g/L bei 20 °C <sup>[32]</sup>. In der analytischen Chemie wird Kaliumiodid beispielsweise zum qualitativen Nachweis von Blei oder Stärke und zur quantitativen Analyse in der Iodometrie verwendet.

Wie bereits in Kapitel 2.3.5 beschrieben, können durch die Beschallung von wässrigen Lösungen Hydroxyl-Radikale entstehen, die durch Rekombination Wasserstoffperoxid bilden.

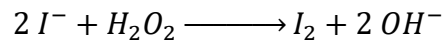


Schema 2-5



Schema 2-6

Die Iodid-Ionen einer Kaliumiodidlösung werden durch Wasserstoffperoxid zu Iod / oxidiert, das im Anschluss mit Stärke als blau gefärbter Iod-Stärke-Komplex nachgewiesen werden kann. [18]



Schema 2-7

### 2.5.2 Schwefelsäure

Schwefelsäure  $H_2SO_4$  ist eine farb- und geruchlose, sehr viskose Flüssigkeit. Sie ist unter starker Wärmeentwicklung vollständig mit Wasser mischbar und reagiert sauer. Die Strukturformel ist in Abbildung 2-6 gegeben.

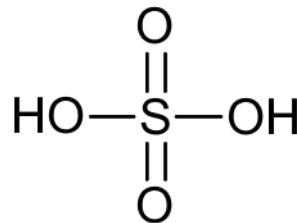
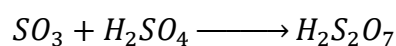
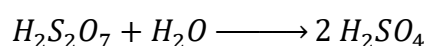


Abbildung 2-13: Strukturformel Schwefelsäure  $H_2SO_4$  (Eigene Darstellung)

Schwefelsäure wird aus elementarem Schwefel S oder Schwefeldioxid  $SO_2$  gewonnen. Nach der Oxidation zu Schwefeltrioxid  $SO_3$  wird dieses in Schwefelsäure eingeleitet. Hierbei bildet sich zunächst Dischwefelsäure  $H_2S_2O_7$ , die durch Verdünnung mit Wasser zu Schwefelsäure zerfällt.



Schema 2-8



Schema 2-9

Verwendung findet Schwefelsäure vor allem in der Düngemittelproduktion, der Herstellung von Tensiden und als Elektrolyt in Autobatterien. Schwefelsäure kann auch als Trockenmittel, Katalysator oder zum Aufschluss von Phosphaten und Erzen verwendet werden. [33]

Aus den Untersuchungen von CHAMBERS geht hervor, dass ein Zusammenhang zwischen hoher Viskosität und hohem Dipolmoment der Flüssigkeit und der SL besteht. [23] Bei konzentrierter Schwefelsäure sind diese Faktoren gegeben, sodass gute Ergebnisse erwartet werden.

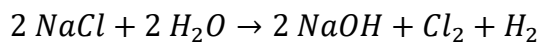
### 2.5.3 Natriumhydroxid

Natriumhydroxid  $NaOH$  ist ein weißer geruchloser Feststoff, der sich unter starker Wärmeentwicklung leicht in Wasser löst. Die Strukturformel ist in Abbildung 2-14 gegeben.



Abbildung 2-14: Strukturformel Natriumhydroxid  $NaOH$  (Eigene Darstellung)

Es wird durch die Elektrolyse von wässriger Natriumchlorid-Lösung  $NaCl_{aq}$  gewonnen. Hierbei entsteht als Nebenprodukt Chlorgas  $Cl_2$ .



Schema 2-10

Natriumhydroxid ist hygroskopisch und die Wasserlöslichkeit beträgt 1090 g/L bei 20 °C<sup>[32]</sup>. Die wässrige Lösung reagiert stark alkalisch und wird Natronlauge genannt. Natriumhydroxid wird überwiegend als Natronlauge zur Beseitigung von fettigen und öligen Verunreinigungen, als Rohrreiniger oder zur Herstellung von Seifen genutzt. In der Aluminiumgewinnung aus Bauxit dient Natronlauge als Aufschlussmittel.

Für die Untersuchung der SL wird eine stark konzentrierte Natronlauge ( $c = ca. 28 \text{ mol/L}$ ) verwendet. Diese ist ähnlich viskos wie konzentrierte Schwefelsäure und die enthaltenen Natriumionen tragen ebenfalls zum emittierten Lichtspektrum bei.

### 2.5.4 Glycerin

Glycerin ist eine farb- und geruchlose, viskose Flüssigkeit. Sie ist hygroskopisch und vollständig mit Wasser mischbar. Die Strukturformel ist in Abbildung 2-15 gegeben.

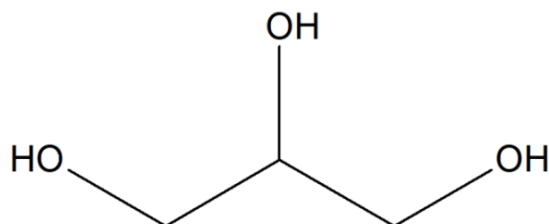


Abbildung 2-15: Strukturformel Glycerin  $C_3H_8O_3$  (Eigene Darstellung)

Glycerin kann synthetisch aus Propen hergestellt werden. Ein Großteil des weltweiten Glycerinbedarfs wird jedoch durch die Biodieselherstellung gedeckt, da Glycerin dort als Abfallprodukt entsteht. Glycerin wird sowohl in der technischen Industrie als auch in der Lebensmittel- und Kosmetikindustrie vor allem als Feuchthaltemittel, Gefrierschutzmittel, Schmiermittel oder Lösemittel für organische und anorganische Verbindungen verwendet.<sup>[34]</sup>

Die SL von Glycerin soll untersucht werden, da CHAMBERS <sup>[23]</sup> bei der empirischen Untersuchung verschiedener Flüssigkeiten auf SL dem Glycerin die höchste Intensität zuordnete.

### 2.5.5 Natriumchlorid

Natriumchlorid *NaCl* ist ein kristalliner farb- und geruchloser Feststoff. Es ist das Natriumsalz der Salzsäure. Die Strukturformel ist in Abbildung 2-16 gegeben.

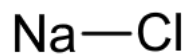


Abbildung 2-16: Strukturformel Natriumchlorid *NaCl* (Eigene Darstellung)

Es wird aus bergmännischem Abbau als Steinsalz oder durch das Eintrocknen von Meerwasser als Meersalz gewonnen. Natriumchlorid wird hauptsächlich zur Würzung oder zum Pökeln von Lebensmitteln verwendet. In der chemischen Industrie dient Natriumchlorid als Ausgangsmaterial für nahezu alle Natriumverbindungen. <sup>[35]</sup>

Die SL von Natriumchlorid wird untersucht, da gelöste Salze einen verstärkenden Effekt auf die SL haben. <sup>[36]</sup>

### 2.5.6 Kaliumchlorid

Kaliumchlorid *KCl* ist ein kristalliner farb- und geruchsloser Feststoff. Es ist das Kaliumsalz der Salzsäure *HCl*. Die Strukturformel ist in Abbildung 2-17 gegeben.



Abbildung 2-17: Strukturformel Kaliumchlorid *KCl* (Eigene Darstellung)

Es wird aus natürlich vorkommenden Mineralen wie Sylvin, Carnallit und Kainit durch verschiedene Trennverfahren gewonnen. Kaliumchlorid dient als Inhaltsstoff in Düngemittel oder Geschmacksverstärker in der Lebensmittelindustrie. Kaliumchlorid-Lösung wird zur Aufbewahrung von pH-Messelektroden verwendet. <sup>[37]</sup>

Die SL von Kaliumchlorid wird untersucht, um einen Vergleich zu der intensivierenden Wirkung von Natriumchlorid zu ziehen, da Kalium durch Anregung andere Spektrallinien erzeugt.

### 3 Experimenteller Teil

Die Versuche wurden in einem Emmi-30HC Ultraschallreiniger (USB 1) und einem SONOREX SUPER RK103H (USB 2) durchgeführt. Die wichtigsten Unterschiede sind in Tabelle 3-1 zusammengefasst. USB 2 ist mit einer Frequenzautomatik ausgestattet, die die Arbeitsfrequenz etwa alle 10 ms um ca.  $\pm 1$  kHz verändert. <sup>[38]</sup>

Tabelle 3-1: Verwendete Ultraschallbäder

Ultraschallbad	Emmi-30HC Ultraschallreiniger	SONOREX SUPER RK103H
Innenmaße [mm] Länge x Breite x Höhe	240 x 135 x 100	240 x 140 x 150
Schwingsystem	3 PZT Breitstrahl-Schwingsystem	2 PZT Großflächen-Schwingsystem
Ultraschallleistung	max. 180 Watt	140 Watt
Frequenz	ca. 40 kHz	35 kHz

Zur Ermittlung des optimalen Versuchsaufbaus wurde auf die Perforation von Aluminiumfolie im Ultraschallbad (USB) zurückgegriffen. Zusätzlich wurden kalorimetrische Messungen an vielversprechenden Positionen durchgeführt.

Zur Veranschaulichung sonochemischer Effekte wie die Bildung stabiler Emulsionen, die Entstehung von Scherkräften und der Erzeugung von Wasserstoffperoxid in wässrigen Lösungen wurden verschiedene Experimente durchgeführt.

Die SL von konzentrierter Schwefelsäure, Natronlauge, Glycerin, Wasser und Lösungen verschiedener Konzentration der Salze Natriumchlorid und Kaliumchlorid wurde jeweils mit Stickstoff und Argon als Nukleationsgas untersucht. Der generelle Versuchsaufbau ist den Ausführungen von LÜHKEN und BADER<sup>[39]</sup> entliehen.

Alle verwendeten Geräte sind in Tabelle 3-2 und alle verwendeten Materialien in Tabelle 3-3 angegeben.

Tabelle 3-2: Verwendete Geräte

Gerät	Hersteller	Bezeichnung
Handykamera	Huawei	Mate 20 Lite
Thermometer	Dostmann electronic GmbH	T900 Series
Ultraschallbad 1	EMAG Germany	Emmi-30HC Ultraschallreiniger
Ultraschallbad 2	Bandelin	SONOREX SUPER RK103H
Wärmebildkamera	Voltcraft	WB-100 Thermal Imaging Camera

Tabelle 3-3: Verwendete Materialien

Handelsbezeichnung	Hersteller	Beschreibung
Aluminiumfolie	Alio	Aluminiumfolie 30 m x 30 cm x 13 µm
Reines Sonnenblumenöl	Thomy	Handelsübliches Speiseöl
Feine Speisestärke	Mühlengold	Handelsübliche Speisestärke
Stickstoff		
Argon		
Eis		
Kaliumjodid $\geq 99\%$ , reinst	Carl Roth GmbH + Co KG	Kaliumiodid
STAERKE LOESLICH ZUR ANALYSE ISO	Merck KGaA	Stärke
Schwefelsäure 95-97% zur Analyse EMSURE® ISO	Merck KGaA	Konzentrierte Schwefelsäure
Natriumhydroxid Plätzchen EMPLURA®	Merck KGaA	Natriumhydroxid
Glycerol, ultrapure, Spectrophotometric Grade	Thermo Fischer (Kandel) GmbH	Glycerin
Natriumchlorid z. A.	Merck KGaA	Natriumchlorid
Kaliumchlorid z. A.	E. Merck KG	Kaliumchlorid

### 3.1 Verteilung der Ultraschalleistung

Da die meisten Ultraschallbäder ein inhomogenes Strahlungsfeld erzeugen, wurde der Bereich höchster Ultraschalleistung identifiziert. Hierzu wurde zunächst die Perforation von Aluminiumfolie im USB beobachtet und anschließend kalorimetrische Messungen durchgeführt.

#### 3.1.1 Perforation von Aluminiumfolie

Die Perforation von Aluminiumfolie im USB ist ein sehr anschauliches Beispiel für die Oberflächenerosion durch akustische Kavitation. Dieser Versuch nutzt dies indem – analog zu dem aus gängigen Experimenten mit Haushaltsmikrowellen bekannten Verfahren Thermopapier zur Identifizierung von Bereichen hoher Feldstärke zu nutzen<sup>[40]</sup> – Aluminiumfolienstücke einzeln in definierten Abständen entlang beider Achsen in das USB eingebracht werden. Aus der resultierenden Perforation können so Bereiche hoher Ultraschalleistung abgeschätzt werden.

Aluminiumfolienstücke wurden einzeln senkrecht in das USB gebracht und etwa 1 Minute bei voller Leistung beschallt. Zur Aufhängung der Aluminiumfolienstücke wurde ein Rahmen aus Holz gefertigt, an dem die Folie mit Wäscheklammern befestigt werden konnte. Der Rahmen wurde so gefertigt, dass sowohl quer als auch längs Folienstücke eingebracht werden können (vgl. Abbildung 4-2). Der Abstand zwischen den Aluminiumfolienstücken betrug 2,0 cm. Abbildung 3-1 zeigt exemplarisch den

Versuchsaufbau. In USB 1 wurden 21 Folienstücke und in USB 2 wurden 14 Folienstücke beschallt.



Abbildung 3-1: Versuchsaufbau – Perforation von Aluminiumfolie (Eigene Aufnahme)

### 3.1.2 Kalorimetrische Messung des Energieeintrags

Die Temperatur  $T$  eines mit 100,00 g Wasser gefüllten Erlenmeyerkolbens, der an den zuvor in 3.1.1 ermittelten Positionen platziert wurde, wurde gegen die Zeit  $t$  aufgenommen. Aus den ermittelten Werten lässt sich nach Gleichung (14) bei bekannter spezifischer Wärmekapazität  $c_p$  und bekannter Masse  $m$  die Leistung  $P$  des USB ermitteln.

$$P = (dT/dt) \times c_p \times m \quad (14)$$



Abbildung 3-2: Versuchsaufbau – Kalorimetrische Messung des Energieeintrags (Eigene Aufnahme)

Wie dem Versuchsaufbau in Abbildung 3-2 zu entnehmen ist, wurde zusätzlich zur Temperatur des Gefäßinhalts auch die Temperatur des USB zur Beobachtung aufgenommen. Da lediglich der Energieeintrag in das Reaktionsgefäß betrachtet wird, ist der Wärmeaustausch zwischen der Umgebung und dem Reaktionsvolumen vernachlässigbar.

Zunächst wurden an allen Positionen Messungen bei gleicher zufällig gewählter Eintauchtiefe vorgenommen. Anschließend wurde an der Position, die die höchste Temperaturänderung im gewählten Zeitrahmen aufwies, die Eintauchtiefe des Reaktionsgefäßes bestimmt. Hierzu wurden bei maximaler Eintauchtiefe und in 0,5 cm Abständen bis zu der Höhe, an der das Reaktionsgefäß die Wasseroberfläche nur noch berührt, Messungen durchgeführt.

