

## MASTER

### De optische karakterisering van nevels

Snoeijs, C.A.M.

*Award date:*  
1994

[Link to publication](#)

#### **Disclaimer**

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

#### **General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

#### **Take down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

384 202

Technische Universiteit  Eindhoven

University of Technology  
Address: Den Dolech 2  
P.O.Box 513  
5600 MB Eindhoven The Netherlands  
Telephone (040) 47 91 11  
Telex 51163

*Faculteit Technische Natuurkunde  
Vakgroep transportfysica*

Titel: De optische karakterisering  
van nevels

Auteur: Kris Snoeijs

Verslagnummer: R-1170-A

Datum: juni 1992

Werkeenheid: Gasdynamica / Aeroakoestiek (NT)

Begeleider(s): dr. ir. M.E.H. van Dongen

# Samenvatting

Een nevel wordt geproduceerd door een gas-damp mengsel in een expansiebuis te expanderen. Door chroom-oxide deeltjes toe te voegen aan het mengsel kan een uiterst monodisperse nevel worden verkregen. Vier optische methoden waarmee tijdopgelost enkele eigenschappen van deze nevel, zoals de gemiddelde druppel-straal en de druppeldichtheid, kunnen worden bepaald, zijn getest.

Uiterst nauwkeurige metingen zijn verricht met een opstelling die het over  $90^\circ$  verstrooide licht detecteert. Met deze opstelling zijn druppelstralen in het bereik van 0,2 tot 4  $\mu\text{m}$  met een nauwkeurigheid van één promille bepaald.

Twee licht-extinctie methoden, de  $3-\lambda$  methode en de multi- $\lambda$  methode zijn met elkaar vergeleken. De resultaten voor de gemiddelde straal en de druppeldichtheid van deze methoden komen goed overeen. Tevens is met de multi- $\lambda$  opstelling de vorm van de druppelgrootte-verdeling onderzocht. De nevel wordt uitstekend beschreven door de ZOL-verdeling.

Met een opstelling die voorwaarts verstrooid licht detecteert zijn bevredigende resultaten behaald. Druppelgroeicurves zijn bepaald. Een aanbeveling tot verbetering van de opstelling door ook het achterwaarts verstrooide licht te detecteren wordt gedaan.

# Inhoudsopgave

1	Inleiding	1
2	Lichtverstrooiing aan kleine deeltjes	3
2.1	Inleiding	3
2.2	Algemene lichtverstrooiing	4
2.2.1	De relatie tussen verstrooiing en extinctie	5
2.3	De Mie-theorie, een kort overzicht	6
2.4	Verstrooiing	8
2.5	Extinctie	10
2.6	Absorptie	11
2.7	Tweevoudige verstrooiing	12
2.7.1	Numerieke resultaten	14
3	De productie van druppels	17
3.1	Het experiment	17
3.2	Expansiegolven	18
3.3	Condensatiekernen	20
3.4	Verzadigingsgraad en het begin van condensatie	22
3.5	De verdeling van druppels	23
3.5.1	De invloed van druppelverdelingen op strooilichtpatronen	24
4	Metingen aan lichtverstrooiing	26
4.1	90° verstrooiing	26
4.1.1	Inleiding	26
4.1.2	De opstelling	26
4.1.3	Een experiment	28
4.1.4	Resultaten	30
4.1.5	Aanbevelingen	31
4.2	Voorwaartse verstrooiing	31
4.2.1	Inleiding	31
4.2.2	De opstelling	32
4.2.3	Twee experimenten en een poging tot ijking	34
4.2.4	Resultaten en discussie	36

4.3	Achterwaartse verstrooiing . . . . .	37
5	Metingen aan lichtextinctie	39
5.1	Introduction . . . . .	39
5.2	Three-wavelengths method and multi-wavelengths method. . . . .	42
5.3	Description of the experimental set-up . . . . .	45
5.4	Experimental results . . . . .	46
5.5	Conclusion . . . . .	52
6	Conclusies en aanbevelingen	55
A	De Mie-theorie gedetailleerd	59

# Hoofdstuk 1

## Inleiding

Bij de vakgroep Transportfysica<sup>1</sup> wordt onderzoek verricht aan het condensatie en nucleatie gedrag van vloeistoffen, in het bijzonder aan dat van alkanen. Hiertoe wordt een gas-damp mengsel in een schok-buis (Smolders 1992) of een expansie-cel (Morgenstern 1990) adiabatisch geëxpandeerd. De druk waarbij dit gebeurt varieert tussen 1 en 100 bar. De damp raakt als gevolg van de expansie oververzadigd en druppels ( $r = \mathcal{O}(1 \mu\text{m})$ ) ontstaan. Deze druppels zullen groeien in de tijd. Een van de experimentele doelstellingen is om tijdsopgeloste informatie te verkrijgen niet alleen over de druppelstraal, maar zo mogelijk ook over de breedte van de druppelstraalverdeling en de druppelconcentratie.

Om de nevel die nu ontstaat te karakteriseren zijn tal van optische meettechnieken beschikbaar (Tayali en Bates 1990). Deze technieken variëren van het fotograferen van de druppels, het maken van hologrammen, het toepassen van laser-Doppler technieken tot het meten van diffractie patronen.

In dit verslag zullen vier meetmethoden met elkaar worden vergeleken. Deze methoden laten zich onderverdelen in twee groepen, extinctie-methoden en strooilicht-methoden. De extinctie-methoden zijn gebaseerd op de intensiteitsafname die een lichtbundel vertoont wanneer die een nevel passeert. Bij strooilicht-methoden wordt het vermogen gemeten van het licht dat in een zekere ruimtehoek door de druppels wordt verstrooid.

De eerste methode die we zullen bespreken is de  $90^\circ$  verstrooiing. Het licht dat over een hoek van  $90^\circ$  wordt verstrooid, wordt door deze methode gemeten. De intensiteit van het licht dat in een kleine ruimtehoek rond een strooihoek van  $90^\circ$  ten opzichte van de bundelas wordt verstrooid, blijkt als functie van de straal hevig te oscilleren in het gebied waar afmetingen van de druppels van dezelfde orde zijn als de golflengte van het licht. Deze oscillaties worden door de zogenaamde Mie-theorie voorspeld. Door de maxima en minima van de oscillaties te relateren aan een straal is het mogelijk de druppelstraal als functie van de tijd te bepalen.

---

<sup>1</sup>aan de faculteit Technische Natuurkunde van de Technische Universiteit Eindhoven

De tweede methode is eveneens een strooilicht-methode (Lahaye 1990). We meten dan simultaan het licht dat verstrooid wordt over twee kleine hoeken ( $6,7^\circ$  en  $3,2^\circ$ ). Uit de verhouding van beide strooilicht signalen is informatie te halen over de afmetingen van de druppels.

De derde methode is de zogenaamde  $3-\lambda$  methode (Smolders 1992). Men laat drie lichtbundels van verschillende golflengtes de nevel doorlopen. De intensiteits-veranderingen van de bundels worden simultaan gemeten. Met deze methode is het mogelijk informatie over de druppelstraal, de druppeldichtheid en de spreiding in druppelstraal te verkrijgen.

De laatste methode wordt de multi- $\lambda$  methode genoemd (Braun 1991). Een bundel "wit"-licht passeert de nevel. Met behulp van een spectroscop en een CCD-array wordt voor zo'n 2000 golflengtes in het interval van 400 tot 900 nm de zogenaamde extinctie-coëfficiënt bepaald. Uit dit "extinctie-spectrum", wordt met behulp van numerieke optimalisatie technieken, informatie gehaald over de samenstelling van de nevel. In tegenstelling tot de  $3-\lambda$  methode heeft de multi- $\lambda$  methode een lage tijdsresolutie (bemonsteringsfrequentie =  $\pm 1000$  Hz).

## Een overzicht van dit verslag

In hoofdstuk 1 wordt de theorie van lichtverstrooiing aan kleine deeltjes besproken, en wordt er aandacht besteedt aan de invloed van meervoudige verstrooiing. Hoofdstuk 2 behandelt de manier waarop de druppels geproduceerd worden. Hoofdstuk 3 beschrijft de twee strooilicht-methoden en geeft experimentele resultaten van deze methoden. Tevens worden beide methoden bediscussieerd. Hoofdstuk 4 gaat in op de twee extinctie-methoden. Een deel van dit hoofdstuk is in artikelvorm en kan als losstaand geheel gelezen worden. Hoofdstuk 5 bevat de conclusies.

## Hoofdstuk 2

# Lichtverstrooiing aan kleine deeltjes

*Dit hoofdstuk geeft een algemene inleiding in de theorie die de lichtverstrooiing aan kleine deeltjes beschrijft. Eerst worden een aantal algemene principes behandeld. Omdat de deeltjes in dit werk ongeveer dezelfde afmeting hebben als de golflengte van het licht dat aan hen verstrooid wordt, wordt lichtverstrooiing aan deze deeltjes beschreven door de zogenaamde Mie-theorie. Een kort overzicht van de Mie-theorie zal worden gegeven en resultaten van deze theorie die van belang zijn voor de rest van dit werk zullen worden gepresenteerd. Verder zal er aandacht worden gegeven aan meervoudige verstrooiing. Een afschatting van de invloed van twee-voudig verstrooid licht in een algemene strooilichtdetector zal worden gegeven.*

### 2.1 Inleiding

Het is niet verstandig om een lichtverstrooiingsprobleem op te lossen zonder eerst te kijken naar de grootte en vorm van de verstrooiende deeltjes. In bepaalde situaties kunnen nuttige vereenvoudigingen gemaakt worden. Als de deeltjes groot zijn ten opzichte van de golflengte van het gebruikte licht, kan men volstaan met het toepassen van de geometrische optika. Wanneer de deeltjes veel kleiner zijn dan het gebruikte licht, is de zogenaamde Rayleigh-benadering toepasbaar. Echter wanneer de deeltjes van dezelfde orde van grootte zijn als de golflengte van het licht ( $r = \mathcal{O}(\lambda)$ ), dan moeten de Maxwell-vergelijkingen exact worden opgelost. Voor bolvormige deeltjes is dit al in het begin van deze eeuw gebeurd. De oplossing staat bekend als de “Mie-theorie”. Er bestaan enkele standaardwerken die de Mie-theorie uiterst adequaat beschrijven. Verwezen wordt naar (van de Hulst 1981), (Kerker 1969) en (Bohren en Huffman 1983).

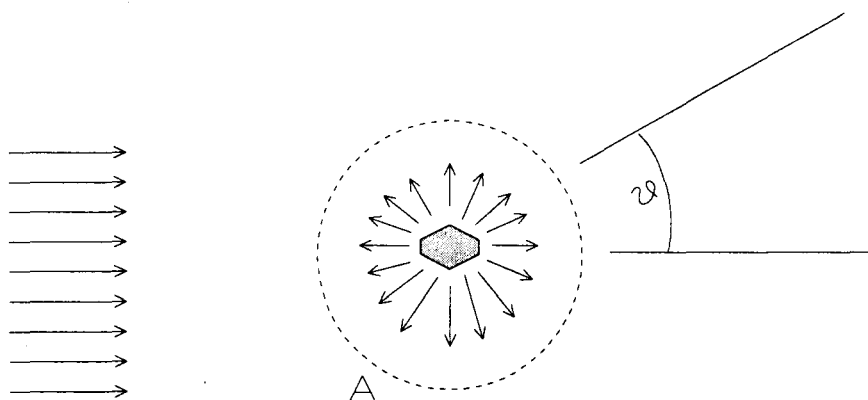


## 2.2 Algemene lichtverstrooiing

Het licht dat door een willekeurig deeltje wordt verstrooid, kan in het verre veld beschreven worden met de irradiantie<sup>1</sup> ( $I$ ), de polarisatie en de fase. De dimensie van irradiantie is energie per oppervlak per eenheid van tijd. Wanneer men aanneemt dat de lichtbron slechts één golflengte ( $\lambda$ ) bevat, en dat deze zich op een oneindige afstand van het verstrooiende deeltje bevindt, dan kan men schrijven voor de verstrooide intensiteit,

$$I = I_0 \left( \frac{\lambda}{2\pi r} \right)^2 |S|^2 \quad (2.1)$$

Hierin is  $I_0$  de intensiteit van de ongestoorde golf,  $r$  de afstand tussen de detector en het



Figuur 2.1: Lichtverstrooiing aan een willekeurig deeltje

verstrooiende deeltje en  $S$  de zogenaamde complexe amplitude functie (Zie figuur 2.1).  $S$  is een dimensieloze functie die afhangt van de hoek van observatie, de grootte en vorm van het deeltje etc.  $S$  bevat zowel de amplitude als de fase informatie van de verstrooide golf. Definieer  $C_{sca}$  als,

$$C_{sca} = \left( \frac{\lambda}{2\pi} \right)^2 \int_A |S|^2 d\omega. \quad (2.2)$$

Hierin is  $d\omega$  een infinitesimaal ruimtehoekje, dat geïntegreerd moet worden over de hypothetische bol  $A$ .  $C_{sca}$  kan geïnterpreteerd worden als het oppervlak dat net zoveel vermogen onderschept van de ongestoorde golf als het totale vermogen dat in de verstrooide golf zit. Het verstrooide vermogen wordt onttrokken aan de oorspronkelijke lichtbundel. De verzwakking van de bundel kan ook uitgedrukt worden in termen van een effectief oppervlak:

<sup>1</sup>Vaak wordt intensiteit gebruikt als irradiantie wordt bedoeld, zo ook in dit rapport. Van nu af zal intensiteit worden gebruikt terwijl eigenlijk irradiantie bedoeld wordt.

$C_{ext}$ . Wanneer er geen energie wordt geabsorbeerd binnen  $A$  (Het medium waarin het deeltje zit wordt verondersteld niet absorberend te zijn.), dan kan men gemakkelijk inzien dat  $C_{sca} = C_{ext}$ . Voor een absorberend deeltje kan ook nog een effectief absorptie oppervlak  $C_{abs}$  worden gedefinieerd. Uit behoud van energie volgt:

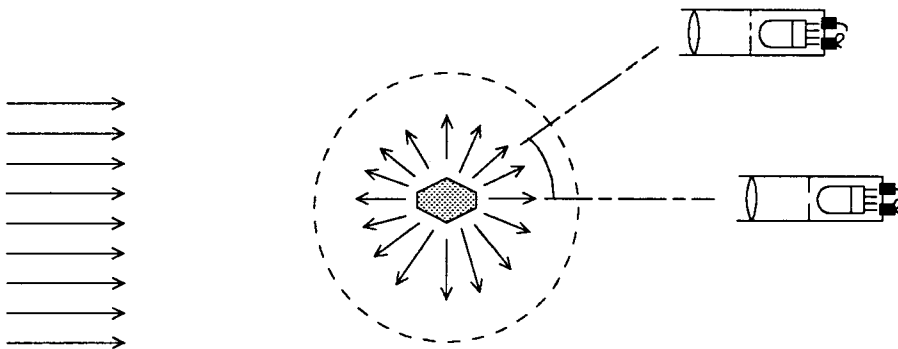
$$C_{ext} = C_{abs} + C_{sca}. \quad (2.3)$$

Het is gebruikelijk om bovenstaande effectieve doorsneden dimensieloos te maken met de geometrische afmeting van het deeltje. Voor bolvormige deeltjes levert dit op:

$$Q_{sca} = \frac{C_{sca}}{\pi r^2} \quad (2.4)$$

$Q_{sca}$  wordt de verstrooiingsefficiëntie genoemd. Analoog kan men de extinctieëfficiëntie  $Q_{ext}$  en de absorptieëfficiëntie  $Q_{abs}$  definiëren.

### 2.2.1 De relatie tussen verstrooiing en extinctie



Figuur 2.2: Twee detectoren die proberen de verstrooide golf van de ongestoorde golf te onderscheiden.

Laat een deeltje dat gesitueerd is in de oorsprong worden belicht door een vlakke E.M. golf. Voor de veldsterkte van die golf kan men schrijven:

$$E_0 = e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.5)$$

Het veld van de verstrooide golf is, op een afstand die groot genoeg is, sferisch en kan geschreven worden in de volgende vorm:

$$E = S(\theta) \frac{1}{ikr} e^{i(\omega t - kr)} \quad (2.6)$$

De factor  $\frac{1}{ik}$  is tussengevoegd voor later gemak.  $S(\theta)$  is de complexe amplitude functie geëvalueerd in de detectie richting:

De combinatie van vergelijkingen 2.5 en 2.6 levert:

$$E = E_0 \frac{S(\theta)}{ikr} e^{ik(z-r)}. \quad (2.7)$$

De superpositie van de ongestoorde en de verstrooide golf kan nu geschreven worden als:

$$E_0 + E = E_0 \left( 1 + \frac{S(\theta)}{ikr} e^{ik(z-r)} \right) \quad (2.8)$$

Wanneer gebruik wordt gemaakt van een detector met een hoek oplossend vermogen dat groot genoeg is, dan kan men beide intensiteiten gescheiden waarnemen. (zie figuur 2.2). Dit is echter alleen mogelijk als er naar licht wordt gekeken dat over een zekere hoek ( $\theta$ ) ten opzichte van de ongestoorde bundel wordt verstrooid. Als men kijkt naar het licht dat in voorwaartse richting verstrooid wordt, vallen de golven samen op het objectief van de detector. Op voorwaarde dat de detector op grote afstand van het strooideeltje staat, kan men schrijven voor  $r$ :  $r = \sqrt{z^2 + r'^2} = z + r'^2/2z$ . De intensiteit op de detector in in dit geval:

$$|E_0 + E|^2 = 1 + \frac{2}{kz} \operatorname{Re} \left\{ \frac{S(0^\circ)}{i} e^{-ikr'^2/2z} \right\}, \quad (2.9)$$

geïntegreerd over het gehele oppervlak ( $O$ ) van het objectief. Als het objectief van de detector voldoende wordt uitgebreid dan komt er uit deze integraal,

$$O - \frac{4\pi}{k^2} \operatorname{Re} \{S(0^\circ)\}. \quad (2.10)$$

De totaal gedetecteerde energie is dus de energie die de ongestoorde bundel op het objectief zou schijnen zonder de aanwezigheid van het deeltje minus een zekere energie. Deze energie kan men interpreteren als  $C_{ext}$  keer  $I_0$ . Omdat voor  $I_0$  één is genomen geldt:

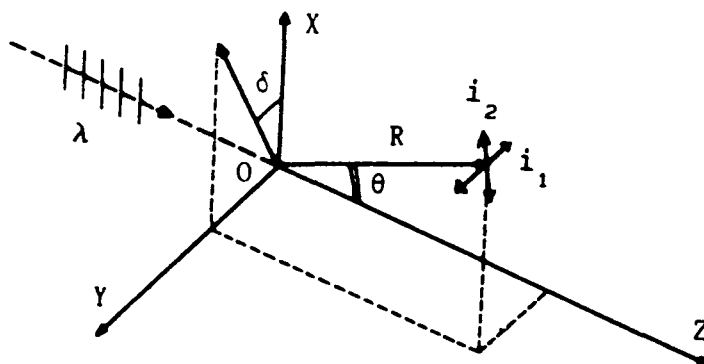
$$C_{ext} = \frac{4\pi}{k^2} \operatorname{Re} \{S(0^\circ)\}. \quad (2.11)$$

De bovenstaande vergelijking legt een relatie tussen het effectieve doorsnede voor extinctie en het licht dat in voorwaartse richting wordt verstrooid. Extinctie moet dus geïnterpreteerd worden als een interferentie verschijnsel, en niet als een soort blokkering van de invallende golf! De bovenstaande relatie staat bekend als het optisch theorema, en haar afleiding is geheel ontleent aan Van de Hulst (1981).

## 2.3 De Mie-theorie, een kort overzicht

Een gedetailleerde beschrijving van de Mie-theorie valt buiten het bestek van dit rapport. Voor een uitstekende behandeling van de theorie wordt verwezen naar de standaardwerken

die in de inleiding van dit hoofdstuk genoemd zijn. Verder zijn in bijlage A de meest essentiële formules vergaard. In deze paragraaf worden enkel basisdefinities gegeven. Veronderstel een diëlectrische bol, met straal  $r$ , in de oorsprong een van rechts draaiend cartesisch coördinaten systeem  $(x, y, z)$ . Veronderstel een vlakke electro-magnetische golf, die binnenvalt via de  $x$ -as, en die is gepolariseerd in het  $x - z$  vlak. De E.M. golf heeft in het medium dat de bol omringt het golfgetal  $k$  (Zie figuur 2.3). We maken de straal van



Figuur 2.3: Definitie van de geometrie

de bol dimensieloos met het golfgetal  $k$ .

$$\alpha \equiv kr = \frac{2\pi r}{\lambda_m}. \quad (2.12)$$

Hierin is  $\lambda_m$  is de golflengte van de E.M. golf in het medium dat de bol omringt. De verstrooide intensiteit wordt nu gegeven door:

$$I_s(\alpha, \theta, \delta) = I_0 \left( \frac{\lambda}{2\pi R} \right)^2 (i_1(\alpha, \theta, m) \sin^2 \delta + i_2(\alpha, \theta, m) \cos^2 \delta), \quad (2.13)$$

hierin zijn  $i_1$  and  $i_2$  functies die gegeven worden door de Mie-theorie. Ze zijn afhankelijk van de dimensieloze straal van de bol ( $\alpha$ ) en van de hoek van observatie ( $\theta$ ).  $R$  is afstand tussen de detector en de bol.  $\delta$  is de hoek tussen het vlak van polarisatie en het vlak van strooiing.  $i_1$  is de intensiteitsfunctie van het licht dat wordt verstrooid in de richting van de  $\phi$  azimuth, terwijl  $i_2$  de intensiteit van het licht dat gepolariseerd is in de richting van de  $\theta$  azimuth. Voor kleine strooihoeken is het dikwijls mogelijk om het licht voor elke  $\delta$  te detecteren, in dat geval is het kwadraat van de modulus van de complexe amplitude functie ( $S(\alpha, \theta)$ ),

$$|S(\alpha, \theta)|^2 = \frac{1}{2} (i_1(\alpha, \theta) + i_2(\alpha, \theta)). \quad (2.14)$$

En dus ook:

$$I_s(\alpha, \theta) = 2I_0 \left( \frac{\lambda}{2\pi R} \right)^2 |S(\alpha, \theta)|^2. \quad (2.15)$$

Het gemiddelde van  $i_1 \sin^2 \delta$  en  $i_2 \cos^2 \delta$  moet dus worden genomen, niet de integraal! Het vermogen dat binnen een zekere ruimtehoek ( $\Delta\omega$ ) wordt uitgestraald is gedefinieerd als:

$$P_s = \int_{\Delta\Omega} I_s R^2 d\Omega \quad (2.16)$$

Veronderstel een volume ( $V_m$ ) gevuld met deeltjes, die volkomen willekeurig verdeeld zijn, en een ruimtehoek  $\Delta\Omega_s$ , waarbinnen het aan die deeltjes verstrooide licht wordt gedetecteerd. Voor  $I_s$  en  $P_s$  kan men schrijven,

$$I_s(\alpha, \theta) = 2I_0 n_p V_s \left( \frac{\lambda}{2\pi R} \right)^2 |S(\alpha, \theta)|^2, \quad (2.17)$$

$$\Delta P_s(\alpha, \theta, \Delta\Omega_s) = 2I_0 n_p V_s \left( \frac{\lambda}{2\pi} \right)^2 |S(\alpha, \theta)|^2 \Delta\Omega_s. \quad (2.18)$$

$n_p$  is de deeltjesdichtheid. De lineaire afhankelijkheid van  $n_p$  is niet geheel triviaal, ze wordt veroorzaakt door de willekeurige verdeling van de deeltjes. Wanneer de deeltjes regelmatig verdeeld zouden zijn in een rooster, dan zou door interferentie de resulterende intensiteit ook een functie zijn van de vorm van het rooster.

