

DE VISCOSITEITSCOEFFICIENT VAN  
GASSEN BIJ LAGE TEMPERATUREN

J.M.J. COREMANS



# DE VISCOSITEITSCOEFFICIENT VAN GASSEN BIJ LAGE TEMPERATUREN

PROEFSCHRIFT TER VERKRIJGING VAN  
DE GRAAD VAN DOCTOR IN DE WIS- EN  
NATUURKUNDE AAN DE RIJKSUNIVERSI-  
TEIT TE LEIDEN, OP GEZAG VAN DE  
RECTOR MAGNIFICUS

Mr J. V. RIJPPERDA WIERDSMA,  
HOGLERAAR IN DE FACULTEIT DER  
RECHTSGELEERDHEID, PUBLIEK TE VER-  
DEDIGEN OP DONDERDAG 13 OKTOBER  
1960 TE 15 UUR

DOOR

JOHANNES MARINUS JOSEPH COREMANS

GEBOREN TE HUIJBERGEN IN 1931

DE VERHOORING VAN  
GASSEL BIJ JOAO TEMPERALHA

DE VERHOORING VAN  
GASSEL BIJ JOAO TEMPERALHA  
DE VERHOORING VAN  
GASSEL BIJ JOAO TEMPERALHA

Promotor: Prof.Dr.K.W.Taconis

Dit proefschrift is bewerkt onder leiding van Prof.Dr.A.Van Itterbeek



Uitgeverij de Boer en de Graaf, Amsterdam

Uitgeverij de Boer en de Graaf, Amsterdam

Uitgeverij de Boer en de Graaf, Amsterdam

Uitgeverij de Boer en de Graaf, Amsterdam

Uitgeverij de Boer en de Graaf, Amsterdam

Uitgeverij de Boer en de Graaf, Amsterdam

Aan mijn ouders  
Aan mijn vrouw

Presented by Prof. Dr. J. K. ...  
The ... of ... ..

...

Nadat ik in 1949 het eindexamen H.B.S.—baan de R.K.H.B.S. (thans Dr. Mollerlyceum) te Bergen op Zoom behaalde, begon ik de studie in de Wis- en Natuurkunde aan de Leidse Universiteit. Hier deed ik het kandidaats-examen A in 1953 en begon toen mijn werkzaamheden op het Kamerlingh Onnes laboratorium in de afdeling molecuul physica, F.O.M.—M II. In september 1956 deed ik het doctoraal-examen in de experimentele natuurkunde. Hiertoe had ik de colleges van Prof. Dr. S. R. de Groot en Prof. Dr. J. Droste gevolgd.

Vanaf september 1957 werkte ik tevens als leraar, eerst aan het Norbertuslyceum te Roosendaal en vervolgens aan het Triniteitslyceum te Haarlem.

Bij de totstandkoming van dit proefschrift nam Dr. J. J. M. Beenakker een zeer belangrijke plaats in. Sinds 1956, toen hij belast werd met de dagelijkse leiding van de werkgroep voor molecuul physica, bestond er met hem een intensieve samenwerking. Bij de metingen werd ik bijgestaan door de Heren H. F. P. Knaap en P. Zandbergen.



## INHOUD

	Pag.
<b>Inleiding.</b>	9
<b>Hoofdstuk I. Formules voor de berekening van de viscositeitscoëfficiënt.</b>	
1. Inleiding.	11
2. Bewegingsvergelijkingen van de oscillerende schijf.	11
3. Bewegingsvergelijkingen van de oscillerende bol.	19
4. Stroming in een capillair.	23
<b>Hoofdstuk II. De viscositeit van gasvormig He, Ne, H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> en HD beneden 80° K.</b>	
1. Inleiding.	25
2. Experimentele methode.	25
3. Experimentele resultaten.	28
4. De quantummechanische vorm van de wet van de overeenstemmende toestanden.	39
5. Berekeningen van de viscositeitscoëfficiënt met verschillende potentiaalmodellen, vergeleken met de experimentele resultaten.	45
<b>Hoofdstuk III. Enkele onderzoeken met de oscillerende schijf viscosimeter.</b>	
1. Inleiding.	50
2. Het onderzoek van de demping door het spiegeltje.	50
3. De asymmetrische positie van het schijfje.	52
4. Dichtheidsafhankelijkheid—metingen bij 4° K.	56
<b>Hoofdstuk IV. Onderzoek naar de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas bij waterstoftemperaturen met de oscillerende bol viscosimeter.</b>	
1. Inleiding.	59
2. Experimentele methode en resultaten.	59
3. Bespreking van de verschillende fouten.	64
4. Het onderzoek naar de mogelijke systematische fouten in het stromingsprofiel.	67

**Hoofdstuk V. Metingen van de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas bij 20.4°K met behulp van een capillaire viscosimeter.**

1. Inleiding.	70
2. Experimentele methode.	70
3. Experimentele resultaten.	72

**Hoofdstuk VI. Overeenstemmende toestanden voor de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt.**

1. Inleiding.	77
2. Een overzicht van de beschikbare experimentele gegevens.	77
3. Reductie met kritische grootheden.	79
4. Reductie met moleculaire grootheden.	81
5. Enkele opmerkingen over de Enskogformule.	86
6. Slotbeschouwing.	89

**Litteratuur.** 91

**Summary.** 93



## Inleiding.

De viscositeit is één van de transportgrootheden; zij wordt gegeven door het impulstransport in een gas tengevolge van een snelheidsgradiënt. Bij voldoende lage dichtheid kan men door het oplossen van de Boltzmann vergelijking de viscositeit voor eenvoudige moleculen berekenen voor een gegeven wisselwerking tussen de moleculen.

Wanneer bij lage temperaturen voor de lichte moleculen de De Broglie golflengte van dezelfde grootte wordt als de molecuuldiameter, gaan quantummechanische effecten een invloed uitoefenen. Juist om de grootte van deze effecten te leren kennen, zijn viscositeitsmetingen bij lage temperaturen belangrijk. In hoofdstuk II zijn enkele van deze metingen tussen  $20^\circ$  en  $80^\circ$  K beschreven. Voor dit temperatuurgebied waren geen experimentele gegevens beschikbaar. Vooraf zijn in hoofdstuk I in het kort enige aspecten besproken van viscosimeters, die gebruikt zijn bij metingen voor dit proefschrift.

Bij grotere dichtheden neemt de waarde van de viscositeitscoëfficiënt toe. Hierover zijn nog geen goede theoretische berekeningen aanwezig. Wel zijn van deze viscositeitstoename veel metingen in het kamertemperatuurgebied verricht. Bij lage temperaturen waren er geen gegevens. Om te zien, of quantummechanische effecten de dichtheidsafhankelijkheid bij lage temperaturen beïnvloeden, hebben we een aantal viscositeitsmetingen bij verschillende dichtheden met heliumgas bij  $20^\circ$  K uitgevoerd. Deze metingen zijn besproken in de hoofdstukken III–IV en V. Ten slotte zijn de bestaande gegevens over de toename van de viscositeitscoëfficiënt aan de hand van de wet van de overeenstemmende toestanden onderzocht. Deze onderzoeken zijn in hoofdstuk VI beschreven.



## HOOFDSTUK I.

## Formules voor de berekening van de viscositeitscoëfficiënt

## 1. Inleiding.

Bij kleine dichtheden kan met de oscillerende schijfviscosimeter gemakkelijk de viscositeitscoëfficiënt van gassen bepaald worden. De noodzakelijke berekeningen zijn daarbij eenvoudig. Bovendien is het meten met deze viscosimeter niet ingewikkeld. Niet zonder reden dus, dat oscillatie-viscosimeters behoren tot de standaardmethoden voor het bepalen van de viscositeitscoëfficiënt. Grote moeilijkheden ontstonden toen bleek, dat voor de oscillerende schijf de damping van het gas aan de rand een belangrijke bijdrage kon geven. Bij een oscillerende schijfviscosimeter met oneindige plaatafstand kan het gas aan de rand van de schijf op de damping zelfs grote invloed uitoefenen. De invloed van de rand op de damping (de randeffecten) is verschillende malen onderzocht. Een exacte berekening er van is echter moeilijk.

De hydrodynamische verschijnselen in verband met oscillerende lichamen zijn in de naoorlogse jaren o.a. door Andronikashvili (1948), Hollis Hallet (1952), Dash (1957), Mariens (1955), Kestin (1955) en Newell (1959) onderzocht.