Da für spätere Versuche zur SL auch eine Polyethylen-Flasche (PE-Flasche) mit Schraubverschluss als Reaktionsgefäß verwendet wird, wurden für diese ebenfalls Messreihen aufgenommen und die Eintauchtiefe bestimmt.

## **3.2 Sonochemie**

Nach erfolgreicher Bestimmung der Gefäßpositionen, wurde eine Auswahl an Experimenten durchgeführt, die sonochemische Effekte deutlich darstellen sollen.

### **3.2.1 Emulsionsbildung**

Durch die Beschallung im USB wurden stabile Emulsionen aus Wasser und Speiseöl erzeugt. Eine Vergleichsprobe wurde mit einem Magnetrührer emulgiert.

Drei Erlenmeyerkolben wurden mit jeweils 30 mL Wasser gefüllt und es wurden 8 bis 10 Tropfen Speiseöl hinzugefügt. Alle Erlenmeyerkolben wurden kräftig geschüttelt. Zwei Erlenmeyerkolben wurden jeweils in beiden Ultraschallbädern 15 Minuten lang beschallt, während der dritte Erlenmeyerkolben mit einem Magnetrührer kräftig gerührt wurde. Die entstandenen milchigen Phasen wurden über einen Scheidetrichter getrennt und luftdicht verschlossen zur Beobachtung abgestellt.

### **3.2.2 Scherkräfte**

Durch die Beschallung eines Stärke-Wasser-Gemischs, das unter dem Namen *Oobleck* bekannt ist und häufig als Beispiel für dilatantes Verhalten nichtnewtonscher Fluide genutzt wird, sollen die durch Ultraschall entstehenden Scherkräfte gezeigt werden. Dilatantes Verhalten zeigen Fluide, wenn durch Anstieg der wirkenden Scherkräfte die Viskosität zunimmt. Diese Eigenschaft ist vor allem bei Granulaten und

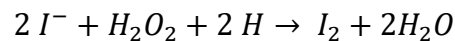


langkettigen Molekülen zu beobachten und resultiert aus einer Umorientierung der Fluidpartikel, die zu stärkeren Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Fluidpartikeln führt.<sup>[41]</sup> Es wird erwartet, dass das zunächst fließfähige Gemisch durch die Scherbeanspruchung verfestigt wird.

Je ein Gemisch aus 30 g handelsüblicher Speisestärke und 20 mL Wasser wurde im Erlenmeyerkolben in beiden Ultraschallbädern 15 Minuten und im Anschluss weitere 30 Minuten lang beschallt.

### 3.2.3 Oxidation von Kaliumiodid

Durch die Generierung von Wasserstoffperoxid wurden die Iodid-Ionen einer Kaliumiodid-Lösung zu Iod oxidiert.



Schema 3-1

Als qualitativer Nachweis wurde eine Stärke-Lösung hinzugefügt, sodass der bekannte Iodstärkekomplex ausfiel.

Jeweils 30 mL Kaliumiodid-Lösung  $c = ca. 1 \text{ mol/L}$  wurden in einem Erlenmeyerkolben in beiden Ultraschallbädern 15 Minuten lang beschallt. Anschließend wurden 5 mL einer selbst hergestellten Stärkelösung hinzugefügt.

## 3.3 Sonolumineszenz

Da nur eine geringe Intensität der SL zu erwarten war, wurden verschiedene Maßnahmen zur Verdunklung ergriffen. Wie in Abbildung 3-3 zu sehen ist, wurde der Abzug mit Aluminiumfolie verkleidet, sodass ein Großteil der Raumbelichtung ferngehalten werden kann. Zusätzlich wurde ein Holzkasten mit wenigen Bohrlöchern für Strom- und Gaszufuhr, sowie Aussparungen für die Kameralinse angefertigt. Der Kasten ist durch Einschub einer dreiteiligen Front verschließbar, sodass Durchführung und Beobachtung des Experiments unkompliziert möglich waren. Abbildung 3-4 zeigt den generellen Versuchsaufbau in dem Kasten.



Abbildung 3-3: Verdunklung des Abzugs mit Aluminiumfolie, (Eigene Aufnahme)



Abbildung 3-4: Versuchsaufbau – Sonolumineszenz, (Eigene Aufnahme)

Die SL von konzentrierter Schwefelsäure, konzentrierter Natronlauge, Glycerin, Wasser und Lösungen verschiedener Konzentration der Salze Natriumchlorid und Kaliumchlorid wurde jeweils unter Einleitung eines Stickstoff- oder Argonstroms untersucht. Das eingeleitete Gas dient der akustischen Kavitation durch die Phasengrenzfläche als Nukleationskeim.

Hierzu wurden je 100 mL der Flüssigkeit in einen 100 mL Erlenmeyerkolben gegeben, der im USB an den zuvor in Kapitel 3.1 bestimmten Positionen platziert wurde. Das USB wurde mit Eis auf etwa 10 °C gekühlt. Der Stickstoff- oder Argonstrom wurde

direkt über eine Pasteurpipette eingeleitet. Nach Einschalten des USB, wurde die Front der Holzkiste geschlossen.

Zur Dokumentation der SL wurden mehrere Fotos mit einer Belichtungszeit von 30 Sekunden aufgenommen. Der ISO-Wert wurde auf 1600 eingestellt.

Die SL von konzentrierte Schwefelsäure und Natronlauge wurde zusätzlich ohne kontinuierliches Einleiten des Gasstroms untersucht. Hierzu wurde die Flüssigkeit in eine 100 mL PE-Flasche gegeben und anschließend mehrere Minuten mit dem Gas kräftigt aufgesprudelt, bevor sie im USB beschallt wurden.

## 4 Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Versuche dargestellt und diskutiert.

### 4.1 Perforation von Aluminiumfolie

Abbildung 4-1 zeigt links ein beschalltes Aluminiumfolienstück aus der Mitte des USB und rechts ein weiteres, das am äußeren Rand platziert wurde. Die Perforation ist eindeutig erkennbar. Die Beschallung in USB 2 ergibt vergleichbare Resultate.

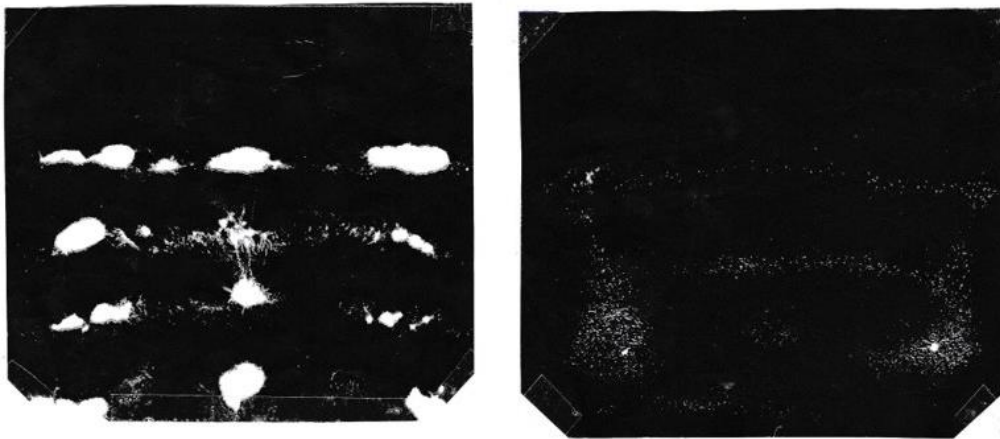


Abbildung 4-1: Beschallte Aluminiumfolienstücke USB 1 (Eigene Aufnahme)

In der Verteilung der Perforation sind Ebenen stärkerer Perforation erkennbar, deren Abstand etwa 1,9 cm beträgt. Nach Gleichung (6) mit der Frequenz  $f = 40 \text{ kHz}$  und mit der Schallgeschwindigkeit in Wasser bei  $20 \text{ °C}$   $c = 1480 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ergibt sich die Wellenlänge der Schallwelle  $\lambda = 3,7 \text{ cm}$ .

$$\lambda = \frac{c}{f} = \frac{1480 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}}{40 \text{ kHz}} = 0,037 \text{ m} = 3,7 \text{ cm} \quad (15)$$

Somit entspricht der Abstand der Ebenen etwa der halben Wellenlänge. Dies ist auch der Abstand der Maxima positiven und negativen Schallwechseldrucks.

Durch die Betrachtung der Folienstücke und die räumliche Verteilung der Perforation können für beide Ultraschallbäder jeweils vier Positionen ermittelt werden, die ein besonders hohes Maß an Perforation aufweisen. In Abbildung 4-2 ist das jeweilige angelegte Raster aus Aluminiumfolienstücken illustriert.

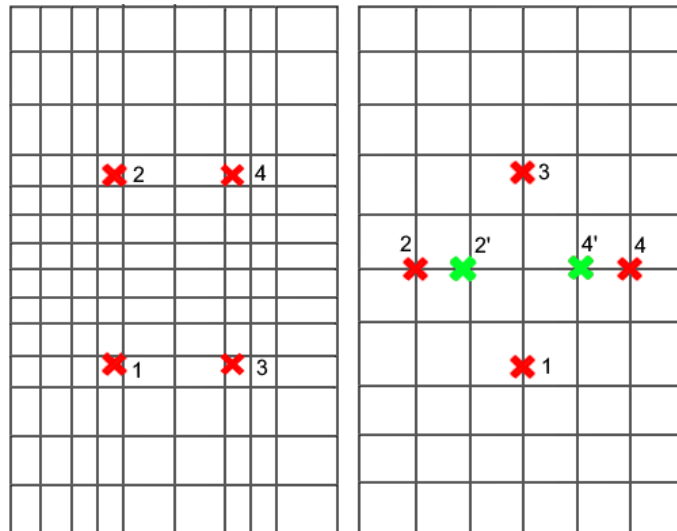


Abbildung 4-2: Angelegtes Raster Ultraschallbäder, Vogelperspektive (Eigene Darstellung)  
links: USB 1; rechts: USB 2

Zusätzlich sind in Abbildung 4-2 die ermittelten Positionen markiert. Auffällig ist, dass die Positionen Symmetrie aufweisen. Da die ermittelten Positionen 2 und 4 in USB 2 zu dicht am Rand des Beckens liegen, sodass das Reaktionsgefäß nicht dort platziert werden kann, wurden die Positionen 2' und 4' festgelegt.

Die Symmetrie der Positionen ist ein Resultat der gleichartigen Ausbreitung der Schallwellen. Unter der Annahme, dass die piezokeramischen Schallgeber punktförmige Schallquellen sind und gleichmäßig über die Ultraschallwanne verteilt angebracht sind, ergibt sich das in Abbildung 4-3 gegebene Bild der Wellenausbreitung.

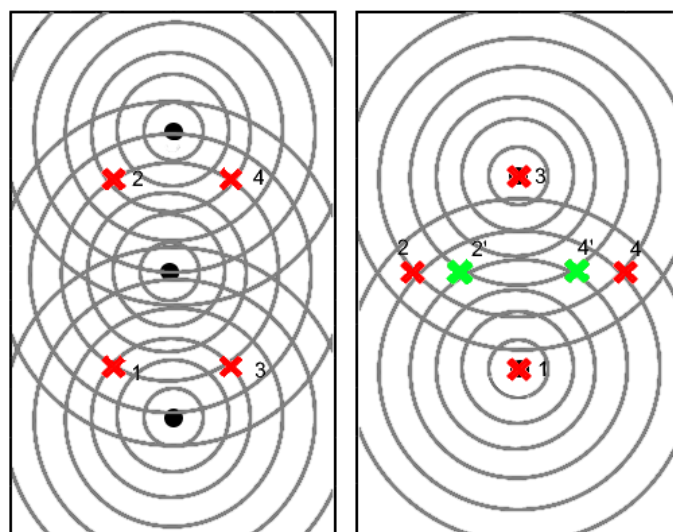


Abbildung 4-3: Skizzierte Wellenausbreitung in den Ultraschallbädern, Vogelperspektive  
links: USB 1; rechts: USB 2 (Eigene Darstellung)

Die ermittelten Positionen liegen an den Stellen, an denen sich Schallwellen überlagern und die Druckamplitude erhöht wird.

Bei der Versuchsdurchführung fällt auf, dass die Aluminiumfolienstücke durch die Strömungen im Ultraschallbad bewegt werden und somit die Ergebnisse verfälscht werden. Diesem Effekt kann durch eine starre Fixierung der Aluminiumfolie auf einem Rahmen oder der Verwendung von Aluminiumfolie mit höherer Dicke entgegengewirkt werden.

## 4.2 Kalorimetrische Messung des Energieeintrags

In Abbildung 4-4 und Abbildung 4-5 sind exemplarisch die Temperaturen  $T$  des Kolbeninhalts gegen die Zeit  $t$  für die in Kapitel 04.1 ermittelten Positionen aufgetragen. Da bei kontinuierlicher Beschallung die Temperaturänderung proportional zur absorbierten Schallenergie ist, zeigt sich im betrachteten Zeitraum ein linearer Verlauf. Daher kann für den Faktor  $dT/dt$  aus Gleichung (14) die Steigung der jeweiligen Regressionsgeraden  $\beta$  verwendet werden.