## 2.4 Verstrooiing

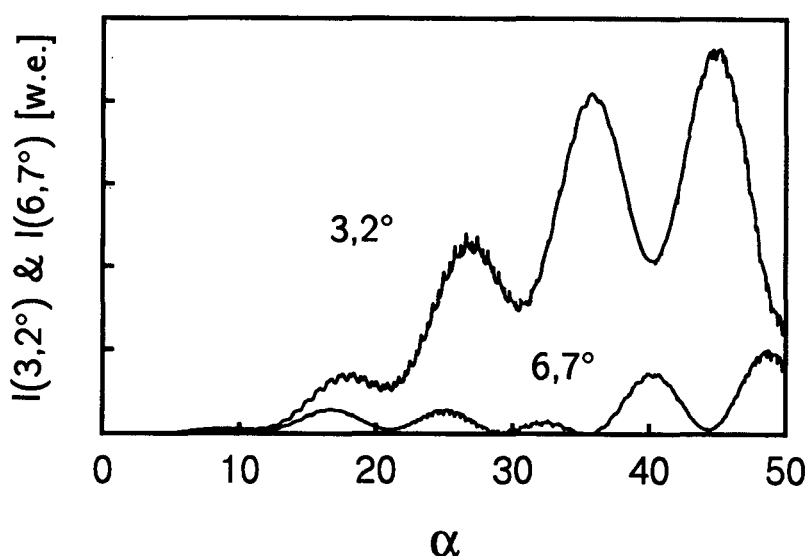
In de rest van dit rapport zullen de resultaten van de Mie-theorie vaak en veelvuldig gebruikt worden. De berekening van de werkzame doorsneden en de amplitude functies gebeurt numeriek. De reeds bestaande software is aangepast zodanig dat ook complexe brekingsindices doorgerekend kunnen worden. In de komende paragrafen worden de resultaten die met deze software zijn verkregen, gepresenteerd en besproken.

### Voorwaartse verstrooiing

In figuur 2.4 worden de intensiteitsfuncties van zowel het onder  $3,2^\circ$  als het onder  $6,7^\circ$  verstrooide licht gepresenteerd. Figuur 2.5 geeft de verhouding van  $6,7^\circ$  en  $3,2^\circ$  verstrooiing. Figuur 2.5 laat zien dat deze verhouding varieert tussen 1 en 0, verder is de curve uit figuur 2.5 nauwelijks afhankelijk van de brekingsindex. Deze eigenschappen maken van de gelijktijdige analyse van het onder  $3,2^\circ$  en het onder  $6,7^\circ$  verstrooide licht een geschikte methode om druppelgroottes te bepalen. Voorwaarde is dan wel dat er uit het proces dat de grootte verandering van de deeltjes in de tijd beschrijft, extra informatie gewonnen moet kunnen worden<sup>2</sup>. Men moet informatie hebben over de deeltjesstraal als functie van

<sup>2</sup>De straal van de deeltjes als functie van de tijd beschrijft moet monotoon stijgen of dalen, dit is experimenteel een beperkende eis. De meetmethode heeft informatie nodig de experimentator met dezelfde methode wil meten.

de tijd vanwege het niet steeds ondubbelzinnige verband tussen intensiteitsverhouding en deeltjesgrootte komt bij het interpreteren van de gemeten data. Uit figuur 2.5 valt op te maken dat wanneer  $\alpha$  tussen 10 en 15 ligt de afbeelding van verhouding naar  $\alpha$  niet éénduidig is. Verder is ook het gebied tussen van  $\alpha$ -waarden tussen 19 en 26 niet éénduidig. Een ander zwak punt van de methode is het geringe signaal voor  $0 < \alpha < 10$  (zie figuur 2.4), Hoewel de verhouding van de strooilichtintensiteiten hier erg varieert zal het moeilijk zijn om deze verhouding nauwkeurig te bepalen wegens een gebrek aan strooilicht. Het verwachte meetbereik van deze meetmethode ligt tussen  $\alpha = 0$  en  $\alpha = 30$ . De ondergrens wordt bepaald door de gevoeligheid van de strooilicht detectoren, de bovengrens door het onbepaald worden van de verhouding voor  $\alpha = 30$ .



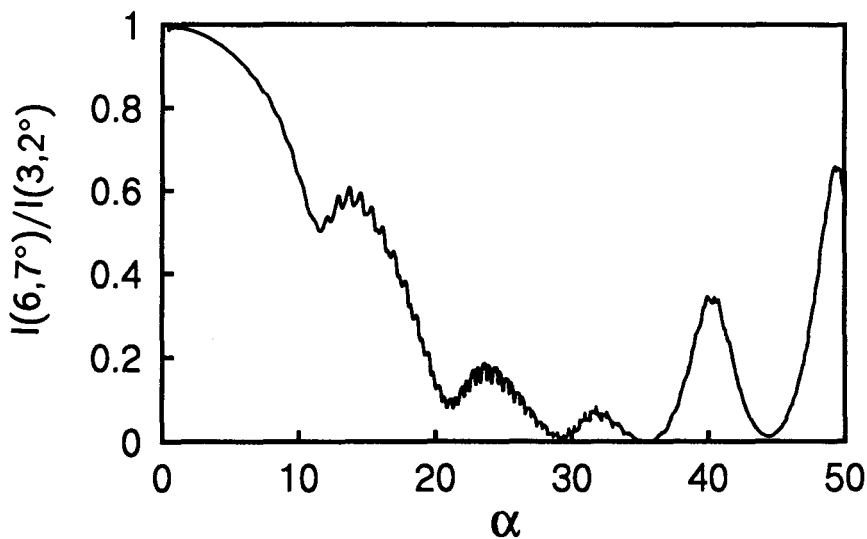
Figuur 2.4:  $I(6,7^\circ)$  en  $I(3,2^\circ)$  tegen  $\alpha$ .

### Achterwaartse verstrooiing

In figuur 2.6 wordt het resultaat van verstrooiing over  $176^\circ$  gegeven. Een interessant aspect van het resultaat voor achterwaarts verstrooid licht is de grote brekingsindex afhankelijkheid in de Mie-patronen. Om dit te illustreren is in figuur 2.7 voor twee brekingsindices een deel van het strooilicht patroon voor  $\theta = 176^\circ$  uitgezet. Vooral de amplitude van de oscillaties verandert veel bij verandering van de brekingsindex. Wanneer de druppeltjes allemaal van dezelfde grootte<sup>3</sup> zijn, lijkt het mogelijk de brekingsindex van de druppels te bepalen door de piekhoogtes te meten.

### 90° verstrooiing

<sup>3</sup>Wanneer men strooilicht detecteert zal dit meestal het licht zijn dat aan meerdere deeltjes wordt verstrooid, een spreiding in deeltjes diameter zal tot gevolg hebben dat het strooilicht patroon wordt "uitgesmeerd".



Figuur 2.5:  $\frac{I(6,7^\circ)}{I(3,2^\circ)}$  tegen  $\alpha$

Het is bijna onmogelijk om het licht dat over  $90^\circ$  wordt verstrooid over de hele  $\delta$ -cirkel te meten (van  $\delta = 0$  tot  $\delta = 2\pi$ ). Men moet een zeker  $\delta$  interval kiezen. Als voorbeeld worden beide intensiteits functies ( $i_1$  en  $i_2$ ) getekend als functie van  $\alpha$  (Zie figuur 2.8).  $i_1$  correspondeert met  $\delta = 0^\circ$  en  $i_2$  met  $\delta = 90^\circ$ . Door het meten van  $90^\circ$  strooilicht, lijkt het mogelijk om druppelgroottes te bepalen door simpelweg de pieken in het gemeten strooilicht signaal te relateren aan de pieken in het theoretische strooilicht signaal.

## 2.5 Extinctie

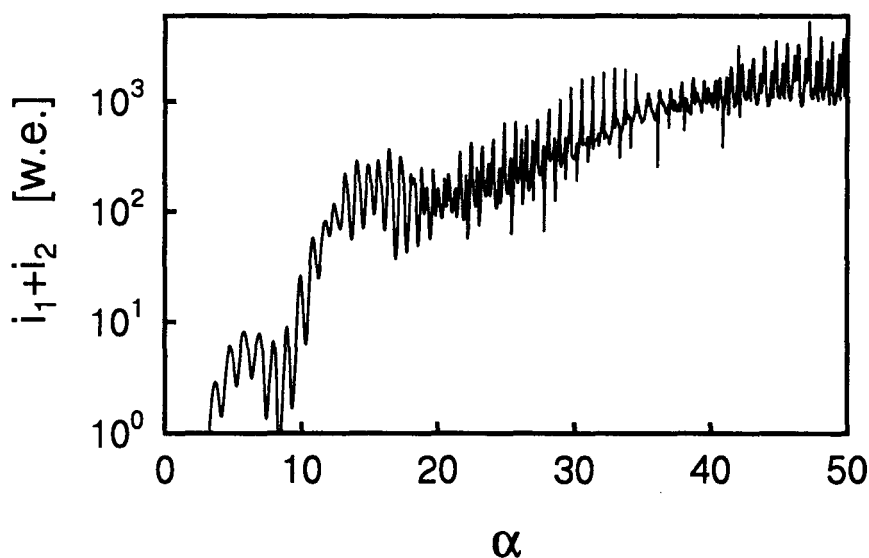
Wanneer een evenwijdige bundel licht door een verstrooiend en/of absorberend medium passeert, dan zal in het algemeen de intensiteit van de bundel afnemen. De wet van Lambert-Beer leert dat de intensiteit exponentieel afneemt met de afstand die het licht door het medium heeft afgelegd. Of in andere woorden,

$$I(L) = I(0)e^{-\beta L}. \quad (2.19)$$

De factor  $\beta$  wordt de extinctie coefficient genoemd. De extinctie coëfficiënt kan ook als volgt worden gedefinieerd.

$$\beta \equiv n_p C_{ext} = n_p \pi r^2 Q_{ext}(\alpha, m). \quad (2.20)$$

Hierin is  $C_{ext}$  de werkzame doorsnede voor extinctie van de deeltjes en  $Q_{ext}$  is de extinctie efficiëntie. Door gebruik te maken van het optische theorema en de complexe amplitude functies, is het mogelijk om een uitdrukking voor de extinctie efficiëntie te vinden. (Zie appendix A. In figuur 2.9 is  $Q_{ext}$  uitgezet tegen  $\alpha$ . Enige opvallende kenmerken van  $Q_{ext}$



Figuur 2.6:  $I(176^\circ)$  tegen  $\alpha$ .

kunnen uit figuur 2.9 afgelezen worden. Ten eerste,  $Q_{ext}$  kan groter zijn dan één, of anders, de bol is in staat de invallende bundel buiten zijn geometrische grenzen te verstoren. Dit kan verklaard worden uit de randvoorwaarden, er moet een overgangsgebied zijn tussen de randvoorwaarde op het oppervlak van de bol, en de randvoorwaarde van het verre ongestoorde veld. Deze verandering moet continu zijn en heeft dus een zekere ruimtelijke uitgestrektheid, zodoende kan de bol de E.M. golf tot op een afstand groter dan zijn eigen straal beïnvloeden. Verder valt op dat voor grote  $\alpha$ ,  $Q_{ext}$  uitdempt tot 2. Dit kan verklaard worden met het principe van Babinet, dat stelt dat de hoeveelheid afgebogen vermogen aan een ondoorzichtige schijf precies even groot is als de hoeveelheid vermogen die door dezelfde schijf geblokkeerd wordt. Wanneer de detector in het verre veld staat, wat bijna altijd het geval is ( $kR \gg 1$ ), dan wordt het afgebogen licht niet opgevangen, Wat een  $Q_{ext}$  van 2 tot gevolg heeft.

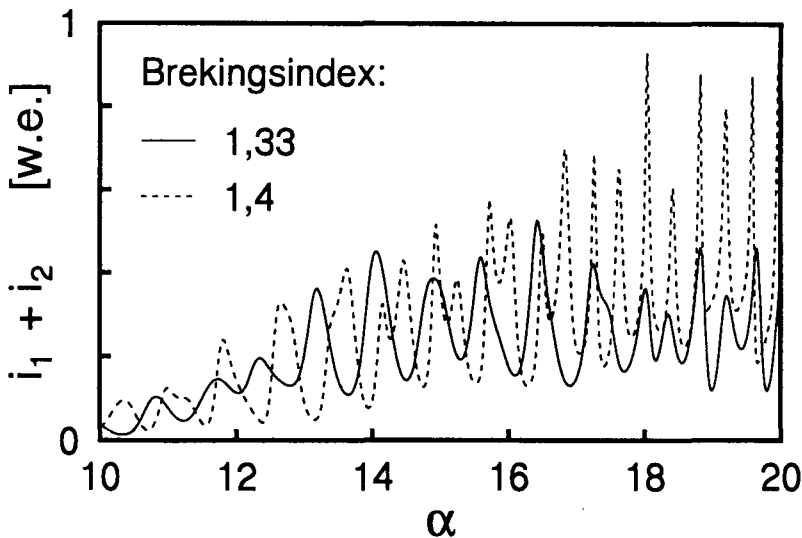
## 2.6 Absorptie

Absorptie kan beschreven worden met een complexe brekingsindex. Wanneer  $k_0$  het golfgetal is in vacuum, dan wordt het golfgetal van het zelfde licht in een medium,  $k = mk_0$ . Als  $m$  complex is dan zal  $k$  ook complex zijn. Wanneer een complexe  $k$  in een golf vergelijking wordt ingevuld dan komt er:

$$E = E_0 e^{i(\omega t - mk_0 r)} = E_0 e^{-\text{Im}(m)k_0 r} e^{i(\omega t - \text{Re}(m)k_0 r)} \quad (2.21)$$

Dus een complexe brekingsindex heeft een exponentiële afname in de intensiteit tot gevolg, wat in overeenstemming is met de Lambert-Beer wet. Ter illustratie wordt in figuur 2.10 de absorptie efficiëntie van water als functie van de grootte-parameter  $\alpha$  gepresenteerd.





Figuur 2.7: Een deel van het achterwaartse strooilightpatroon ( $\theta = 176^\circ$ ) voor twee verschillende brekingsindices.

## 2.7 Tweevoudige verstrooiing

Een vaak optredende complicatie bij het detecteren van verstrooid licht is het verschijnsel van meervoudige verstrooiing. Meervoudige verstrooiing kan gedefinieerd worden als het ongewenst detecteren van licht dat is verstrooid aan meer dan één strooier. Het is moeilijk om conclusies te trekken uit een strooilight signaal dat voor een groot deel “vervuild” is door meervoudige verstrooiing. Om een idee te krijgen van de invloed die meervoudige verstrooiing heeft zal nu een uitdrukking worden afgeleid die een schatting geeft van de verhouding van tweevoudige en enkelvoudige verstrooiing in een algemeen strooilight detectieapparaat.

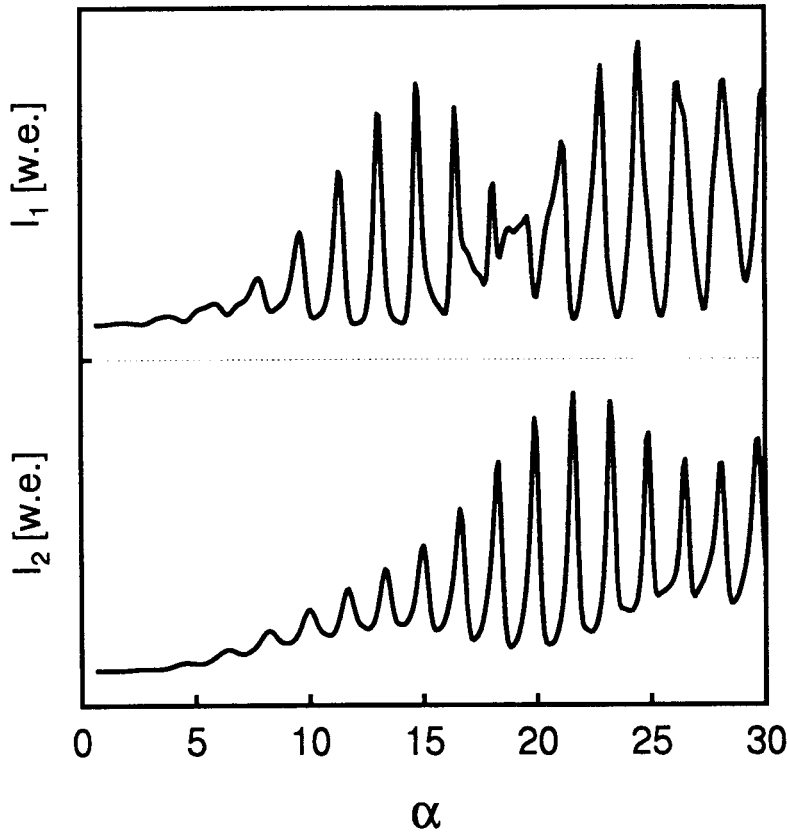
Zo'n algemeen detectieapparaat staat afgebeeld in figuur 2.6. De oorspronkelijke bedoeling van dit meetsysteem is het opvangen van al het strooilight dat aan de deeltjes in het meetvolume ( $V_m$ ) wordt verstrooid over een hoek van ( $\theta_m$ ). Het totale uitgestraalde vermogen uit dit volume is

$$P_{enkel} = 2I_0 n_p V_m \left( \frac{\lambda}{2\pi} \right)^2 S(\alpha, \theta_m) \Delta\Omega_m \quad (2.22)$$

Al het licht dat wordt verstrooid binnen de ruimtehoek  $\Delta\Omega_m$ , is in staat om het optische systeem van de detector te lopen en zal worden gedetecteerd. In dit geval is  $\Delta\Omega_m$ :

$$\Delta\Omega_m = 2\pi (\cos \theta_{m-} - \cos \theta_{m+}) \quad (2.23)$$

De intensiteit ( $I_1$ ) van het verstrooide licht afkomstig uit een controle volume ( $V_1$ ), verstrooid over een hoek van  $\theta_1$ , zal ter plekke van een zeker volume  $V_2$  worden gegeven door



Figuur 2.8:  $i_1$  en  $i_2$  voor  $\theta = 90^\circ$ .

2.17. Voor de duidelijkheid wordt 2.17 hieronder nogmaals herhaald met de juiste indices.

$$I_1(\alpha, \theta_1, x) = 2I_0 n_p V_1 \left( \frac{\lambda}{2\pi R_{1,2}(\theta_1, x, \theta_m)} \right)^2 |S(\alpha, \theta_1)|^2. \quad (2.24)$$

Het vermogen dat nu door de detector wordt ontvangen vanuit het volume element  $V_2$  wordt nu gegeven door 2.18,

$$\Delta P_2(\alpha, \theta_2, \theta_m, \Delta\Omega_2) = 2I_1 n_p V_2 \left( \frac{\lambda}{2\pi} \right)^2 |S(\alpha, \theta_2)|^2 \Delta\Omega_2 \quad (2.25)$$

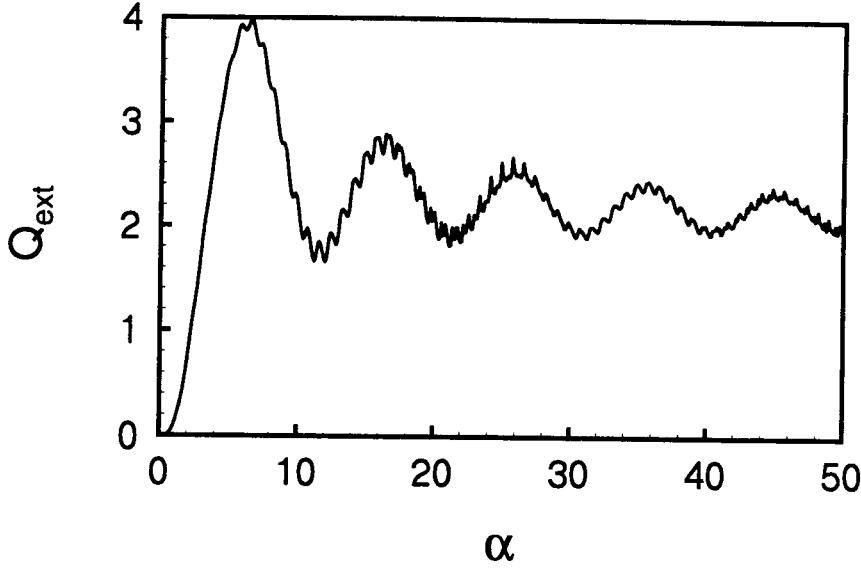
Voor  $\theta_2$  kan worden geschreven:

$$\theta_2 = \theta_1 - \theta_m \quad (2.26)$$

Het invullen van  $I_1$  in vergelijking 2.25 met gebruikmaking van kleine volumes levert op:

$$dP_2 = \left( \frac{4I_0 n_p^2 \lambda^2}{(2\pi)^2 R_{1,2}(\theta_1, x, \theta_m)} \right)^2 |S(\alpha, \theta_1)|^2 |S(\alpha, (\theta_2))|^2 \Delta\Omega_2 dV_1 dV_2(\theta_1, x, \theta_m) \quad (2.27)$$

Het totale vermogen is de integraal over al de volumes  $dV_1$  en al de eerste strooihoeken  $d\theta_1$ . Herschrijf  $dV_1$  als  $A_1 dx$ ,  $A_1$  is het oppervlak van de lichtbundel. Voor  $dV_2(\theta_1, x, \theta_m)$



Figuur 2.9: Extinctie efficiëntie als functie van  $\alpha$  ( $m = 1,33$ ).

kan geschreven worden:

$$dV_2(\theta_1, x, \theta_m) = \frac{dV_2(\theta_1, x, \theta_m)}{d\theta_1} d\theta_1 \quad (2.28)$$

