

# VU Research Portal

## Spontaneous Rayleigh-Brillouin Scattering in Molecular Gases

Wang, Y.

2019

### **document version**

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

### **citation for published version (APA)**

Wang, Y. (2019). *Spontaneous Rayleigh-Brillouin Scattering in Molecular Gases*.

### **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
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

### **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.

### **E-mail address:**

[vuresearchportal.ub@vu.nl](mailto:vuresearchportal.ub@vu.nl)

# Samenvatting

---

In dit proefschrift wordt aangetoond dat Rayleigh-Brillouin (RB) verstrooiingsprofielen met een hoge signaal-ruisverhouding gemeten kunnen worden met een hoge spectrale resolutie. De RB-spectra, gemeten voor verschillende parameters zoals druk, temperatuur, invallende golflengte en verstrooiingshoek, vormen een krachtig hulpmiddel voor het bestuderen van de thermisch dynamische eigenschappen en eigenschappen van gastransport geassocieerd met de collectieve beweging en relaxatieverschijnselen in het gas. Verschillende modellen zijn beschreven om deze complexe beweging met akoestische excitatie en relaxatie te beschrijven. Vier verschillende modellen, die van toepassing zijn onder bepaalde omstandigheden, zijn experimenteel getest en relevante gastransportparameters zijn afgeleid. In het bijzonder is de bulkviscositeit, een moeilijk te bepalen parameter, is bepaald.

In hoofdstuk 2 worden twee meetopstellingen beschreven: een complexe met UV-licht en een eenvoudigere met groen licht. De optische componenten en hun kenmerken worden in detail beschreven en de methode voor gegevensverzameling en -verwerking wordt uitgelegd.

In hoofdstuk 3 wordt de bulkviscositeit van  $\text{SF}_6$  verkregen door de gemeten RB-verstrooiingsgegevens onder verschillende omstandigheden te vergelijken met drie modellen: het Tenti-S6 model, het ruwe bol-model en het hydrodynamische model van Hammond-Wiggins. Voor de RB-verstrooiing in het Knudsen-regime is het hydrodynamische model niet geschikt en we veronderstellen dat de verschillen tussen deze drie modellen en experimentele gegevens worden het gebruik van de ideale gaswet voor de modellen.

In hoofdstuk 4 worden RB-verstrooiingsspectra van  $\text{N}_2\text{O}$  vergeleken met het Tenti-S6 model, het zes impulsen Grad-model, het hydrodynamische model van Hammond-Wiggins en het ruwe bol-model. Uit de resultaten blijkt de bulkviscositeit drukafhankelijk te zijn. Het zes impulsen Grad-model presteert even goed als het Tenti-S6 model. Het ruwe bolmodel is aangetoond niet van toepassing te zijn gezien de niet-sferische en niet-symmetrische geometrische structuur van het  $\text{N}_2\text{O}$  gas.

Hoofdstuk 5 toont een andere studie van RB-verstrooiing, namelijk van de lineaire structuur van het symmetrische molecuul  $\text{CO}_2$ . De spectra van  $\text{CO}_2$