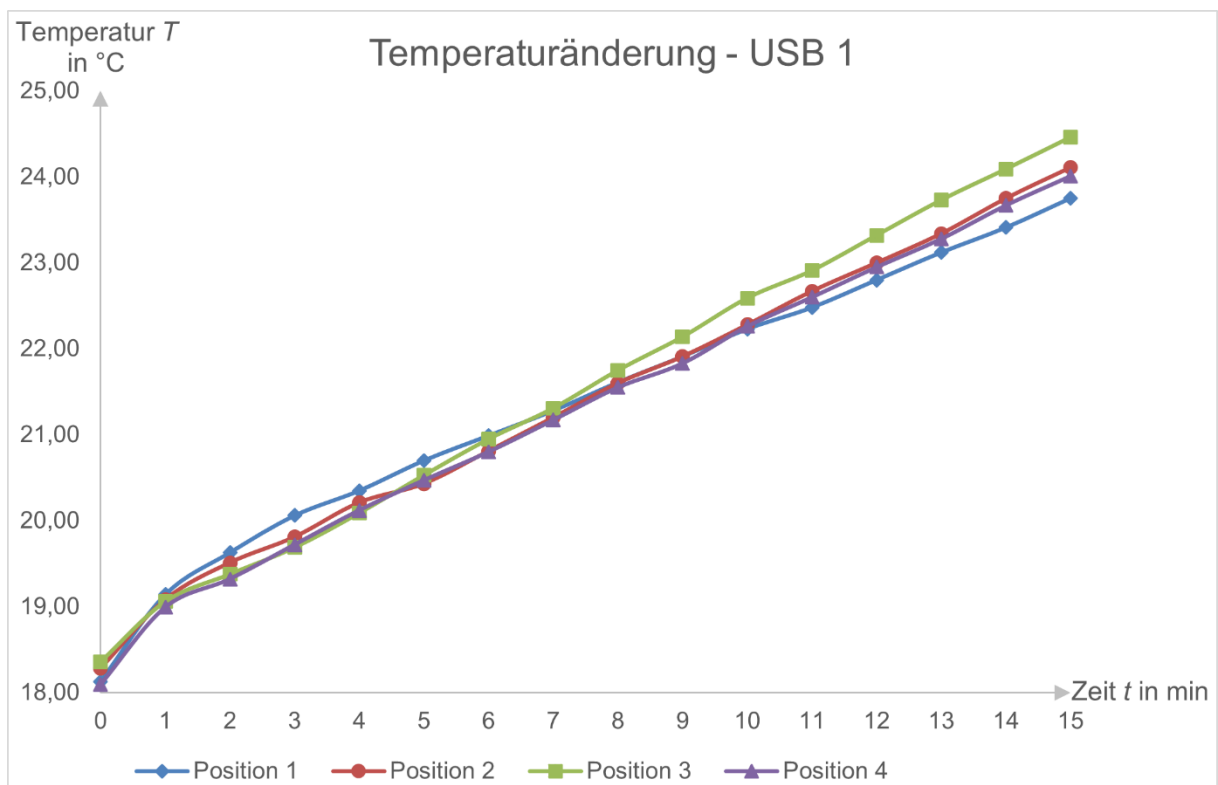


Abbildung 4-4: Temperaturänderung in USB 1 an den Positionen 1, 2, 3 und 4 (Eigene Darstellung)

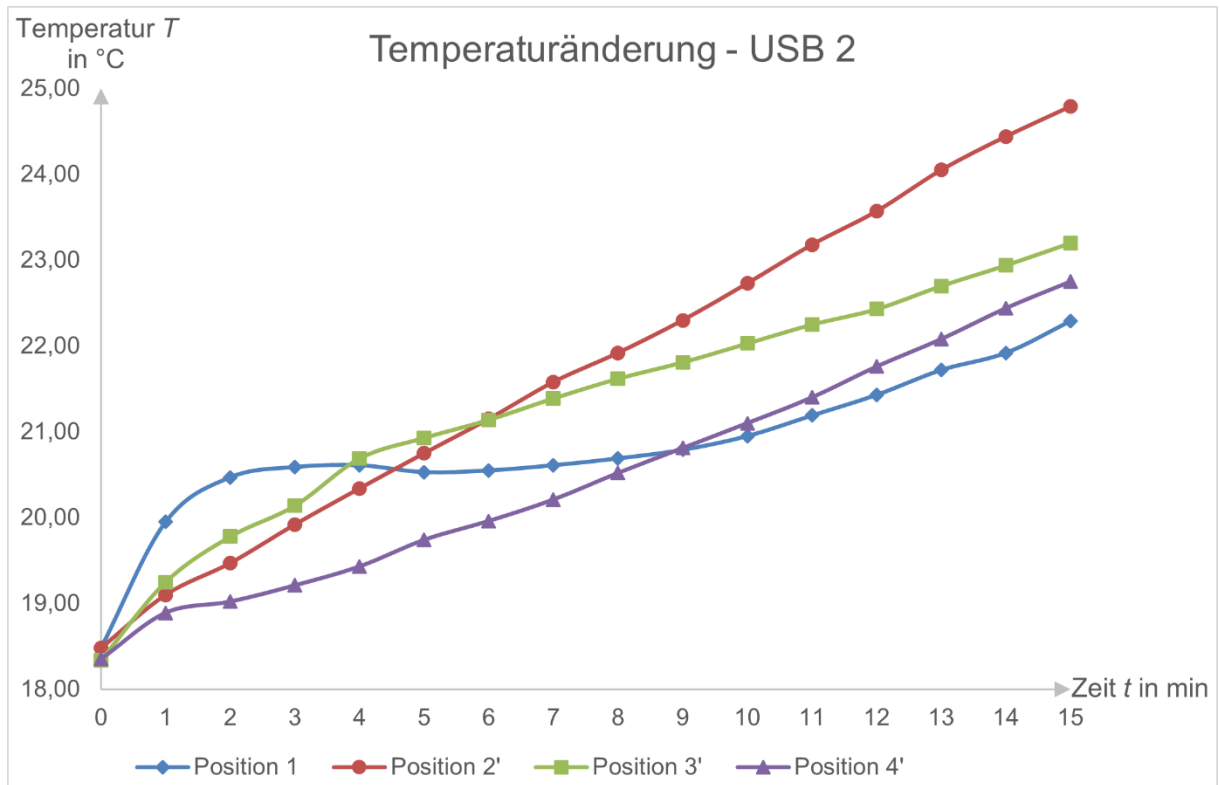


Abbildung 4-5: Temperaturänderung in USB 2 an den Positionen 1, 2', 3 und 4' (Eigene Darstellung)

Mit der spezifischen Wärmekapazität  $c_p = 4,187 \text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  von Wasser <sup>[10]</sup> ergibt sich nach Gleichung (14) für die Positionen in USB 1 und USB 2 die in Tabelle 4-1 dargestellte Leistung  $P$  des Ultraschalls.

Tabelle 4-1: Leistung der Ultraschallbäder an verschiedenen Positionen

Position	USB 1 - 1	USB 1 - 2	USB 1 - 3	USB 1 - 4	USB 2 - 1	USB 2 - 2'	USB 2 - 3	USB 2 - 4'
Leistung [W]	2,37	2,58	2,79	2,58	1,12	2,86	1,95	1,95
relativer Fehler [%]	2,95	1,63	0,76	1,90	13,76	0,74	5,72	2,15

Auf Grund der berechneten Werte wurde für USB 1 Position 3 und für USB 2 Position 2' gewählt.

Eine Beispielrechnung für die berechnete Leistung an Position 1 in USB 1 ist in den folgenden Gleichungen gegeben.

$$P = (dT/dt) \times c_p \times m$$

$$dT/dt = \beta_{USB\ 1-1} = 0,34 \text{ Kmin}^{-1}$$

$$P = 0,34 \text{ Kmin}^{-1} \times 4,187 \text{ Jg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1} \times 100,00 \text{ g}$$

$$P = 142,36 \text{ Jmin}^{-1} = 2,37 \text{ Js}^{-1} \cong 2,37 \text{ W}$$

$$\text{relativer Fehler}(P) = \left( \frac{\Delta\beta_{USB\ 1-1}}{\beta_{USB\ 1-1}} + \frac{\Delta m}{m} \right) \times 100\% = 2,95\%$$

Die Eintauchtiefe des Reaktionsgefäßes wird durch den Abstand zwischen Boden des USB und Boden des Reaktionsgefäßes, der Höhe  $h$  genannt wird, definiert. Abbildung 4-6 und Abbildung 4-7 zeigen die berechnete Ultraschalleistung gegenüber der Höhe für die Reaktionsgefäße Erlenmeyerkolben und PE-Flasche in USB 1 und USB 2.

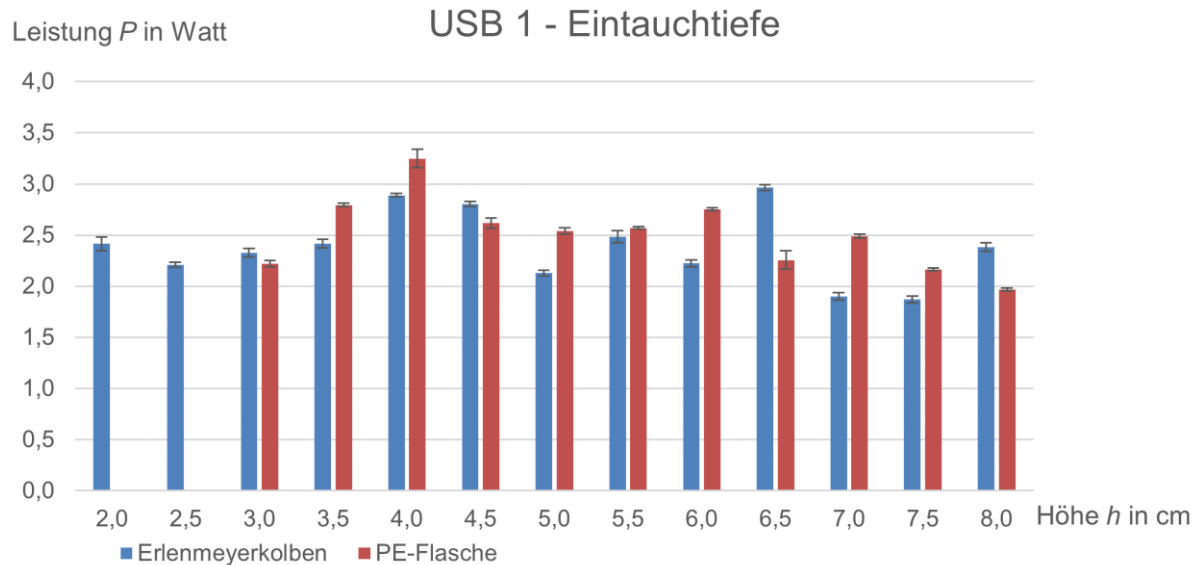


Abbildung 4-6: USB 1 – Ultraschalleistung bei variierender Eintauchtiefe des Reaktionsgefäßes (Eigene Darstellung)

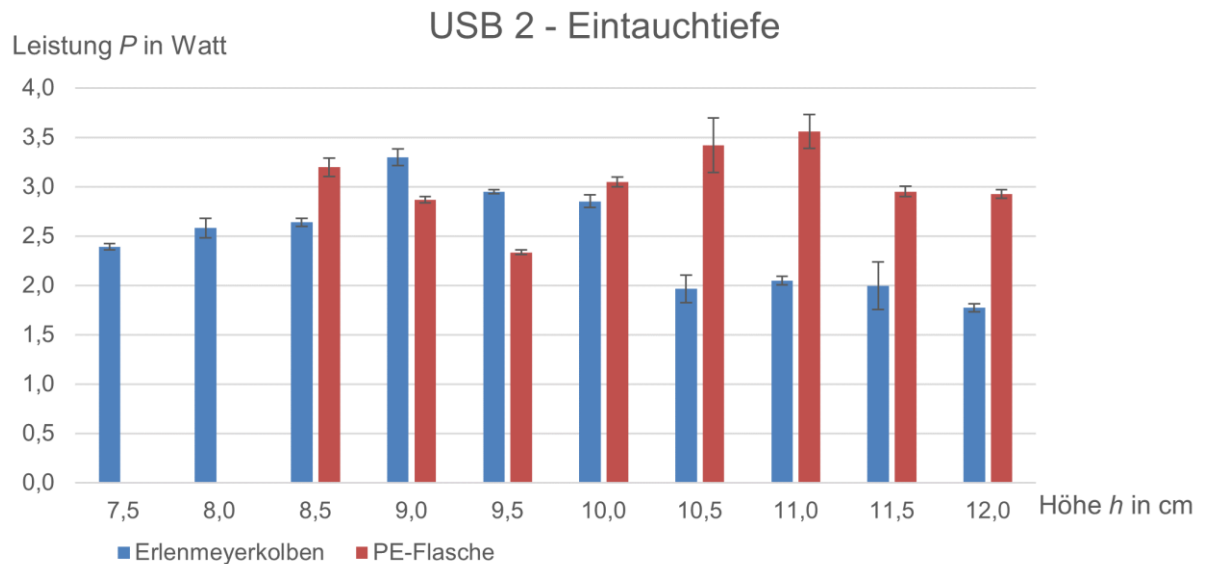


Abbildung 4-7: USB 2 – Ultraschalleistung bei variierender Eintauchtiefe des Reaktionsgefäßes (Eigene Darstellung)

Die Maxima des Schallwechseldrucks treten im Abstand der halben Wellenlänge auf. Daher bestimmt die Höhe des Reaktionsgefäßes die Anzahl der Maxima, die innerhalb



des Reaktionsvolumen liegen. Da die Energiedichte der Schallwelle nach Gleichung (10) proportional zu der Druckamplitude ist, ist zu erwarten, dass die gemessene Leistung mit der Anzahl an Maxima, die im Reaktionsvolumen zusammenhängt.

Für die folgenden Versuche wird die Eintauchtiefe des Erlenmeyerkolbens in USB 1 auf  $h = 6,5$  cm und in USB 2 auf  $h = 9,0$  cm festgelegt. Für die PE-Flasche wird in USB 1 die Eintauchtiefe auf  $h = 4,0$  cm und in USB 2 auf  $h = 11,0$  cm festgelegt.

Zum Vergleich der Ultraschallbäder und der durch den Hersteller angegebenen Ultraschallleistung zur ermittelten Leistung wurde das arithmetische Mittel der ermittelten Leistung, sowie die mittlere absolute Abweichung nach den Gleichungen (16) bis (19) bestimmt.

$$\bar{P}_{USB\ 1} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n P_{USB\ 1,i} = 2,46\ \text{Watt} \quad (16)$$

$$\Delta\bar{P}_{USB\ 1} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |P_{USB\ 1,i} - \bar{P}_{USB\ 1}| = 0,26\ \text{Watt} \quad (17)$$

$$\bar{P}_{USB\ 2} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n P_{USB\ 2,i} = 2,59\ \text{Watt} \quad (18)$$

$$\Delta\bar{P}_{USB\ 2} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |P_{USB\ 2,i} - \bar{P}_{USB\ 2}| = 0,53\ \text{Watt} \quad (19)$$

Im Mittel wurden für USB 1  $2,46 \pm 0,26$  Watt und für USB 2  $2,59 \pm 0,53$  Watt über alle Messreihen berechnet. Dem gegenüber stehen die Herstellerangaben der Ultraschallleistung von 195 Watt für USB 1 und 140 Watt für USB 2. Der hohe Leistungsverlust ist vor allem auf das im Vergleich zum Reaktionsvolumen große Volumen der Ultraschallwannen und die Reflexion der Schallwellen an der Oberfläche des Reaktionsgefäßes zurückzuführen.