Zodat de integraal die tweevoudige verstrooiing beschrijft wordt:

$$P_{dubbel} = \frac{I_0 n_p^2 \lambda^4 A_1 \Delta \Omega_2}{4\pi^4} \int_{-l}^l \int_{\theta_{min}(x)}^{\theta_{max}(x)} [INT] d\theta_1 dx \quad (2.29)$$

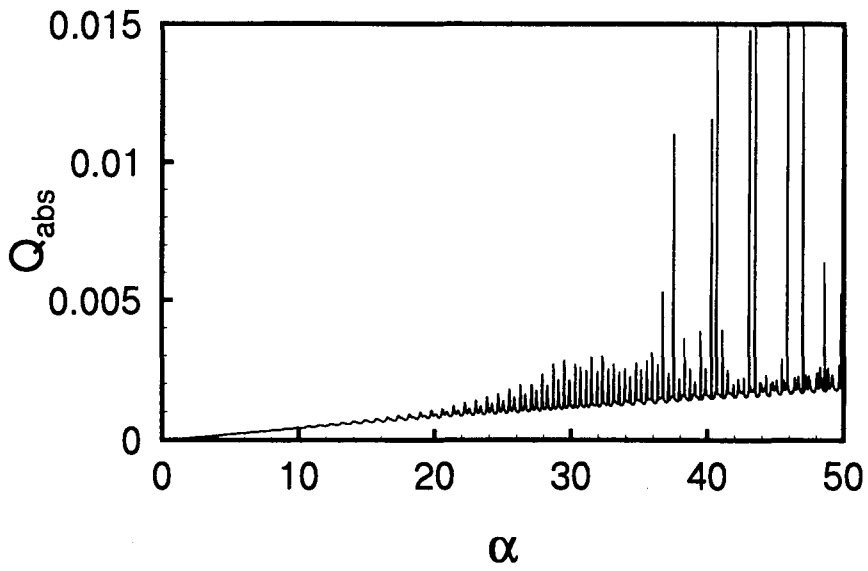
$$INT = \left[ \frac{dV_2(\theta_1, x, \theta_m)}{d\theta_1} \left( \frac{1}{R_{1,2}(\theta_1, x, \theta_m)^2} \right) |S(\alpha, \theta_1)|^2 |S(\alpha, (\theta_1 - \theta))|^2 \right] \quad (2.30)$$

De verhouding tussen het gedetecteerde tweevoudig en enkelvoudig verstrooide licht wordt dus:

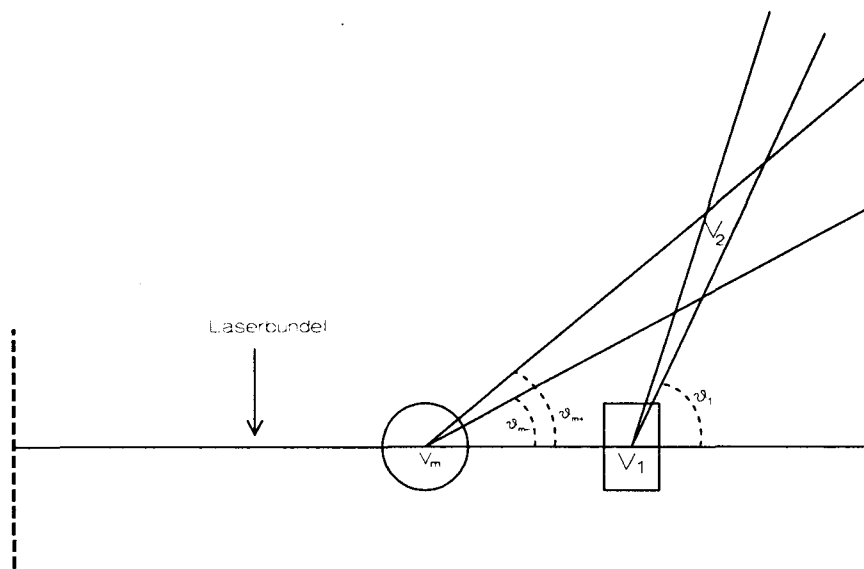
$$\frac{P_{dubbel}}{P_{enkel}} = \frac{n_p \lambda^2 A_1 \Delta \Omega_2}{2\pi^2 V_m \Delta \Omega_m |S(\alpha, \theta_m)|^2} \int_{-l}^l \int_{\theta_{min}(x)}^{\theta_{max}(x)} [INT] d\theta_1 dx \quad (2.31)$$

### 2.7.1 Numerieke resultaten

De integraal in vergelijking 2.31 is met behulp van standaard numerieke methoden benaderd. De gebruikte numerieke waarden voor de constanten (Zie tabel 2.1) komen overeen met die van een detectiesysteem dat later in dit verslag besproken wordt (zie sectie 4.2.2). De resultaten worden in tabel 2.2 gegeven. Zoals blijkt uit deze tabel is de typische orde van grootte van de verhouding  $P_{dubbel}/P_{enkel}$   $10^{-5}$ . Geconcludeerd kan worden dat dubbele



Figuur 2.10:  $Q_{abs}$  tegen  $\alpha$  voor water.



Figuur 2.11: Schematische voorstelling van tweevoudige verstrooiing.

$\theta_{m+}$	6.4 °
$\theta_{m-}$	6.0 °
$V_m$	1 10 <sup>-9</sup> m <sup>-3</sup>
$l$	0.05 m
$\lambda$	632.8 10 <sup>-9</sup> m

Tabel 2.1: De constanten die gebruikt zijn bij het berekenen van 1.31, ze komen overeen met de waarden van de zogenaamde Kijker (Zie sectie xx.x).

$n_p$	$\alpha$	$P_{dubbel}/P_{enkel}$
10 <sup>10</sup>	10	2 10 <sup>-9</sup>
10 <sup>13</sup>	10	2 10 <sup>-6</sup>
10 <sup>10</sup>	40	1 10 <sup>-5</sup>
10 <sup>13</sup>	40	1 10 <sup>-2</sup>

Tabel 2.2: De waarden van integraal 1.31 voor verschillende waardes van  $n_p$  en  $\alpha$ .

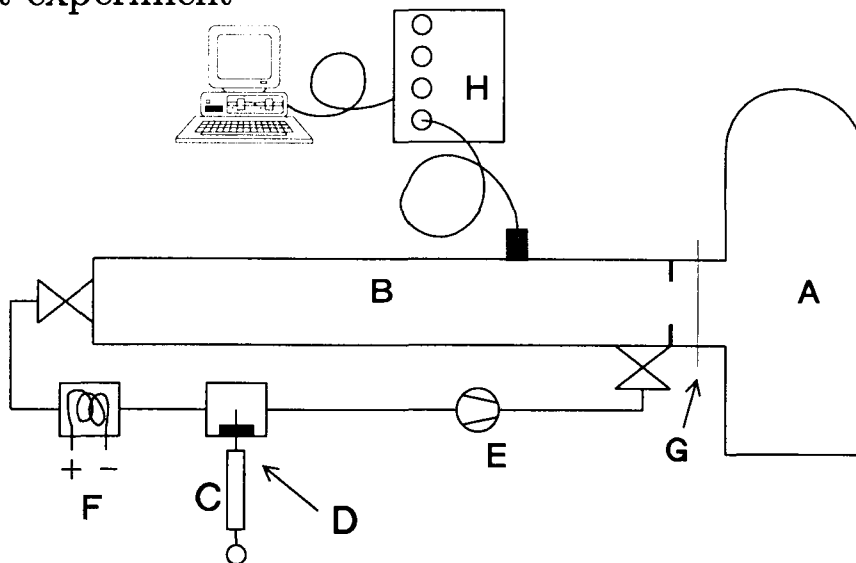
verstrooiing verwaarloosd kan worden ten opzichte van enkele verstrooiing. Voor de druppeldichtheden en druppelstralen waarvan in dit verslag sprake is, is dubbele en dus ook meervoudige verstrooiing verwaarloosbaar.

# Hoofdstuk 3

## De productie van druppels

*Dit hoofdstuk begint met een algemene beschrijving van een experiment. Vervolgens wordt ingegaan op enkele specifieke onderdelen van het experiment. De werking van een expansiebuis wordt behandeld. De manier waarop condensatie-kernen worden toegevoegd wordt besproken. Hierna volgt een summiere inleiding in de nucleatie- en condensatie-theorie. Het hoofdstuk wordt afgesloten met de introductie van enkele druppel-verdelingsfuncties.*

### 3.1 Het experiment



Figuur 3.1: Schematische voorstelling van het systeem

In figuur 3.1 wordt het gehele meetsysteem schematisch weergegeven. De gebeurtenissen die tot een experiment leiden worden nu in het kort besproken. Het vacuümvat (A), met een inhoud van  $400 \text{ dm}^3$ , wordt afgepompt. De expansiebuis (B) ( $10,40 \times 0,1 \times 0,1 \text{ m}^3$ ) wordt vervolgens ook afgepompt. Met behulp van een naald (C) wordt een goed gedefinieerde hoeveelheid vloeistof in het systeem geïnjecteerd. Dit gebeurt via een septum

(D) (Bosschaart 1992). Nadat de vloeistof is verdampt wordt de expansiebuis gevuld met een zogenaamd dragergas tot een druk van ongeveer 1 bar. In dit rapport is als dragergas steeds  $N_2$  genomen, als (condenserende) damp dient steeds water. Door middel van een rondpompsysteem (E) wordt het sample in de expansiebuis grondig gemengd. Wanneer het gas-damp mengsel in de buis homogeen is, dit kan afgeleid worden uit het constant zijn van de luchtvochtigheid, worden er condensatiekernen aan het sample toe gevoegd. Dit wordt gedaan met een Ni-Cr draad die met behulp van een elektrische stroom wordt verhit. Als gevolg van deze verhitting worden er van deze draad chromoxide deeltjes, met een straal van ongeveer 15 nm, afgestookt. Na de homogenisatie van de condensatiekernen is alles gereed voor een experiment. Het polyester membraan (F) dat het vacuumvat scheidt van de expansiebuis wordt door verhitting verzwakt en breekt. Een expansiegolf ontstaat bij het diafragma (G). Deze expansie loopt met de snelheid van het geluid de expansiebuis in, en veroorzaakt een plotselinge daling in de druk. Het gas-damp mengsel in de expansiebuis zal als gevolg van deze drukdaling oververzadigd raken, waardoor druppels beginnen te groeien op de condensatiekernen. De typische tijdschaal van een experiment is 0.1 seconden. Een snelle transient-recorder (LeCroy 8013A) is dus nodig om de gebeurtenissen tijdens een experiment vast te leggen. Na afloop van het experiment worden de data uitgelezen in een PC, alwaar ze verwerkt kunnen worden.

## 3.2 Expansiegolven

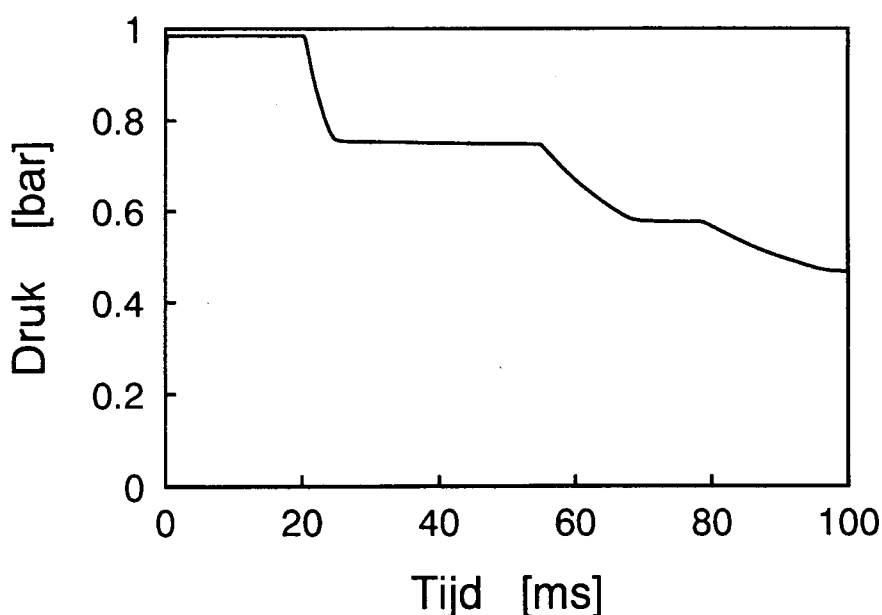
Beschouw een systeem zoals weergegeven in figuur 3.2, het bevat een buis van lengte  $L$  en oppervlak  $A$ , een diafragma met oppervlak  $A_d$  en een groot vat. Op  $t = 0$  is het vat afgepompt tot vacuum, terwijl in de buis de druk  $p$  heerst. Nu wordt instantaan de scheiding tussen de buis en het vat weggenomen. Het gas in de buis zal via het diafragma naar het vat beginnen te stromen. Het gas in het diafragma zal versnellen totdat de geluidssnelheid bereikt is. Dit wordt ook wel choking genoemd. Wanneer er choking heerst, is de toestand van het gas in het diafragma kritisch. De kritische toestand is, mits de toestandsveranderingen isentropo zijn, slechts afhankelijk van de begintoestand van het gas. Behoud van massa over een controlevolume ( $V$ ) (Zie figuur 3.2) legt nu een verband tussen de snelheid van het gas en de geluidssnelheid vlak voor het diafragma. De verhouding van de snelheid van het gas en de geluidssnelheid, het zogenaamde Mach-getal, is nu slechts een functie van de oppervlakte verhouding  $A_d/A$ . De differentiaalvergelijkingen die isentrope veranderingen van een gas beschrijven zijn hyperbolisch. Een geschikte manier om hyperbolische vergelijkingen op te lossen is door gebruik te maken van karakteristieken. We kunnen de karakteristieken van dit probleem schrijven als:

$$\frac{dx}{dt} = u \pm c. \quad (3.1)$$

Hierin is  $u$  de snelheid van het gas en  $c$  de geluidssnelheid. Zoals de bovenstaande vergelijking aangeeft zijn er 2 soorten karakteristieken, de  $c^+$ -karakteristieken en de  $c^-$ -karakteristieken. De  $c^+$ -karakteristieken hebben een positieve helling. Langs deze karakteristieken is de grootheid  $u + 2c/(\gamma - 1)$  constant. Door een  $c^+$ -karakteristiek te volgen





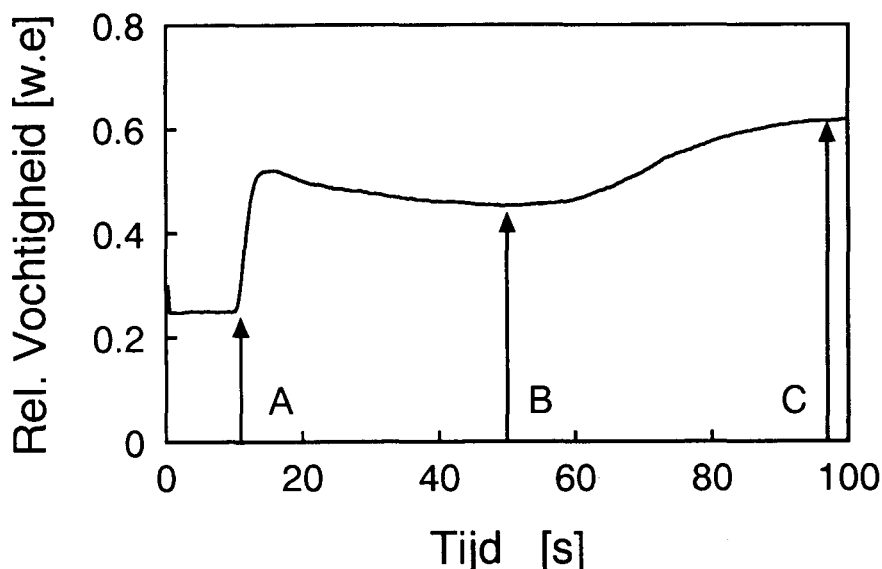


Figuur 3.3: Drukverloop zoals gemeten op een afstand van 4,2 m van het membraan. Duidelijk is de eerste expansie te zien. De druk blijft vervolgens ongeveer 30 ms constant, waarna de gereflecteerde expansiegolf aan het observatiepunt passert. (Drukopnemer: Kistler 603B, piëzo-electrisch)

### 3.3 Condensatiekernen

Een Ni-Cr gloeidraad dient als bron van condensatiekernen. Door de draad elektrisch te verhitten ( $T = \pm 1000^\circ\text{C}$ ) worden er chromoxide deeltjes van de draad afgestookt. De gloeidraad is gemonteerd in een zogenaamd rondpompsysteem. Dit rondpompsysteem (Zie figuur 3.1) bestaat uit een dunne pijp, die beide uiteinden van de expansiebuis met elkaar verbindt, en een rondpomp. Het rondpompsysteem is in staat een turbulente stroming te onderhouden door de dunne pijp. Hierdoor kan het mengsel dat in de expansiebuis zit goed worden gemengd. De deeltjesflux die afkomstig is van de gloeidraad is alleen afhankelijk van de temperatuur van de gloeidraad. Deze temperatuur kan door aanpassing van de elektrische stroom die door de gloeidraad wordt gestuurd worden geregeld. Echter de hoeveelheid deeltjes die men verkrijgt door de draad een bepaalde tijd met een bepaalde stroom te verhitten, is niet nauwkeurig te bepalen. De druppeldichtheid is een grootte die *niet* reproduceert. Men kan de druppeldichtheid slechts in orde van grootte regelen. Hiervoor zijn verscheidene redenen aan te voeren. Ten eerste weet men niet in welke mate de gloeidraad geoxideerd is. Wanneer de gloeidraad voor lange tijd aan zuurstof blootgesteld is geweest, zal hij geheel geoxideerd zijn. Echter als de gloeidraad voor langere tijd in het systeem heeft gezeten en er is geen zuurstof bij de draad toe gelaten, dan zal de mate van oxidatie lager zijn. Dit resulteert in een afname van deeltjesproductie. Ten tweede dienen de deeltjes homogeen te worden verdeeld over de buis. Dit wordt gedaan door de gloeidraad ongeveer een geheel aantal rondpompperiodes te verhitten. De rondpomperi-

ode is de tijd die het systeem nodig heeft om het mengsel één keer rond te pompen. Deze tijd wordt gemeten door te kijken hoelang het een inhomogeniteit in de luchtvochtigheid om het systeem rond te lopen (Zie figuur 3.4). Uit figuur 3.4 blijkt dat de rondpomptijd



Figuur 3.4: Het passeren van een inhomogeniteit in de luchtvochtigheid aan de luchtvochtigheidsmeter. Op tijdstip A passeert een stap in de luchtvochtigheid de meter, deze stap komt uitgesmeerd weer voorbij tussen de tijdstippen B en C. De rondpomptijd is dus ongeveer één minuut.

ongeveer 1 minuut bedraagt. Een andere manier van homogeniseren is het rondpompen. Wanneer deze methode wordt gebruikt moet men bedenken dat men nucleatiekernen verliest door coagulatie (samenklontering) en depositie (neerslag op de wanden van de expansiebuis en de rondpompleiding). De “halfwaardetijd” van de condensatiekernen is 5 minuten (Verheijen 1986). Ten derde kan men de invloed van het vorige experiment nooit helemaal uitbannen. Wanneer het vorige experiment uitgevoerd is bij een grote dichtheid dan is het onmogelijk om het volgende experiment bij een extreem lage dichtheid uit te voeren. Blijkbaar komen kernen die neergeslagen zijn op de wanden weer los. Het enige wat de experimentator kan doen is het rondpomp-systeem aanzetten tijdens het afpompen van het systeem zodat de expansie-buis zo schoon mogelijk blijft.

Concluderend kunnen we stellen dat het toevoegen van condensatiekernen hoofdzakelijk een kwalitatief proces is. De experimentator is verplicht te werken volgens de methode van “trial and error”.

### 3.4 Verzadigingsgraad en het begin van condensatie

De verzadigingsgraad ( $\chi$ ) van een gas-damp mengsel is de verhouding tussen de dampdruk van een damp en de verzadigingsdampdruk van die damp bij een bepaalde temperatuur:

$$\chi = \frac{p_v}{p_{vs}(T)} \quad (3.3)$$

In ons experiment wordt de dampdruk gemeten met een zogenaamde Humicap, dit is een capacitieve opnemer die een spanning afgeeft die lineair is met de verzadigingsgraad (Bosschaart 1992). De manier waarop de verzadigingsdampdruk van de temperatuur afhangt, wordt gegeven door de vergelijking van Rankine-Kirchhoff:

$$p_{vs} = p_{ref} \left( \frac{T}{T_{ref}} \right)^{-\beta} \exp \left( \frac{L_0}{R_v} \left( \frac{1}{T_{ref}} - \frac{1}{T} \right) \right) \quad (3.4)$$

De constanten  $p_{ref}$ ,  $T_{ref}$ ,  $\beta$ ,  $L_0$  en  $R_v$  zijn materiaal afhankelijk, voor de waarden van deze constanten in het geval van water wordt er verwezen naar (Korevaar 1991). Wanneer een gas-damp mengsel adiabatisch geëxpandeerd wordt dan zal de verzadigingsgraad ( $\chi$ ) toenemen. Een gas-damp mengsel dat aanvankelijk onderverzadigd ( $\chi < 1$ ) is, kan zo oververzadigd ( $\chi > 1$ ) raken. Als gevolg hiervan zal condensatie optreden. De snelheid waarmee gebeurt hangt af van de mate waarin de damp oververzadigd raakt. Dit kan geïllustreerd worden aan de hand van de vrije vormings energie ( $\Delta F$ ) nodig voor een druppeltje met straal  $r$  in een omgeving met temperatuur  $T$  en verzadigingsgraad  $\chi$  (Abraham 1974):

$$\Delta F = -\frac{4}{3}\pi r^3 \rho_l R_v \ln \chi + 4\pi r^2 \sigma \quad (3.5)$$

Hierin is  $\rho_l$  de dichtheid van de vloeistof,  $\sigma$  de oppervlaktespanning op de druppel en  $R_v$  de specifieke gasconstante van de damp. Definieer de kritische straal als de straal waarvoor de vrije energie zijn maximum heeft ( $dF/dr = 0$ ):

$$r^* = \frac{2\sigma}{\rho_l R_v T \ln \chi} \quad (3.6)$$

Druppels groter dan deze kritische straal zijn stabiel en zullen groeien. Wanneer een druppel kleiner is dan deze kritische straal is ze niet stabiel en zal ze verdampen. Omdat de kritische straal groter is dan nul is het ontstaan van druppels volgens vergelijking 3.5 onmogelijk. Slecht dankzij een statistisch-kinetisch nucleatie proces kunnen er druppels ontstaan met een straal groter dan de kritische straal. De concentratie van clusters met straal  $r$  zal verdeeld zijn volgens een Boltzmann-verdeling:

$$n(r) = C e^{-\Delta F(r)/kT} \quad (3.7)$$

De nucleatiesnelheid, het aantal druppels dat per seconde per eenheid van volume wordt gevormd, is evenredig met:

$$J \approx n^* c^* \quad (3.8)$$

Hierin is  $n^*$  de concentratie van druppels met de kritische straal en  $c^*$  de botsingsfrequentie van dampmoleculen op het druppeloppervlak, een druppel wordt dus gedefinieerd als een kritische druppel plus één molecuul.