Bij grotere dichtheden wordt de viscositeitscoëfficiënt dikwijls bepaald door de doorgestroomde hoeveelheid gas en het drukverschil over een capillair te meten. De afwijking van de bekende Poiseuille-stroming aan de uiteinden van het capillair zijn berekend door Hagenbach en Couette.

In dit hoofdstuk proberen we de gangbare theorieën, welke bij de bepaling van de viscositeitscoëfficiënt met de verschillende viscosimeters gebruikt zijn, beknopt te bespreken.

## 2. Bewegingsvergelijkingen van de oscillerende schijf.

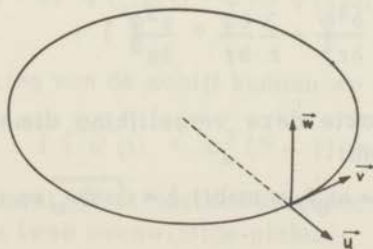


fig. 1. De snelheidscomponenten.

Als uitgangspunt kiezen we een schijf, die evenwijdig aan een vaste wand oscilleert.  $u$ ,  $v$  en  $w$  (Zie fig. 1) zijn daarbij de componenten van de snelheid in het rechthoekig coördinatenstelsel.

Voor de meebewegende gasmassa zal gelden, dat  $\text{div } \vec{v} = 0$ . Bovendien stellen we de dichtheid  $\rho$  overal constant. Aan de hand van deze veronderstellingen kunnen we de vergelijking van Navier–Stokes opschrijven voor de verschillende componenten. (Cilindercoördinaten:  $x = r \cdot \cos \varphi$ ;  $y = r \cdot \sin \varphi$ ;  $z = z$ ).

$$\begin{aligned}
 1. \text{ comp.: } & \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{v}{r} \frac{\partial u}{\partial \varphi} + w \frac{\partial u}{\partial z} - \frac{v^2}{r} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu (\nabla^2 u - \frac{u}{r^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial v}{\partial \varphi}) \\
 2. \text{ comp.: } & \frac{\partial v}{\partial t} + v \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{v}{r} \frac{\partial v}{\partial \varphi} + w \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{uv}{r} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial \varphi} + \nu (\nabla^2 v - \frac{v}{r^2} + \frac{2}{r^2} \frac{\partial u}{\partial \varphi}) \quad (1) \\
 3. \text{ comp.: } & \frac{\partial w}{\partial t} + w \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{v}{r} \frac{\partial w}{\partial \varphi} + w \frac{\partial w}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \nabla^2 w.
 \end{aligned}$$

Hierin is  $t$  de tijd,  $p$  de druk van het gas en  $\nu$  de kinematische viscositeit ( $=\eta/\rho$ ) –  $\eta$  is de viscositeitscoëfficiënt.

We nemen nu aan:

1. In een vlak, evenwijdig met de schijf, is de snelheid onafhankelijk van de azimuthhoek  $\varphi$ .
2. De snelheidscomponent  $w$  is nul. Uit de vorige veronderstelling is nu af te leiden, dat ook de component  $u = 0$ .

Deze veronderstellingen reduceren de vergelijking van Navier–Stokes tot één betrekking, welke de beweging van het gas beschrijft.

Uitgedrukt in de hoeksnelheid  $\phi$  luidt deze vergelijking:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \nu \left\{ \frac{\partial^2 \phi}{\partial r^2} + \frac{3}{r} \frac{\partial \phi}{\partial r} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} \right\}. \quad (2)$$

Kestin (1954) maakte deze vergelijking dimensieloos door nieuwe variabelen in te voeren:

$r = \xi \delta$ ;  $z = \eta' \delta$  en  $\tau = \omega_0 t$ , waarbij  $\delta = \sqrt{\nu/\omega_0}$  en  $\omega_0 = \frac{2\pi}{T}$  ( $T$  is de periode van de schijf).

De indringdiepte  $\delta$  is een karakteristieke lengtemaat bij de beweging van het gas. Zij beschrijft de gemiddelde afstand, waarover een be-



paalde evenwichtsstoring in het gas doordringt.

De getransformeerde bewegingsvergelijking heeft nu de gedaante:

$$\frac{\partial \phi}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \phi}{\partial \xi^2} + 3/\xi \frac{\partial \phi}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial \eta'^2} \quad (3)$$

De grensvoorwaarden van deze differentiaalvergelijking zijn:

1. Voor  $\tau = 0$  is de hoeksnelheid nul:  $\phi(\xi, \eta', 0) = 0$
2. De hoeksnelheid aan de vaste wand ( $\eta' = \beta$ ) is nul:  $\phi(\xi, \beta, \tau) = 0$
3. De hoeksnelheid van het gas aan de schijf is de hoeksnelheid  $\dot{\theta}(\tau)$  van de schijf zelf. Er is dus geen glijding:  $\phi(\xi, 0, \tau) = \dot{\theta}(\tau)$ .

$\theta(\tau)$  beschrijft hier de beweging van de schijf. Vroegere auteurs namen aan, dat de schijf harmonisch zou bewegen. Deze veronderstelling is niet noodzakelijk. In hoeverre zij gerechtvaardigd is, zal uit de volgende analyse blijken.

Opmerking:

$\frac{\partial^2 \phi}{\partial \xi^2}$  en  $\frac{3}{\xi} \frac{\partial \phi}{\partial \xi}$  zijn nul. Deze veronderstelling wordt o.a. teruggevon-

den bij Hollis Hallet (1952), Mac Wood (1938) en Meyer (1865). Zij is alleen geldig voor een oneindig grote schijf.

De evenwichtsverstoring door de instantane schijfsnelheid  $\xi \dot{\theta}$  plant zich als een visceuse golf voort door het gas. Daardoor is de instantane gassnelheid  $\xi \phi$  slechts afhankelijk van  $\xi$  en  $\eta'$ .  $\phi$  is dus hier onafhankelijk van  $\xi$ .

Door deze veronderstelling voor een eindige schijf te gebruiken, verwaarlozen we de randcorrecties. Vergelijking (3) wordt nu met de randvoorwaarden:

$$\frac{\partial \phi}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \phi}{\partial \eta'^2}; \quad \phi(\xi, \eta', 0) = 0, \quad \phi(\xi, \beta, \tau) = 0 \quad \text{en} \quad \phi(\xi, 0, \tau) = \dot{\theta}(\tau). \quad (4)$$

De bewegingsvergelijking van de schijf kunnen we schrijven als:

$$I \{ \ddot{\theta}(t) + \omega_0^2 (\theta - 1) = M. \quad (5)$$

$I$  is het traagheidsmoment.  $M$  is het dempingskoppel (de schijf oscilleert in het midden van twee evenwijdige platen).

De uitwijking  $\theta$  is op het tijdstip nul gelijkgesteld aan 1. Het betekent slechts een verschuiving van de integratieconstante.

Het dempende koppel  $M$  wordt na integratie:

$$M = \pi R^4 \cdot \nu \cdot \rho \cdot \left( \frac{\partial \phi}{\partial z} \right)_{z=0} \quad (6)$$

Hierin is  $R$  de straal van de oscillerende schijf.

Combinatie van (5) en (6) geeft na uitdrukking van de vergelijkingen in de dimensieloze parameter  $\tau$ :

$$\dot{\theta}(\tau) + \theta(\tau) - 1 = m \cdot \left( \frac{\partial \phi}{\partial \eta} \right)_{\eta'=0} \quad (7)$$

waarin  $m = \frac{2 \rho \delta}{\rho_0 d_0}$  ( $\rho_0$  en  $d_0$  zijn respectievelijk het s.g. en de dikte van de schijf).

Randvoorwaarden zijn: 1. de hoeksnelheid van de schijf voor  $\tau = 0$  is nul ( $\dot{\theta}(0) = 0$ ). 2. de beginvoorwaarde is  $\theta(0) = 1$ .

De fysische betekenis van  $m$  is gemakkelijk onder woorden te brengen. Zij is de verhouding van de door de schijf meegesleepte massa gas en de massa van de schijf. De invloeden van torsiedraad en ophangnaald zijn hierin verwaarloosd.