Da eine Beeinflussung der Temperaturfühler des verwendeten elektronischen Thermometers durch Ultraschall nicht auszuschließen ist, sollte in Betracht gezogen werden die Temperaturänderung nicht bei Betrieb des USB aufzunehmen. Messungen der Temperatur vor und nach einer definierten Beschallungsdauer können weniger fehlerbehaftete Messwerte liefern.

Die Rohdaten können **Anhang A** entnommen werden.

### 4.3 Emulsionsbildung

Abbildung 4-8 zeigt die erzeugten Emulsionen direkt, zwei Tage, zwei Wochen und vier Wochen nach der Beschallung bzw. dem Rühren. Von links nach rechts sind das Öl-Wasser-Gemisch aus USB 2, das Öl-Wasser-Gemisch aus USB 1 und der Vergleichsansatz, der mit einem Magnetrührer gerührt wurde, zu sehen. Bereits direkt nach dem Versuch ist ein deutlicher Unterschied zwischen den beschallten Öl-Wasser-Gemischen und dem Vergleichsansatz erkennbar. Die beschallten Öl-Wasser-Gemische zeigen eine deutlich weiße Verfärbung und sind opak, während der Kontrollansatz nur leicht getrübt ist.

Die optische Wahrnehmung der Emulsionen hängt davon ab, wie Licht an ihnen gestreut und reflektiert wird. Durch die mehrfache Beugung und Brechung der einfallenden Lichtstrahlen an den Phasengrenzflächen zwischen Öltröpfchen und Wasser, nimmt die Ausbreitungsgeschwindigkeit und somit die Intensität des Lichts ab. Die Emulsionen wirken optisch dicht und weiß. Daher lässt sich durch die Trübung gut beurteilen, ob Emulsionen entstanden sind und ob diese stabil bleiben.

Schon nach zwei Tagen nimmt die Trübung des Kontrollansatzes deutlich ab, während die beschallten Ansätze keine Veränderung aufweisen. Nach zwei Wochen hat sich auf den beschallten Ansätzen ein feiner Ölfilm abgesetzt. Auch nach vier Wochen ist bei den beschallten Ansätzen keine Entmischung zu beobachten, während der Kontrollansatz vollständig entmischt ist.



Abbildung 4-8: Aufnahmen der Emulsionen direkt (oben links), 2 Tage (oben rechts), 2 Wochen (unten links) und 4 Wochen (unten rechts) nach der Beschallung bzw. dem Rühren, (Eigene Aufnahme)

Durch Einfärben der verschiedenen Phasen oder die Messung der Transmission kann die Entmischung besser beobachtet werden und die Tröpfchengröße der Öl-Partikel bestimmt werden, wodurch eine Beurteilung der Emulsionsbildung durch Ultraschall ermöglicht wird.

#### 4.4 Scherkräfte

Während der Beschallung des Stärke-Wasser-Gemischs konnten keine besonderen Beobachtungen gemacht werden. Das zunächst homogene Gemisch hat sich nach 45 Minuten der Beschallung, wie in Abbildung 4-9 dargestellt, in zwei Phasen aufgetrennt. Die Stärke hat einen festen Bodensatz gebildet. Ein Unterschied zwischen USB 1 und USB 2 konnte nicht festgestellt werden.

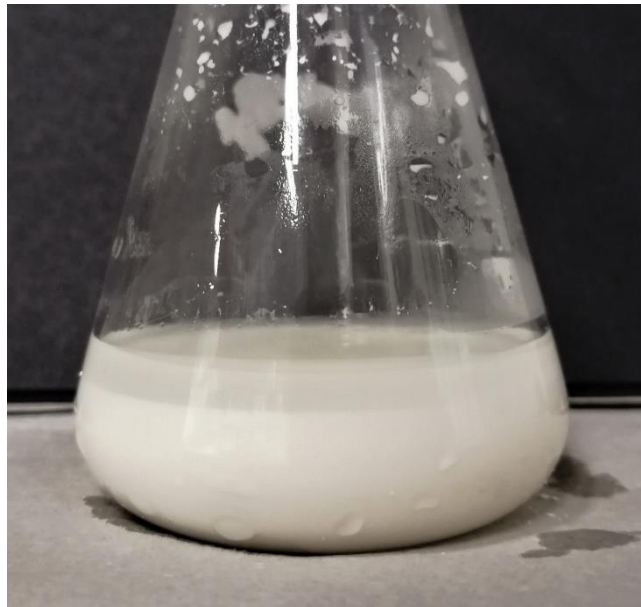


Abbildung 4-9: Stärke-Wasser-Gemisch nach 45 Minuten Beschallung (Eigene Aufnahme)

Die Beobachtung legt nahe, dass das Gemisch durch die hohe Scherbeanspruchung nicht mehr fließfähig war und das enthaltene Wasser ausgetrieben wurde. Darüber hinaus sind auch Modifizierungen chemischer und physikalischer Eigenschaften der Stärke durch die sonochemischen Effekte denkbar. <sup>[42]</sup>

Dieser Versuch kann durch die Untersuchung anderer nichtnewtonscher Fluide und die Messung der Viskosität erweitert werden und somit die Entstehung von Scherkräften besser beobachtet werden. Auch die Untersuchung der Modifizierung chemischer und physikalischer Eigenschaften beschallter Kohlehydratlösungen birgt Potential das Verständnis für sonochemische Effekte weiterzuentwickeln.

#### 4.5 Oxidation von Kaliumiodid

Wie in Abbildung 4-10 dargestellt ist schon nach der Beschallung der farblosen Kaliumiodidlösungen eine gelbe Verfärbung der Lösungen erkennbar. Diese ist bei der Lösung, die in USB 1 beschallt wurde, intensiver. Hieran ist erkennbar, dass bereits eine Reaktion stattgefunden hat. Die schwache gelbe Färbung spricht für das Vorliegen einer stark verdünnten Iod-Kaliumiodid-Lösung.

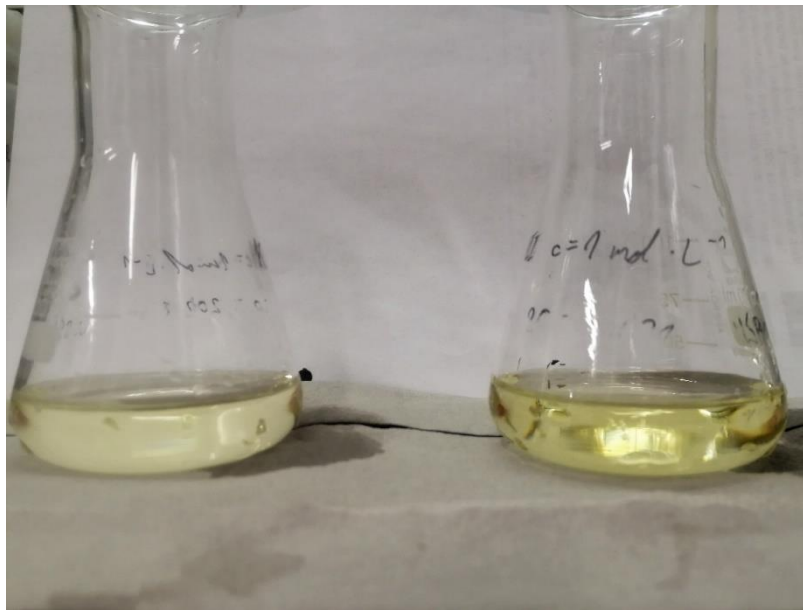


Abbildung 4-10: Kaliumiodidlösungen nach der Beschallung (Eigene Aufnahme)  
links: USB 2; rechts: USB 1

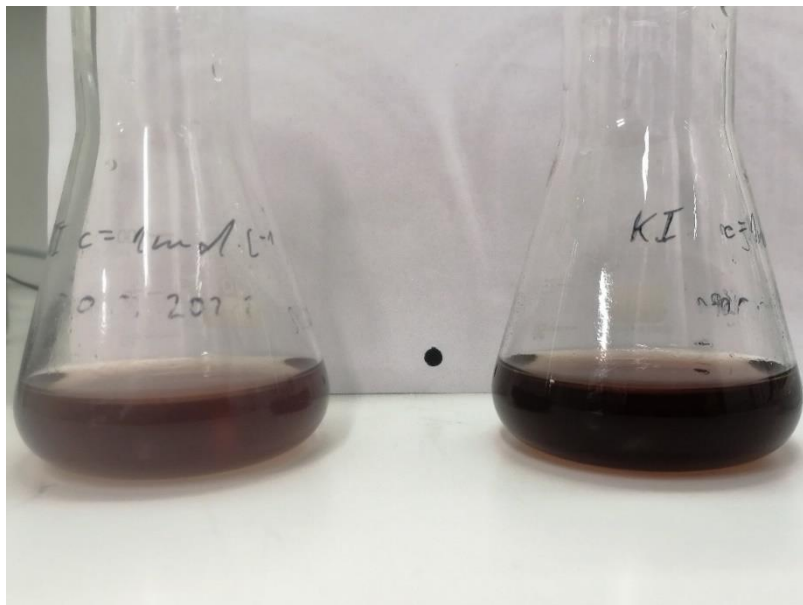


Abbildung 4-11: Kaliumiodidlösungen nach Zugabe der Stärke-Lösung (Eigene Aufnahme)  
links: USB 2; rechts: USB 1

Abbildung 4-11 zeigt die Lösungen nach Zugabe der Stärke-Lösung. Der Farbumschlag bestätigt, dass Iod erzeugt werden konnte. Der intensivere Farbumschlag in der Lösung, die in USB 1 beschallt wurde, deutet auf einen höheren Umsatz des Kaliumiodid zu Iod hin.

Da der Umsatz direkt mit der durch Kavitation erzeugten Menge an Wasserstoffperoxid und somit mit der Ultraschalleistung zusammenhängt kann dieser Versuch mittels Konzentrationsbestimmung auch als quantitative Messmethode für die eingetragene Ultraschalleistung eingesetzt werden. Neben Kaliumiodid-Lösungen können in diesem Versuch auch andere leicht oxidierbare Chemikalien verwendet werden.

## 4.6 Sonolumineszenz

Tabelle 4-2 gibt eine Übersicht über die Fälle in denen SL beobachtet werden konnte. Auffallend ist der signifikante Unterschied beim verwendeten Nukleationsgas. Während bei Verwendung von Stickstoff in sieben von 28 Fällen SL beobachtet werden konnte, trat bei der Verwendung von Argon in 22 von 28 Fällen SL auf.

Tabelle 4-2: Übersicht Sonolumineszenz

Nukleationsgas		Stickstoff, N <sub>2</sub>		Argon, Ar	
		1	2	1	2
<b>Ultraschallbad</b>					
<b>Glycerin</b>		Nein	Nein	Nein	Nein
<b>Wasser</b>		Nein	Nein	Nein	Nein
<b>Schwefelsäure</b>	PE-Flasche	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	Erlenmeyerkolben	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
<b>Natronlauge</b>	PE-Flasche	<b>Ja</b>	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	Erlenmeyerkolben	<b>Ja</b>	Nein	<b>Ja</b>	Nein
<b>Kaliumchlorid-Lösung</b>	c = 1 mol/L	Nein	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	c = 2 mol/L	Nein	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	c = 3 mol/L	Nein	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	gesättigt	Nein	Nein	<b>Ja</b>	Nein
<b>Natriumchlorid-Lösung</b>	c = 1 mol/L	Nein	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	c = 2 mol/L	Nein	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	c = 3 mol/L	<b>Ja</b>	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>
	gesättigt	Nein	Nein	<b>Ja</b>	<b>Ja</b>

Auch der Unterschied zwischen den verwendeten Ultraschallbädern ist erheblich. In USB 1 konnte in 17 von 28 Fällen und in USB 2 in zwölf von 28 Fällen SL festgestellt werden. Durch die in USB 2 verbaute Frequenzautomatik können Schwebungen der Ultraschallwellen auftreten. Das Resultat dieser Schwebungen ist die periodische Änderung der Druckamplitude. Hierdurch wird die Kavitation und somit die SL eingeschränkt. Glycerin und Wasser zeigten unter den Versuchsbedingungen keine SL. Die naheliegende Erklärung ist, dass durch den verwendeten Ultraschall die

Kohäsionskräfte nicht überwunden werden konnten und somit keine Kavitation aufgetreten ist. Nur Schwefelsäure zeigte sowohl mit Stickstoff als auch mit Argon in beiden USB SL. Bei den Salzlösungen stieg die Intensität der SL in den gewählten Konzentrationsstufen an, fiel aber bei der gesättigten Lösung deutlich ab.