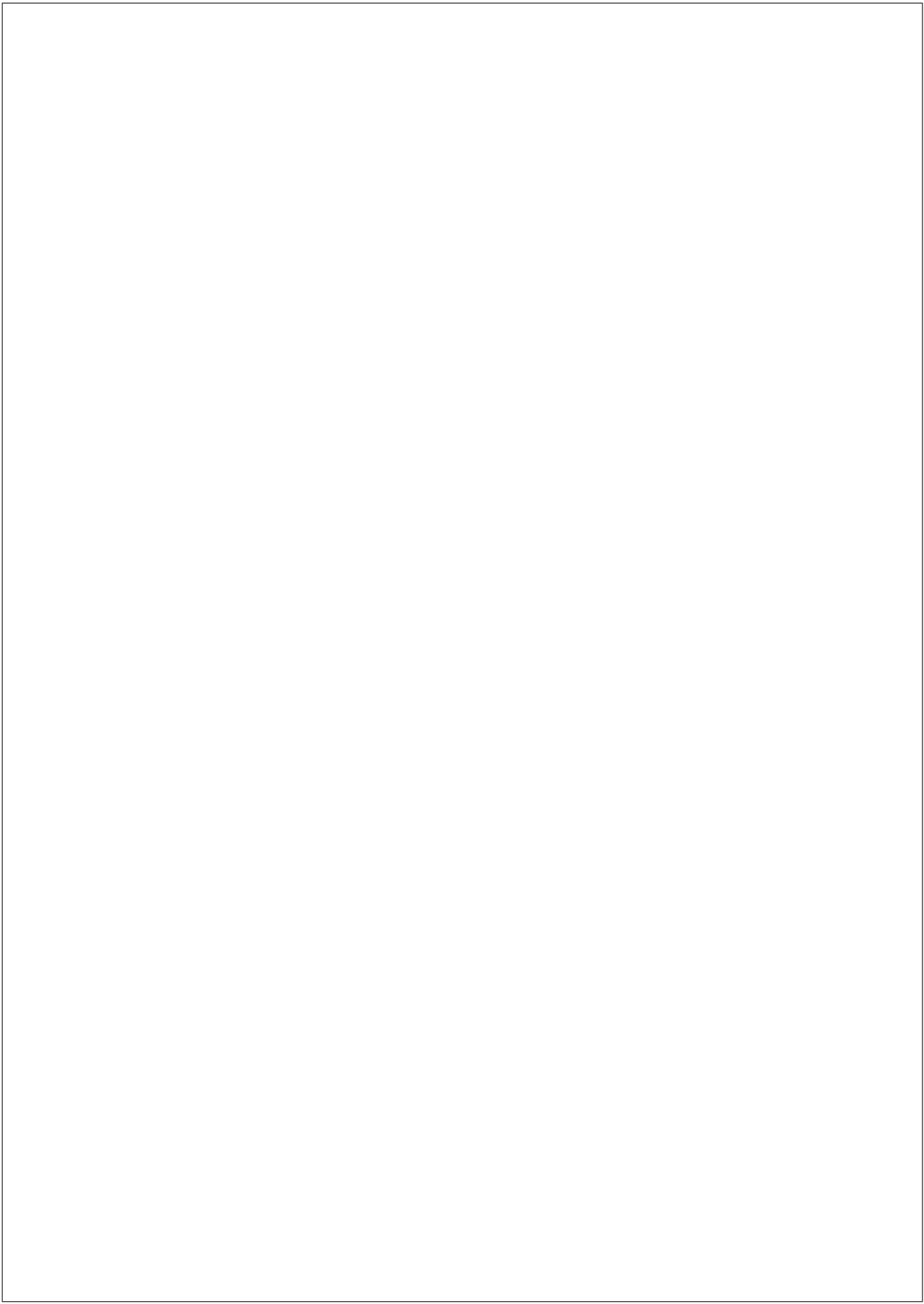
zijn gemeten bij verschillende drukken en temperaturen. De bulkviscositeit van  $\text{CO}_2$  verkregen uit een RB-verstrooiingsexperiment blijkt vier ordes van grootte kleiner te zijn dan die verkregen met behulp van geluidsabsorptie. De vergelijking van verstrooide lichtspectra met kinetische en hydrodynamische modellen toont aan dat deze dramatische frequentieafhankelijkheid van de bulkviscositeit te wijten is aan de (geleidelijke) beïndigding van trillingsrelaxatie. Er is geen significante temperatuurafhankelijkheid.

In hoofdstuk 6 wordt de RB-verstrooiing van een mengsel van twee gassen onderzocht. Er is een grote hoeveelheid gegevens verzameld voor mengsels van gassen, waarbij n component een sterke verstrooiing is, terwijl een tweede component als 'toeschouwer' fungeert en alleen de botsingsdynamiek beïnvloedt. In het geval van de binaire mengsels  $\text{SF}_6\text{-He}$  en  $\text{CO}_2\text{-He}$ , wordt de RB-verstrooiingsintensiteit volledig veroorzaakt door de sterk polariseerbare  $\text{SF}_6$  en  $\text{CO}_2$ . Desondanks worden de spectrale profielen sterk beïnvloed door de toevoeging van de atomen, die de beweging en botsingsdynamiek van de  $\text{SF}_6$ - en  $\text{CO}_2$ -moleculen beïnvloeden. Daarnaast worden ook  $\text{SF}_6\text{-D}_2$ ,  $\text{CO}_2\text{-D}_2$ ,  $\text{SF}_6\text{-H}_2$ ,  $\text{SF}_6\text{-CH}_4$  en  $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ -mengsels bestudeerd. Een volledige kwantitatieve analyse en modellering van de gegevens is momenteel wordt momenteel aan gewerkt.