Van het systeem van de bewegingsvergelijkingen (4) en (7) met rand- en beginvoorwaarden moet de oplossing gezocht worden. Daarbij maken we gebruik van de Laplace-transformatie:  $\bar{\phi} = \int_0^{\infty} \phi e^{-s\tau} d\tau = s \bar{\varphi}$ .

Hierdoor is het mogelijk op eenvoudige wijze de randvoorwaarden in het stelsel vergelijkingen te verdisconteren. De vergelijkingen (4) worden hierdoor vereenvoudigd tot:

$$\begin{aligned} s \phi &= \phi_{\eta'} \eta' \\ \phi(0, s) &= s \theta \\ \dot{\phi}(\beta, s) &= 0. \end{aligned} \quad (8)$$

Oplossing van deze betrekkingen geeft de vergelijking:

$$\bar{\phi} = \frac{\sinh \{ (\beta - \eta') s^{1/2} \}}{\sinh (\beta s^{1/2})} s \bar{\theta} \quad (9)$$

Indien we deze  $\bar{\phi}$  substitueren in de getransformeerde betrekking (7), vinden we voor  $\bar{\theta}$ :



$$\bar{\theta} = \frac{1}{s (s^2 + 1 + ms^{3/2} \coth (\beta s^{1/2}))} \quad (10)$$

De oplossing van het dempingsprobleem volgt uit het terugtransformeren van  $\bar{\theta}$ :

$$\theta = \frac{1}{2\pi i} \int_{c-i\infty}^{c+i\infty} \frac{1}{s} \frac{e^{s\tau} ds}{s^2 + 1 + ms^{3/2} \coth (\beta s^{1/2})} \quad (11)$$

Tot de oplossing wordt alleen bijgedragen door de residuen van de polen van de integrand. Indien  $\sigma_n$  deze polen voorstelt, mag de oplossing geschreven worden als een som:

$$\theta = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \sigma_n \exp. (\sigma_n \tau)}{\left\{ \frac{\beta}{m} \sigma_n^4 - (1 + \beta m) \sigma_n^3 + 2 \frac{\beta}{m} \sigma_n^2 + 3 \sigma_n + \frac{\beta}{m} \right\}} \quad (12)$$

Voor de kennis van de polen van de integrand moeten de wortels van de vergelijking (13) worden bestudeerd.

$$s^2 + 1 + m s^{3/2} \coth (\beta s^{1/2}) = 0. \quad (13)$$

De vergelijking heeft oneindig veel wortels voor negatief reële waarden van  $s$  en ook zijn nog twee complexe wortels mogelijk. De grootte van deze wortels is eenvoudig te vinden. Daartoe schrijven we vergelijking (13) als volgt:

$$\frac{s^2 + 1}{m/\beta \cdot s} = -s^{1/2} \beta \coth s^{1/2} \beta.$$

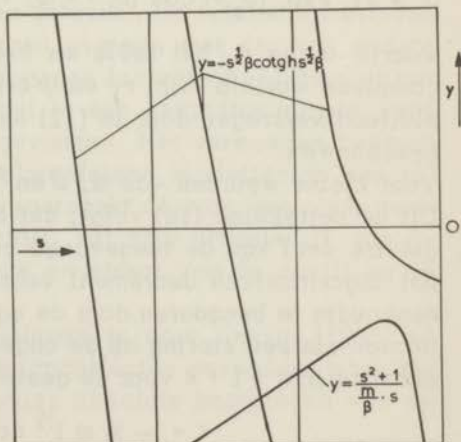


fig. 2. Bepaling van de wortels van vergel. (13).

In fig. 2 zijn beide delen van deze vergelijking voor negatief reële waarden van  $s$  weergegeven. Voor het rechterlid is gebruik gemaakt van de eigenschappen van hyperbolische functies van zuiver complexe getallen.

In elk interval ligt een wortel, behalve in het eerste. Daarin liggen twee reële, een dubbele (reële) of twee toegevoegd complexe wortels. Dit hangt van de waarde van  $m/\beta$  af. In vacuüm, dus voor een dichtheid nul van het gas, is deze  $m/\beta$ -waarde nul. De wortels van (13) zijn dan  $\pm i$ . De schijf beschrijft nu een zuiver periodieke beweging. Bij toenemende waarde van  $m/\beta$  vinden we twee toegevoegd complexe wortels in dit eerste interval. Deze zullen steeds meer naar elkaar toebuigen bij grotere  $m/\beta$ , totdat twee reële wortels overblijven.

Het oneindige aantal wortels van vergelijking (13) voor reële negatieve waarden van  $s$  veroorzaken een exponentieel afnemend karakter van de oplossing. Zij beschrijven de aanloopverschijnselen voor het bereiken van de harmonische oscillatie (de transiënt, vergel.(12)).

Voor de complexe waarden van de polen bestaat de oplossing uit een periodieke beweging met damping. Deze subkritische damping is voor ons belangrijk, daar we ons beperken tot kleine waarden van  $m/\beta$ . Er worden dan twee toegevoegd complexe wortels gevonden.

Door het afsplitsen van het niet periodieke deel in (12),

$$F_2(\tau) = \sum_{n=3}^{\infty} \frac{2 \cdot \sigma_n \exp.(\sigma_n \tau)}{\beta/m \sigma_n^4 - (1 + \beta m) \sigma_n^3 + 2 \beta/m \sigma_n^2 + 3 \sigma_n + \beta/m}$$

kan deze betrekking geschreven worden als:

$$\theta = 2r_1 \exp.(\sigma_r \tau) \cos(\sigma_i \tau + \psi) + F_2(\tau), \quad (14)$$

waarin  $\sigma_r$  en  $\sigma_i$  het reële en het imaginaire deel van de toegevoegd complexe wortels zijn.  $r_1$  en  $\psi$  zijn amplitudo en phasehoek van  $\theta$ , uitsluitend verkregen door in (12) de bijdrage van de complexe wortels te beschouwen.

Voor kleine waarden van  $m$ ,  $\beta$  en  $m/\beta$  mag  $F_2(\tau)$  verwaarloosd worden. Uit de betrekking (14) volgt, dat het quotiënt van het reële en het imaginaire deel van de toegevoegd complexe wortels, op de factor  $2\pi na$ , het logarithmisch decrement voorstelt. De geconjugeerde wortels zijn eenvoudig te benaderen door de coth-term in (13) voor kleine dampingen te zien als een storing op de ongedempte harmonische beweging. Uit de substitutie  $\sigma = i + \epsilon$  voor de gestoorde wortel vinden we voor  $\epsilon$ :

$$\epsilon = -\frac{1}{2} m i^{\frac{1}{2}} \coth i^{\frac{1}{2}} \beta.$$

Het logarithmisch decrement volgt nu uit deze gestoorde wortel. De oplossing benaderen we door hogere-orde-termen in de reeksontwikkeling van de hyperbolische functie te verwaarlozen. Voor kleine waarden van  $\beta$  geeft dit geen moeilijkheden.

Het logarithmisch decrement wordt dus:

$$\Delta/2\pi = \frac{1}{2} \cdot m/\beta [ 1 + 1/45 \cdot \beta^4 + \dots ] .$$

Als  $R$  de straal van de schijf is,  $D$  de gemiddelde plaatafstand en  $I$  het traagheidsmoment van het oscillerend systeem, wordt deze betrekking:

$$\Delta/\tau = \frac{\pi \eta R^4}{2 I D} [ 1 + 1/45 (\frac{D}{\delta})^4 + \dots ] , \quad (15)$$

$\tau$  is hier de trillingstijd van de schijf.

Deze uitdrukking is identiek met de formule van Lignac (1949), mits dezelfde benadering wordt aangehouden. Hogere orde benaderingen kunnen op analoge manier worden bepaald. Voor voldoende grote waarde van de indringdiepte kan uitdrukking (15) in de zeer eenvoudige vorm van Maxwell geschreven worden:

$$\Delta'/\tau - \Delta_0/\tau_0 = \frac{\pi \eta R^4}{2 I D} . \quad (16)$$

$\Delta'/\tau$  is het gemeten logarithmische decrement voor het totale systeem.  $\Delta_0/\tau_0$  is een correctie voor de verwaarloosde demping van het systeem door de torsiedraad (in vacuüm).