#### 4.6.1 Stickstoff als Nukleationsgas

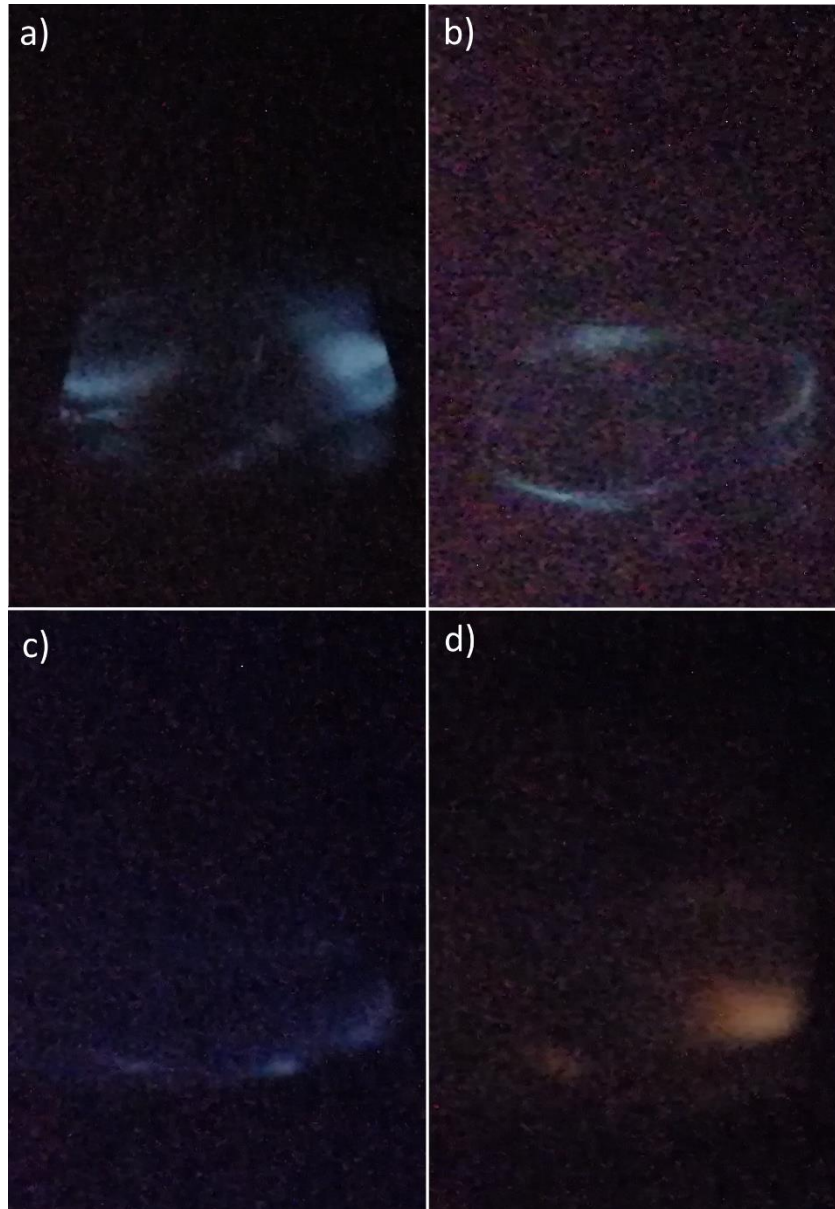


Abbildung 4-12: Sonolumineszenz mit Stickstoff – USB 1 (Eigene Aufnahmen)

- a) konzentrierte Schwefelsäure im Erlenmeyerkolben
- b) konzentrierte Schwefelsäure in der PE-Flasche
- c) konzentrierte Natronlauge im Erlenmeyerkolben
- d) konzentrierte Natronlauge in der PE-Flasche

Abbildung 4-12 zeigt die Aufnahmen der SL mit Stickstoff als Nukleationsgas in USB 1. Während bei konzentrierter Schwefelsäure ein helles blau gefärbtes Licht wahrzunehmen ist (a und b), ist bei der Natronlauge im Erlenmeyerkolben (c) nur ein schwaches dunkelblaues Leuchten an der Grenze zwischen Flüssigkeitsoberfläche

und Gefäßwand zu sehen. Die SL der Natronlauge in der PE-Flasche (d) zeigt eine gelbe Färbung, die auf die Lichtemission angeregter Natriumionen zurückzuführen ist.

#### 4.6.2 Argon als Nukleationsgas

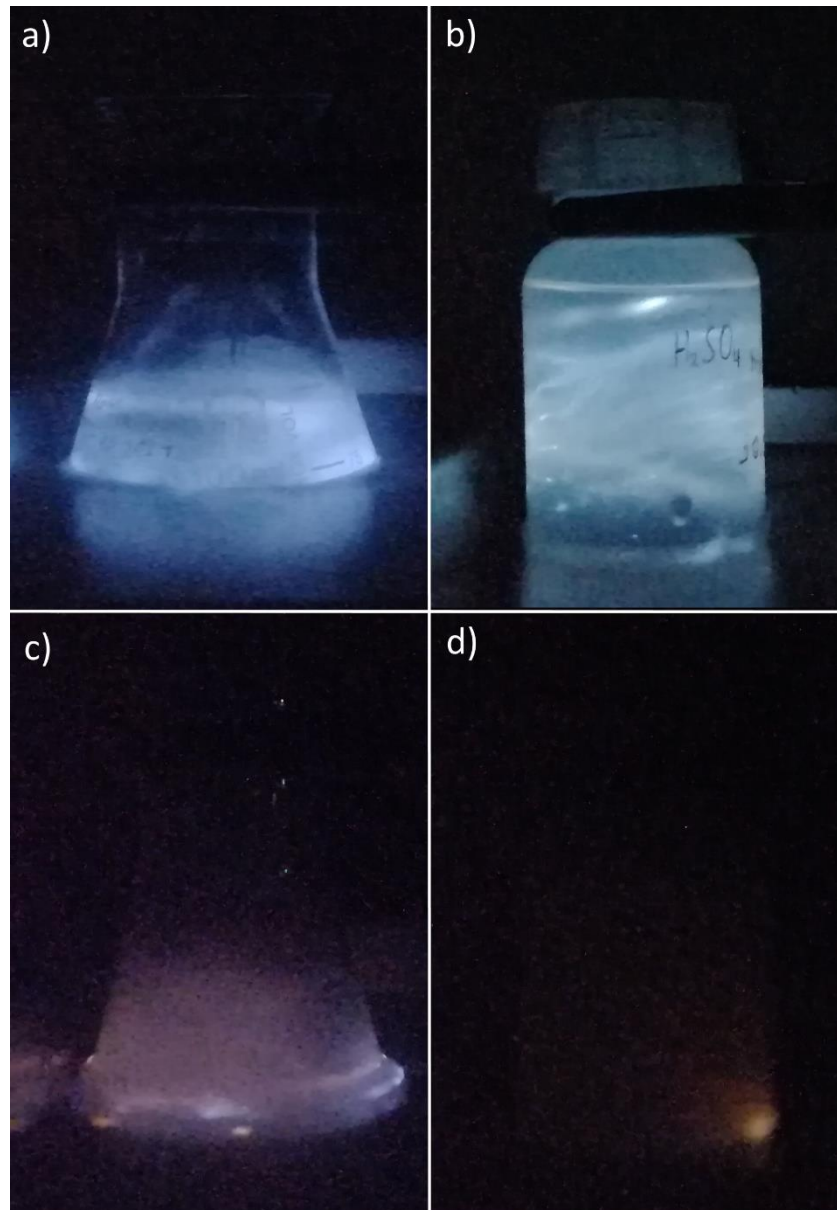


Abbildung 4-13: Sonolumineszenz mit Argon – USB 1 (Eigene Aufnahmen)

- a) konzentrierte Schwefelsäure im Erlenmeyerkolben
- b) konzentrierte Schwefelsäure in der PE-Flasche
- c) konzentrierte Natronlauge im Erlenmeyerkolben
- d) konzentrierte Natronlauge in der PE-Flasche

Abbildung 4-13 zeigt die Aufnahmen der SL mit Argon als Nukleationsgas in USB 1. Im Vergleich mit den Beobachtungen aus der Beschallung mit Stickstoff als Nukleationsgas ist hier eine deutlich intensivere SL zu sehen. Das fast weiße Leuchten der beschallten Schwefelsäure (a und b) spricht für die Emission eines kontinuierlichen Spektrums. Die konzentrierte Natronlauge (c und d) erscheint im Erlenmeyerkolben getrübt, da im gewählten Temperaturbereich um 10 °C die Löslichkeit von

Natriumhydroxid stark abnimmt und dieses somit ausfällt. Die damit verbundene Erhöhung der Viskosität erklärt auch die Beobachtung in der PE-Flasche (d), da durch das Fehlen des Gasstroms weniger akustische Kavitation auftritt.

#### 4.6.3 Vergleich Stickstoff und Argon

In Abbildung 4-14 ist die SL konzentrierter Schwefelsäure unter Einleitung von Stickstoff (a) der SL unter Einleitung von Argon (b) gegenübergestellt.

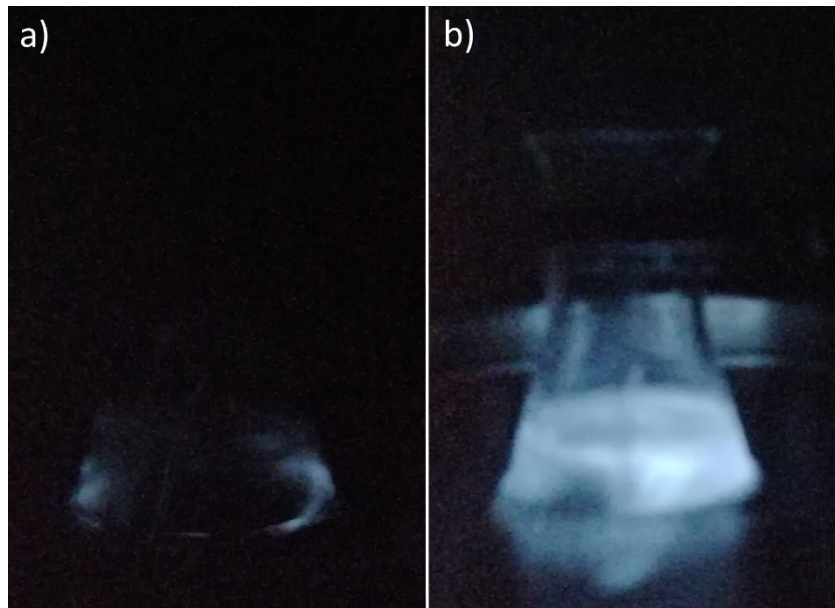


Abbildung 4-14: Sonolumineszenz – Vergleich Stickstoff und Argon, konzentrierte Schwefelsäure in USB 2 (Eigene Aufnahmen)  
a) Stickstoff; b) Argon

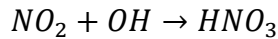
Der grundlegende Unterschied zwischen Stickstoff und Argon ist die Reaktivität. Während Argon ein einatomiges chemisch inertes Edelgas ist, handelt es sich bei Stickstoff um zweiatomige Moleküle, die in der wässrigen Lösung unter Ultraschall reagieren. Durch die akustische Kavitation erzeugte Hydroxyl-Radikale und Sauerstoff oxidieren den Stickstoff  $N_2$  zu Stickstoffmonoxid  $NO$ .



Das Stickstoffmonoxid wird dann weiter zu salpetriger Säure  $HNO_2$  und Salpetersäure  $HNO_3$  umgesetzt.







Schema 4-5

Diese Reaktionen führen neben der Möglichkeit, dass weitere Reaktionen mit der untersuchten Lösung stattfinden, zu einem erhöhten Energieverbrauch, der sich negativ auf die SL auswirkt. [43]

#### 4.6.4 Sonolumineszenz der Salzlösungen

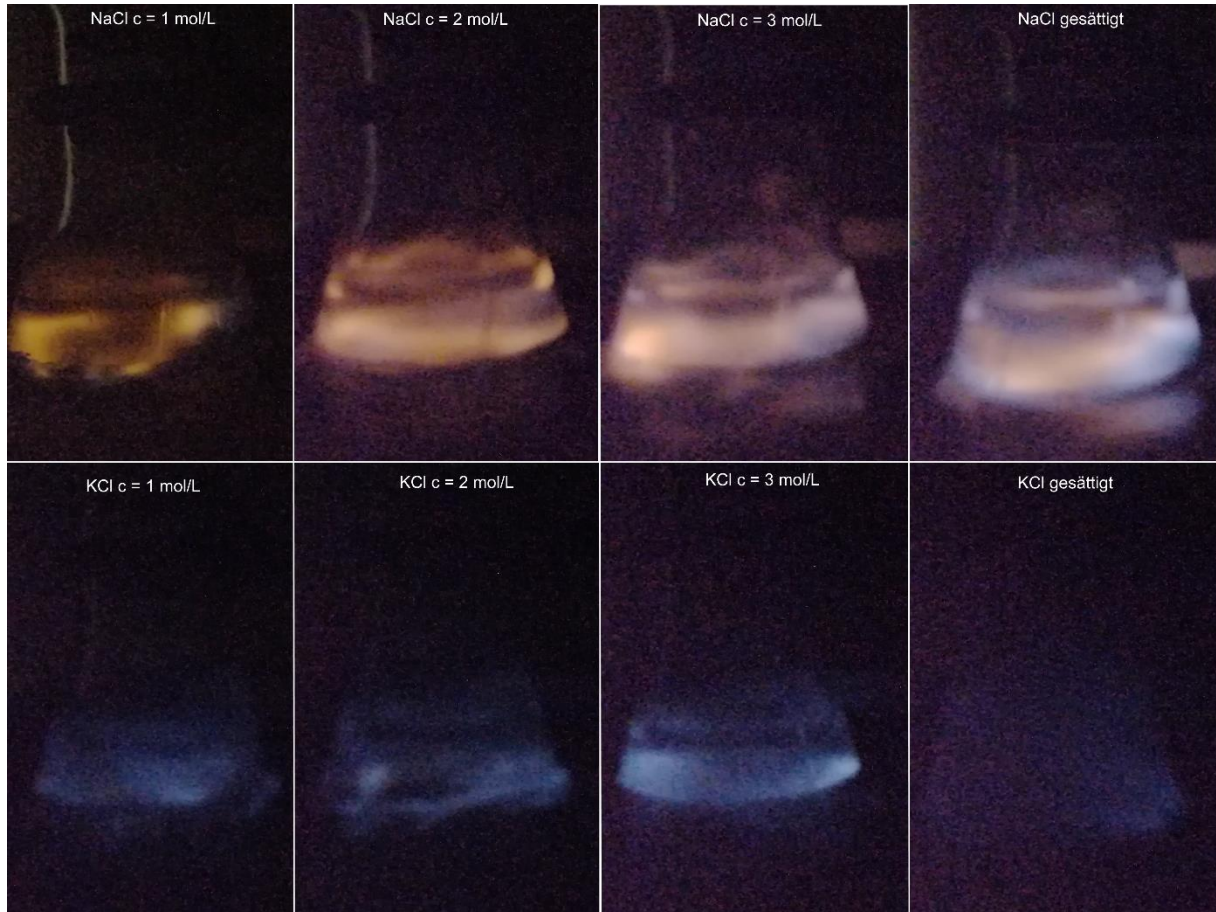


Abbildung 4-15: Sonolumineszenz der Salzlösungen verschiedener Konzentration in USB 1 mit Argon oben: Natriumchlorid; unten: Kaliumchlorid (Eigene Aufnahmen)

Abbildung 4-15 zeigt die SL verschiedener Salz-Lösungen. Aus dem Umstand heraus, dass für reines Wasser keine SL gefunden werden konnte, lässt sich die Annahme, dass gelöste Salze das Auftreten von SL begünstigen, bestätigen, da in beiden betrachteten Salzlösungen schon bei der geringen Konzentration von 1 mol/L SL zu sehen ist. Diese Beobachtung wird der geringeren Löslichkeit von Gasen in Salzlösungen zugeschrieben, während für das Abfallen der Lichtintensität bei höher konzentrierten oder gesättigten Lösungen noch keine Erklärung gefunden werden konnte. [44]

In **Anhang B** befinden sich weitere Aufnahmen der SL.

## 5 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit werden die Auswirkungen von Ultraschall auf Flüssigkeiten, die durch akustische Kavitation verursacht werden und als sonochemische Effekte bekannt sind, vorgestellt und durch einfache Experimente mit Ultraschallreinigungsbädern veranschaulicht.