In dit rapport wordt er niet aan homogene condensatie maar aan heterogene condensatie gemeten. Het verschil tussen beide is dat bij heterogene condensatie reeds condensatiekernen aanwezig zijn. Veronderstel dat de condensatiekernen, doordat ten gevolge van adsorptie van damp een laagje vloeistof op de kernen zit gehecht, als kleine druppels te beschouwen zijn ( $r = r_n = 15$  nm). Wanneer  $r^*$  kleiner is dan  $r_n$  dan zal de “druppel” groeien. Met behulp van vergelijkingen 3.4, 3.2 en 3.6 kan de kritische verzadigingsgraad van de condensatiekernen worden gevonden. Voor condensatiekernen met een straal van 15 nm is de kritische oververzadigingsgraad 1,05.

Wanneer de verzadigingsgraad groter is dan één dan zullen de druppels die ontstaan zijn doorgroeien. We verwachten dat de druppels tijdens een experiment groeien tot een straal van 1 à 10  $\mu\text{m}^1$ . Voor uitstekende beschouwingen over de fysische processen die ten grondslag liggen aan nucleatie en condensatie wordt verwezen naar Looijmans (1990) en van Beek (1992).

### 3.5 De verdeling van druppels

Druppels in een nevel zullen in het algemeen niet allemaal dezelfde straal hebben maar zullen verdeeld zijn volgens een verdelingsfunctie. Deze verdelingsfunctie ( $\mathcal{F}$ ) is genormeerd. We veronderstellen dat de werkelijke verdelingsfunctie ( $\mathcal{F}$ ) benaderd kan worden door een probeerfunctie  $\mathcal{F}_p(r, \underline{p})$ , die mede bepaald wordt door een parametervector  $\underline{p}$ . We introduceren nu achtereenvolgens enkele probeerfuncties. Wanneer alle druppels dezelfde straal hebben is de verdelingsfunctie een  $\delta$ -functie, de druppelpopulatie wordt in dit geval monodispers genoemd:

$$\mathcal{F}_\delta(r, r_m) = \delta(r - r_m) \quad (3.9)$$

De bovenstaande verdelingsfunctie is slechts afhankelijk van één parameter ( $r_m$ ). Het fysische realiteitsgehalte van ( $\mathcal{F}_\delta$ ) is twijfelachtig. Het is realistischer te veronderstellen dat de verdelingsfunctie een zekere breedte bezit. We zullen hier uitgaan van Gauss-achtige verdelingsfuncties:

$$\begin{aligned} \mathcal{G}(y) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi\epsilon}} e^{-(y^2 - \epsilon^2)/(2\epsilon^2)} \\ y &= y(r) \\ \mathcal{F}(r) &= \mathcal{G}(r) \frac{dy}{dr} \end{aligned} \quad (3.10)$$

---

<sup>1</sup>De uiteindelijke druppelstraal hangt af van de druppeldichtheid en de hoeveelheid damp die in het mengsel aanwezig is.

De functie  $\mathcal{G}$  moet worden opgevat als een genormeerde Gauss-verdeling van de hulpvariabele  $y$ . Wanneer voor  $y$  een willekeurige monotone functie van bijvoorbeeld  $r$  wordt ingevuld dan is de functie  $\mathcal{G}(r)dy/dr$  ook genormeerd.

Wanneer voor  $y(r) \ln(r/r_m)$  genomen wordt dan verkrijgt men de zogenaamde Zeroth Order Lognormal Distribution (ZOLD) (Kerker 1969):

$$\mathcal{F}_{\text{zold}}(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\epsilon r_m}} e^{-(y^2 + \epsilon^4)/(2\epsilon^2)} \quad (3.11)$$

Hierin is  $r_m$  de modale straal en  $\epsilon$  de relatieve breedte van de verdeling. De ZOLD-verdeling is uitsluitend gedefinieerd voor positieve waarden van  $r$ . Omdat de ZOLD-verdeling niet "scheef" kan zijn, wordt de ZOLD-verdeling nu met een functie, die asymmetrisch is ten opzichte van de symmetrie-as van  $\mathcal{G}(y)$  scheefgetrokken (Braun 1991):

$$\mathcal{F}_{\text{azold}}(r) = \mathcal{F}_{\text{zold}} \left( 1 + \arctan \left( S \frac{\ln(r/r_m) - \epsilon^2}{\sqrt{2\pi\epsilon}} \right) \right) \quad (3.12)$$

$S$  is de zogenaamde scheefheidsparameter, hoe groter  $S$  hoe asymmetrischer de verdelingsfunctie.

Wanneer men experimenten doet aan bijvoorbeeld druppelgroei, dan wordt door de randvoorwaarden van het experiment een maximale druppelstraal vastgelegd. Of anders gezegd, het is onmogelijk dat er druppels zijn die groter zijn dan een bepaalde straal. Door Mugele en Evans is een functie geïntroduceerd die daarmee rekening houdt, de zogenaamde Upper Limit Distribution Function (ULDF) (Mugele en Evans 1951). We nemen dan voor  $y$ :

$$y = \frac{(r_{mx} - r_m)r}{(r_{mx} - r)r_m} \quad (3.13)$$

Zodat voor  $\mathcal{F}_{\text{uldf}}$  volgt:

$$\mathcal{F}_{\text{uldf}}(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\epsilon r_m}} \frac{r_{mx}(r_{mx} - r_m)}{(r_{mx} - r)^2} e^{-(y^2 + \epsilon^4)/(2\epsilon^2)} \quad (3.14)$$

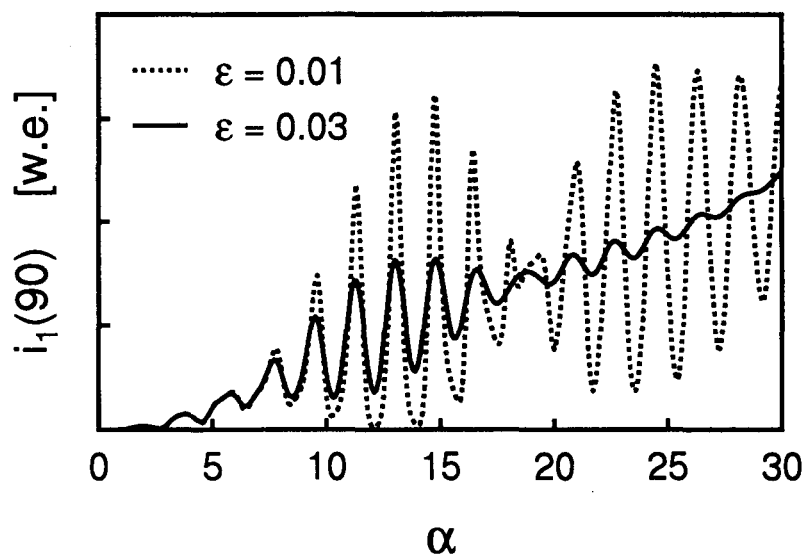
Voor  $r$  groter dan  $r_{mx}$  is  $\mathcal{F}_{\text{uldf}}(r)$  nul,  $\epsilon$  is weer een maat voor de breedte van de verdeling. Wanneer we  $r_{mx}$  in de ULDF naar oneindig laten gaan reduceert de ULDF tot een gewone ZOLD-verdeling.

### 3.5.1 De invloed van druppelverdelingen op stroolichtpatronen

Een willekeurige eigenschap ( $f(r)$ ) die afhankelijk is van de straal van de druppels, zal worden beïnvloed door een spreiding in de druppelstralen. De gemodificeerde eigenschap ( $\hat{f}(r)$ ) is de integraal van de oorspronkelijke eigenschap gewogen met de verdelingsfunctie:

$$\hat{f}(r) = \int_0^{\infty} f(r)\mathcal{F}(r)dr \quad (3.15)$$

Ter illustratie wordt in figuur 3.5 het gevolg getoond welke invloed een spreiding heeft op de vorm van het 90° stroolichtpatroon. Duidelijk is te zien dat een spreiding in druppelgrootte het patroon "uitsmeert".



Figuur 3.5: Verwacht  $90^\circ$  strooilichtpatroon voor een ZOLD-verdeling met een  $\epsilon$  van 0,01 en 0,03 ( $\delta = 0$ ).

# Hoofdstuk 4

## Metingen aan lichtverstrooiing

*Dit hoofdstuk handelt over de bepaling van de grootte van druppels in een nevel door middel van collectieve lichtverstrooiing. Eerst wordt een opstelling besproken waarbij het onder een hoek van  $90^\circ$  verstrooid licht wordt opgevangen. Met deze opstelling zijn zeer bevredigende resultaten geboekt. Vervolgens wordt een experiment behandeld waarbij gelijktijdig het  $3,2^\circ$  en  $6,7^\circ$  verstrooid licht wordt opgevangen, ook hier zijn de resultaten bevredigend. Tenslotte wordt er aandacht besteed aan het ontwerp van een opstelling waarmee ook achterwaarts verstrooid licht wordt geanalyseerd.*

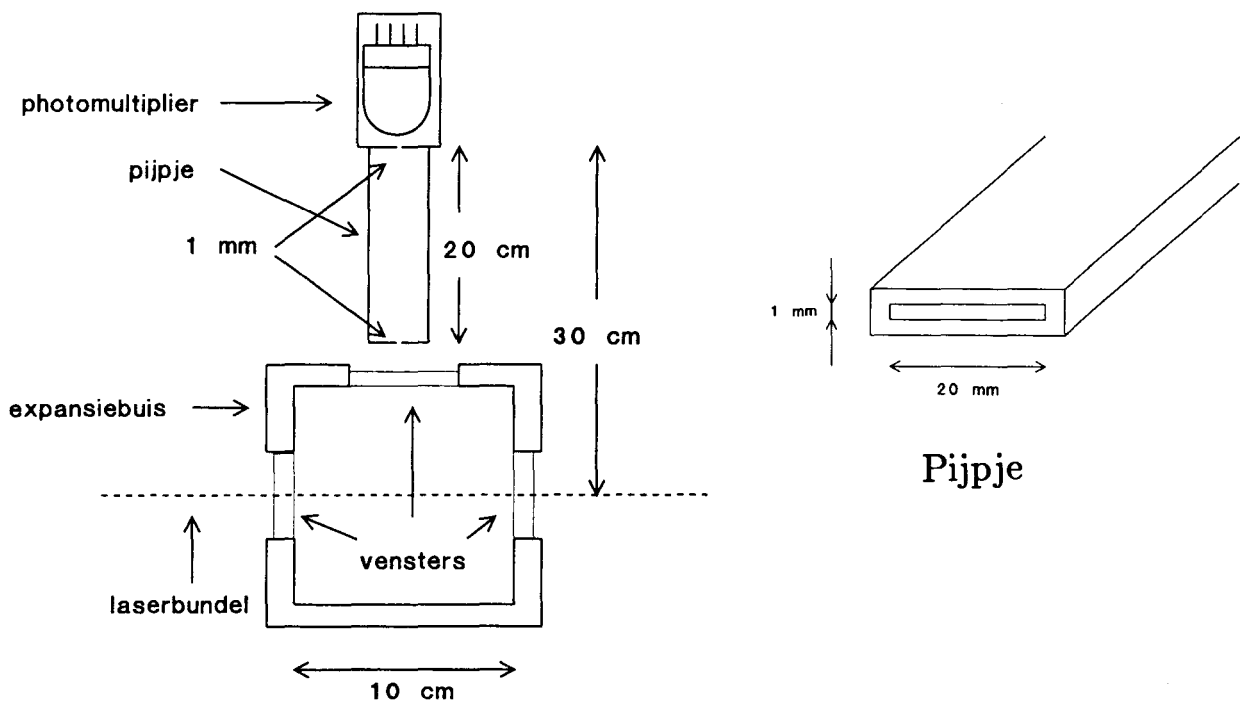
### 4.1 $90^\circ$ verstrooiing

#### 4.1.1 Inleiding

Het bepalen van druppelstralen ( $r = \mathcal{O}(\lambda)$ ), door te kijken naar licht dat over een grote hoek aan hen verstrooid wordt, is een vaak gebruikte techniek. Voorbeelden zijn gegeven door onder andere Vietti *et al.* (1973) en Paikert (1990). Vietti maakte gebruik van een photomultiplier die van een kleine openingshoek werd voorzien, door er twee pinholes voor te zetten. De diameter van de pinholes en de afstand tussen de pinholes bepaalt dan de openingshoek. Hieronder zal een soortgelijke opstelling besproken worden. De strooihoek, de hoek tussen de voorplantingsrichting in de bundel en de strooirichting, is  $90^\circ$ .

#### 4.1.2 De opstelling

De opstelling die voor het detecteren van  $90^\circ$  strooilicht is gebruikt is simpel (Zie figuur 4.1). De ontwerpeisen voor een dergelijke opstelling zijn eenvoudig. Van het licht dat onder een hoek van  $90^\circ$  wordt verstrooid moet zoveel mogelijk worden opgevangen. De openingshoek in de  $\delta$ -richting (Zie paragraaf 2.3) moet zo groot mogelijk zijn, terwijl de openingshoek in de  $\theta$ -richting zo klein mogelijk gekozen dient te worden. Dit om te zorgen



Figuur 4.1: De opstelling die gebruikt is bij het detecteren van  $90^\circ$  strooilicht.

voor een maximaal herkenbaar signaal. Voor de opstelling was een photomultiplier met een gevoelig oppervlak van  $2 \times 0,5$  cm beschikbaar. De minimale afstand tot de bundel wordt bepaald door de halve hoogte van de schokbuis (5 cm) en de dikte van het venster ( $\pm 0,5$  cm). Omdat een zekere afstand tot het venster in acht moet worden genomen is het begin van het optische systeem op een afstand van 6 cm tot de bundel geplaatst. Als optisch systeem is een rechthoekig pijpje, dat aan beide uiteinden 2 spleten bevat gekozen. Dit pijpje is direct gemonteerd aan de photomultiplier, wat de maximale lengte van de spleten beperkt tot 2 cm. Voor de  $\theta$ -openingshoek is  $0,5^\circ$  gekozen. Wanneer de spleten nu 1 mm breed gemaakt worden, moet het pijpje 20 cm lang zijn. De  $\delta$ -openingshoek voor deze configuratie is  $4,4^\circ$ . De opstelling is op het oog uitgelijnd, met een nauwkeurigheid van  $\pm 0,5^\circ$ . Omdat het optische systeem dat hierboven uitgelegd werd niet erg subtiel is, is een krachtige laser nodig om voldoende strooilicht (= signaal) te krijgen. Er is gekozen voor een Ar-Ion Laser (Spectra Physics), met een vermogen van 0.5 Watt. De golflengte van het laserlicht is 514 nm. De laserbundel is lineair gepolariseerd. Na een vrije drift<sup>1</sup>

<sup>1</sup>We spreken hier van provisorische experimenten. De laser, die moeilijk verplaatsbaar is, bevond zich op ongeveer 30 meter van de eindwand van de expansiebuis. Nadien is een professionele opstelling gebouwd,



$\chi_0$	0,75
totaal druk	1 bar
temperatuur	18° C
stooktijd	8 Ampere
stookstroom	2 minuten

Tabel 4.1: Beginvoorwaarden van het 90° experiment

van ongeveer 30 meter wordt de bundel opgeblazen tot een diameter van 1 cm. Omdat de openingshoek in  $\delta$  relatief klein is, kan door de richting van de polarisatie te draaien, gekozen worden welke van beide intensiteitsfuncties ( $i_1$  of  $i_2$ ) (Zie paragraaf 2.3) gemeten wordt. Omdat de functie  $i_1$  voor 90° verstrooiing iets herkenbaarder is (Zie figuur 2.8), is ervoor gekozen  $\delta$  nul te maken, en de bundel dus horizontaal te polariseren. Op grond van bovenstaande getallen kan geconcludeerd worden dat het verwachte signaal voldoet aan de volgende formule,

$$I(\alpha) = \frac{1}{2\delta_1} \int_{89,75 \pm \Delta\theta}^{90,25 \pm \Delta\theta} d\theta \int_{-\delta_1}^{\delta_1} d\delta (i_1(\theta, \alpha) \cos^2 \delta + i_2(\theta, \alpha) \sin^2 \delta), \quad (4.1)$$

Hierin is  $\Delta\theta$  de fout die gemaakt wordt bij het uitlijnen van de opstelling. Zoals aangegeven is  $\Delta\theta$  ongeveer 0,5°. Verder heeft  $\delta_1$  een waarde van 2,2°.

### 4.1.3 Een experiment

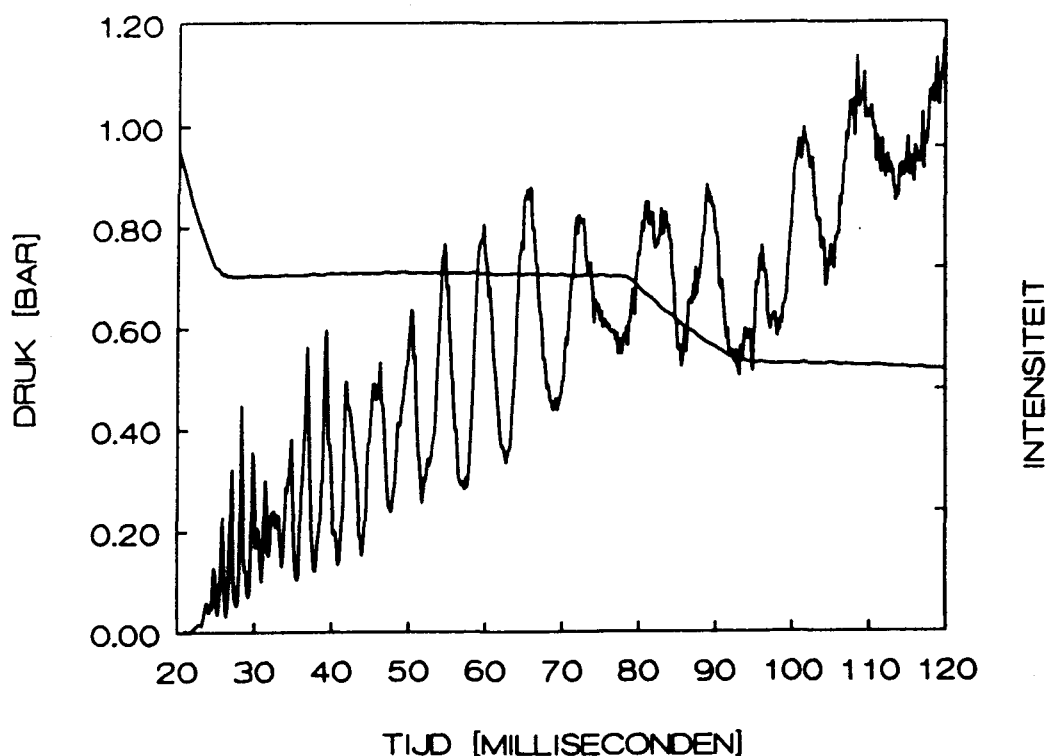
De 90° strooilichtdetector wordt vlak voor de eindwand van de expansiebuis geplaatst ( $\approx$  5 cm). Het mengsel staat hierdoor gedurende het hele experiment ongeveer stil<sup>2</sup>, we kijken dus steeds naar hetzelfde druppels. Een mengsel wordt geëxpandeerd in de expansiebuis. De druk aan de eindwand en de de strooilichtintensiteit die door de photomultiplier wordt ontvangen worden opgenomen met de transient recorder. De beginvoorwaarden van het experiment staan bijeen in tabel 4.1. In figuur 4.2 staan de gemeten signalen uitgezet.

In het druksignaal is duidelijk de expansie, het daarop volgende plateau en de tweede expansie te zien. In het strooilicht signaal is de piekstructuur van het theoretische strooilichtpatroon (Zie figuur 2.8) herkenbaar. Het is nu zaak om de pieken in het theoretische patroon te relateren aan die in het gemeten patroon. Men kan dit doen door de relatieve piekhoogtes (ten opzichte van een referentiepiek) van het gemeten signaal uit te zetten tegen het rangnummer van de piek; er van uitgaande dat de experimentele druppelgrootte monotoon stijgend is. Wanneer men dit ook doet voor de theoretisch verwachte piekhoogtes, (nu ten opzichte van een willekeurige piek) kan men de theoretische referentiepiek

---

en is de laser verplaatst.

<sup>2</sup>Dit volgt direct uit de randvoorwaarden van het expansiegolf probleem. De snelheid loodrecht op een vaste wand is noodzakelijkerwijs nul.

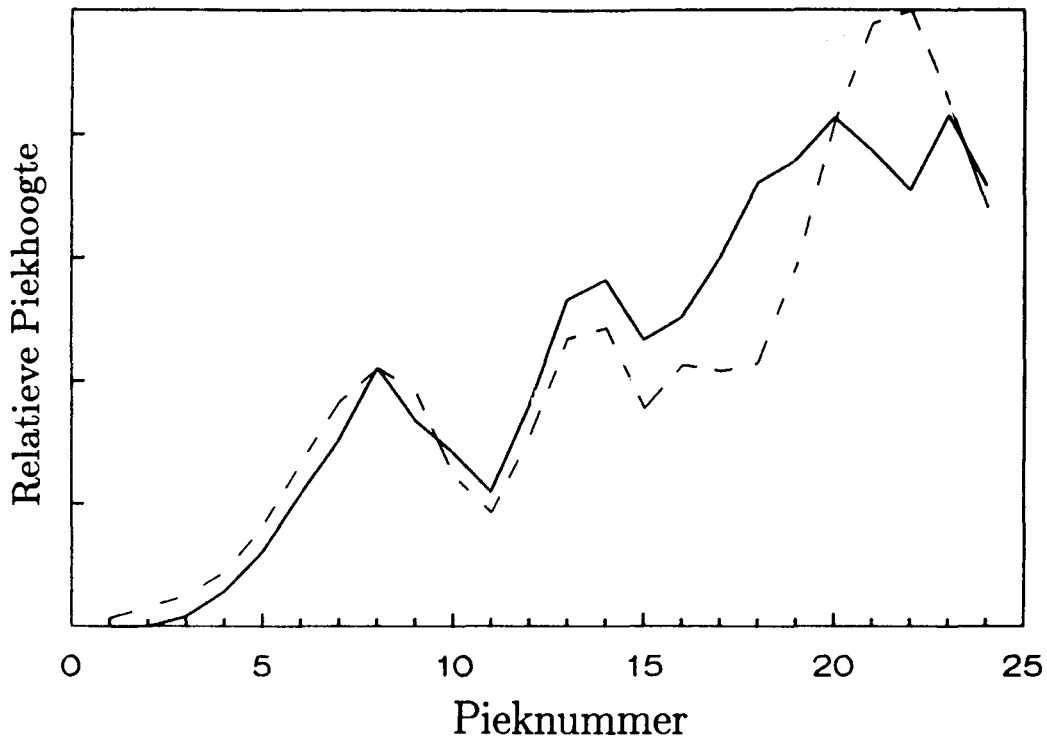


Figuur 4.2: Signalen zoals gemeten met  $90^\circ$  opstelling, de bovenste lijn is het druksignaal, de onderste het stooilichtsignaal.

vinden waarvoor de overeenkomst met het experiment maximaal is<sup>3</sup>. Zodoende wordt het gemeten en theoretische patroon aan elkaar gekoppeld. Figuur 4.3 geeft het resultaat van deze procedure.