Formule (16) is bijzonder handig voor de berekening van de viscositeitscoëfficiënt uit de meting van de demping. Door diverse onderzoekers wordt deze betrekking al vele jaren gebruikt. De relatieve metingen, op deze manier berekend, stemden goed overeen met die van andere meetmethoden; absolute bepalingen vertoonden daarentegen grote afwijkingen. Vooral voor de oscillerende schijf in een oneindige ruimte werd een grote invloed van de schijfrand gevonden. Het vermoeden bestond, dat ook voor de schijf met eindige plaatafstand randeffecten een rol speelden. Deze randeffecten worden veroorzaakt door de gestoorde hoeveelheid gas aan de rand van de schijf. Zij zijn afhankelijk van de indringdiepte  $\delta$ , maar ook van de dikte en straal van de schijf en de plaatafstand.

Een exacte oplossing is moeilijk. Onlangs is door Kestin (1955) en Newell (1959) een beschrijving van de randeffecten gevonden, waardoor het mogelijk wordt op verantwoorde wijze absolute bepalingen van de



viscositeitscoëfficiënt met de oscillerende schijf te verrichten. Kestin vergelijkt het dempende koppel  $M$ , vergel. (5), voor de schijf met randeffecten met het ideaal dempende koppel  $M_{\infty}$ , als geen randeffecten aanwezig waren.  $M_{\infty}$  wordt verondersteld gelijk te zijn aan de dempingsbijdrage van dat deel van een oneindig uitgestrekte schijf, dat overeenkomstig om de as gelegen is en een gelijke oppervlakte heeft als onze oscillerende schijf. ( $M = CM_{\infty}$ ).

Voor het geval dat de indringdiepte nul is, zal de factor  $C$  de waarde één aannemen. De grootte van  $C$ , dus de invloed van de rand, bleek niet eenvoudig te berekenen. Het was voor Kestin eenvoudiger deze factor empirisch te bepalen. De resultaten van deze metingen bij een bepaalde schijf en plaatafstand worden in fig. 3 getoond. We zien, dat bij een voldoende grote waarde van de indringdiepte,  $C$  constant wordt. Dit is het gebied, waarin de relatieve schijfmetingen betrouwbaar zijn.

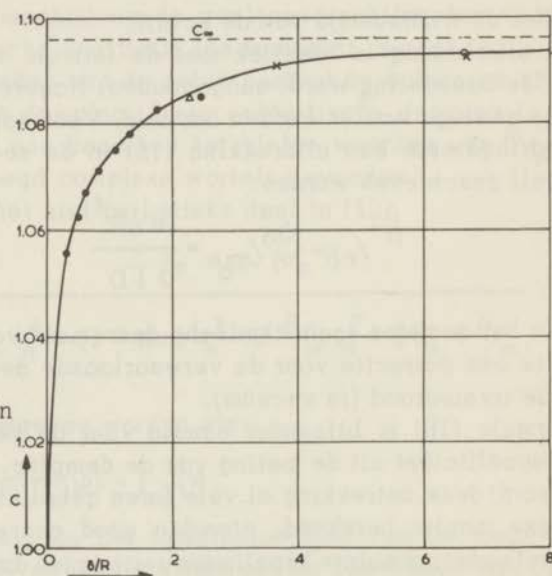


fig. 3. De invloed van de rand van de schijf door Kestin bepaald.

Tot vergelijking geven we hier ook het verband tussen  $\eta$  en  $\Delta$ , zoals dit door Kestin gebruikt is.

$$\Delta'/\tau - \Delta_0/\tau_0 = \frac{\pi\eta R^4}{2ID} \cdot \frac{\tau}{\tau_0} \left\{ 1 + 3 \frac{Dd}{R^2} + \frac{Dd}{\delta R} \cdot \frac{\sqrt{2}\tau_0}{2\sqrt{\tau}} (1 - \frac{3}{2}\Delta - \frac{3}{8}\Delta^2) - \frac{1}{3} \frac{D^2}{\delta^2} \cdot \frac{\Delta\tau_0}{\tau} + \frac{1}{90} \frac{D^4}{\delta^4} \cdot \frac{\tau_0^2}{\tau^2} (1 - 3\Delta^2) \right\}. \quad (17)$$

Als  $\frac{D}{R}$ ,  $\frac{d}{R}$  en  $\frac{D}{\delta}$  klein zijn, komt deze formule op de factor  $C$  na overeen met (16). Newell (1959) heeft de zojuist besproken constante waarde van  $C$  berekend als functie van dikte en diameter van de schijf en de plaatafstand voor het geval, dat de indringdiepte oneindig groot is.

Daarbij veronderstelt men in vergelijking (3)  $\frac{\partial \phi}{\partial \xi}$  en  $\frac{\partial^2 \phi}{\partial \xi^2}$  niet nul.

De oplossing werd mogelijk door in het stelsel vergelijkingen (3) en (7) met rand- en beginvoorwaarden de parameters  $\xi$  en  $\eta'$  uit te drukken in de karakteristieke grootte van de oscillerende viscosimeter  $2\left(\frac{D+d}{\delta}\right)$ , om daarna achtereenvolgens een Schwarz-Christoffel en een logaritmische transformatie toe te passen. De Laplace vergelijking is hiervoor invariant. De door Newell berekende constante luidt:

$$C_N = 1 + \frac{8D}{\pi R} [\cosh \gamma \log (\cosh \gamma + 1) - (\cosh \gamma - 1) \log \sinh \gamma], \quad (18)$$

waarin  $\gamma = \cosh \left(1 + \frac{d}{2D}\right)$  is. De door hem berekende constante  $C_N$  is enigszins anders gedefinieerd dan door Kestin ( $C_K$ ).

Het verband tussen  $C_N$  en  $C_K$  wordt gegeven door de betrekking

$$C_K = \frac{C_N}{1 + 3\left(\frac{d}{R}\right)\left(\frac{D}{R}\right)}. \quad (19)$$

Deze correctie van Newell geeft een goede overeenstemming met de experimenten. Voor de kleinste plaatafstanden was de afwijking maar enkele pro mille.

### 3. Bewegingsvergelijkingen van de oscillerende bol.

We volgen dezelfde weg als voor de oscillerende schijf.

Als uitgangspunt kiezen we weer de vergelijking van Navier-Stokes voor de beschrijving van de bewegende gasmassa. De dichtheid  $\rho$  is overal constant verondersteld en  $\text{div } \vec{v} = 0$ .

De snelheidscomponenten  $u$ ,  $v$  en  $w$  zijn in fig. 4 aangegeven.

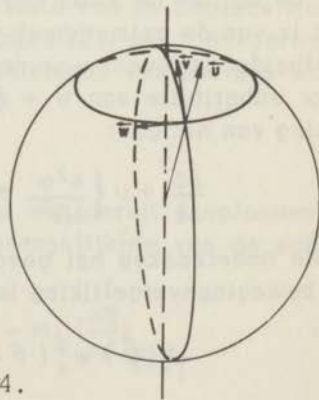


fig. 4.

Voor de verschillende componenten van de vergelijking van Navier-Stokes kunnen we nu, indien we van de bolcoördinaten:

$$x = R \sin \theta \cos \varphi; \quad y = R \sin \theta \sin \varphi \quad \text{en} \quad z = R \cos \theta;$$

gebruik maken, de volgende vergelijkingen schrijven:

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial R} + \frac{v}{R} \frac{\partial u}{\partial \theta} - \frac{v^2 + w^2}{R} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial R} +$$

$$\nu \left\{ \frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial R} \left( R^2 \frac{\partial u}{\partial R} \right) + \frac{1}{R^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin^2 \theta \frac{\partial u}{\partial \theta} \right) - \frac{2u}{R} - \frac{2}{R^2} \frac{\partial u}{\partial \theta} - \frac{2v}{R^2} \cot \theta \right\}$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial R} + \frac{v}{R} \frac{\partial v}{\partial \theta} + \frac{uv}{R} - \frac{w^2 \cot \theta}{R} = -\frac{1}{\rho R} \frac{\partial p}{\partial \theta} +$$

$$\nu \left\{ \frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial R} \left( R^2 \frac{\partial v}{\partial R} \right) + \frac{1}{R^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin \theta \frac{\partial v}{\partial \theta} \right) + \frac{2}{R^2} \frac{\partial u}{\partial \theta} - \frac{v}{R^2 \sin^2 \theta} \right\} \quad (20)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} + u \frac{\partial w}{\partial R} + \frac{v}{R} \frac{\partial w}{\partial \theta} + \frac{w u}{R} + \frac{v w \cot \theta}{R} =$$

$$\nu \left\{ \frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial R} \left( R^2 \frac{\partial w}{\partial R} \right) + \frac{1}{R^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin \theta \frac{\partial w}{\partial \theta} \right) - \frac{w}{R^2 \sin^2 \theta} \right\},$$

waarin  $p$  de absolute druk en  $\nu = \eta/\rho$  de kinematische viscositeit is.