Zunächst wird ein Konzept entwickelt, das dazu dient, die optimale Positionierung von Reaktionsgefäßen im USB zu bestimmen, um möglichst gute Ergebnisse erzielen zu können. Als Teil dieses Konzepts wird die Oberflächenerosion durch Ultraschall am Beispiel der Perforation von Aluminiumfolie veranschaulicht. Aus der Betrachtung der perforierten Aluminiumfolienstücke können Rückschlüsse auf die Stellen im USB geschlossen werden, die besonders hohe Schallleistung aufweisen. Im Rahmen dieser Arbeit können für zwei USB jeweils vier punktsymmetrische Positionen ermittelt werden.

Zur Bestätigung dieser Positionen und Ermittlung der optimalen Eintauchtiefe eines Reaktionsgefäßes wird die Temperaturerhöhung durch Ultraschall kalorimetrisch bestimmt und die Schallleistung berechnet. Aus den Messungen geht hervor, dass die durch Ultraschall eingetragene Energie nur einen kleinen Teil der Ultraschallleistung des verwendeten USB darstellt.

Nach erfolgreicher Bestimmung der optimalen Positionierung werden weitere Experimente zur anschaulichen Darstellung grundlegender sonochemischer Effekte durchgeführt.

Die Erzeugung stabiler Öl-Wasser-Emulsionen, die auch noch vier Wochen nach der Ultraschallbehandlung keine Entmischung zeigen, demonstriert deutlich den Effekt der feinen Durchmischung heterogener Phasen.

Die Scherbeanspruchung beschallter Flüssigkeiten wird am Beispiel eines Stärke-Wasser-Gemischs dargestellt. Die beobachtete Auftrennung des Gemischs in einen festen Bodensatz und eine überstehende wässrige Phase sind deutliche Indizien für wirkende Scherkräfte.

Die Erzeugung reaktiver Molekülfragmente und Radikalen in wässrigen Lösungen wird durch die Oxidation einer Kaliumiodid-Lösung veranschaulicht. Der durch die Oxidation verursachte Farbumschlag und anschließender Nachweis des Iods als Iod-

Stärke-Komplex zeigen deutlich, dass oxidierende Spezies durch Ultraschall erzeugt werden können.

Durch Untersuchung verschiedener Flüssigkeiten auf das Auftreten einer Lichtemission wird ein weiterer sonochemischer Effekt veranschaulicht. Dieses Phänomen, dessen Ursprung in aktuellen Theorien <sup>[28]</sup> <sup>[29]</sup> <sup>[30]</sup> auf die Bildung von Plasma durch akustische Kavitation zurückgeführt wird, weckt eine ganz natürliche Faszination, da durch nicht sichtbaren Schall ein Leuchten entsteht. Es kann gezeigt werden, dass ein handelsüblicher Ultraschallreiniger, etwas Eis und ein Gasstrom ausreichend sind, um SL in konzentrierter Schwefelsäure, konzentrierter Natronlauge und Lösungen von Natriumchlorid und Kaliumchlorid zu erzeugen.

## 6 Ausblick

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten und entwickelten Experimente bieten einen guten Einstieg in die experimentelle Anwendung von Ultraschall in der Chemie. Insbesondere das Konzept zur Ermittlung der Bereiche hoher Schalleistung stellt eine Grundlage für die Durchführung weiterer Experimente in handelsüblichen Ultraschallbädern dar. Durch die größtenteils ungefährlichen Chemikalien und die Verwendung handelsüblicher Ultraschallreiniger eignen sich die durchgeführten Versuche zu sonochemischen Effekten und SL auch zur Demonstration bei Lehr- und Informationsveranstaltungen mit Publikumsverkehr.

Die durchgeführten Experimente bieten viel Spielraum für die Weiterentwicklung und weitere Anwendungsmöglichkeiten.

Bei der Perforation von Aluminiumfolie können durch das Anlegen feinerer Raster und genauere Betrachtung der Verteilung der Perforation präzisere Angaben zu den Bereichen höherer Schalleistung gemacht werden. Durch eine Fixierung an festen Rahmen und die Verwendung von Aluminiumfolie höherer Dicke kann der Verfälschung durch Strömungen in der Ultraschallwanne entgegengewirkt werden.

Die kalorimetrische Messung des Energieeintrags kann allgemein zur Beurteilung der Schalleistung eines USB genutzt werden. Auch die Eignung verschiedener Reaktionsgefäße für die Anwendung in der Sonochemie kann durch vergleichende Messungen beurteilt werden. Die Beeinflussung der Messinstrumente durch Ultraschall kann untersucht werden oder durch Messung der Temperatur vor und nach der Beschallung vermieden werden.

Die Emulsionsbildung kann durch Einfärben der verschiedenen Phasen besser beobachtet werden. Außerdem kann durch Messung der Transmission und die Bestimmung der Tröpfchengröße der Öl-Partikel die Beurteilung der Emulsionsbildung durch Ultraschall ermöglicht werden.

Die Oxidation von Kaliumiodid kann durch nachgelagerte Messung der Konzentration, die beispielsweise photometrisch erfolgen kann, auch zur Bestimmung des Energieeintrags in das Reaktionsvolumen genutzt werden. Zu diesem Zweck ist auch die Verwendung anderer oxidierbarer Verbindungen denkbar.

Die hier vorgestellten Versuche zur SL verschiedener Flüssigkeiten können problemlos mit weiteren Flüssigkeiten durchgeführt werden. Auch die Verwendung

anderer Gase ist ohne großen Aufwand möglich. Es hat sich gezeigt, dass einatomige Gase deutlich bessere Ergebnisse zeigen, daher ist die Untersuchung der SL mit weiteren Edelgasen besonders interessant. Die Betrachtung von Emissionsspektren der SL dient als Grundlage für die Entwicklung der Theorien zur SL, daher bietet die Erweiterung der Versuche mit Photometern viel Potential für das Verstehen der SL.

Die in dieser Arbeit verwendeten USB erzeugen Schallwellen ähnlicher Frequenz und Leistung. Ein merkbarer Unterschied konnte lediglich bei den Versuchen zur SL festgestellt werden. Die Wiederholung der vorgestellten Versuche in Ultraschallbädern, die in viel höheren Frequenzbereichen um beispielsweise 200 kHz oder niedrigeren Frequenzbereichen um 20 kHz arbeiten, kann somit auch von Interesse sein.

## Anhang

### Anhang A – Rohdaten der kalorimetrischen Messung des Energieeintrags

Tabelle 6-1: Rohdaten Positionsbestimmung USB 1

Position n	1		2		3		4	
	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>
	fäß [°C]	ad [°C]	fäß [°C]	ad [°C]	fäß [°C]	ad [°C]	fäß [°C]	ad [°C]
0	18,13	18,27	18,28	18,40	18,36	18,31	18,09	18,05
1	19,14	18,62	19,08	18,83	19,06	18,82	18,99	18,57
2	19,63	18,93	19,51	19,16	19,38	19,06	19,32	18,93
3	20,06	19,24	19,81	19,49	19,69	19,48	19,72	19,23
4	20,35	19,55	20,21	19,83	20,09	19,89	20,12	19,55
5	20,70	19,89	20,43	20,24	20,53	20,26	20,47	19,91
6	20,99	20,21	20,81	20,60	20,95	20,60	20,80	20,25
7	21,28	20,52	21,20	20,92	21,31	20,99	21,17	20,66
8	21,61	20,82	21,60	21,28	21,75	21,31	21,55	21,02
9	21,91	21,18	21,91	21,59	22,14	21,68	21,83	21,42
10	22,23	21,50	22,28	21,95	22,59	22,07	22,26	21,71
11	22,48	21,86	22,67	22,27	22,91	22,42	22,60	22,09
12	22,80	22,20	23,00	22,61	23,32	22,77	22,95	22,40
13	23,12	22,46	23,34	22,97	23,73	23,15	23,28	22,79
14	23,41	22,85	23,75	23,27	24,09	23,55	23,67	23,11
15	23,75	23,17	24,11	23,58	24,46	23,91	24,01	23,45

Tabelle 6-2: Rohdaten Positionsbestimmung USB 2

Position n	1		2'		3		4'	
	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>	T <sub>Reaktionsge</sub>	T <sub>Ultraschallb</sub>
	fäß [°C]	ad [°C]	fäß [°C]	ad [°C]	fäß [°C]	ad [°C]	fäß [°C]	ad [°C]
0	18,48	18,35	18,48	18,52	18,34	18,54	18,35	18,52
1	19,95	18,89	19,10	19,12	19,25	19,10	18,89	19,09
2	20,47	19,30	19,47	19,52	19,78	19,47	19,02	19,42
3	20,59	19,58	19,92	19,91	20,14	19,81	19,21	19,73
4	20,61	19,82	20,34	20,28	20,69	20,06	19,43	20,10
5	20,53	20,20	20,75	20,71	20,93	20,40	19,74	20,49
6	20,55	20,47	21,15	20,93	21,14	20,62	19,96	20,81
7	20,61	20,78	21,58	21,37	21,39	20,99	20,21	21,16
8	20,69	21,09	21,92	21,71	21,62	21,25	20,52	21,48
9	20,79	21,38	22,30	22,04	21,81	21,53	20,81	21,84
10	20,95	21,71	22,73	22,39	22,03	21,88	21,10	22,17
11	21,19	22,00	23,18	22,83	22,25	22,21	21,40	22,58
12	21,43	22,31	23,57	23,21	22,43	22,53	21,76	22,86
13	21,72	22,66	24,05	23,64	22,70	22,86	22,08	23,18
14	21,92	22,98	24,44	23,92	22,94	23,15	22,44	23,49
15	22,29	23,28	24,79	24,16	23,20	23,51	22,75	23,84

Tabelle 6-3: Rohdaten Eintauchtiefe Erlenmeyerkolben USB 1

Höhe [cm]	2	2,5	3	3,5	4	4,5	5	5,5	6	6,5	7	7,5	8
t	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä	T <sub>Reakti</sub> onsgefä
[min]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]
0	17,46	17,44	17,34	17,24	17,30	17,41	17,88	17,71	17,92	17,63	17,89	17,71	17,71
1	18,41	17,83	17,77	17,73	17,85	18,14	18,41	18,19	18,56	18,31	18,52	18,25	18,47
2	18,81	18,09	17,97	18,14	18,22	18,47	18,77	18,38	18,76	18,73	18,70	18,43	18,76
3	19,22	18,36	18,20	18,51	18,56	18,86	19,05	18,56	19,06	19,19	18,94	18,68	18,93
4	19,62	18,61	18,50	18,84	18,94	19,19	19,38	18,87	19,30	19,62	19,15	18,85	19,41
5	19,84	18,90	18,79	19,19	19,37	19,61	19,68	19,16	19,69	19,98	19,36	19,10	19,76
6	20,22	19,17	19,11	19,53	19,76	20,03	19,94	19,48	19,91	20,41	19,63	19,34	20,14
7	20,55	19,58	19,46	19,84	20,23	20,46	20,24	19,87	20,17	20,82	19,86	19,57	20,50
8	20,83	19,93	19,75	20,43	20,61	20,82	20,48	20,22	20,50	21,27	20,17	19,85	20,89
9	21,11	20,19	20,13	20,70	21,06	21,23	20,77	20,62	20,85	21,69	20,47	20,14	21,04
10	21,41	20,53	20,47	21,00	21,45	21,59	21,06	21,09	21,19	22,15	20,73	20,42	21,46
11	21,75	20,87	20,87	21,30	21,91	21,99	21,46	21,52	21,49	22,58	21,00	20,73	21,79
12	22,17	21,21	21,26	21,58	22,30	22,47	21,70	21,97	21,85	22,94	21,25	21,00	22,10
13	22,47	21,58	21,63	21,87	22,72	22,81	22,01	22,33	22,19	23,33	21,62	21,34	22,35
14	22,80	21,84	22,00	22,17	23,17	23,22	22,40	22,65	22,63	23,76	21,93	21,63	22,74
15	23,17	22,23	22,39	22,48	23,55	23,64	22,68	22,91	22,92	24,16	22,24	21,92	23,07

Tabelle 6-4: Rohdaten Eintauchtiefe PE-Flasche USB 1

Höhe [cm]	3	3,5	4	4,5	5	5,5	6	6,5	7	7,5	8
t	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß	T <sub>Reaktion</sub> sgefäß
[min]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]	β [°C]
0	18,30	18,23	18,31	18,32	18,50	18,67	18,63	18,79	18,90	19,00	18,95
1	18,44	18,67	19,08	18,98	18,76	19,01	19,16	19,47	19,19	19,29	19,23
2	18,75	19,08	19,48	19,48	18,90	19,40	19,53	19,84	19,55	19,54	19,43
3	19,14	19,53	20,25	19,93	19,40	19,75	19,94	20,24	19,90	19,82	19,78
4	19,57	19,89	20,83	20,33	19,70	20,12	20,33	20,62	20,34	20,17	20,00
5	19,85	20,28	21,37	20,70	20,06	20,50	20,71	21,00	20,60	20,45	20,27
6	20,12	20,76	21,84	21,03	20,47	20,87	21,12	21,31	21,08	20,77	20,56
7	20,51	21,13	22,28	21,41	20,83	21,29	21,55	21,99	21,40	21,09	20,83
8	20,84	21,58	22,70	21,70	21,22	21,60	21,89	22,09	21,80	21,47	21,15
9	21,24	21,81	23,19	22,06	21,59	21,98	22,27	22,25	22,12	21,70	21,44
10	21,53	22,30	23,54	22,36	21,98	22,38	22,68	22,66	22,49	22,03	21,73
11	21,76	22,72	24,00	22,79	22,41	22,77	23,04	22,85	22,82	22,36	22,01
12	22,05	23,10	24,35	23,24	22,71	23,08	23,43	23,15	23,17	22,65	22,32
13	22,32	23,51	24,70	23,51	23,04	23,43	23,87	23,44	23,50	23,01	22,64
14	22,59	23,91	25,08	23,90	23,41	23,80	24,28	23,56	23,83	23,30	22,86
15	22,93	24,22	25,43	24,19	23,80	24,15	24,62	23,73	24,17	23,59	23,10