Het blijkt dat de overeenkomst in relatieve piekhoogtes uitstekend is tot piek # 15. Verder kan geconcludeerd worden dat de eerste twee theoretische pieken niet gedetecteerd worden. In ieder geval geeft figuur 4.3 voldoende vertrouwen om aan de tijd waarop toppen van de verschillende pieken gedetecteerd worden een druppelstraal toe te kennen. De invloed van een spreiding in de druppelgrootte op de plaats van de pieken is gecontroleerd. Het blijkt dat slechts de hoogte van de pieken beïnvloed wordt en niet hun plaats. De enige onzekerheid die overblijft in de nauwkeurigheid van de straal die bij een willekeurige piektop hoort is de brekingsindex van de druppels en de nauwkeurigheid waarmee de strooihoek bepaald wordt. Zoals aangegeven in de vorige paragraaf is de maximale scheefheid van de detector  $0,5^\circ$ . Wanneer integraal 4.1 aan een fouten-analyse wordt onderworpen dan blijkt dat de fout in straal kleiner van één promille is. Zoals reeds opgemerkt is de spreiding in de druppelgrootte van invloed op de hoogtes van de pieken. In principe zou men dus uit de hoogte verhoudingen informatie over die spreiding kunnen winnen. Het stooilichtsignaal bevat een soort DC component die niet in de theoretische patroon zit. Deze verstoring op het verwachte signaal kan vermoedelijk worden toegeschreven aan reflecties aan de binnenkant van de expansiebuis en aan interne reflecties in het pijpje. Als gevolg van deze "signaalvervuiling" kan slechts geconcludeerd worden dat de spreiding  $\epsilon$  kleiner is dan 2%. De meetmethode zoals hij hier beschreven is,

<sup>3</sup>Meestal is de overeenkomst tussen experiment en theorie zo goed dat men in één oogopslag de gemeten pieken aan de theoretische kan koppelen.



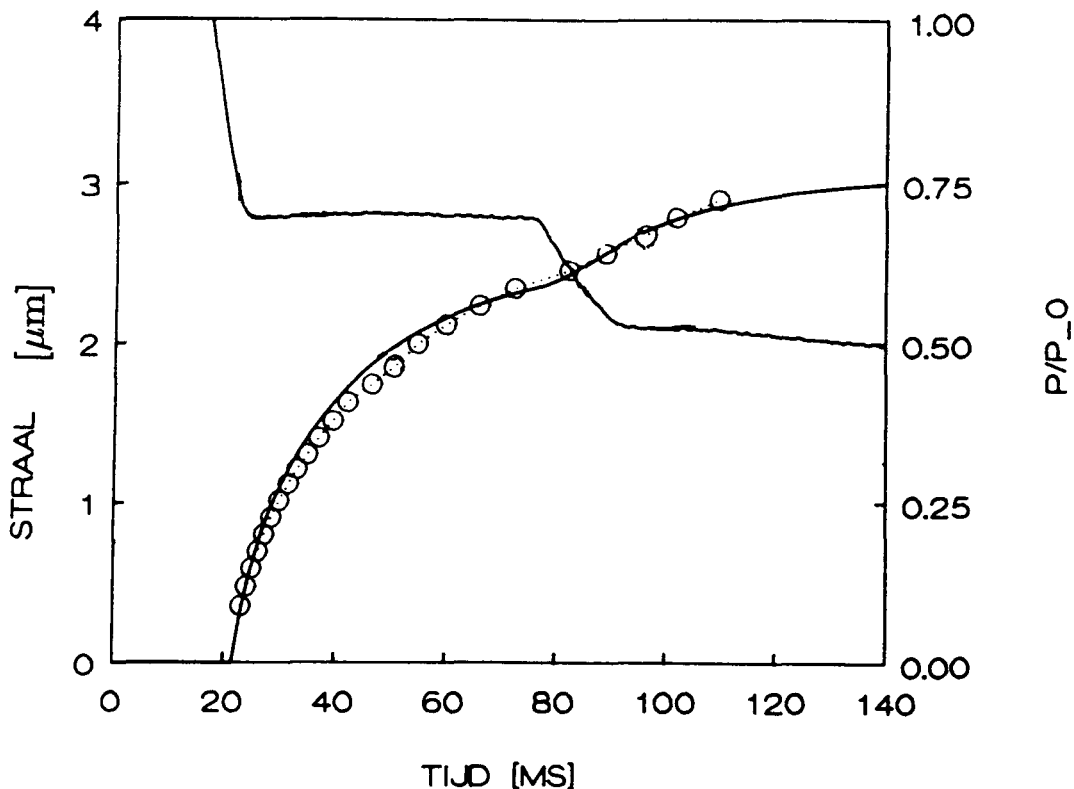
Figuur 4.3: Beste aanpassing van de relatieve piekhoogtes. Piek 8 is de referentiepiek. De gestippelde lijn is de theoretische curve, de doorgetrokken lijn volgt uit de meting. N.B: blijkbaar worden de eerste twee pieken niet waargenomen.

is ongeschikt voor het tijdopgelost bepalen van  $\epsilon$ , er kan slechts een ruwe schatting gegeven worden van de breedte van de verdeling. De straal van de kleinste druppels die gedetecteerd kunnen worden wordt bepaald door de straal waarbij de eerste piek<sup>4</sup> optreedt. Voor water ( $m = 1,33$ ) en een Ar-Ion laser ( $\lambda = 514 \text{ nm}$ ) gebeurt dit bij een straal van  $0,2 \mu\text{m}$ .

#### 4.1.4 Resultaten

In figuur 4.4 wordt het resultaat van de uitwerking van het beschreven experiment gepresenteerd. De bolletjes representeren de toppen van de respectievelijke pieken, vertaald naar een straal. De doorgetrokken lijn is verkregen door een druppelgroeimodel door te rekenen voor de begin- (de dampdruk en de druppeldichtheid) en rand- (de druk) voorwaarden van het experiment. Het gebruikte model is dat van Gyarmathy, en de programmatuur die het model doorrekent is geschreven door M. Mijtjens (1990). De overeenkomst tussen de meting en het model is goed. Wel dient hierbij aangetekend te worden dat de druppeldichtheid met deze methode niet gemeten is, en dat die dus als vrij instelbare parameter in het model ingevoerd kon worden.

<sup>4</sup>Hoewel de eerste piek in deze meting niet gedetecteerd wordt, is dit met de verbeterde opstelling, waarvan in één van de volgende secties sprake is, wel gebeurd.



Figuur 4.4: Groeicurve zoals gemeten met de 90° opstelling,

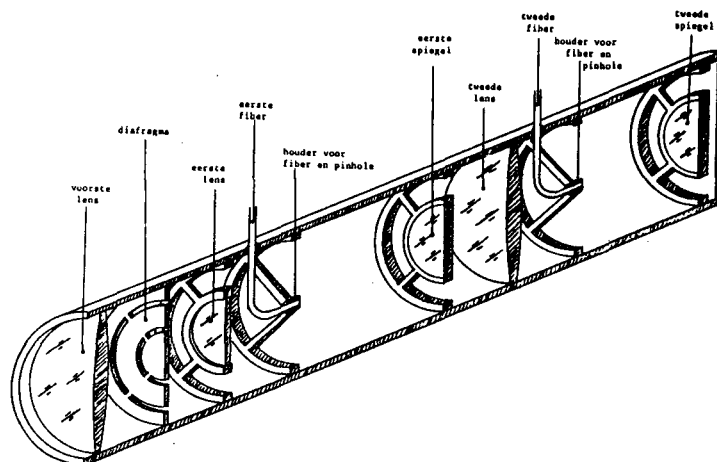
#### 4.1.5 Aanbevelingen

De opstelling zoals die hierboven beschreven is, is provisorisch te noemen. Toch zijn de meetresultaten, uiterst bevredigend. Wanneer de 90° meetmethode wordt uitgebreid met een transmissie meting, dan kan ook de extinctiecoëfficiënt als functie van de tijd bepaald worden. Met behulp van de extinctiecoëfficiënt is de druppeldichtheid te bepalen. Verder verdient het aanbeveling het optische systeem te verbeteren. Door gebruik te maken van lenzen kan de signaal-ruis verhouding gemakkelijk vergroot worden. Deze verbeteringen zijn reeds uitgevoerd door J. van Beeck (1992), en hebben een uitstekend meetinstrument voor de bepaling van groeicurves opgeleverd.

## 4.2 Voorwaartse verstrooiing

### 4.2.1 Inleiding

Ter observatie van voorwaarts verstrooid licht is gebruik gemaakt van de zogenaamde Kijker (Zie figuur 4.5). Dit is een meetinstrument dat in staat is simultaan het licht dat vanuit één plaats verstrooid wordt, onder twee verschillende hoeken te detecteren. De kijker is opgebouwd uit twee bijna identieke deelsystemen, die beide het strooilicht onder één bepaalde hoek detecteren. Oorspronkelijk is de Kijker ontworpen om de grootte van individuele druppels te bepalen. Dit is alleen mogelijk indien de meetvolumina van het meetsysteem voldoende klein zijn en precies op elkaar liggen. Zodat naar dezelfde druppel gekeken wordt. Omdat de druppeldichtheden die gemeten worden in de orde van  $10^{12}$



Figuur 4.5: Opengewerkte tekening van de Kijker

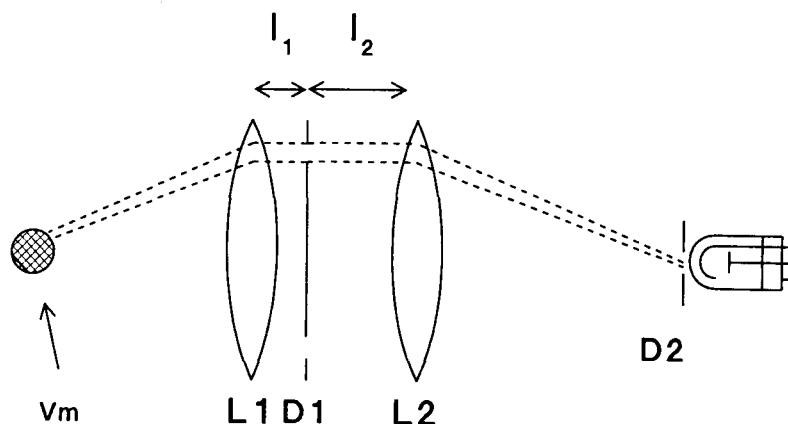
$m^{-3}$  zijn, zal de inhoud van de meetvolumina in de orde van grootte  $10^{-12} m^3$  moeten zijn. Verder moet de positie van de meetvolumina uiterst precies geregeld kunnen worden, omdat beide systemen naar precies dezelfde druppel moeten kijken. Aan de hand van de bovenstaande ontwerpeisen is de Kijker ontworpen door Mannens (1985). Het ontwerp en de fabricage van de optica was zodanig dat de ontwerpeisen gehaald zijn. Toch heeft de kijker nooit naar behoren gewerkt omdat de (electronische) interpretatie van de signalen op onoverkomelijke problemen stuitte.

De Kijker is vervolgens aangepast door Lahaije (1990). Door vergroting van de meetvolumina ( $\pm 100 \times$ ) is gepoogd, de Kijker geschikt te maken voor het tijdsopgelost bepalen van de gemiddelde druppelstraal van de druppels die in het meetvolume zitten. Ook deze poging strandde op interpretatie problemen.

#### 4.2.2 De opstelling

In figuur 4.6 staat het optische systeem van de Kijker schematisch weergegeven. Het bestaat uit een positieve lens (L1), gevolgd door een ringdiafragma en een tweede positieve lens (L2). In het brandpunt van de tweede lens staat een pinhole (D2). Het licht dat door het pinhole valt wordt door middel van een fiber in een photomultiplier geleid. In tabel 4.2 staan de afmetingen van de diverse componenten van beide systemen.

We zijn geïnteresseerd in de acceptanties van de optische systemen. De acceptantie is het oppervlak in de faseruimte dat in staat is het optische systeem te doorlopen. Uit de acceptantie van het optische systeem kunnen we alle informatie van belang afleiden. Met behulp van geometrische optika is de acceptantie uitgerekend. De resultaten van deze berekening staan weergegeven in figuur 4.7. Uit figuur 4.7 lezen we af dat de centrale detectiehoek van systeem 1  $3,2^\circ$  is met een openingshoek van  $0,65^\circ$ . De centrale detectiehoek van systeem 2 is van  $6,7^\circ$  met een openingshoek van  $0,65^\circ$ . De breedte van het meetvolume is ongeveer 0,12 mm voor systeem 2 en 0,24 mm voor systeem 1. De acceptantie zoals die getekend is in figuur 4.7 is berekend in het brandvlak van L1. Punten buiten het brandvlak van L1 zullen ook in de acceptantie liggen. Er is gecontroleerd of voor deze punten dezelfde openingshoek geldt. Dit blijkt het geval te zijn. De enige andere belangrijke eigenschap van

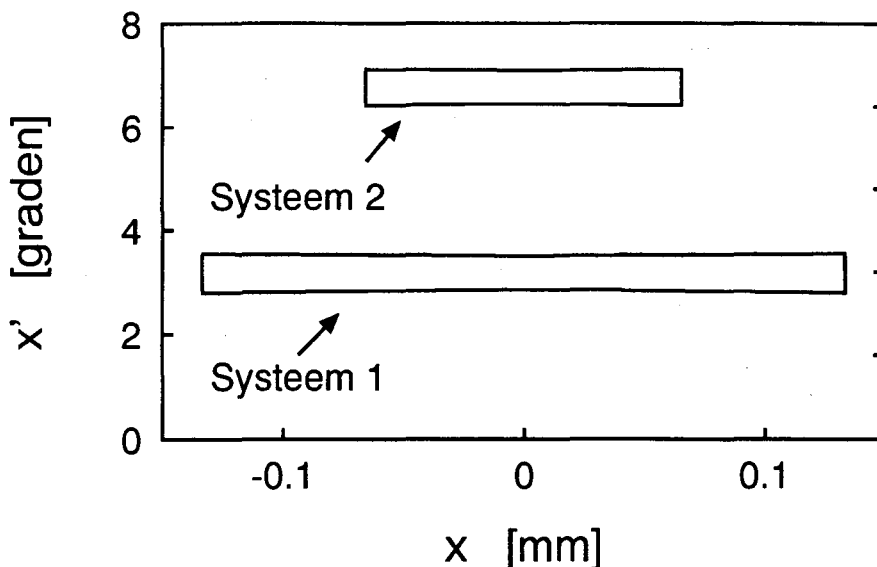


Figuur 4.6: Het optische systeem van de kijker

Component	Systeem 1	Systeem 2
Brandspuntsafstand lens 1	150 mm	150 mm
Drift 1	10 mm	10 mm
Binnen diameter diafragma 1	7,45 mm	16,85 mm
Buiten diameter diafragma 1	9,15 mm	18,55 mm
Drift 2	10 mm	100
Brandspuntsafstand lens 2	250 mm	500 mm
Diameter pinhole	450 $\mu\text{m}$	450 $\mu\text{m}$
Gemeten inhoud meetvolume	$8 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3$	$3 \cdot 10^{-10} \text{ m}^3$

Tabel 4.2: Afmetingen van de optische systemen van de kijker.

het optische systeem is de inhoud van de meetvolumina. Wanneer we de inhoud van het meetvolume kennen is gemakkelijk een schatting van de ondergrens aan deeltjesdichtheden die redelijkerwijs kunnen worden gedetecteerd te maken. R. Lahaije (1990) heeft de inhoud van de meetvolumina experimenteel bepaald (Zie tabel 4.2). Het kleinste meetvolume, dat van systeem 1, heeft een inhoud van  $8 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3$ . Wanneer we veronderstellen dat de druppels willekeurig verdeeld zijn dan is de signaal-ruis verhouding als gevolg van dichtheidsfluctuaties in het meetvolume gelijk aan  $(n_p V_m)^{1/2}$ . Voor een signaal-ruis verhouding van 10 is een druppeldichtheid van ongeveer  $1 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$  nodig. Later zal blijken dat de signaal-ruis verhouding ook bij lagere dichtheden groot is, blijkbaar zijn de inhouden van de meetvolumina veel groter dan de waarden zoals die in tabel 4.2 zijn aangegeven.

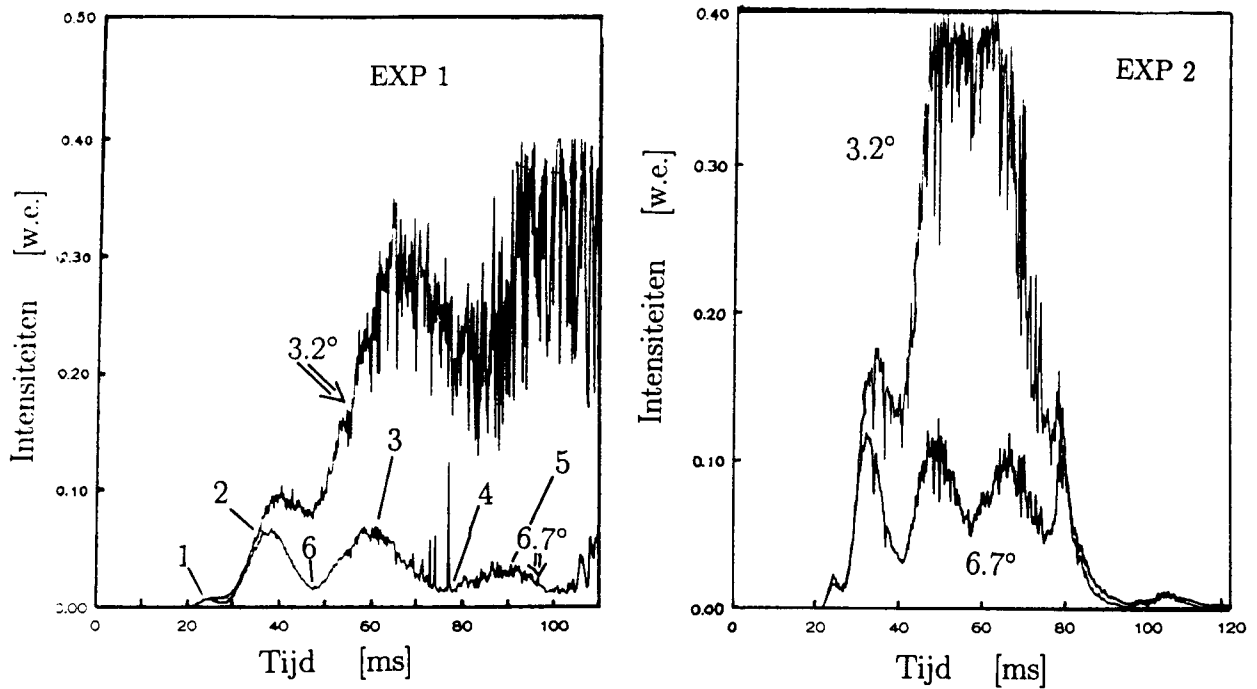


Figuur 4.7: Acceptantie van de kijker, in het brandvlak van L1.

### 4.2.3 Twee experimenten en een poging tot ijking

Ter illustratie van de mogelijkheden en beperkingen van de Kijker, worden er nu twee experimenten besproken. Beide experimenten zijn bij een lage druppeldichtheid ( $n_p = \mathcal{O}(10^{11} \text{m}^{-3})$ ) uitgevoerd. Bij het eerste experiment (EXP1) wordt het drukverloop gevolgd dat normaal ontstaat wanneer het vlies wordt doorgebrand. Bij het tweede experiment (EXP2) wordt in plaats van door te expanderen een recompressie van het gas veroorzaakt door de achterwand van de expansiebuis open te laten. Immers een expansie reflecteert aan een open uiteinde als een compressiegolf.

In figuur 4.8 staan de tijdsontwikkelingen van de gemeten signalen voor beide experimenten uitgezet. In de strooilichtintensiteiten zijn de Mie-patronen duidelijk herkenbaar (Vergelijk met figuur 2.4). Bij EXP1 volgen de gemeten intensiteitspatronen de theoretische Mie-patronen tot een  $\alpha$  van ongeveer 37 ( $r \approx 3,7 \mu\text{m}$ ), terwijl bij EXP2 de intensiteiten eerst duiden op groei als gevolg van de expansie om vervolgens “om te keren” bij  $t \approx 60$  ms en het hele traject in omgekeerde volgorde afleggen hetgeen duidt op een afname in druppelstraal. Zoals voorgesteld in hoofdstuk 2 is de verhouding van beide strooilicht signalen een maat voor de druppelgrootte. We gebruiken EXP1 om de Kijker te ijken. Door naar herkenningspunten (“toppen en dalen”) in de signalen te kijken kan een ijfactor bepaald worden. Ter plekke van een top of een dal is  $\alpha$  bekend. We kunnen dus zowel een theoretisch verwachte als een experimenteel bepaalde verhouding berekenen. De verhouding tussen deze twee is de ijfactor. Deze ijfactor corrigeert voor *alle* ongelijkheden in beide optische systemen (gevoeligheid photomultipliers, afmetingen meetvolumes, abberaties van lenzen etc.). In figuur 4.8 staan de herkenningspunten met getallen aangegeven. Tabel



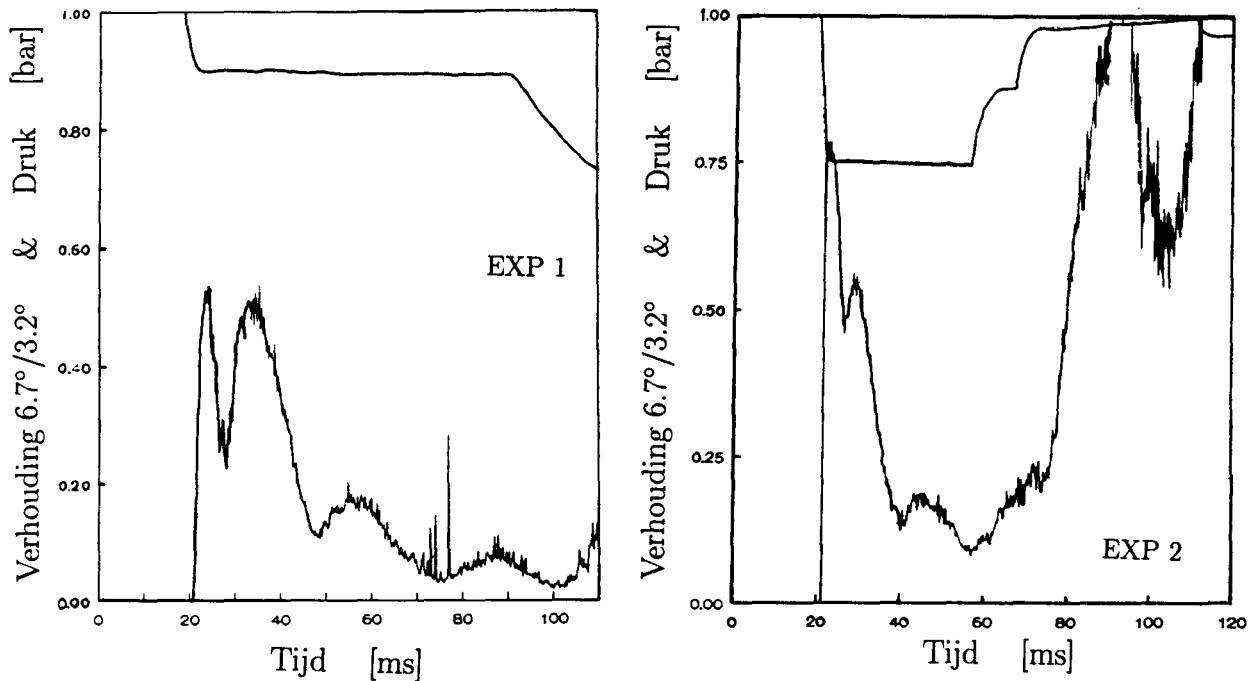
Figuur 4.8: De gemeten strooilightintensiteiten van EXP1 en EXP2. N.B. De bijhorende druksignalen staan uitgezet in het volgende figuur.