In deze vergelijkingen hebben we verondersteld, dat voor het geval, dat de bol om de  $z$ -as oscilleert, de snelheid van het gas onafhankelijk is van de azimuthhoek  $\varphi$ . Gemakkelijk is in te zien, dat de radiale snelheidscomponent  $u$  en de meridionale snelheidscomponent  $v$  nul zijn. Door substitutie van  $w = \varphi R \sin \theta$  wordt de gezochte bewegingsvergelijking van het gas:

$$\frac{\partial \dot{\varphi}}{\partial t} + \nu \left\{ \frac{\partial^2 \dot{\varphi}}{\partial R^2} + 4/R \frac{\partial \dot{\varphi}}{\partial R} \right\} = 0. \quad (21)$$

We onderzoeken het geval, dat een bolschil oscilleert om de  $z$ -as. De bewegingsvergelijking is dan:

$$I (\ddot{\theta} + w_0^2 (\theta - 1)) = M_f, \quad (22)$$



waarin het dempende koppel  $M_f$  gelijk is aan:

$$M_f = \frac{8}{3} \eta \pi \left\{ R_o^4 \left( \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial R} \right)_{R=R_o} + R_i^4 \left( \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial R} \right)_{R=R_i} \right\}.$$

Hierin zijn  $2 R_o$  en  $2 R_i$  de uitwendige en de inwendige diameter van de bolschil; het gas is zowel binnen als buiten de bol aanwezig.

We maken de bovenstaande vergelijkingen dimensieloos door invoering van nieuwe variabelen (Zie ook § 2):

$$\tau = \omega_o t \quad \omega_o = \frac{2\pi}{T}, \quad \xi = \frac{R}{\delta}, \quad \xi_o = \frac{R_o}{\delta}, \quad \xi_1 = \frac{R_i}{\delta} \quad \text{en} \quad \xi_2 = \frac{R_2}{\delta}.$$

Hierdoor worden de betrekkingen (20) en (21) herleid tot:

$$\frac{\partial \dot{\phi}}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \dot{\phi}}{\partial \xi^2} + \frac{4}{\xi} \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial \xi} \quad \text{en} \quad \ddot{\theta} + \theta - 1 = m_o \left( \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial \xi} \right)_{\xi=\xi_o} - m_1 \left( \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial \xi} \right)_{\xi=\xi_1} \quad (23)$$

$$\text{waarin } m_o = \frac{8}{3} \frac{\pi \rho \delta R_o^4}{I} \quad \text{en} \quad m_1 = \frac{8}{3} \frac{\pi \rho \delta R_i^4}{I}.$$

De randvoorwaarden zijn:

$$\begin{aligned} \dot{\phi}(\xi_o, \tau) &= \dot{a}(\tau) & \dot{\phi}(\xi, \tau) &= \dot{a}(\tau) & \dot{\theta}(0) &= 0 \\ \dot{\phi}(\xi_2, \tau) &= 0 & \dot{\phi}(0, \tau) &\neq \infty & \theta(0) &= 0 \\ \dot{\phi}(\xi, 0) &= 0 & & & \theta(\infty) &= 1 \\ \dot{\phi}(\xi, \infty) &= 0 & & & & \end{aligned}$$

Zoals bij de schijf maken we ook hier gebruik van de Laplace transformatie om het stelsel bewegingsvergelijkingen (23) met randvoorwaarden op te lossen. Voor de bewegingsvergelijkingen van het gas wordt dit:

$$s \bar{\phi} = \frac{\partial^2 \bar{\phi}}{\partial \xi^2} + \frac{4}{\xi} \frac{\partial \bar{\phi}}{\partial \xi}. \quad (24)$$

Met behulp van de randvoorwaarden kunnen we hieruit  $\bar{\phi}$  oplossen en invullen in de getransformeerde bewegingsvergelijking van de schijf:

$$s^2 \bar{\theta} + \theta - \frac{1}{s} = m_o \left( \frac{\partial \bar{\phi}}{\partial \xi} \right)_{\xi=\xi_o} - m_1 \left( \frac{\partial \bar{\phi}}{\partial \xi} \right)_{\xi=\xi_1}. \quad (25)$$

Hieruit kunnen we  $\bar{\theta}$  oplossen

$$\bar{\theta} = \frac{1}{s} \cdot \frac{1}{s^2 + 1 + m_0 s^{3/2} \left( 1 + \frac{2}{\xi_0 \sqrt{s}} + \frac{1}{\xi_0 \sqrt{s} (\xi_0 \sqrt{s} + 1)} \right) + m_1 s^{3/2} \left( 1 - \frac{2}{\xi_1 \sqrt{s}} + \frac{1}{\xi_1 \sqrt{s} (\xi_1 \sqrt{s} - 1)} \right)} \quad (26)$$

of  $\bar{\theta} = \frac{1}{s} \cdot \frac{1}{s^2 + 1 + s^{3/2} \cdot D(s, m_1)}$ , waarin

$$D(s, m_1) = m_0 \left( 1 + \frac{2}{\xi_0 \sqrt{s}} + \frac{1}{\xi_0 \sqrt{s} (\xi_0 \sqrt{s} + 1)} \right) + m_1 \left( 1 - \frac{2}{\xi_1 \sqrt{s}} + \frac{1}{\xi_1 \sqrt{s} (\xi_1 \sqrt{s} - 1)} \right). \quad (27)$$

Deze betrekking komt overeen met vergel. (10). Analogoos aan de oplossing bij de schijf in betrekking (13) dienen we de wortels te bepalen van de vergel. (27).

Ook hier hebben we te doen met het oneindige aantal wortels voor negatief reële waarden van  $s$  en met twee complexe wortels in de buurt van  $\pm i$ , mits de waarde van  $m$  maar klein is. De toegevoegd complexe wortels benaderen we door  $s = \pm i + \epsilon$  te substitueren in betrekking (26), waardoor we voor  $\epsilon$  vinden:  $\epsilon = \frac{1}{2} i^{1/2} \cdot D(i, m_1)$ .

Nemen we  $R_1 = (1-\alpha) R_0$ , dan vinden we hieruit voor het logarithmisch decrement:

$$\Delta = \frac{\sqrt{3} \pi \rho \lambda R_0^4}{I} \left\{ 1 - 2\alpha + \frac{3 \lambda \alpha}{R_0} + \frac{\frac{1}{2} (\lambda - R_0)}{R_0 \left( \frac{2 R_0^2}{\lambda^2} + 1 \right)} - \frac{1}{2} \left( \frac{(\lambda + R_0 (1 - \alpha))(1 - 3\alpha)}{R_0 \left( \frac{2 R_0^2}{\lambda^2} (1 - 2\alpha) + 1 \right)} \right) \right\}. \quad (28)$$

$(\lambda = \sqrt{2} \delta)$

Als het een dunne bolschil betreft en we bovendien voor de nulddemping corrigeren, mag deze vorm geschreven worden als:

$$\sqrt{\eta} = \frac{3}{4} \frac{I (\Delta' - \Delta_0)}{\sqrt{\pi \rho \tau} R_0^4 (1 - 2\alpha)}. \quad (29)$$

Mariens en Schelkens (1957) hebben ditzelfde probleem ook onderzocht. Zij vonden bij een oneindig dunne bolschil voor het verband tussen viscositeit en demping:

$$\sqrt{\eta} = \frac{3}{4} \frac{l (\Delta' - \frac{\tau}{\tau_0} \Delta_0)}{\sqrt{\pi \rho \tau} R_0^4 [A - \Delta B + \frac{B}{2} \frac{\lambda^2}{R^2}]} \quad (30)$$

waarin

$$A = \{ (1 + \Delta^2)^{1/2} - \Delta \}^{1/2} \text{ en } B = \{ (1 + \Delta^2)^{1/2} + \Delta \}^{1/2} .$$

De betrekkingen (29) en (30) vertonen in dezelfde benadering geen essentiële verschillen.