Tabelle 6-5: Rohdaten Eintauchtiefe Erlenmeyerkolben USB 2

Höhe [cm]	7,5	8	8,5	9	9,5	10	10,5	11	11,5	12
t [min]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]
0	18,82	18,85	18,65	18,75	18,76	18,72	18,51	18,43	18,42	18,39
1	19,45	19,85	19,14	19,69	19,31	19,56	19,39	19,17	20,23	18,72
2	19,67	20,40	19,44	20,43	19,65	20,01	19,99	19,37	21,23	18,85
3	20,16	20,92	19,69	20,96	20,04	20,57	20,65	19,69	21,99	19,05
4	20,51	21,43	19,95	21,47	20,44	21,03	21,02	20,07	22,15	19,27
5	20,80	21,74	20,30	21,97	20,95	21,36	21,36	20,35	22,17	19,45
6	21,19	21,96	20,74	22,41	21,30	21,78	21,46	20,61	22,25	19,70
7	21,41	22,42	21,17	22,88	21,83	22,14	21,71	20,92	22,29	19,91
8	21,73	22,63	21,59	23,25	22,20	22,52	21,86	21,16	22,38	20,20
9	22,12	22,99	21,98	23,68	22,73	22,90	22,05	21,46	22,54	20,48
10	22,42	23,26	22,36	24,08	23,09	23,30	22,29	21,75	22,81	20,80
11	22,81	23,62	22,74	24,56	23,48	23,65	22,52	22,03	23,15	21,03
12	23,10	24,00	23,17	25,05	23,91	24,18	22,73	22,20	23,46	21,37
13	23,51	24,26	23,66	25,44	24,30	24,47	22,91	22,55	23,76	21,65
14	23,82	24,71	23,92	25,95	24,68	24,81	23,16	22,83	24,15	21,95
15	24,17	24,97	24,20	26,19	25,10	25,13	23,47	23,17	24,51	22,21

Tabelle 6-6: Rohdaten Eintauchtiefe PE-Flasche USB 2

Höhe [cm]	8,5	9	9,5	10	10,5	11	11,5	12
t [min]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]	T <sub>Reaktionsgefäß</sub> [°C]
0	19,45	18,66	18,47	18,43	17,89	17,93	17,85	17,96
1	20,68	19,38	18,93	19,15	19,17	18,92	18,49	18,70
2	21,27	19,84	19,22	19,65	20,24	19,72	18,97	19,14
3	21,85	20,22	19,47	20,11	21,13	20,41	19,47	19,56
4	22,38	20,60	19,88	20,64	21,78	21,09	19,88	20,03
5	22,43	21,07	20,26	21,09	22,36	21,68	20,37	20,36
6	22,98	21,44	20,62	21,53	22,96	22,20	20,87	20,96
7	23,36	21,85	20,90	21,90	23,48	22,57	21,27	21,15
8	23,95	22,24	21,24	22,40	23,88	22,96	21,71	21,58
9	24,39	22,67	21,54	22,75	24,51	23,48	22,06	21,94
10	24,85	23,05	21,83	23,15	24,98	24,89	22,38	22,35
11	25,27	23,45	22,14	23,56	25,08	24,33	22,80	22,77
12	25,70	23,82	22,43	24,02	25,17	24,76	23,23	23,18
13	26,07	24,22	22,87	24,41	25,40	25,15	23,60	23,69
14	26,51	24,72	23,24	24,83	25,51	25,54	23,99	24,23
15	26,85	25,03	23,66	25,15	25,65	25,86	24,29	24,50



## Anhang B – weitere Aufnahmen der SL

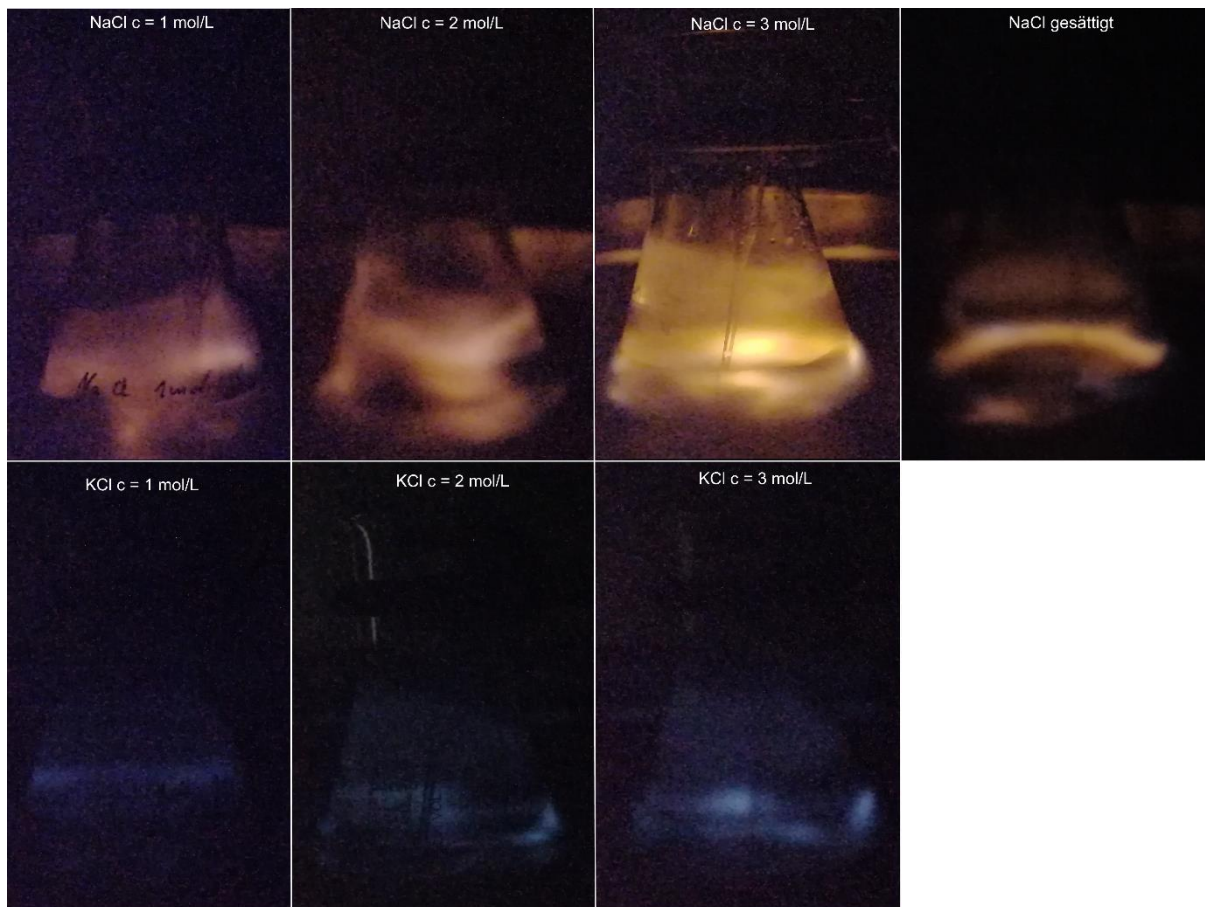


Abbildung 6-1: Sonolumineszenz der Salzlösungen verschiedener Konzentration in USB 2 mit Stickstoff  
oben: Natriumchlorid; unten: Kaliumchlorid (Eigene Aufnahmen)

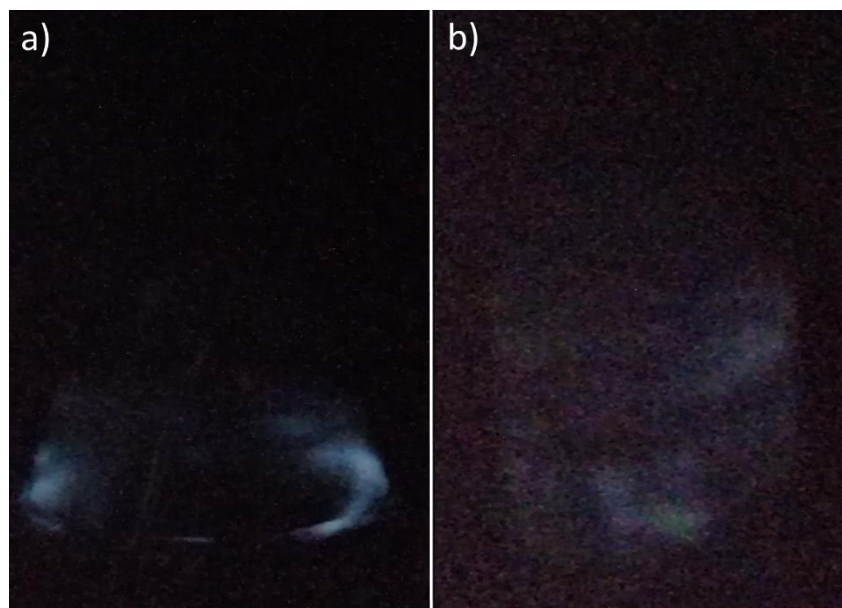


Abbildung 6-2: Sonolumineszenz mit Stickstoff – USB 2 (Eigene Aufnahmen)  
a) konzentrierte Schwefelsäure im Erlenmeyerkolben

b) konzentrierte Schwefelsäure in der PE-Flasche

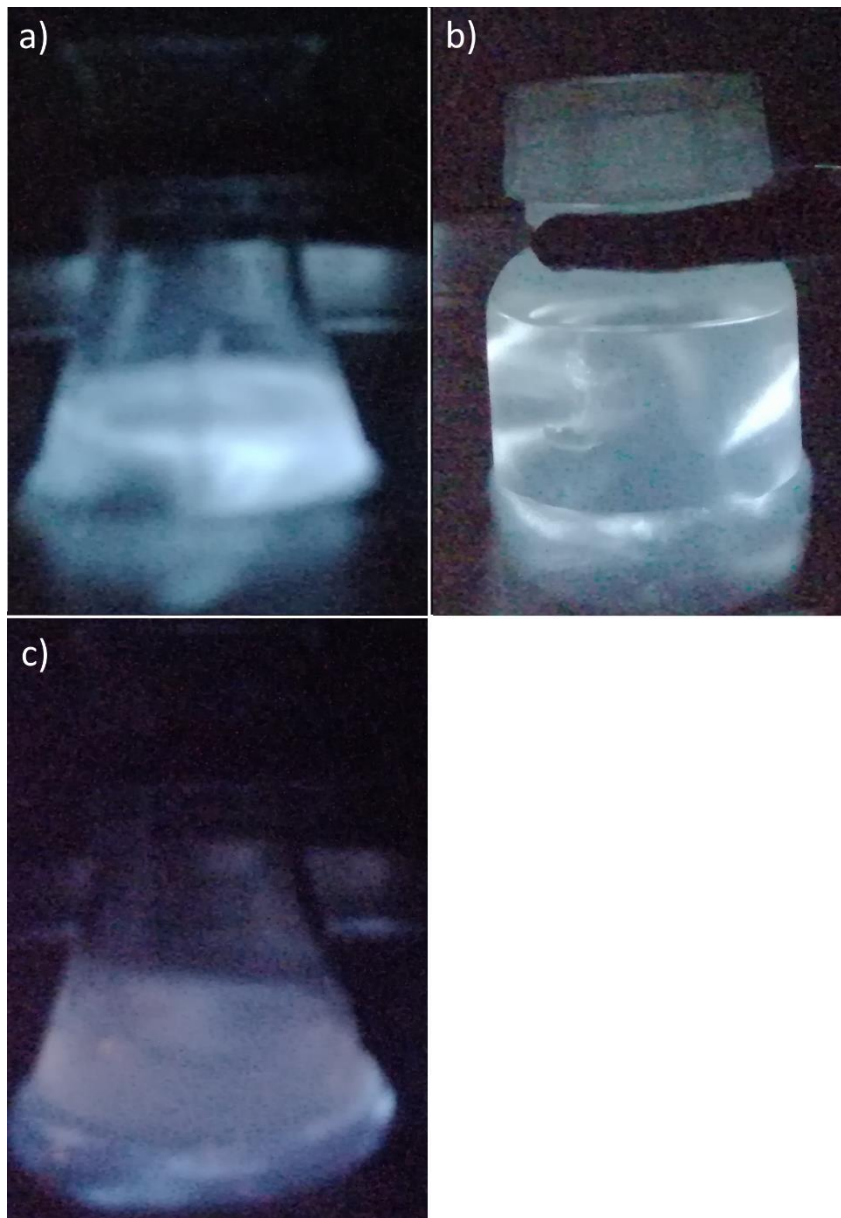


Abbildung 6-3: Sonolumineszenz mit Argon – USB 2 (Eigene Darstellung)

a) konzentrierte Schwefelsäure im Erlenmeyerkolben

b) konzentrierte Schwefelsäure in der PE-Flasche

c) konzentrierte Natronlauge im Erlenmeyerkolben

## Abbildungsverzeichnis

ABBILDUNG 2-1: TRANSVERSALWELLE UND LONGITUDINALWELLE .....	5
ABBILDUNG 2-2: MOMENTAUFNAHMEN EINER TRANSVERSALEN WELLE.....	5
ABBILDUNG 2-3: WELLENFRONTEN EINER KUGELWELLE .....	6
ABBILDUNG 2-4: VEREINFACHTE DARSTELLUNG DES PIEZOELEKTRISCHER EFFEKT.....	8
ABBILDUNG 2-5: ULTRASCHALLREINIGUNGSBAD .....	10
ABBILDUNG 2-6: LONGITUDINALWELLE IN IDEALEN FLÜSSIGKEITEN UND GASEN .....	10
ABBILDUNG 2-7: ZYKLUS EINER KAVITATIONSBLASE .....	12
ABBILDUNG 2-8: ZONEN DER KAVITATIONSBLASE .....	14
ABBILDUNG 2-9: CHEMISCHE REAKTIONEN DURCH AKUSTISCHE KAVITATION .....	15
ABBILDUNG 2-10: KAVITATION IN DER NÄHE EINER OBERFLÄCHE, .....	16
ABBILDUNG 2-11: GEGENÜBERSTELLUNG DER AUF 290 NM NORMALISIERTEN SPEKTREN BESCHALLTER 0,1 M NATRIUMCHLORID-LÖSUNG UNTER SBSL- UND MBSL-BEDINGUNGEN .....	19
ABBILDUNG 2-12: STRUKTURFORMEL KALIUMIODID .....	19
ABBILDUNG 2-13: STRUKTURFORMEL SCHWEFELSÄURE .....	20
ABBILDUNG 2-14: STRUKTURFORMEL NATRIUMHYDROXID .....	21
ABBILDUNG 2-15: STRUKTURFORMEL GLYCERIN .....	21
ABBILDUNG 2-16: STRUKTURFORMEL NATRIUMCHLORID.....	22
ABBILDUNG 2-17: STRUKTURFORMEL KALIUMCHLORID .....	22
ABBILDUNG 3-1: VERSUCHSAUFBAU – PERFORATION VON ALUMINIUMFOLIE .....	25
ABBILDUNG 3-2: VERSUCHSAUFBAU – KALORIMETRISCHE MESSUNG DES ENERGIEEINTRAGS .....	25
ABBILDUNG 3-3: VERDUNKLUNG DES ABZUGS MIT ALUMINIUMFOLIE .....	28
ABBILDUNG 3-4: VERSUCHSAUFBAU – SONOLUMINESZENZ .....	28
ABBILDUNG 4-1: BESCHALLTE ALUMINIUMFOLIENSTÜCKE .....	30
ABBILDUNG 4-2: ANGELEGTES RASTER ULTRASCHALLBÄDER .....	31
ABBILDUNG 4-3: SKIZZIERTER WELLENAUSBREITUNG IN DEN ULTRASCHALLBÄDERN .....	31
ABBILDUNG 4-4: TEMPERATURÄNDERUNG IN USB 1.....	32
ABBILDUNG 4-5: TEMPERATURÄNDERUNG IN USB 2.....	33
ABBILDUNG 4-6: USB 1 – ULTRASCHALLLEISTUNG BEI VARIIERENDER EINTAUCHTIEFE .....	34
ABBILDUNG 4-7: USB 2 – ULTRASCHALLLEISTUNG BEI VARIIERENDER EINTAUCHTIEFE .....	34