4.3 presenteert de bijbehorende ijkfactoren. Uit tabel 4.3 blijkt dat een simpele ijking van de Kijker onmogelijk is. De spreiding in de ijkfactor is te groot. Behalve het niet éénduidig zijn van de ijkfactor heeft de meetmethode nog andere zwakke plekken. Wanneer we kijken naar de verhouding van de strooilightintensiteiten (Zie figuur 4.9) dan valt het op dat in EXP1 de intensiteitsverhouding in het begin niet bij één, zoals theoretisch verwacht, maar bij ongeveer een half begint. Dit is te wijten aan een gebrek aan signaal wanneer de druppels klein zijn. Bij EXP2 valt op dat de intensiteitsverhouding bij het “verdampen” ( $t > 60$  ms) veranderd is. De verhouding van intensiteiten reproduceert niet tijdens hetzelfde experiment! Het signaal van de  $3,2^\circ$  photomultiplier keert niet terug naar nul, blijkbaar zit er een soort drift op dit signaal. Omdat er weinig signaal is heeft een kleine drift een grote invloed op de verhouding van de intensiteiten.

#	ijkfactor
1	$1,3 \pm 0,6$
2	$1,7 \pm 0,1$
3	$1,8 \pm 1$
4	$9,9 \pm 6$
5	$1,9 \pm 1$
6	$2,5 \pm 0,4$

Tabel 4.3: ijkfactoren voor verschillende tijdstippen in EXP1



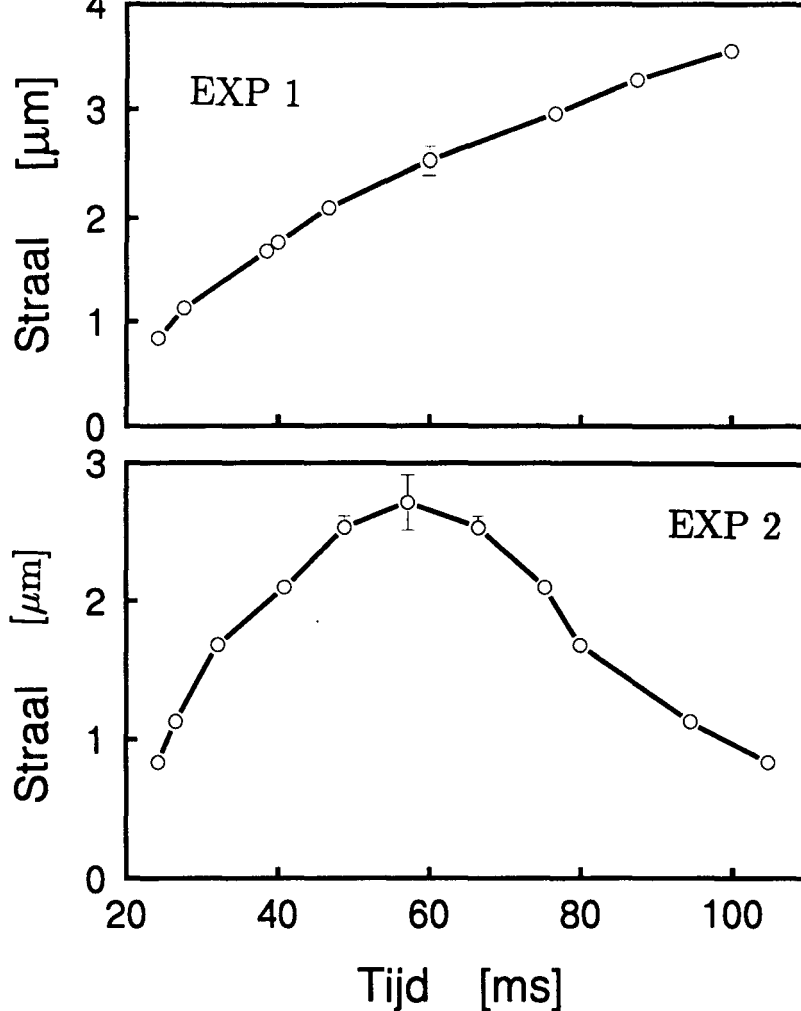


Figuur 4.9: De verhouding van de strooilichtintensiteiten ( $6,7^\circ / 3,2^\circ$ ) voor de twee experimenten (EXP1 en EXP2). De bovenste lijn is het drukverloop tijdens het experiment.

#### 4.2.4 Resultaten en discussie

Hoewel een ijking van de Kijker niet goed is gelukt, is het toch mogelijk om met behulp van de strooilichtsignalen een groeicurve te bepalen. Men kan dit doen door aan de plaats van de toppen en dalen een straal toe te kennen<sup>5</sup>. Figuur 4.10 geeft het resultaat van deze procedure. Het aantal meetpunten in figuur 4.10 is beperkt, dit komt door het geringe aantal herkenningspunten in de strooilichtsignalen. Omdat de toppen en dalen in tegenstelling tot de  $90^\circ$  methode breed zijn is er een zekere onnauwkeurigheid in de straal, dit wordt aangegeven door de foutenhokjes in figuur 4.10. We concluderen dat met de Kijker in principe groeicurves kunnen worden bepaald. De oorspronkelijke bedoeling van de Kijker, het bepalen van druppelafmetingen door te kijken naar de verhouding van het voorwaarts verstrooide licht, is niet uitvoerbaar. Wanneer we de voorwaarts strooilicht methode vergelijken met de  $90^\circ$  strooilicht methode dan is de  $90^\circ$  methode superieur.

<sup>5</sup>Geheel analoog aan de  $90^\circ$  methode.



Figuur 4.10: Druppel groeicurves zoals bepaalt uit EXP1 en EXP2.

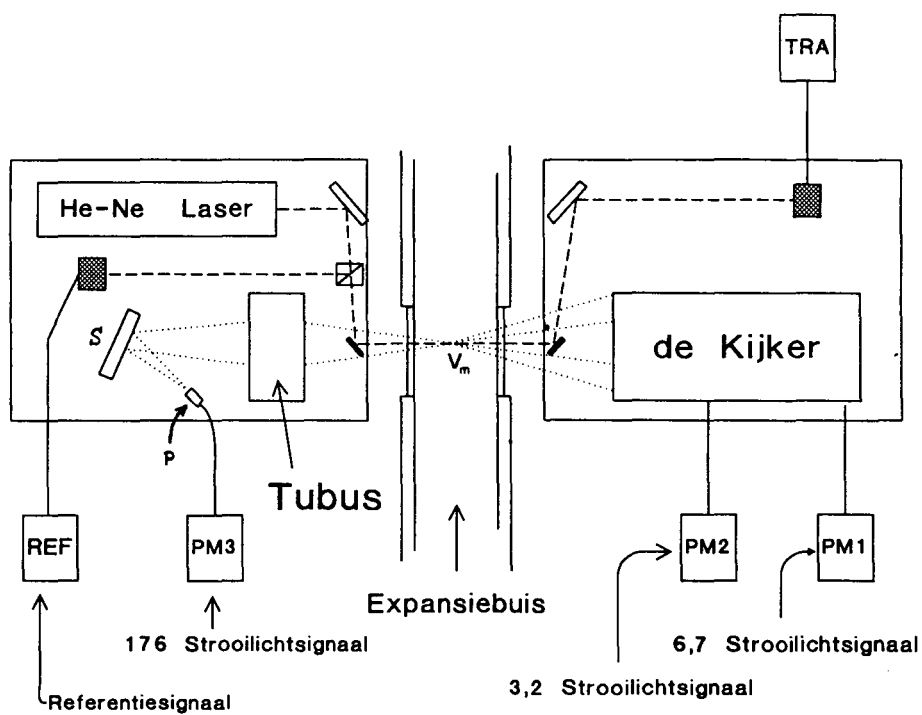
### 4.3 Achterwaartse verstrooiing

Zoals aangegeven in hoofdstuk 2 is de vorm van het strooilicht patroon voor grote hoeken ( $\theta$ ) sterk afhankelijk van de brekingsindex van de verstrooiende deeltjes. Het idee is om behalve het voorwaarts verstrooide licht ook het achterwaarts verstrooide licht te detecteren. Aldus verkrijgen we informatie over de brekingsindex van de druppels. Dit is van belang omdat er in de toekomst experimenten gepland zijn aan onbekende mengsels van alkanen. De brekingsindex van de druppels die hierbij ontstaan is niet a priori bekend. Verder verkrijgen we ook nog extra informatie over de afmetingen van de druppels<sup>6</sup>. We verwachten dat de detectie van achterwaarts verstrooid licht het experiment met de Kijker zal verrijken.

In de hier voorgestelde opstelling<sup>7</sup> (Zie figuur 4.11) wordt de Kijker weer ingezet om het voorwaarts verstrooide licht ( $3,2^\circ$  en  $6,7^\circ$ ) te detecteren. Er is verder een optisch systeem gebouwd dat identiek is aan systeem 1 van de Kijker. Met dit systeem wordt de intensiteit van het strooilicht dat over een hoek van  $176,8^\circ$  wordt verstrooid gemeten. De lenzen en het ringdiafragma van deze achterwaartse kijker zijn ondergebracht in een zogenaamde tubus.

<sup>6</sup>De periode van de oscillaties is voor het achterwaarts verstrooide licht nog korter dan die van het  $90^\circ$  verstrooide licht.

<sup>7</sup>De opstelling is reeds in een vergevorderd stadium. Binnen afzienbare tijd zullen de eerste experimentele resultaten behaald kunnen worden.



Figuur 4.11: Ontwerp van een opstelling voor het detecteren van achterwaarts en voorwaarts verstrooid licht

Met behulp van een instelbare spiegel (S) wordt het strooilight afgebeeld op een pinhole (P). Verder wordt ook nog de transmissie van de bundel gemeten (TRA).

# Hoofdstuk 5

## Metingen aan lichtextinctie

Dit afstudeerwerk heeft voor een deel bijgedragen aan een concept-artikel. In dit hoofdstuk wordt dit artikel integraal overgenomen.

### Spectral Light Extinction For Time Dependent Droplet Sizing

*Two supplementary methods for droplet sizing, both based on the spectral dependence of light extinction are discussed. A fully time resolved three-wavelength method is applied to an adiabatically expanding vapour in which droplets are formed due to heterogeneous condensation. The time-dependent droplet size, variance in size and droplet number density are obtained. Using a white light source in combination with a spectrometer and a CCD-array, the full visible light attenuation spectrum is obtained at discrete time intervals.*

#### 5.1 Introduction

The processes of the formation and growth of droplets in a supersaturated gas-vapour mixture are of interest for a variety of technological and environmental problems. Such

---

<sup>1</sup>Eindhoven University of Technology, Faculty of Applied Physics, P.O. box 513, 5600 MB Eindhoven, The Netherlands

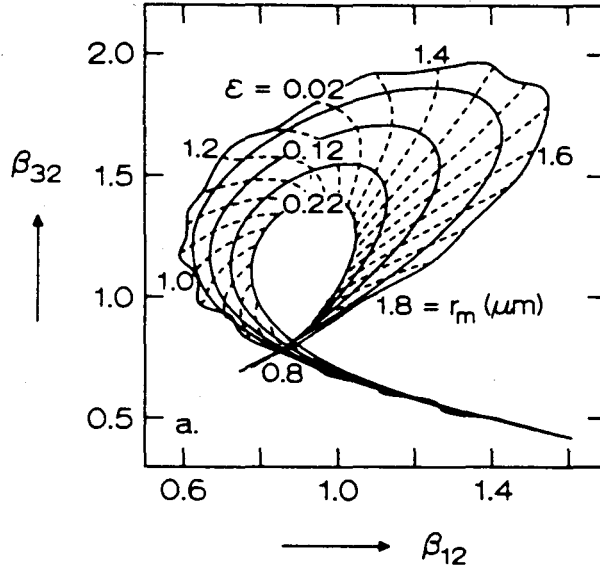


Figure 5.1: Representation of the Zeroth Order Log-normal Distribution (ZOL) in the phase plane of extinction coefficient ratios:  $\beta_i/\beta_j$ . The wavelengths are:  $\lambda_1 = 632.8$  nm,  $\lambda_2 = 807$  nm and  $\lambda_3 = 1152$  nm. The contours correspond to lines of equal radius  $r_m$  and lines of constant variance parameter  $\epsilon$ .

processes can be studied in the laboratory, making use of Laval nozzles, expansion cloud chambers or wave tubes<sup>1,2</sup>. The latter two are essentially instationary, which means that nucleation and the growth of the droplets can be studied at a fixed spatial position.

A large number of experimental methods for optical fog characterisation exist. A survey of recent developments has been edited by Gouesbet and Gréhan<sup>3</sup>. A more general overview of methods for droplet sizing is given by Tayali and Bates<sup>4</sup>. One of the relative simple and straightforward methods for droplet sizing is the light extinction method. It is based on the non-trivial size and wavelength dependence of the extinction coefficient ( $\beta$ ) of a parallel light beam passing through the medium of interest. The method has been successfully applied, among others, by Walters<sup>5</sup>, who investigated a system of steam droplets in a Laval nozzle. In the present study a modification of the method will be discussed applicable to unsteady objects. First, we will briefly recall some basic principles.

Let the droplets be distributed according to a normalized function of the radius  $\mathcal{F}(r)$ , with total number density  $n_p$ . Then the expression for the wavelength or wavenumber dependent extinction coefficient  $\beta(k)$  can be written as a Fredholm integral equation:

$$\beta(k) = n_p \int_0^{\infty} \pi r^2 \mathcal{F}(r) Q_{ext}(kr, m) dr \quad (5.1)$$

The extinction efficiency  $Q_{ext}$  is a function of the size parameter  $\alpha = kr$  and of the relative refractive index of the scattering droplets with respect to the surrounding medium. We shall assume, that the droplets are non-absorbing. The efficiency  $Q_{ext}$  is very well known and its properties are extensively discussed in the textbooks<sup>6,7,8</sup>. The basic principle of the

spectral extinction method for particle sizing is to determine the spectral variation of  $\beta$  and to deduce the unknown  $\mathcal{F}(r)$  by an inversion technique applied to Eq. (5.1). Some of the mathematical aspects of the inversion procedure are discussed by Bertero, De Mol and Pike<sup>9</sup>. It is clear that in general no unique solution for  $\mathcal{F}(r)$  can be obtained, so that some additional information on the distribution  $\mathcal{F}(r)$  is needed. This is an advantage of time dependent objects: the development in time of size distribution and number density is in most cases continuous and the physics of the process leading to the change in the droplet population will often yield some additional information.

There are several different ways to tackle the problem of inversion, as was already discussed, among others, by Walters<sup>5</sup>. Making use of the expected smoothness of the size distribution function it is possible to apply a direct discretised inversion technique in combination with a minimization of the second derivative of  $\mathcal{F}$  with respect to  $r$ , which is called the method of Philips and Twomey. The method may yield good results, but it is a disadvantage that an arbitrary smoothing parameter has to be chosen, the value of which strongly affects the final result. An alternative is to use a trial function which depends on a parameter vector  $\vec{d}$  and to determine the parameter  $\vec{d}_0$  that gives the best fit to the actually observed  $\beta(k)$ . We have adopted this method as a basis for particle sizing.

As was shown by Mugele and Evans<sup>10</sup>, it is advantageous to specify the distribution of particle sizes as a normalized Gauß-function of an auxiliary variable  $y$ , which is some monotonic function of radius  $r$ :

$$\mathcal{F}(r) = \mathcal{G}(y) \frac{dy}{dr} \quad (5.2)$$

$$\mathcal{G}(y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\epsilon}} e^{-(y-\epsilon^2)^2/(2\epsilon^2)} \quad (5.3)$$

When we take  $y = \ln(r/r_m)$ , then the well known Zeroth Order Log-normal Distribution (ZOL) is obtained, which has a maximum at the modal radius  $r_m$ , and with a relative width parameter  $\epsilon$ :

$$\mathcal{F}_z(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\epsilon r_m}} e^{-(y^2+\epsilon^4)/(2\epsilon^2)} \quad (5.4)$$

Two other distribution functions were taken as trial functions: a modification of the ZOL distribution and the so-called Upper Limit Distribution Function (ULDF), introduced by Mugele and Evans<sup>10</sup>. Both distributions allow for a-symmetry.

The AZOL distribution is obtained by adding to the ZOL distribution a function which is anti-symmetric in the parameter  $(y - \epsilon^2)$ :

$$\mathcal{F}_a(r) = \mathcal{F}_z(r) \left( 1 + \arctan\left(S \frac{y - \epsilon^2}{\sqrt{2\pi\epsilon}}\right) \right) \quad \text{with } y = \ln(r/r_m). \quad (5.5)$$

The parameter  $S$  is a measure for the skewness of the distribution.

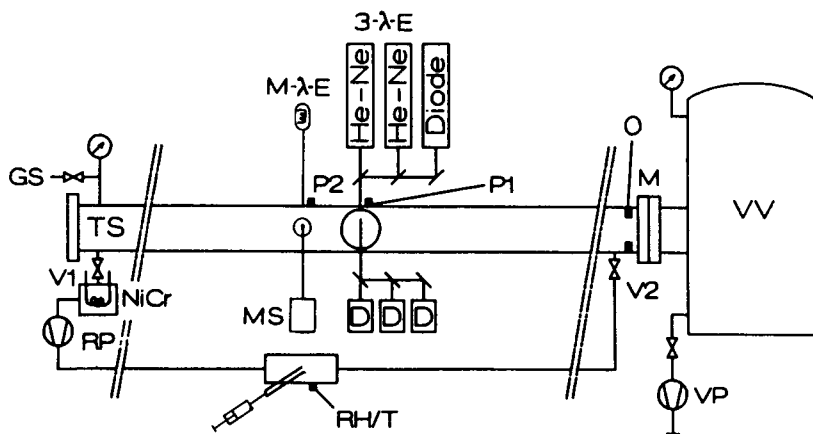
The upper limit distribution function ( $\mathcal{F}_u(r)$ ) is obtained by taking:

$$y = \ln\left(\frac{r}{r_m} \frac{r_{mx} - r_m}{r_{mx} - r}\right), \quad r < r_{mx} \quad (5.6)$$

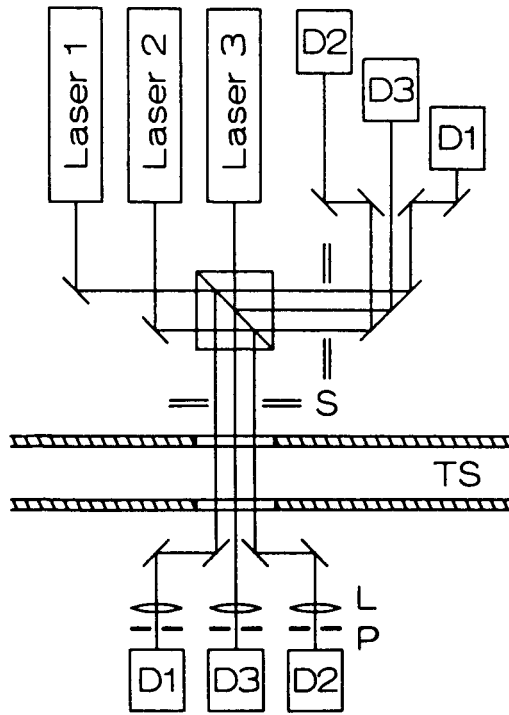
and inserting this into eq. (5.3). If  $r_{mx}/r_m \rightarrow \infty$ , then this distribution reduces to a ZOL distribution. At this point some remarks have to be added. Mugele and Evans<sup>10</sup> did not primarily consider the numerical size distribution, but the distribution of droplet volume. Later, Roberts and Webb<sup>14</sup>, investigated the properties of the so-called ULDF, which was attributed to Mugele and Evans, but was for unknown reasons modified such, that the original attractive normalizing property was lost. It is this modified function that attracted attention. We will not follow this line here and apply the original ideas of Mugele and Evans to the numerical size distribution instead, as was explained before. Finally, all distributions reduce to the delta-function which describes the monodispersed fog if  $\epsilon \rightarrow 0$ :  $\mathcal{F}_\delta(r) = \delta(r - r_m)$ .