#### 4. Stroming in een capillair.

Voor een stationaire stroming van een gas in een cilindrisch, cirkelvormig capillair kan men uit de wet van behoud van impuls de wet van Poiseuille, ook wel Hagen-Poiseuille vergelijking genoemd, afleiden. Hierbij wordt in de evenwichtsbeschouwingen verondersteld, dat het statische krachtsverschil van een gaskolom in het capillair ( $\Delta p \pi r^2$ ) gelijk is aan de kracht op het zijdelingse oppervlak ( $\eta 2 \pi r l \frac{\partial v}{\partial r}$ ). Hierin is  $\Delta p$  het drukverschil over het capillair met een lengte  $l$ ,  $r$  de straal van de beschouwde vloeistofcilinder en  $v$  de snelheid van het gas.

Integreren we deze impulsvergelijking

$$\Delta p \pi r^2 = \eta \cdot 2 \pi r l \cdot \frac{\partial v}{\partial r} \quad (31)$$

dan vinden we de wet van Poiseuille:

$$v = \frac{\Delta p (R^2 - r^2)}{4 \eta l} \quad (32)$$

waarin  $R$  de straal van het capillair is.

Deze vergelijking laat zien, dat in een doorsnede van het capillair de stationaire stroomsnelheid kwadratisch afhankelijk van  $r$  is. Door integratie van  $v$  over de oppervlakte van de doorsnede is de doorgestroomde hoeveelheid fluidum per tijdseenheid ( $Q/t$ ) te vinden; nl.

$$Q/t = \frac{\pi R^4 \Delta p}{8 \eta l} \quad (33)$$

Bij de stroming van het gas door het capillair treden gemakkelijk systematische fouten op, waardoor het verband tussen de doorgestroomde hoeveelheid gas en het drukverschil over het capillair minder eenvoudig wordt als aangegeven is in (33). Achtereenvolgens bespreken we de noodzakelijke correcties.

### 1. De Hagenbach (–Couette) – correctie.

Hiermede hebben we te maken, wanneer aan de uiteinden van het capillair geen Poiseuille–snelheidsverdeling aanwezig is. Hierdoor wordt de wrijvingsarbeid vergroot. Bovendien moet door de versnelling van het gas rekening worden gehouden met een vergroting van de kinetische energie. Aanvankelijk is dit door Grüneisen (1904) experimenteel onderzocht. Later werden o.a. door Schiller (1922) en Erk (1932) berekeningen uitgevoerd.

De gecorrigeerde vergelijking luidt nu:

$$\eta = \frac{\pi R^4}{8 Q} \cdot \frac{\Delta p}{l} \cdot t - \frac{m \rho \cdot Q}{8 \pi l t} \quad (34)$$

Hierin is  $m$  een empirische factor, afhankelijk van de vorm van de uiteinden van het capillair;  $\rho$  is de dichtheid van het gas.

### 2. De glijding.

Wanneer de snelheid van het gas aan de wand niet nul is, dient hiervoor gecorrigeerd te worden. De invloed van deze glijding is eenvoudig te vinden met de integratie–constante bij het berekenen van de snelheid  $v$  uit betrekking (31). Als  $\xi$  de glijdingscoëfficiënt is (Zie Lignac (1949)), wordt de gecorrigeerde vergelijking (33):

$$\eta = \frac{\pi R^4 \Delta p t}{8 Q l} (1 + 4 \xi/R) - \frac{m \rho Q}{8 \pi l t} \quad (35)$$

Voor  $\xi$  mag de gemiddelde vrije–weg–lengte genomen worden.

### 3. De expansie.

Bij gasen kan expansie een dichtheidsverandering van het gas langs het capillair veroorzaken. Indien  $p_1$  en  $p_2$  de absolute druk aan het begin en het einde van het capillair voorstellen, wordt de gecorrigeerde Hagen–Poiseuille–vergelijking voor een laminaire stroming van gas door een capillair uiteindelijk:

$$\eta = \frac{\pi R^4 t}{8 Q l} \cdot \frac{p_1^2 - p_2^2}{2 p_1} (1 + 4 \xi/R) - \frac{\rho Q}{8 \pi l t} (m + \ln \frac{p_1}{p_2}) \quad (36)$$



## HOOFDSTUK II.

### De viscositeit van gasvormig He, Ne, H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> en HD beneden 80 °K.

#### 1. Inleiding.

Om de intermoleculaire krachtwerking nauwkeurig te leren kennen is het noodzakelijk over experimentele gegevens te beschikken betreffende transport- en evenwichtsgrootheden in een uitgestrekt temperatuurgebied. Tot nu toe zijn er geen gegevens over de transportgrootheden bij temperaturen tussen 20° en 80 °K gepubliceerd, hoewel het in dit temperatuurgebied juist belangrijk wordt de invloed van de quantummechanica voor de waterstofisotopen na te gaan.

Juist daarom werd het onderzoek van deze transport- en evenwichtsgrootheden in dit temperatuurgebied met viscositeitsmetingen bij de waterstofisotopen begonnen.

Het construeren van een betrouwbare thermostaat was een van de op te lossen problemen, omdat er voor dit temperatuurgebied geen vloeistofbad beschikbaar is. We slaagden erin door een gascryostaat te gebruiken, waarin de koeling gebeurde door een koude gasstroom van verdampende vloeistof. De gasstroom werd automatisch geregeld.

Als viscosimeter werd een oscillerende schijf gebruikt, die zich tussen twee vaste, evenwijdige platen bewoog. Door bij lage gasdruk te meten was de indringdiepte groot vergeleken met de plaatafstand. De randeffecten waren daardoor practisch constant en onafhankelijk van het gas, zoals Kestin (1955) en Newell (1959) lieten zien (vergel. I fig. 3). Door het toestel te ijken met een gas met bekende viscositeitscoëfficiënt, kunnen de resterende moeilijkheden van de randeffecten worden geëlimineerd. De viscositeitscoëfficiënten van He, Ne, H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> en HD tussen 20° en 80 °K werden met het apparaat gemeten.

We zullen na de beschrijving van het apparaat de experimentele resultaten vermelden en vergelijken met de bestaande gegevens over de aangrenzende temperatuurgebieden. Ten slotte vergelijken we in dit hoofdstuk de resultaten met theoretische berekeningen.

#### 2. Experimentele methode.

In fig. 1 wordt het gebruikte apparaat schematisch weergegeven. Het toestel bestaat uit twee hoofddelen: a. het viscosimetergedeelte en b. de thermostaat; we bespreken deze delen afzonderlijk.

##### a. Het viscosimetergedeelte.

De viscosimeter bestaat uit een oscillerende schijf; dit type meter is reeds eerder in het Kamerlingh-Onnes-Laboratorium gebruikt. Met behulp van een chroomijzer glaslas, Cr, zijn twee messing platen aan een

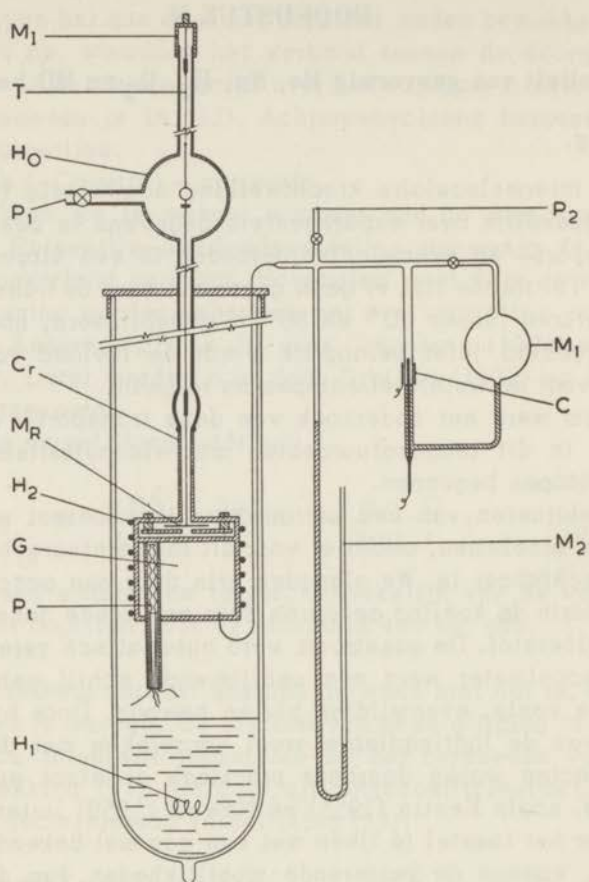


fig. 1. Het toestel voor het meten van de viscositeitscoëfficiënt tussen  $20^{\circ}$  en  $80^{\circ}$  K.

glazen buis bevestigd. De platen worden op een afstand van 1 mm evenwijdig aan elkaar gehouden door drie messing ringetjes. Door de bovenste plaat wordt tevens de meetruimte  $M_r$  afgesloten. De oscillerende schijf is door een glazen naald en een phosphorbrons torsiedraadje tussen de twee vaste platen opgehangen. Het systeem van schijf en naald is met het torsiedraadje bevestigd aan een micrometer-instelling  $M_1$ , zo dat de oscillerende schijf over een bepaalde afstand op en neer kan bewegen worden.