ABBILDUNG 4-8: AUFNAHMEN DER EMULSIONEN .....	36
ABBILDUNG 4-9: STÄRKE-WASSER-GEMISCH NACH 45 MINUTEN BESCHALLUNG .....	37
ABBILDUNG 4-10: KALIUMIODIDLÖSUNGEN NACH DER BESCHALLUNG .....	38
ABBILDUNG 4-11: KALIUMIODIDLÖSUNGEN NACH ZUGABE DER STÄRKE-LÖSUNG .....	38
ABBILDUNG 4-12: SONOLUMINESZENZ MIT STICKSTOFF – USB 1 .....	40
ABBILDUNG 4-13: SONOLUMINESZENZ MIT ARGON – USB 1 .....	41
ABBILDUNG 4-14: SONOLUMINESZENZ – VERGLEICH STICKSTOFF UND ARGON .....	42
ABBILDUNG 4-15: SONOLUMINESZENZ DER SALZLÖSUNGEN .....	43
ABBILDUNG 6-1: SONOLUMINESZENZ DER SALZLÖSUNGEN .....	51
ABBILDUNG 6-2: SONOLUMINESZENZ MIT STICKSTOFF – USB 2 .....	51
ABBILDUNG 6-3: SONOLUMINESZENZ MIT ARGON – USB 2 .....	52

## Tabellenverzeichnis

TABELLE 3-1: VERWENDETE ULTRASCHALLBÄDER.....	23
TABELLE 3-2: VERWENDETE GERÄTE .....	23
TABELLE 3-3: VERWENDETE MATERIALIEN .....	24
TABELLE 4-1: LEISTUNG DER ULTRASCHALLBÄDER AN VERSCHIEDENEN POSITIONEN .....	33
TABELLE 4-2: ÜBERSICHT SONOLUMINESZENZ .....	39
TABELLE 6-1: ROHDATEN POSITIONSBESTIMMUNG USB 1 .....	48
TABELLE 6-2: ROHDATEN POSITIONSBESTIMMUNG USB 2 .....	48
TABELLE 6-3: ROHDATEN EINTAUCHTIEFE ERLLENMEYERKOLBEN USB 1 .....	49
TABELLE 6-4: ROHDATEN EINTAUCHTIEFE PE-FLASCHE USB 1 .....	49
TABELLE 6-5: ROHDATEN EINTAUCHTIEFE ERLLENMEYERKOLBEN USB 2 .....	50
TABELLE 6-6: ROHDATEN EINTAUCHTIEFE PE-FLASCHE USB 2 .....	50

## Literaturverzeichnis

- [1] J. Lewiner, „Paul Langevin and the Birth of Ultrasonics,“ *Japanese Journal of Applied Physics*, Bd. 30, Nr. S1, p. 5, 01 Januar 1991.
- [2] M. Hofer, *Sono Grundkurs : ein Arbeitsbuch für den Einstieg*, 5. deutsche Auflage Hrsg., Stuttgart: Georg Thieme Verlag, 2005.
- [3] B. Abismaïl, J. P. Canselier, A. M. Wilhelm, H. Delmas und C. Gourdon, „Emulsification by ultrasound: drop size distribution and stability,“ *Ultrasonics Sonochemistry*, Bd. 6, Nr. 1, pp. 75-83, 1 März 1999.
- [4] B. G. Pollet und M. Ashokkumar, *Introduction to Ultrasound, Sonochemistry and Sonoelectrochemistry*, Cham: Springer International Publishing, 2019.
- [5] J.-M. Lévêque, G. Cravotto, F. Delattre und P. Cintas, *Organic Sonochemistry: Challenges and Perspectives for the 21st Century*, Cham: Springer International Publishing, 2018.
- [6] H. Frenzel und H. Schultes, „Lumineszenz im ultraschallbeschickten Wasser,“ *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, Bd. 27B, Nr. 1, pp. 421-424, 01 Oktober 1934.
- [7] D. F. Gaitan und L. A. Crum, „Sonoluminescence from single bubbles,“ *The Journal of the Acoustical Society of America*, Bd. 87, Nr. S1, pp. S141-S141, Mai 1990.
- [8] F. R. Young, *Sonoluminescence*, Boca Raton: CRC Press, 2005.
- [9] E. Hering, R. Martin und M. Stohrer, *Physik für Ingenieure*, Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2016.
- [10] H. Stöcker, *Taschenbuch der Physik: Formeln, Tabellen, Übersichten*, Frankfurt am Main: Wissenschaftlicher Verlag Harri Deutsch, 2005.

- [11] D. Hoche, J. Küblbeck, L. Meyer, R. Rainer und G.-D. Schmidt, Physik: gymnasiale Oberstufe, Berlin; Mannheim: Duden Schulbuchverlag, 2011.
- [12] J. A. Gallego-Juárez und K. F. Graff, „1 -Introduction to power ultrasonics,“ in *Power Ultrasonics*, J. A. Gallego-Juárez und K. F. Graff, Hrsg., Oxford, Woodhead Publishing, 2015, pp. 1-6.
- [13] A. Antonio, Piezoelectric Transducers and applications, Berlin [u.a.]: Springer, 2004.
- [14] G. Sorge, Faszination Ultraschall, Wiesbaden: Springer Vieweg, 2002.
- [15] R. Telle, „Sintern,“ in *Keramik*, H. Salmang, H. Scholze und R. Telle, Hrsg., Berlin, Heidelberg, Springer Berlin Heidelberg, 2007, pp. 313-380.
- [16] T. J. Mason, Sonochemistry, Oxford: Oxford Univ. Press, 1999.
- [17] T. J. Mason und J. P. Lorimer, Applied Sonochemistry: the uses of power ultrasound in chemistry and processing, Weinheim: Wiley-VCH, 2002.
- [18] T. J. Mason und D. Peters, Practical sonochemistry: uses and applications of ultrasound, Chichester: Horwood Publishing Ltd, 2004.
- [19] S. C. Ameta, R. Ameta und G. Ameta, Sonochemistry: An Emerging Green Technology, Boca Raton: Apple Academic Press, 2018.
- [20] M. A. Beckett und I. Hua, „Impact of Ultrasonic Frequency on Aqueous Sonoluminescence and Sonochemistry,“ *The Journal of Physical Chemistry A*, Bd. 105, Nr. 15, pp. 3796-3802, 27 März 2001.
- [21] R. Pflieger, S. I. Nikitenko, C. Cairós und R. Mettin, Characterization of Cavitation Bubbles and Sonoluminescence, Cham: Springer International Publishing, 2019.
- [22] W. Lauterborn und A. Vogel, „Modern Optical Techniques in Fluid Mechanics,“ *Annual Review of Fluid Mechanics*, Bd. 16, Nr. 1, pp. 223-244, 1 Januar 1984.

- [23] L. A. Chambers, „The Emission of Visible Light from Cavitated Liquids,“ *J. Chem. Phys.*, Nr. 5, pp. 290-292, 1 Mai 1937.
- [24] E. W. Floßdorf, L. A. Chambers und W. M. Malisoff, „Sonic Activation in Chemical Systems: Oxidations at Audible Frequencies,“ *Journal of the American Chemical Society*, Bd. 58, Nr. 7, pp. 1069-1076, 1 Juli 1936.
- [25] N. García, A. P. Levanyuk und V. V. Osipov, „Nature of sonoluminescence: Noble gas radiation excited by hot electrons in cold water,“ *Physical Review E*, Bd. 62, Nr. 2, pp. 2168-2176, 1 August 2000.
- [26] G. Vazquez, C. Camara, S. Putterman und K. Weninger, „Sonoluminescence: nature’s smallest blackbody,“ *Optics Letters*, Bd. 26, Nr. 5, pp. 575-577, 1 Mai 2001.
- [27] K. Yasui, „Mechanism of single-bubble sonoluminescence,“ *Physical Review E*, Bd. 60, Nr. 2, pp. 1754-1758, 1 August 1999.
- [28] P. J. Bruggeman, M. J. Kuahnwe, B. R. Locke, J. G. E. Gardeniers, W. G. Graham, D. B. Graves, R. C. H. M. Hofman-Caris, D. Maric, J. P. Reid, E. Ceriani, D. F. Rivas, J. E. Foster, S. C. Garrick, Y. Gorbanec, S. Hamaguchi, F. Iza, H. Jablonowski, E. Klimova, J. Kolb, F. Krcma, P. Lukes, Z. Machala, I. Marinov, D. Mariotti, S. M. Thagard, D. Minakata, E. C. Neyts, J. Pawlat, Z. L. Petrovic, R. Pflieger, S. Reuter, D. C. Schram, S. Schröter, M. Shiraiwa, B. Tarabová, P. A. Tsai, J. R. R. Verlet, T. von Woedtke, K. R. Wilson, K. Yasui und G. Zvereva, „Plasma–liquid interactions: a review and roadmap,“ *Plasma Sources Science and Technology*, Bd. 25, Nr. 5, p. 053002, September 2016.
- [29] D. J. Flannigan und K. S. Suslick, „Plasma formation and temperature measurement during single-bubble cavitation,“ *Nature*, Bd. 434, Nr. 7029, pp. 52-55, März 2005.
- [30] R. Pflieger, H.-P. Brau und S. I. Nikitenko, „Sonoluminescence from OH(C2Σ+) and OH(A2Σ+) Radicals in Water: Evidence for Plasma Formation during



- Multibubble Cavitation," *Chemistry - A European Journal*, Bd. 16, Nr. 39, pp. 11801-11803, 18 Oktober 2010.
- [31] J. R. Blake und T. J. Matula, „Inertial cavitation and single-bubble sonoluminescence," *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A.*, Bd. 357, Nr. 1751, pp. 225-249, 15 Februar 1999.
- [32] „GESTIS-Stoffdatenbank," Deutsche Gesetzliche Unfallversicherung e.V., [Online]. Available: <https://gestis.dguv.de/>. [Zugriff am 26 11 2021].
- [33] C. E. Mortimer und U. Müller, *Chemie*, Stuttgart: Thieme, 2010.
- [34] RÖMPP-Redaktion und E. Schwab, „Eintrag zu Glycerol in RÖMPP Online," Thieme Gruppe, 20 Februar 2019. [Online]. Available: <https://roempp.thieme.de/lexicon/RD-07-01466>. [Zugriff am 15 Januar 2022].
- [35] F. Siewek, „Eintrag zu Natriumchlorid in RÖMPP Online," Thieme Gruppe, 1 November 2003. [Online]. Available: <https://roempp.thieme.de/lexicon/RD-14-00370>. [Zugriff am 20 Januar 2022].
- [36] P. Günter, E. Heim, A. Schmitt und W. Zeil, „Versuche über Sonolumineszenz," *Zeitschrift für Naturforschung A*, Bd. 12, Nr. 6, pp. 521-522, 1 Juni 1957.
- [37] H. Sitzmann, „Eintrag zu Kaliumchlorid in RÖMPP Online," Thieme Gruppe, 7 August 2006. [Online]. Available: <https://roempp.thieme.de/lexicon/RD-11-00174>. [Zugriff am 20 Januar 2022].
- [38] „Sweep-Technologie - BANDELIN," BANDELIN electronic GmbH & Co. KG, [Online]. Available: <https://bandelin.com/ultraschall/sweep-technologie/>. [Zugriff am 13 Dezember 2021].
- [39] A. Lühken und H. J. Bader, „Von der Lumineszenz der Schwefelsäure bis zur Oxidation von Iodid Einfache Versuche im Ultraschallbad," *CHEMKON*, Bd. 6, Nr. 4, pp. 185-190, 1999.

- [40] D. Karstädt, K.-P. Möllmann und M. Vollmer, „Eier im Wellensalat: Experimente mit der Haushaltsmikrowelle,“ *Physik in unserer Zeit*, Bd. 35, Nr. 2, pp. 90-96, 2004.
- [41] G. J. Lauth und J. Kowalczyk, Einführung in die Physik und Chemie der Grenzflächen und Kolloide, Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2016.
- [42] F. Zhu, „Impact of ultrasound on structure, physicochemical properties, modifications, and applications of starch,“ *Trends in Food Science & Technology*, Bd. 43, Nr. 1, pp. 1-17, 1 Mai 2015.
- [43] C. A. Wakeford, R. Blackburn und P. D. Lickiss, „Effect of ionic strength on the acoustic generation of nitrite, nitrate and hydrogen peroxide,“ *Ultrasonics Sonochemistry*, Bd. 6, Nr. 3, pp. 141-148, 1 Juni 1999.
- [44] M. Wall, M. Ashokkumar, R. Tronson und F. Grieser, „Multibubble sonoluminescence in aqueous salt solutions,“ *Ultrasonics Sonochemistry*, Bd. 6, Nr. 1, pp. 7-14, 1 März 1999.
- [45] T. J. Mason, „Ultrasound in synthetic organic chemistry,“ *Chemical Society Reviews*, Bd. 26, Nr. 6, pp. 443-451, 1 Januar 1997.
- [46] M. J. Dickens und J.-L. Luche, „Further evidence for the effect of ultrasonic waves on electron transfert process - the case of the Kornblum-Russell reaction,“ *Tetrahedron Letters*, pp. 4709-4712, 1 Januar 1991.