Het voornaamste doel van de huidige onderzoeken was het meten van hoogwaardige Rayleigh-Brillouin verstrooiingsspectra met het tweeledige doel om (i) verstrooiingsprofielen te produceren om te vergelijken met lichtverstrooiingsdata onder realistische omstandigheden, en (ii) thermodynamische gastransportcoëfficiënten te bepalen. Wat betreft de toepasbaarheid van de gegevens moet het onderzoek naar RB-verstrooiing in  $\text{CO}_2$  worden vermeld. Koolstofdioxide is een prominent broeikasgas en het afvangen, transporteren, opslaan en omzetten ervan is relevant voor een duurzame klimaat. Nauwkeurige kennis van de thermische dynamische eigenschappen van  $\text{CO}_2$ -gas en van gasmengsels die  $\text{CO}_2$  bevatten, is daarom van belang. Bovendien kan meting van zijn lichtverstrooiingseigenschappen de detectie en kwantificering van  $\text{CO}_2$ -gas tijdens transport en verwerking ondersteunen. Lichtverstrooiing kan worden toegepast als een alternatief voor absorptie of emissiespectroscopie voor het detecteren van soorten gassen. Ook kunnen de gemeten profielen van belang zijn voor het onderzoeken van de atmosfeer van andere planeten waar  $\text{CO}_2$  een belangrijke component is, zoals op Venus en Mars. Mogelijk zijn dergelijke lichtverstrooiingsdata van toekomstig belang voor de studie van exoplaneten. De relevantie van de metingen aan andere gassen of mengsels daarvan is vooral voor het vinden van juiste beschrijvingen van thermodynamische en statistisch-mechanische eigenschappen van complexe ensembles van deeltjes. De studie van gasmengsels is in het verleden onderzocht, maar het is voor het eerst dat systematische studies worden uitgevoerd die dergelijke nauwkeurige gegevens opleveren.

---

De verkregen experimentele gegevens vormen een startpunt voor uitgebreide modellen en misschien een nieuwe richting in de statistische mechanica.



# 结论

本论文阐述了在一个较高频谱分辨率情况下的高信噪比的瑞利-布里渊散射光谱的测量。在不同实验条件下（不同气压，温度，入射光波长，散射角），基于气体分子集体运动与弛豫现象，瑞利-布里渊散射谱成为一种研究热运动、气体输运特性的重要工具。相应地，多种用于描述包括声激励与弛豫的分子的复杂运动的瑞利-布里渊散射理论模型已经被提出。基于实验数据，本论文测试了四种适应于不同实验条件下的理论模型并得到了一些相关的气体输运参数，尤其是难以得到体粘滞系数。

第一章引言主要介绍了瑞利-布里渊散射理论、散射光谱的线型以及理论模型。第二章描述了两套不同的瑞利-布里渊实验设备：基于紫色光源的较为复杂的实验设备以及基于绿色光源的较简单的实验设备。其中，详细描述了设备的组成、设备的特性以及相关的实验数据的采集及处理方法。

在第三章中，我们通过比较三种不同的散射模型：Tenti-S6 模型、近似球模型以及Hammond-Wiggins 流体模型和六氟化硫气体（ $\text{SF}_6$ ）的瑞利-布里渊实验散射光谱来获得 $\text{SF}_6$ 的体粘滞系数。实验结果表明Hammond-Wiggins流体模型并不适用于努森区域，并且我们认为由于这些模型是基于理想气体状态方程使得模型与实验数据产生了差别。

第四章比较了Tenti-S6 模型、近似球模型、Grad's six-moment 模型以及Hammond-Wiggins 流体模型与一氧化二氮（ $\text{N}_2\text{O}$ ）的散射光谱。结果表明 $\text{N}_2\text{O}$ 的体粘滞系数跟气压有关，Grad's six-moment 模型和Tenti-S6 模型表现相似，并且由于 $\text{N}_2\text{O}$ 是一个线性的非对称分子，近似球模型此时并不适用。

在第五章中，我们测量了另一种线性对称的气体分子——二氧化碳（ $\text{CO}_2$ ）在不同温度、气压下的瑞利-布里渊散射光谱。通过这些散射光谱与Tenti-S6 模型、Hammond-Wiggins 流体模型的拟合，我们得到的 $\text{CO}_2$ 的体粘滞系数比通过使用声波吸收的方法得到的体粘滞系数小四个数量级，并且振动松弛的逐渐停止使得体粘滞系数表现出显著频率依赖性。我们并没有发现体粘滞系数随温度变动而产生较大的变化。

第六章探索了二元混合气体的瑞利-布里渊散射。我们测量了一些二元混合气体的瑞利-布里渊散射光谱。在这些二元混合气体中，一种分子用来产生散射光，而另一种分子则起着“观众”的作用，它只对分子碰撞产生影响。例如对于 $\text{SF}_6$ -He和 $\text{CO}_2$ -He的混合气体，散射光主要来源