Om de amplitudo van de oscillatie te bepalen is op de glazen naald een afleesspiegeltje bevestigd. Bovendien is onder het spiegel-tje een weekijzeren staafje gemonteerd om de schijf van buitenaf met een kleine magneet in oscillatie te brengen. Rondom het spiegel-tje is de glazen



buis vervangen door een metalen huisje,  $H_0$ , voorzien van een vlak glazen venster. Het beeld, dat het spiegeltje vormt van een verlichte schaalverdeling, kan met een kijker afgelezen worden. Om bij grotere amplitudo's correcties te voorkomen, is op een meter van het spiegeltje een gebogen schaalverdeling opgesteld met een kromtestraal van een meter.

### Dimensies

Micrometer $M_1$	spoed	: 0,7 mm	
Torsiedraad T	lengte	: 10 cm	dikte : 33 $\mu$
Huisje $H_0$	straal	: 25 mm	volume : 75 cm <sup>3</sup>
Glazen naald	lengte	: 50 cm	diameter: 1 mm
Afleesspiegeltje	diameter	: 6 mm	dikte : 1 mm
Stalen asje	lengte	: 12 cm	dikte : 1 mm
Weekijzeren staafje	lengte	: 6 mm	diameter: 2 mm
Oscillerende schijf	straal	: 15 mm	dikte : 0,2 mm
Vaste plaat	straal	: 3 cm	dikte : 2 mm
Meetruimte $M_r$	volume	: 25 cm <sup>3</sup>	
Gasthermometerruimte G	volume	: 125 cm <sup>3</sup>	
Bol in manometer $M_1$	volume	: 65 cm <sup>3</sup>	

Afstand tussen de oscillerende schijf en de vaste platen: 0,4 mm.

De viscosimeter is zo goed mogelijk trillingvrij gemonteerd.

#### b. De thermostaat.

Onder de meetruimte  $M_r$  bevindt zich een roodkoperen ruimte G, die als gasthermometer wordt gebruikt. Deze ruimte is door een nauw capillair verbonden met een differentiaal-oliemanometer  $M_1$ . In een van de benen van die manometer is een condensator C gemaakt door een koperfolie om het been te doen en een messing staafje er in aan te brengen. De bol in het andere been moet zorgen voor een constante referentiedruk. De open manometer  $M_2$  dient voor een ruwe bepaling van de temperatuur van de thermostaat. Voor nauwkeurige temperatuurbepalingen is een platina weerstandsthermometer,  $P_t$ , gebruikt. Deze thermometer is in een roodkoperen buisje in de thermometerruimte G gemonteerd. Bij het begin van de metingen, werd de cryostaat met vloeibare waterstof tot boven de meetruimte  $M_r$  gevuld. Daarna lieten we He-gas in de thermometerruimte G. De vuldruk was ongeveer 25 cm Hg. De differenti-

aal-oliemanometer is daarbij kortgesloten. Vervolgens werd de vloeibare waterstof verdampt, totdat de vloeistofspiegel beneden de gasthermometerruimte G was gekomen. De temperatuur van het toestel liep dan op en zodra de van te voren bepaalde temperatuur werd bereikt, werd de kraan in de differentiaal-oliemanometer gesloten. Iedere verandering van de druk van het gas in de gasthermometerruimte veroorzaakte dan een verandering van het olieniveau en daardoor ook een verandering van de capaciteit van de condensator C. Deze kleine capaciteitsveranderingen bedienden een electronische relaischakelaar (in de handel verkrijgbaar onder de naam Fielden-Tektor; Proximity Switch).

Op deze manier werd een stroom gestuurd òf door een verwarmingsspoel,  $H_2$ , rond de meetruimte en de gasthermometerruimte òf door een tweede spoel,  $H_1$ , onder in de cryostaat. Het meetsysteem werd zo verwarmd door een elektrische stroom of afgekoeld door een koude stroom van de verdampende waterstof. De temperatuur werd aldus gestabiliseerd tot op  $\pm 0,002$  graad.

Met dit apparaat werd de viscositeitscoëfficiënt van He, Ne,  $H_2$ ,  $D_2$  en HD gemeten. Alle gassen waren zorgvuldig gezuiverd, voordat ze gebruikt werden. He-, Ne- en  $H_2$ -gas waren uit de laboratoriumvoorraad afkomstig. Het Ne werd oorspronkelijk uit de atmosferische lucht afgescheiden; het was spectroscopisch zuiver. Het HD werd gemaakt uit de reactie van zwaarwater met  $LiAlH_4$ ; het  $D_2$  uit de reactie van zwaarwater met Na. De gasdruk in de meetruimte was ongeveer 10 cm Hg; voor Ne was deze slechts  $\pm 3$  cm in verband met de lage dampspanning van dit gas bij het kookpunt van vloeibare waterstof.

### 3. Experimentele resultaten.

De gemeten amplitudo van de oscillatie werd uitgezet op groot formaat semi-logarithmisch papier. Uit de helling van de rechte lijn door de meetpunten kan het logarithmisch decrement worden afgeleid. Uit dit decrement kan de viscositeitscoëfficiënt worden berekend met behulp van de formule (I-16):

$$\eta = \frac{2 ID}{\pi R^4} C (\Delta' / \tau - \Delta_0 / \tau_0) . \quad (1)$$

Hierin is:  $\eta$  de viscositeitscoëfficiënt

I het traagheidsmoment

D de afstand tussen de oscillerende schijf en de vaste plaat

R de straal van de oscillerende schijf

$\tau$  de oscillatieperiode

$\tau_0$  de oscillatieperiode in vacuüm

$\Delta'$  het gemeten logaritmisch decrement

$\Delta_0$  het logaritmisch decrement in vacuüm.

De factor C beschrijft de randeffecten. In het vorige hoofdstuk hebben we gezien, dat de correctie onafhankelijk van het gas wordt, indien de indringdiepte groot is ten opzichte van de plaatafstand (vergel. Kestin (1955) en Newell (1959)). Door het apparaat te kalibreren met een gas, waarvan de viscositeitscoëfficiënt bekend is, kan de invloed van de onbekende factor C worden geëlimineerd.

Voor deze ijking gebruikten we de waarde van de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas bij waterstofkookpunt, afkomstig van Kamerlingh Onnes en Weber (1913). We gaven de voorkeur aan ijking bij waterstofkookpunt boven een kalibratie bij stikstofkookpunt met een veel grotere viscositeitscoëfficiënt, omdat de resultaten bij 20,4 °K beter reproduceren.

De nulddemping werd gemeten met een hoog vacuüm in de apparatuur. De meetruimte was daarbij op waterstoftemperatuur om invloeden van dampen te elimineren. Het bleek later ook noodzakelijk te corrigeren voor de demping van het afleesspiegeltje en het weekijzeren staafje, door het gas op kamertemperatuur veroorzaakt. Deze metingen werden in een apart toestel verricht. De afmetingen van de huisjes en de spiegelgltjes waren in beide toestellen gelijk. In het volgende hoofdstuk worden deze metingen uitvoeriger besproken. De noodzakelijke correcties bedroegen bij de laagste temperaturen en viscositeiten 1 a 2% en waren verwaarloosbaar bij hoge temperatuur en grote viscositeitscoëfficiënt. In tabel I en II zijn de meetresultaten vermeld.

