

# Samenvatting

---

Dit proefschrift behandelt het transport van warmte in enkelvoudige stoffen in de buurt van het vloeistof-damp kritiek punt in een zwaartekracht-vrije omgeving. In het bijzonder wordt een experiment beschreven dat heeft plaatsgevonden in de laag-zwaartekracht omgeving van een ruimteveer in een baan om de aarde.

De studie naar kritieke verschijnselen in vloeistoffen wordt ernstig bemoeilijkt door de dynamica van enkelvoudige stoffen in de buurt van het vloeistof-damp kritiek punt. In het zwaartekrachtveld van de aarde leidt de divergentie van verschillende grootheden tot een hoge mate van dichtheidsstratificatie en het versneld optreden van convectie. Samen met het verschijnsel van kritieke opalescentie is daardoor het verrichten van preciese metingen aan thermische grootheden dichtbij het kritieke punt buitengewoon moeilijk en is overeenstemming tussen op verschillende manieren gemeten kritieke waarden moeilijk te bereiken. In een laag-zwaartekracht omgeving wordt een belangrijk deel van deze problemen omzeild. In het beschreven ruimte-experiment is een meettechniek gebruikt, overeenkomstig met die geïntroduceerd door Becker en Grigull, waarbij de respons van een homogene vloeistof op een vlakke thermische verstoring wordt gevolgd met behulp van interferometrie en temperatuur metingen. Vanwege zijn gunstige kritieke waarden voor de druk en temperatuur is SF<sub>6</sub> als meetstof gebruikt.

Zoals Onuki als eerste heeft benadrukt moet bij de respons van een kritieke vloeistof op verwarmen rekening gehouden worden met wat bekend is geraakt onder de naam 'piston effect'. Het piston effect is fundamenteel gezien geen mechanisme van warmte transport; het is een temperatuur verandering die samenhangt met isentrope compressie van de vloeistof. In hoofdstuk 2 is de respons van het temperatuur-dichtheids veld op de toegepaste manier van verwarmen in een zwaartekracht-vrije omgeving nauwkeurig doorgerekend. Deze berekeningen bevestigen de diepgaande invloed van het piston effect. Met name bevestigen deze de conclusie van Ferrell en Hao dat, door het piston effect, de thermische eigenschappen van alle materialen waarmee de kritieke vloeistof in zijn vat in aanraking komt een belangrijke rol spelen in het gedrag van de kritieke vloeistof. De berekende kwantitatieve beschrijving van het piston effect maakt het mogelijk om in een willekeurige geometrie het piston effect te voorspellen, waarmee de bijdrage van dit effect kan worden geëlimineerd uit metingen van de temperatuursverandering voordat deze worden geïnterpreteerd in termen van een simpele warmtegeleidingsvergelijking. Dit is nodig omdat, zoals in dit onderzoek, uit dit soort metingen vaak de thermische diffusiviteit wordt bepaald. Een belangrijk nevenresultaat van de berekeningen in dit hoofdstuk is het voorstel voor een nieuwe, intrinsiek nauwkeurige methode om de isochore soortelijke warmte te bepalen, welke lastig te meten is bij vloeistoffen in het algemeen en in de buurt van het kritiek punt in het bijzonder. Deze methode is gebaseerd op simultane meting van temperatuur- en dichtheidsveranderingen.

Het ruimte-experiment is uitgevoerd met een zelf-ontwikkeld drukvat dat werd geplaatst in ESA's 'Critical Point Facility' (CPF) die, gedurende de IML-2 missie, op zijn beurt onderdeel was van 'Spacelab' in NASA's 'Spaceshuttle Columbia'. In hoofdstuk 3 is de experimentele opstelling beschreven. De complete opstelling biedt behalve het beschreven experiment in principe ook de mogelijkheid tot het doen van lichtverstrooiings-experimenten. Helaas bleek de functionaliteit van dit deel ontoereikend voor een gedegen onderzoek waardoor de lichtverstrooiings-resultaten niet beschreven zijn in dit proefschrift. In een project als deze is door zijn unieke karakter een gedeeltelijke uitval niet onverwacht en dit project toont dan ook eenste meer de beperkingen aan van het

doen van een experiment in een ruimtelaboratorium. Dit proefschrift kan daarom naast een wetenschappelijke verhandeling ook gezien worden als een verslag van een bij de ruimtevaart betrokken onderzoeksproject.