## 5.2 Three-wavelengths method and multi-wavelengths method.

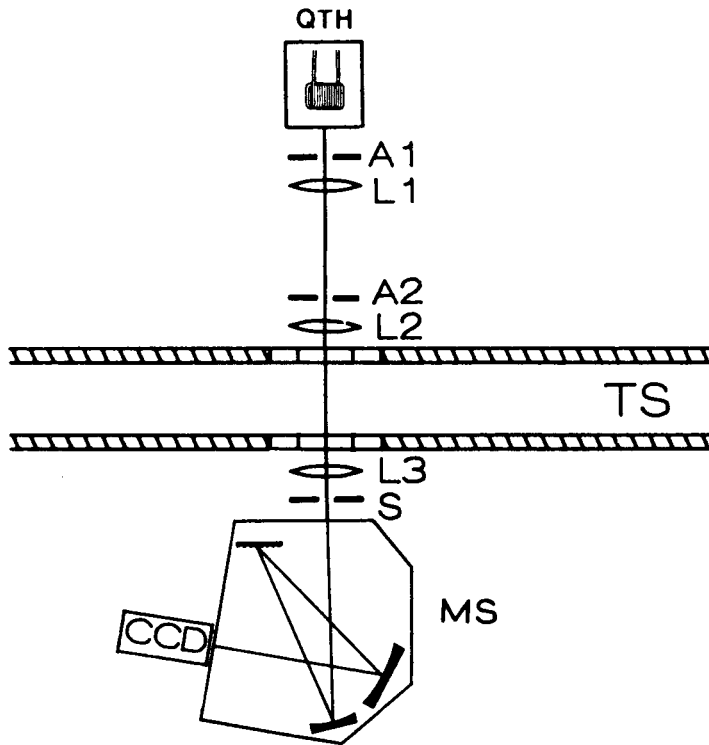
Let us assume first that the fog can be considered as monodispersed. In that case  $\beta(k)$  equals  $n_p \pi r^2 Q_{ext}(kr, m)$  with only two parameters  $r$  and  $n_p$ . Measuring  $\beta$  at two different wavelengths and taking the ratios of both values yields a measurable quantity that only depends on particle size. Once the particle size is found, the value of  $n_p$  then follows from one of the measured values of  $\beta$ . This is the so called dispersion quotient method that was first applied by Teorell<sup>11</sup> and that was later improved by Wittig<sup>12</sup> et al.. We modified this method to include the finite width of the particle size distribution by assuming this distribution to be log-normal. The parameters to be determined now are the modal radius  $r_m$ , the relative width  $\epsilon$  and the particle number density  $n_p$ . This can be done by simultaneously measuring the extinction coefficients at three different wavelengths. The particle number density is easily eliminated by introducing two pairs of ratios of extinction coefficients  $\beta_{ij} = \beta_i/\beta_j$ . The two extinction ratios then define a phase plane in which curves can be drawn of constant  $\epsilon$  with  $r_m$  as a parameter.



Figuur 5.2: Schematic of the expansion tube



Figuur 5.3: The three-wavelengths extinction set-up (3E)



Figuur 5.4: The multi-wavelengths extinction set-up (ME)



An example is shown in Fig. 5.1 for the wavelengths  $\lambda_1 = 632.8$  nm,  $m_1 = 1.3318$ ,  $\lambda_2 = 807$  nm,  $m_2 = 1.3282$  and  $\lambda_3 = 1152$  nm,  $m_3 = 1.3226$ . The outer boundary corresponds to a value of  $\epsilon = 0.02$ , while the inner boundary corresponds to a value  $\epsilon = 0.22$ . The curve corresponding to a monodisperse distribution shows an oscillatory character caused by the ripples in the extinction efficiency and will be shown later. For very small modal radii, all curves coincide. The time history of a fog consisting of growing or evaporating droplets can be represented as a trajectory in this  $\beta$ -plane. First results obtained with this method were reported by Smolders<sup>13</sup> et al.. The time dependent values of  $r_m$  and  $\epsilon$  were found by interpolation. If the modal radius is smaller than some critical value, about  $0.8 \mu\text{m}$  in the present example, then its value can only be deduced from the measured extinction signals when the other two parameters are known.

The fully time resolved three-wavelengths extinction method for particle sizing is very suitable to give a quick first impression of particle size and of the variance in size. Obviously, it is not possible to verify the quality of the trial function  $\mathcal{F}$  unless  $\epsilon$  is very small. Therefore, the method has been supplemented by determining the full extinction spectrum of white light in the wavelength interval of 400 to 900 nm at a series of discrete intervals of time. In practice, this is done by measuring  $\beta_i$  by means of a spectrometer-CCD combination at a set of equidistant wavelength values  $\lambda_i$ . Then we introduce a trial function  $\hat{\mathcal{F}}(r, \vec{d})$  with parameter vector  $\vec{d}$ . The best fit for  $\vec{d}$  is obtained by minimizing the residu:

$$R(\vec{d}) = \sum_i \left( \frac{\beta(k_i)}{\bar{\beta}} - \frac{I_i}{\bar{I}} \right)^2, \quad (5.7)$$

where a bar denotes averaging over the wavelength, and with the integral  $I$  defined as:

$$I_i = \int_0^{\infty} \pi r^2 \hat{\mathcal{F}}(r, \vec{d}) Q_{ext}(k_i, m) dr. \quad (5.8)$$

With this procedure the number density  $n_p$  is first eliminated.

The numerical procedure to evaluate the residu can be simplified, when the dependence of the extinction efficiency  $Q_{ext}$  on the refractive index  $m$  can be ignored. Then the integral in Eq. (5.1) is rewritten in terms of the size parameter  $\alpha = kr$ . Taking the ULDF as an example, and defining  $\alpha_{mx} = kr_{mx}$ , we obtain:

$$I_i = \frac{1}{k_i^3} \int_0^{\alpha_{mx}} \alpha^2 \mathcal{F}_u(\alpha, \epsilon, k_i r_m, k_i r_{mx}) Q_{ext}(\alpha, m_0) d\alpha. \quad (5.9)$$

The extinction efficiency  $Q_{ext}$  is evaluated and tabulated for a large number of discrete values  $\alpha_j$ . The integral is replaced by a summation with the trapezoidal rule. Standard numerical methods are used to determine the minimum value of the residu and the corresponding optimum values of the parameters involved.

### 5.3 Description of the experimental set-up

The processes of the formation and growth of droplets were studied by means of an expansion wave tube, described earlier<sup>15</sup>, and which is schematically shown in Fig. 5.2.

The test section consists of a tube with a length of 10.58 m and with a square cross-section of  $0.1 \times 0.1 \text{ m}^2$ . A polyester membrane separates the test tube from a large vessel, initially at vacuum. The test gas is a mixture of nitrogen and water vapour at a total initial pressure of 1 bar approximately. The water vapour is thoroughly mixed with the nitrogen gas using a separate re-circulation system with a volume flow of 50 ltr/min. The vapour pressure is measured with a relative humidity meter RH (Humicap 124B, Vaisala). Condensation nuclei, chromium-oxide particles with a radius of  $15 \pm 5 \text{ nm}$  are added by heating a Ni-Cr wire to a temperature of about 1300 K. The heating wire is part of the recirculation system. By bursting the membrane separating the test tube from the vacuum vessel, an unsteady expansion wave is formed, running into the tube. The strength of this wave is controlled by the orifice between test tube and vacuum vessel. The gas expands adiabatically during the passage of the wave front, and the degree of saturation will exceed unity, so that dropwise condensation of water vapour occurs. The droplet concentration equals the concentration of nuclei and can be varied by changing the duration of electrically heating the metal wire. The width of the particle size distribution appears to depend on droplet concentration, i.e. a relative low number density results into an almost monodispersed cloud of droplets.

An important parameter is the pressure, which is measured by means of a piezo-electric transducer (Kistler 603B, coated).

The three-wavelengths set-up is schematically shown in Fig. 5.3. The light sources used are two He-Ne lasers (Spectra-Physics, Stabilite 120, 5mW), with wavelengths of 632.8 and 1152 nm and a diode laser (Philips N515CQL) with a wavelength of 807 nm. The Gaussian  $e^{-2}$  diameter of the two He-Ne lasers is 0.8 mm, while the diode laser beam diameter is reduced from 2.4 to 0.8 mm. Reference beams were used to monitor the beam intensities of both He-Ne lasers during the expansion experiment. The light beams pass the test tube at the same axial position, 4.18 m from the orifice, 7 mm apart in lateral direction. Their transmittancies are recorded by means of photodiodes (Telefunken BPW 34, EG&G YAG-100). The unwanted contribution of scattered light to the photodiode signals was kept small by using adjustable lens-pinhole combinations (focal length 30 cm, pinhole diameter 1mm). The wavelength resolved light extinction set-up is a modification of that used by Dobbins and Jizmagian<sup>16</sup>, and is shown in Fig. 5.4.

The light source is a 50 W QTH lamp (Oriel). The beam passes the aperture  $A_1$ , with a diameter of 1.5 mm, a collecting lens  $L_1$  with  $f_1 = 65 \text{ mm}$ , a second orifice  $A_2$  which determines the beam diameter to be 6.5 mm, and a lens  $L_2$  with  $f_2 = 350 \text{ mm}$ . After passing the test tube at an axial distance of 4.78 m the beam is focused on the entrance slit ( $0.1 \times 3.0 \text{ mm}^2$ ) of a spectrometer (Oriel, 77400 Multispec). The grating has 400 lines/mm and a spectral resolution of 3.5 nm. The spectral range is 400–1100 nm. At the exit slit a CCD-array is mounted (Texas Instruments TC103) with 2048 sensitive elements and an effective length of 25.6 mm. This length is insufficient to cover the whole spectral range of the spectrometer, so that in practice this range is limited to 400–900 nm. The

spectral range is further reduced since the signal to noise ratio in the wavelength interval of 400–450 nm appeared to be too low for accurate measurements.

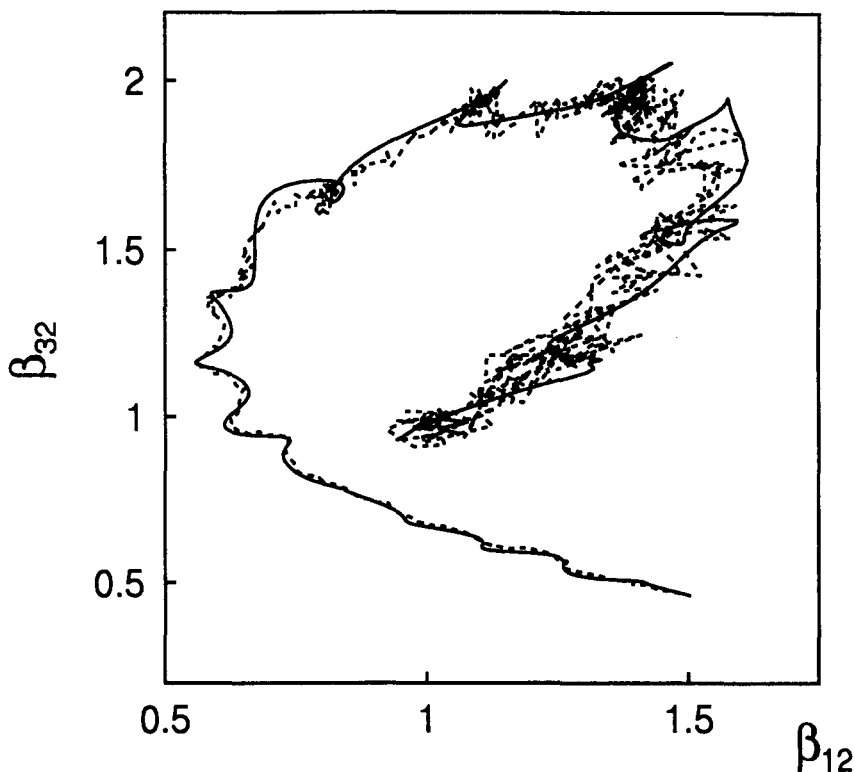


Figure 5.5: Trajectory followed by an almost monodispersed fog together with the theoretically expected monodispersed contour in the  $\beta$ -plane

The exposure time of the CCD-device, that depends on the typical clock frequency, is 1.57 ms. The integrated charge of the exposed pixels is transferred by means of a shift register and stored in a transient recorder (Lecroy 8013), that is externally driven by means of the CCD-clock. In one experimental run a series of 100 extinction spectra can be recorded.

## 5.4 Experimental results

An experimental run with a low droplet concentration has been performed, which resulted into an almost monodispersed fog. In Fig. 5.5 the trajectory of the fog in the  $\beta$ -plane is shown together with the theoretical result for a pure monodispersed fog. The ripples in the extinction efficiency cause oscillations in the theoretical curve. The growing droplet population, represented by the broken line, enters the  $\beta$ -plane in the lower right corner, follows the theoretical line closely, and shows a similar oscillatory structure as the theoretical curve. When time proceeds, and droplet size increases, the experimental curve tends towards higher values of the width parameter  $\epsilon$ . By inspection and comparison of Figs. 5.1 and 5.5, it is found that the value of  $\epsilon$  is small throughout the whole experiment with

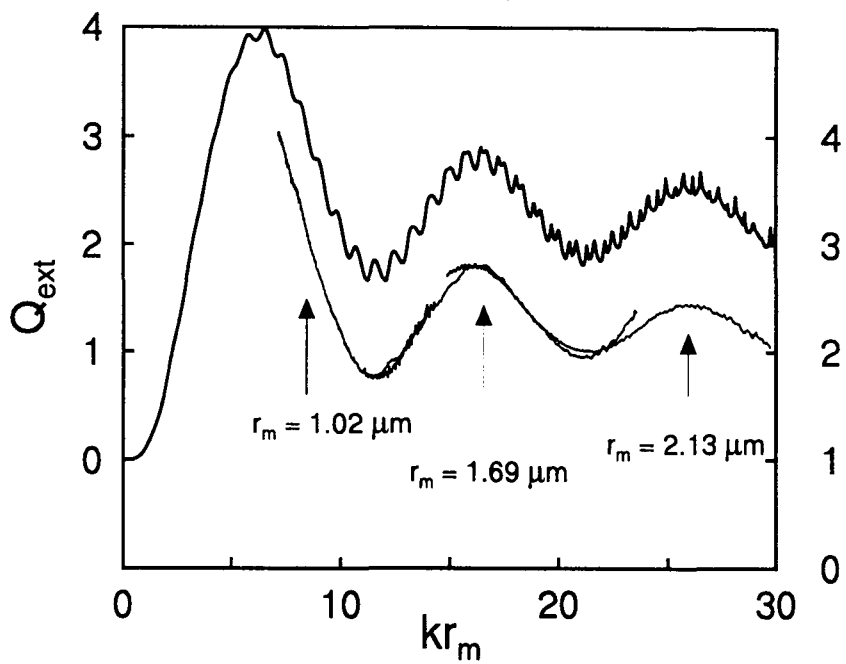


Figure 5.6: Three reduced extinction spectra along with  $Q_{ext}$  as a function of the size parameter  $\alpha = kr$

a lowest value of less than 0.01 and with a maximum at the end of the experimental run of about 0.03. With these very low values of  $\epsilon$ , it is not possible to apply straightforward interpolation. It is only because of the shape of the whole trajectory of the growing droplets in the  $\beta$ -plane, that we can conclude about the smallness of  $\epsilon$ .

We now come to the results of the multi-wavelengths extinction method (ME). Three different extinction spectra are shown in Fig. 5.6.

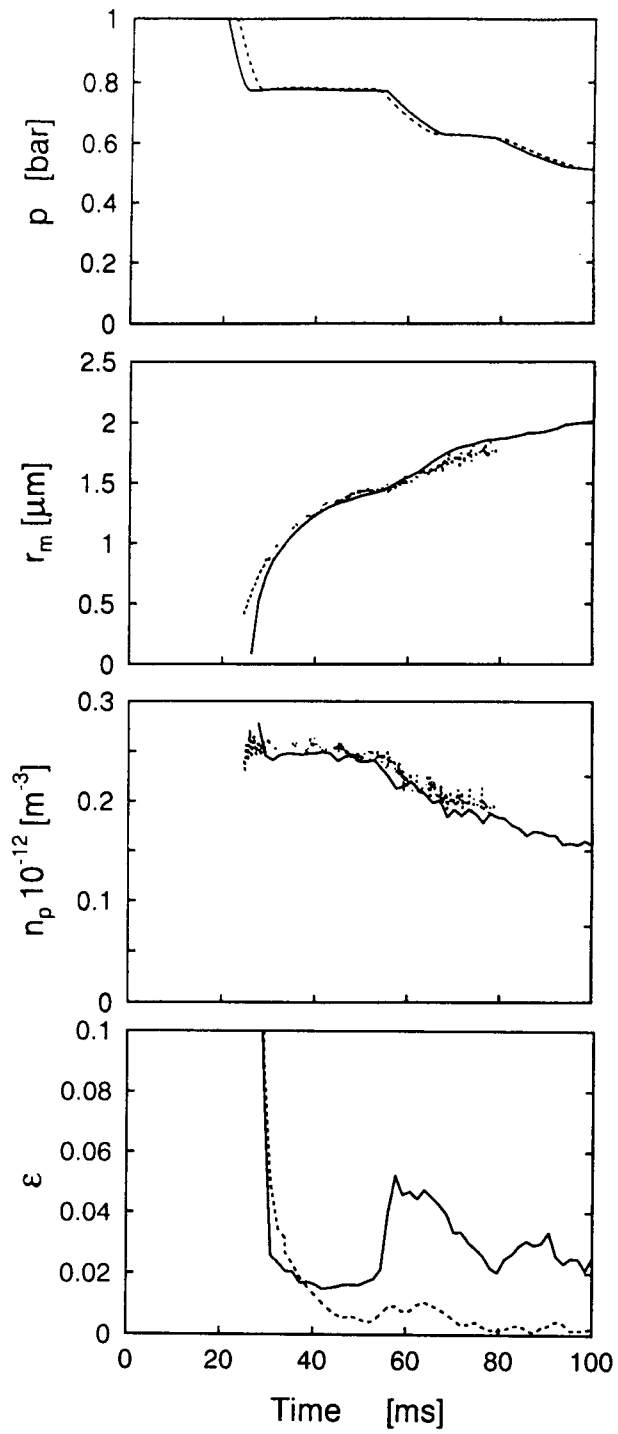
In order to make a comparison with theory possible, we first determined the three parameters of a ZOL distribution:  $r_m$ ,  $n_p$ , and  $\epsilon$ . Then we are able to plot the value of  $\beta/n_p\pi r_m^2$  versus  $kr_m$ . The results can directly be compared with the theoretical extinction efficiency that is also shown in the same picture. The three overlapping experimental spectra reconstruct the extinction efficiency quite well, pointing again to the small variance in droplet size.

The time histories of pressure, droplet size, number density, and  $\epsilon$  are shown in Fig. 5.7a-d. The pressure signal clearly shows the passages of incident and reflected expansion wave fronts. The droplet size deduced from the 3- $\lambda$  extinction method (3E) agrees quite well with the results obtained with ME. Both set-ups are not at the same axial position, they are separated by a distance of 0.6 m, which explains the time lag of 1.7 ms. The reflected wave arrives first at the measuring position of ME, so that then the time lag between the two signals is inverted. The droplet number density follows qualitatively the pressure; the two wave fronts and the constant state in between can be recognized. The initial nuclei concentration can be deduced with good accuracy:  $3.0 \pm 0.1 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$ . The width parameter, obtained with ME, appears to be quite large initially, then strongly decreases towards a minimum of 0.02 and attains a second maximum of 0.05 at  $t = 60 \text{ ms}$ . This seems to be contradictory to the smallness of  $\epsilon$  suggested by 3E. The explanation is that an apparent broadening of the size distribution is caused by droplet growth during the exposure time  $t_e$  of 1.57 ms. An estimate of this apparent width  $\epsilon_a$  is given by,

$$\epsilon_a = \frac{t_e}{r_m \sqrt{2\pi}} \frac{dr_m}{dt}. \quad (5.10)$$

This apparent width due to droplet growth is also shown in Fig. 5.7d. The large initial value of  $\epsilon$  and its increase caused by the second expansion can be explained by droplet growth. Moreover, the spectral resolution mentioned before with a spectral half width of 3.5 nm contributes to a virtual increase in  $\epsilon$ -value of about 0.006. Because the width of the distribution functions in this experiment is small, it is not meaningful to speculate about their actual shape.

We will now concentrate on a single spectrum whose expected width parameter  $\epsilon$  is relatively large. This spectrogram is selected to investigate whether a significant skewness of the distribution function could be determined. The initial number density of the droplets is high. Results of other experimental runs indicate that the width parameter  $\epsilon$  tends to increase with increasing initial droplet density. Furthermore, the spectrum is recorded a rather long time after the passage of the first expansion wave ( $\approx 150 \text{ ms}$ ). Then, thermal boundary layers have got ample time to develop, which may affect the shape of the distribution function. The initial droplet density of the experiment was  $1.8 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$ . Fitting



Figuur 5.7: The time history of pressure  $p$ , modal radius  $r_m$ , droplet number density  $n_p$  and width parameter  $\epsilon$ , measured simultaneously with both methods.

trial function	$Q_f \times 10^3$	$SD_{fit}/SD_{noise}$
$\delta$	51	2.8
ZOLD	6.5	0.35
AZOLD	6.5	0.35
ULDF	7.4	0.41

Table 5.1: The quality factors obtained by the different trial functions

the extinction spectrum to a ZOL distribution yields a droplet radius of  $1.36 \mu\text{m}$ , a number density of  $0.57 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$  and an  $\epsilon$ -value of 0.07.

Using this spectrum we will now investigate whether the droplet distribution is described better by the other trial functions (AZOL, ULDF) than it is by the ZOL distribution. We will also investigate the accuracy of the ME method.

To compare different fits with each other, we first need to introduce a quality for the fit. We define a quality ratio ( $Q$ ) as the ratio between the standard deviation of the residu of a fit and the standard deviation of the measured spectrum with respect to its average value,

$$Q = \frac{SD_{fit}}{SD_{spec}} = \frac{\sqrt{\sum(\beta_i - I_i)^2}}{\sqrt{\sum(\beta_i - \bar{\beta})^2}}. \quad (5.11)$$

The quality ratio is zero if the fit to the experimental data is perfect, while  $Q$  is equal to unity no improvement is obtained by the fit procedure. To give some relevant reference to  $Q$ , one may relate it to the noise in the spectrum. This noise is measured by performing a “dry” experiment in which no condensation occurs. The standard deviation of the noise is calculated and will be denoted as  $SD_{noise}$ . A representative value of  $SD_{noise}$  is found to be  $0.018 \text{ m}^{-1}$ . The ratio between  $SD_{fit}$  and  $SD_{noise}$  is a measure for the amount of “unexplained” signal that is still left after the fit. If  $SD_{fit}/SD_{noise}$  is about unity, one can state that the fit explains the extinction spectrum adequately.

First we shall compare the quality ratios  $Q$  that were obtained by application of the different trial functions. In table 5.1 the results are presented. As expected, the best results are obtained with functions that allow for some variance in size. The best fits are obtained by means of the ZOL and AZOL distribution. It is remarkable that the quality of the ULDF fit is somewhat less than that of the ZOL and AZOL distribution. In fact this means that the numerical procedure was not able to find the best fit of the ULDF, because the ZOL distribution is contained within ULDF. When the “best fit” distribution functions of the different trial functions are plotted in one figure (See fig. 5.8.) we find that they all are approximately of the same shape.