Dichtheidsveranderingen in de vloeistof zijn bekeken met behulp van interferometrie vanwege zijn, in essentie, niet verstorende karakter. In de toegepaste Twyman-Green interferometrie resulteert de recombinitie van twee delen van een laserlichtbundel in een interferogram. De dichtheidsveranderingen kunnen worden gevolgd doordat zij het optische pad beïnvloeden van het deel van de laserlichtbundel wat door de vloeistof gaat en daarmee het interferentiepatroon in het interferogram. De moeilijkheid hierbij is dat door dichtheidsgradiënten lichtstralen worden afgebogen en een niet-triviale relatie ontstaat tussen een lichtstraal en zijn optische pad. Belangrijk is hier, voor een relatief eenvoudige analyse van het interferogram, een gerichte focusering van de optiek. Helaas was de optiek in de CPF, waar meerdere experimenten gebruik van maakten, niet in een voor ons optimale configuratie waardoor de noodzaak ontstond een alternatieve procedure te ontwikkelen voor de gewenste bepaling van de thermische diffusiviteit. Deze procedure levert kennis van de dichtheidsverdeling op van in feite een dimensie minder dan de beoogde procedure, waardoor het resultaat minder nauwkeurig is dan gehoopt. De conversie van een interferogram naar een dichtheidsverdeling en de alternatieve procedure zijn beschreven in hoofdstuk 4.

De toegepaste interferometrie is gebaseerd op de relatie tussen de dichtheid en de brekingsindex van de vloeistof. Het is algemeen geaccepteerd dat deze relatie het best beschreven wordt door de Lorentz-Lorenz relatie. Deze relatie is echter een benadering en het was zeer de vraag of deze benadering voor ons doeleinde voldoende nauwkeurig is. Om deze reden hebben wij metingen aan de dichtheid en de brekingsindex rondom de kritieke dichtheid van SF<sub>6</sub> verricht, gepresenteerd in hoofdstuk 5, met behulp van een opstelling in ons laboratorium welke in wezen dezelfde is als die gebruikt voor het ruimte-experiment. Deze metingen laten zien dat, voor SF<sub>6</sub>, de Lorentz-Lorenz relatie niet altijd toereikend is wanneer, zoals in ons geval, de afgeleide van deze relatie een belangrijke rol speelt. Van de hiermee bepaalde kritieke waarden van de dichtheid en de brekingsindex blijkt de laatste significant af te wijken van de tot nu toe aangenomen waarde.

De resultaten van het ruimte-experiment, beschreven in hoofdstuk 6, bevestigen ons beeld van het piston effect zowel kwalitatief als kwantitatief. Daarnaast blijkt dat de thermische eigenschappen van alle materialen waarmee de kritieke vloeistof in zijn vat in aanraking komt te beschrijven is met een enkele set van fenomenologische parameters, waarmee zelfs in een vat van complexe geometrie het piston effect gescheiden kan worden van echte warmtetransport effecten. Hiermee is het mogelijk gebleken de thermische diffusiviteit te bepalen tot 5 mK van het kritieke punt. De metingen dichtbij het kritieke punt dan 10 mK verschillen significant van de enige andere metingen zo dichtbij van Wilkinson e.a., ook een ruimte-experiment. Een mogelijke verklaring ligt in het verschil in het proces wat is bestudeerd; onze resultaten zijn afgeleid van de vroege, snelle en lokale respons op een thermische verstoring terwijl Wilkinson e.a. het langzame en niet-lokale gedrag in het late stadium van thermische relaxatie hebben bekeken.

Tenslotte heeft het ruimte-experiment aangetoond dat de nieuw ontwikkelde methode om de isochore soortelijke warmte te bepalen behalve complementair ook noodzakelijk is voor een nauwkeurige bepaling in het kritieke gebied. Hoewel het ruimte-experiment niet geoptimaliseerd was voor deze methode komen de resultaten goed overeen met een bestaande toestandsvergelijking van Sengers e.a. en resultaten van het ruimte-experiment van Straub e.a., maar verschillen van metingen op aarde. Met verbeteringen zoals geadviseerd in dit proefschrift in mogelijke vervolgonderzoek is de nieuwe methode zeer geschikt om de kwaliteit van bestaande toestandsvergelijkingen voor het kritieke gebied vast te stellen.