In order to estimate the accuracy of the ME method, we will now investigate in more detail the dependence of the quality ratio on the parameters of the trial functions involved. We will describe the procedure for the AZOL distribution. Then the optimum parameters are:  $r_m = 1.36 \mu\text{m}$ ,  $\epsilon = 0.074$  and  $S = 0.01$  which corresponds to a quality ratio of 0.0065. In

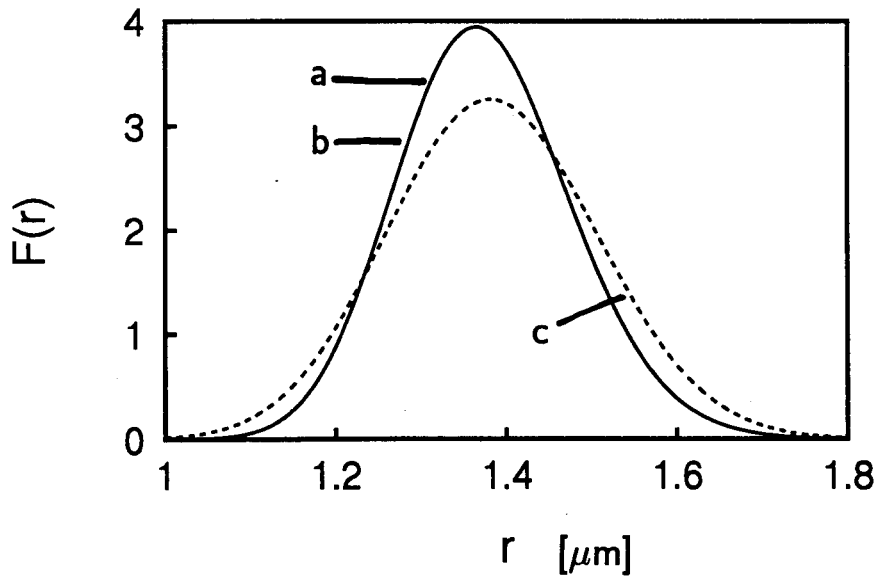


Figure 5.8: Best fit distribution function as obtained after application of three different trial functions: a: ZOL; b: AZOL; c: ULDF.

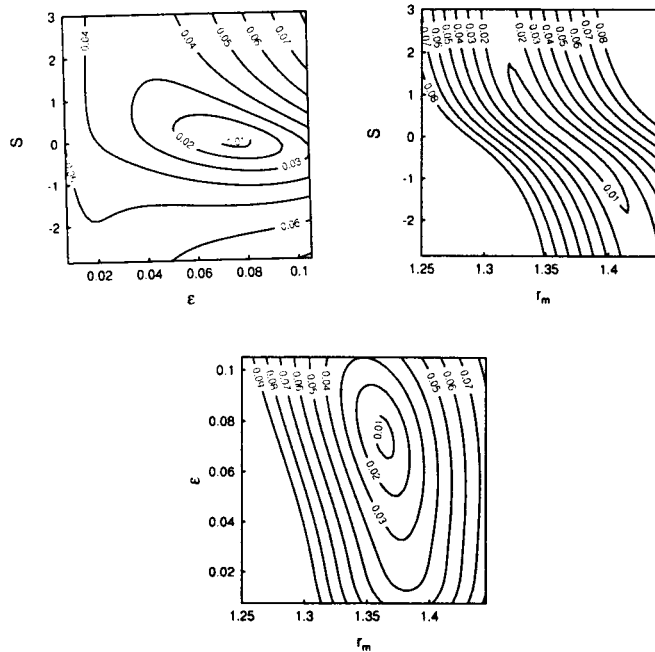
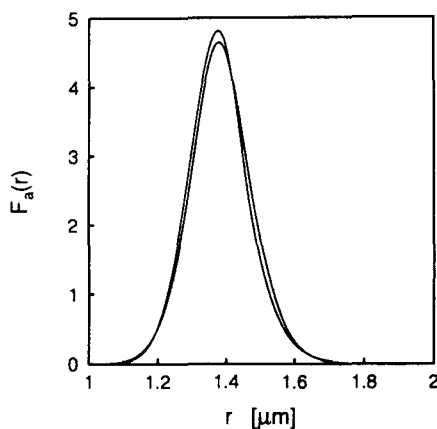


Figure 5.9: Contour plots of the quality factor obtained by AZOL distribution as a trial function. The three intersections through the best fit value in parameter space are shown.



fig. 5.9 the dependence of the quality ratio on  $r_m$ ,  $\epsilon$ , and  $S$  is displayed by drawing intersections through the optimum point in  $(r_m, \epsilon, S)$ -space. Contour plots are shown for a set of discrete values of the quality ratio. It is interesting to note that the parameters  $r_m$  and  $S$  appear to be strongly correlated, while  $\epsilon$  can be regarded as an independent parameter. As an upper limit for the error, contours with a value of about twice the minimum are taken. We will take the 0.01 contour as the error-indicator. The uncertainty in  $\epsilon$  is rather small. Relative large variations in  $r_m$  and  $S$  are possible but these variations are not independent. The upper value of  $r_m$  with corresponding negative skewness yields about the same distribution as the lower  $r_m$  value with corresponding positive skewness. This is illustrated in fig. 5.10 where we have plotted



Figur 5.10: The most extreme AZOL distributions that are feasible within the defined margin of error.

these size distributions for the values:  $(r_m = 1.42, S = -2)$  and  $(r_m = 1.33, S = 1.7)$ . The conclusion has to be that no significant skewness is found. We also made similar contour plots for the ZOL distribution. The parameters in this distribution are almost independent. By means of these contour plots the error bounds of  $r_m$ ,  $\epsilon$  and  $n_p$  were determined. These error bounds are indicated in fig. 5.7.

## 5.5 Conclusion

Spectrally resolved light extinction methods have successfully been applied to time dependent objects. Two different versions of the method were discussed. The first is based on the simultaneous determination of the extinction coefficient of three different wavelengths. With the second one the extinction spectrum in a wide spectral range can be recorded at a series of 100 time intervals. The development in time of a fog formed by condensation on chromium oxide particles is studied with both set-ups.

It appeared to be possible to form a nearly mono-dispersed fog with a relative width of the size distribution of less than 0.01. This could be concluded directly from the 3- $\lambda$  method, by explicitly using the time dependence of the fog and by mapping the two independent ratios of the extinction coefficient as a trajectory in the so called  $\beta$ -plane. For these almost monodispersed objects, the 3- $\lambda$  method appears to be a powerful one for droplet sizes in the range of 0.4 to 1.8  $\mu\text{m}$  radius for the wavelengths used. Of course this range can be modified in principle by adapting the wavelengths. Also the spectrally resolved method appeared to be valuable. Modal radii and number densities could be obtained with a good accuracy. The determination of the variance in size appeared to be restricted by the finite exposure time of the CCD-array and the growth rate of the droplets. Several trial functions were used to investigate the recorded spectra, including functions that allowed for a skewness in the size distribution. All extinction spectra presented were very well described by means of the Zeroth Order Log-normal distribution. No significant skewness of the distribution was found. The quality of the fits that could be made were very satisfactory. It is not to be expected that other trial functions would give better results.

## Acknowledgement

The authors are indebted to mr. E.J. van Voorthuisen for his essential contribution to the electronic hardware of the ME method, and to mr. H.J. Jager for his continuous and valuable assistance. The contributions of B. Prast and E. Korevaar to the development of the ME method are very much appreciated.

## References

1. S.Kotake, I.I.Glass, *Prog. Aerospace Sc.*,19,129-196(1981)
2. P.P. Wegener, P.Mirabel, *Naturwissenschaften*,74,111-119(1987)
3. G.Gouesbet, Gréhan, *Optical Particle Sizing*,
4. N.E.Tayali, C.J. Bates, *Flow Meas. Instrum.*,1,77-105(1990)
5. P.T.Walters, *Appl. Opt.*,19,2353-2365(1980)
6. H.C. van der Hulst, *Light Scattering by Small Particles* (Wiley,New York, 1969)
7. M.Kerker, *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation* (Academic Press, New York,1969)
8. C.F.Bohren, D.R. Huffmann, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley, New York,1983)
9. Bertero, de Mol, Pike
10. R.A.Mugele,H.D.Evans, *Ind. Eng. Chem.*,43,1317-1324(1951)
11. T.Teorell, *Kolloid Z.*,54,150(1931)
12. S.Wittig, R.A.Zahoranski, Kh.Sakbani, *J.Aerosol Sc.*,12,183(1981)
13. H.J. Smolders, J.F.H.Willems, H.C.de Lange, M.E.H.van Dongen, in *Proc. 17th. Int. Symp. Shock Waves and Shock Tubes*, Lehigh 1989, Y.W.Kim, Ed.,(A.I.P.,1989)
14. J.H.Roberts, M.J.Webb, *AIAA J.*,2,583-585(1964)
15. H.W.J.Goossens, J.W.Cleijne, H.J.Smolders, M.E.H.van Dongen, *Exp. Fluids*,6,561(1988)
16. R.A.Dobbins, G.S.Jizmagian, *J.Opt.Soc.Am.*,56.1351-1354(1966)

# Hoofdstuk 6

## Conclusies en aanbevelingen

Een viertal optische meetmethoden voor de bepaling van neveleigenschappen zijn onderling vergeleken. De nevel werd verkregen door middel van heterogene condensatie in een expansie-golfbuis. Met de  $3\text{-}\lambda$  extinctie-methode kunnen druppelstraal en druppeldichtheid nauwkeurig in de tijd worden gevolgd. De bepaling van de spreiding in druppelgrootte is minder nauwkeurig. Toch bleek het mogelijk met deze methode vast te stellen dat nevels konden worden verkregen met een zeer geringe spreiding in de grootte-verdeling ( $\epsilon < 0.01$ ). De resultaten verkregen met de  $3\text{-}\lambda$  extinctie-opstelling komen goed overeen met die van de multi- $\lambda$  extinctie-opstelling. Met deze laatste is het mogelijk de gemiddelde druppelstraal en de druppeldichtheid te bepalen. Tevens is het mogelijk de veronderstelde vorm van de grootteverdeling van de druppels te testen. Gebleken is dat in onze opstelling, met heterogene condensatie, de nevel uitstekend wordt beschreven door de ZOL-verdeling. Er kon geen significante scheefheid van de verdeling worden aangetoond. Met de multi- $\lambda$  extinctie-methode kan de (effectieve) spreiding in grootte goed worden bepaald. De gemeten spreiding werd voor een deel veroorzaakt door de groei van de druppels gedurende de opnametijd van één spectrum (1,5 ms). De methode kan verder worden verbeterd door het apparaatprofiel van de spectroscop uit de extinctie-spectra te filteren.

Met de  $90^\circ$  strooilicht-opstelling zijn uiterst nauwkeurige druppelgroei-curves bepaald voor druppelstralen variërend tussen de 0.2 en 5  $\mu\text{m}$ . Van belang is dat tijdens een meting de variatie in grootte-parameter zodanig groot is dat de rangnummers van de waargenomen minima en maxima ondubbelzinnig kunnen worden vastgesteld. Daarom alleen al is het noodzakelijk dat het aantal waargenomen maxima en minima voldoende groot is. Het is uiteraard ook van belang voldoende meetpunten te hebben om gedetailleerde groeicurves te kunnen bepalen. In de praktijk is een aantal van 10 voldoende. Gaat men uit van een vaste dampfractie dan is de uiteindelijke druppelgrootte gerelateerd aan de kernenconcentratie. Voor waterdamp bleek de methode alleen goed te werken voor druppelconcentraties kleiner dan  $10^{12} \text{ m}^{-3}$ . Wanneer men alleen geïnteresseerd is in de gemiddelde druppelstraal dan is de  $90^\circ$  -strooilichtmethode qua nauwkeurigheid superieur aan alle andere onderzochte methodes.

Het is mogelijk om met behulp van het gelijktijdig detecteren van het over twee verschillende hoeken voorwaarts verstrooide licht, informatie te krijgen over de afmetingen van de

druppels. Toch werkt de methode zoals die is beschreven in hoofdstuk 4 nog niet volledig bevredigend. De reproduceerbaarheid laat nog te wensen over. De methode kan worden verbeterd door voorwaartse verstrooiing te combineren met achterwaartse verstrooiing. De vorm van het achterwaartse strooilichtsignaal (voor monotoon groeiende druppels met een relatief kleine spreiding) bevat behalve informatie over de druppelgrootte en de brekingsindex. Dat laatste is van belang omdat experimenten gepland worden aan condenserend aardgas waarbij de brekingsindex van de druppels niet bekend is.

# Referenties

- Abraham, F. 1974. *Homogeneous nucleation theory: the pretransition theory of vapor condensation*. Vol. Supplement 1 of *Advances in Theoretical Chemistry*. Academic Press, New York.
- Bohren, C. F., and D. R. Huffman. 1983. *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley & Sons.
- Bosschaart, K. 1992. Studie naar vloeistof injectiesysteem voor het inbrengen van damp in een expansie/schokbuis. S 1152, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.
- Braun, C. 1991. Druppelgroottebepaling met behulp van spectraal opgeloste lichtextinctie. afstudeerverslag, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.
- Kerker, M. 1969. *The scattering of light and other electromagnetic radiation*. Academic Press, New York.
- Korevaar, E. W. 1991. Twee optische methoden ter bestudering van een nevel. S 1073, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.
- Lahaye, R. 1990. Analyse van deeltjesdiameters door analyse van voorwaarts verstrooid licht. afstudeerverslag, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.
- Looijmans, K. 1990. Nucleatie en condensatie in binaire mengels met alkanen. afstudeerverslag, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.
- Mannens, F. 1985. Een ontwerp voor een kijker waarmee de diameter van kleine bolvormige deeltjes uit voorwaarts verstrooid licht bepaald kan worden. afstudeerverslag, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.
- Morgenstern, M. 1990. Homogeneous and heterogeneous nucleation in a wilson cloud chamber. Verslag naar aanleiding van een korte onderzoekers-opleiding, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.

Mugele, R., and H. Evans. 1951. Droplet size distribution in sprays. *Industrial and Engineering Chemistry*.

Muitjens, M. 1990. Homogene en heterogene condensatie in een adiabatisch expanderend gas/damp mengsel. afstudeerverslag, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.

Paikert, B. 1990. *Untersuchung der Kondensation und verdampfung ruhender Tropfen in Gas-Dampf-Gemischen mit Hilfe eines Stoßwellenrohres*. dissertation, Universität Essen, facultät Maschinentechnik.

Smolders, H. 1992. *Non-Linear wave phenomena in a gas-vapour mixture with phase transition*. Proefschrift, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.

Tayali, N., and C. Bates. 1990. Particle sizing techniques in multiphase flow: a review. *Flow. Meas. Instrum.*

van Beeck, J. 1992. Een reëel druppelgroeimodel, belicht in een binair mengsel. afstudeerverslag, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.

van de Hulst, H. C. 1981. *Light scattering by small particles*. Dover, New York.

van Dongen, M. 1990. Gasdynamica 1. Collegedictaat bij het college Gasdynamica.

Verheijen, A. A. 1986. Studie naar een nocr-aerosol in een schokbuis. S 774, TU Eindhoven, Faculteit Technische Natuurkunde, vakgroep Transportfysica.

Vietti, M. A., and B. G. Schuster. 1973. Laser scattering measurements of droplet growth in binary mixtures. *The Journal of Chemical Physics*.

# Bijlage A

## De Mie-theorie gedetailleerd

In deze bijlage worden de formules die belangrijk zijn voor de berekening van de amplitude functies en van de verschillende werkzame doorsneden gegeven. Tevens wordt de notatie vastgelegd. Voor de duidelijkheid is een figuur met de configuratie toegevoegd (Zie figuur A.1).

symbool	definitie en of omschrijving
$m$	Brekingsindex van het deeltje ten opzichte van het omringende medium. $m$ mag complex zijn.
$r$	Straal van het bolletje.
$R$	Afstand tot het bolletje.
$\alpha$	$= kr$ . $k$ is het golfgetal in het omringende medium.
$\beta$	$= m\alpha$ .
$\delta$	Hoek tussen het vlak van polarisatie en het vlak van verstrooiing.
$\theta$	Hoek tussen de golfvector van de invallende golf de golfvector van de verstrooide golf.
$\lambda$	Golflengte van de invallende golf in het omringende medium.
$I_0$	Intensiteit van de invallende wave.

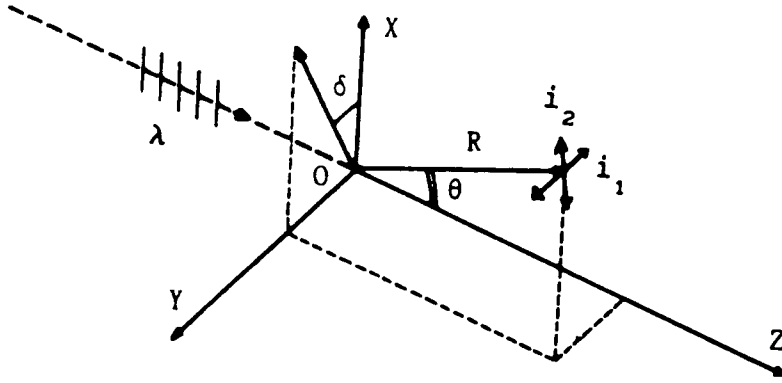
De verstrooide intensiteit wordt gegeven door:

$$I_s(\alpha, \theta, \delta) = I_0 \left( \frac{\lambda}{2\pi R} \right)^2 (i_1(\alpha, \theta) \sin^2 \delta + i_2(\alpha, \theta) \cos^2 \delta) \quad (\text{A.1})$$

De intensiteitsfuncties ( $i_1$  en  $i_2$ ) zijn gedefinieerd als het kwadraat van de modulus van de complex amplitude functies,

$$i_1 = |S_1|^2$$





Figuur A.1: Geometrie van het probleem

$$i_2 = |S_2|^2. \quad (\text{A.2})$$

De complexe amplitude functie ( $S_1$  en  $S_2$ ) zijn:

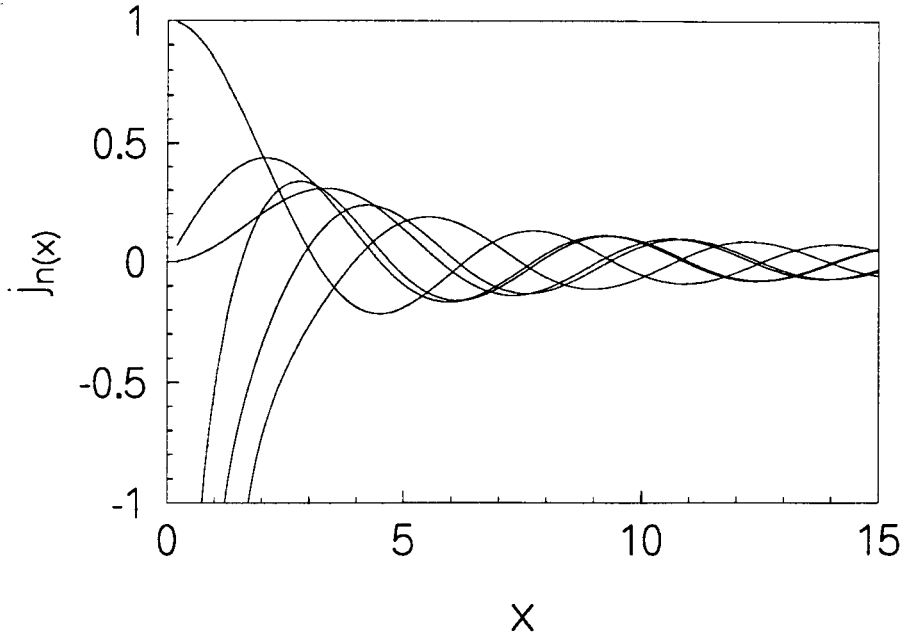
$$\begin{aligned} S_1(\theta, \alpha, m) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n(\alpha, m)\pi_n(\cos \theta) + b_n(\alpha, m)\tau_n(\cos \theta)] \\ S_2(\theta, \alpha, m) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n(\alpha, m)\tau_n(\cos \theta) + b_n(\alpha, m)\pi_n(\cos \theta)] \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

In de bovenstaande vergelijkingen zijn  $\pi_n(\cos \theta)$  en  $\tau_n(\cos \theta)$  gedefinieerd als,

$$\begin{aligned} \pi_n(\cos \theta) &= \frac{1}{\sin \theta} P_n^{(1)}(\cos \theta) \\ \tau_n(\cos \theta) &= \frac{d}{d\theta} P_n^{(1)}(\cos \theta). \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Waarin  $P_n^{(1)}(\cos \theta)$  de zogenaamde Legendre functies zijn.  $\theta$  is de strooihoek. De coëfficiënten  $a_n$  en  $b_n$  zijn gedefinieerd als:

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{\psi'_n(\beta)\psi_n(\alpha) - m\psi_n(\beta)\psi'_n(\alpha)}{\psi'_n(\beta)\xi_n(\alpha) - m\psi_n(\beta)\xi'_n(\alpha)} \\ b_n &= \frac{m\psi'_n(\beta)\psi_n(\alpha) - \psi_n(\beta)\psi'_n(\alpha)}{m\psi'_n(\beta)\xi_n(\alpha) - \psi_n(\beta)\xi'_n(\alpha)} \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$



Figuur A.2: De sferische Bessel-functies  $j_{-2}$ ,  $j_{-1}$ ,  $j_0$ ,  $j_1$  en  $j_2$  uitgezet tegen  $x$

De functies  $\xi$  and  $\psi$  in vergelijking A.5 zijn gelijk aan de zogenaamde Bessel-Ricatti functies, die gedefinieerd zijn als:

$$\begin{aligned}
 \psi(z) &= z j_n(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} J_{n+\frac{1}{2}}(z) \\
 \chi(z) &= -z n_n(z) = -\sqrt{\frac{\pi z}{2}} N_{n+\frac{1}{2}}(z) \\
 \xi(z) &= \psi(z) + i\chi(z)
 \end{aligned}
 \tag{A.6}$$

De functies  $n_n$  en  $j_n$  zijn als volgt aan elkaar gerelateerd:

$$n_n(z) = (-1)^n j_{-n}(z) \tag{A.7}$$

Figuur A.2 presenteert  $j_n(z)$  voor verschillende  $n$ .

**Uitdrukkingen voor de verschillende werkzame doorsneden**

$$\begin{aligned}
 C_{abs} &= C_{ext} - C_{sca} \\
 C_{ext} &= \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \text{Re}(a_n + b_n) \\
 C_{sca} &= \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \{ |a_n|^2 + |b_n|^2 \}
 \end{aligned}
 \tag{A.8}$$