Voordat wij deze metingen uitvoeriger bespreken, maken we eerst enkele opmerkingen over de nauwkeurigheid, waarmee de experimenten werden verricht. De grootste foutenbronnen zijn:

- A. De regeling en de bepaling van de temperatuur.
- B. De correcties voor de nulddemping en de invloed van het afleesspiegeltje en het weekijzeren staafje.
- C. De randeffecten.
- D. De onzekerheid in de kalibratie van de viscosimeter.
- E. De invloed van de thermische contractie op het toestel.
- F. De fouten in het semi-logaritmische papier.



Tabel I.

De viscositeitscoëfficiënt als functie van de temperatuur.

Apparaatsconstante:  $2IDC/\pi R^4 = 1367 \times 10^{-7}$ . Nuldemping:  $\Delta_0/\tau_0 = 0.000134$ .

He				Ne			
T °K	$\Delta/\tau$	$\eta$ $\mu P$	serie	T °K	$\Delta/\tau$	$\eta$ $\mu P$	serie
20.42	0.002577	35.4	6	20.43	0.002459	33.6	1
20.45	0.002601	35.4	4	20.44	0.002467	33.7	2
20.47	0.002578	35.4	3	20.44	0.002477	33.9	3
20.47	0.002600	35.4	2	20.47	0.002480	33.9	4
24.65	0.002964	40.5	5	20.47	0.002487	34.0	5
24.86	0.002983	40.8	6	25.19	0.003078	42.1	3
25.83	0.002995	41.0	4	25.52	0.003061	41.9	4
27.82	0.003156	43.2	2	26.31	0.003148	43.0	2
28.95	0.003283	44.9	6	29.84	0.003677	50.3	4
30.05	0.003388	46.3	5	30.55	0.003734	51.1	3
30.88	0.003440	47.0	1	31.46	0.003829	52.4	1
33.84	0.003547	48.5	4	31.80	0.003841	52.5	2
35.68	0.003705	50.7	6	39.52	0.004749	64.9	3
37.58	0.003931	53.8	2	40.27	0.004878	66.7	1
39.19	0.003972	54.3	5	40.28	0.004902	67.0	2
39.53	0.004044	55.3	1	46.50	0.005600	76.6	2
45.34	0.004326	59.2	6	49.82	0.005942	81.3	3
46.17	0.004426	60.5	1	49.97	0.005880	80.4	1
50.23	0.004594	62.8	5	52.11	0.006248	85.4	2
55.05	0.004955	67.8	2	59.55	0.007023	96.0	3
55.27	0.004831	66.1	6	59.98	0.007049	96.4	1
56.88	0.005026	68.7	1	60.71	0.007125	97.4	2
59.84	0.005147	70.4	5	61.64	0.007230	98.9	4
65.09	0.005438	74.4	6	68.15	0.007901	108.0	2
68.87	0.005758	78.7	1	69.38	0.008003	109.4	3
72.58	0.005780	79.0	5	70.18	0.008130	111.2	1
77.04	0.006065	82.9	6	71.20	0.008217	112.4	4
77.77	0.006108	83.5	7	73.28	0.008416	115.1	2
				77.77	0.008856	121.1	6
				77.77	0.008857	121.1	6

Demping van spiegelte en weekijzeren staafje voor:

$$\text{He} : \Delta_s/\tau_s = 3.4 \times 10^{-5}.$$

$$\text{Ne} : \Delta_s/\tau_s = 5.5 \times 10^{-5}.$$

Opmerking:

1e. Het grondtal van de logarithme was 10.

2e.  $\Delta/\tau = \Delta'/\tau - \Delta_0/\tau_0 - \Delta_s/\tau_s$ .

Tabel II.

De viscositeitscoëfficiënt als functie van de temperatuur.

Apparaatsconstante:  $2IDC/\pi R^4 = 1367 \times 10^{-7}$ . Nuldemping:  $\Delta_o/\tau_o = 0,000134$ 

H <sub>2</sub>				D <sub>2</sub>			
T °K	$\Delta/\tau$	$\eta$ μP	serie	T °K	$\Delta/\tau$	$\eta$ μP	serie
20.46	0.000756	10.3	1	20.40	0.000975	13.3	3
20.46	0.000769	10.5	2	20.42	0.000965	13.2	2
20.47	0.000790	10.8	3	20.47	0.000989	13.5	1
27.42	0.001071	14.6	2	25.21	0.001255	17.2	2
28.87	0.001106	15.1	1	26.19	0.001302	17.8	3
29.20	0.001135	15.5	1	30.29	0.001498	20.5	3
33.13	0.001283	17.5	2	34.83	0.001658	22.7	2
40.03	0.001553	21.2	2	40.11	0.001990	27.2	3
44.97	0.001640	22.4	1	41.11	0.002055	28.1	2
47.86	0.001725	23.6	1	47.58	0.002368	32.4	2
55.45	0.001969	26.9	2	49.80	0.002400	32.8	3
59.68	0.002087	28.5	2	59.13	0.002835	38.8	2
70.77	0.002392	32.7	2	59.83	0.002859	39.1	3
77.77	0.002582	35.3	4	63.93	0.003024	41.4	2
				69.76	0.003239	44.3	3
				73.87	0.003365	46.0	2

HD		
T °K	$\Delta/\tau$	$\eta$ μP
20.41	0.000879	12.0
26.9	0.001155	15.8
32.57	0.001467	20.1
41.35	0.001824	24.9
48.06	0.002104	28.8
60.30	0.002555	34.9
70.32	0.002849	39.0

Demping van spiegelkje en weekijzeren staatje:

voor H<sub>2</sub>:  $\Delta_s/\tau_s = 1.6 \times 10^{-5}$ .

voor HD:  $\Delta_s/\tau_s = 1.9 \times 10^{-5}$ .

voor D<sub>2</sub>:  $\Delta_s/\tau_s = 2.2 \times 10^{-5}$ .



A. We hebben reeds vermeld, dat de temperatuurstabiliteit zoals deze gemeten werd met de platinathermometer,  $0,002^\circ$  was. De viscositeitscoëfficiënt is meestal lineair afhankelijk van de temperatuur, waardoor de uiteindelijke fout in de viscositeit verwaarloosd kan worden. Hetzelfde geldt voor de absolute temperatuur, welke niet nauwkeuriger bekend is dan tot op  $0,01$  graad.

Om te bewijzen, dat de temperatuur van de thermometer en het gas gelijk waren, werden ook metingen verricht in vloeibare stikstof. Hierbij kregen we moeilijkheden door de opwaartse kracht in de vloeistof, waardoor het toestel een weinig scheef gedrukt werd. Hierdoor ontstond een kalibratieverandering van bijna 1%. Om deze opwaartse kracht te elimineren werden enkele gewichtjes op het toestel geplaatst; deze maatregel leverde het gewenste resultaat.

Een verlaging van het waterstofniveau had ook geen invloed op de resultaten. Evenmin werden met een extra scherm rondom de meetruimte, waardoor het gas gedwongen werd dichter langs het toestel te stromen, geen afwijkingen veroorzaakt.

Ten slotte is het temperatuurevenwicht tussen het bovenste en het onderste gedeelte van het toestel nog gecontroleerd met behulp van een thermokoppel. Ook hiermee werd geen temperatuurverschil gevonden, zodat we er van verzekerd kunnen zijn, dat de temperatuur nauwkeuriger bekend was dan op  $0,1$  graad, hetgeen voldoende is. Wel moest voor een te ruwe temperatuurregeling opgepast worden; wanneer met  $H_1$  of  $H_2$  grote hoeveelheden warmte aan de apparatuur toegevoerd werden, ontstonden convectiestromingen in het gas. Dit uitte zich in grafieken van de amplitudo op semi-logarithmisch papier. Wanneer de toegevoerde warmtehoeveelheden verminderd werden, verdween op de rechte lijnen de gesuperponeerde oscillatie en kwamen alle meetpunten binnen  $0,5\%$  op een rechte lijn.

B. De onnauwkeurigheid, waarmee de nul damping werd bepaald, was ongeveer 10%, terwijl de spiegeltjesdamping niet beter dan tot op 20% bekend was. Beide effecten veroorzaken samen een onzekerheid van  $0,2$  tot  $2\%$ , zoals uit de waarden in de tabellen I en II blijkt.

C. Hoewel de onderzoeken van Kestin (1955) en Newell (1959) tonen, dat de randcorrecties onafhankelijk worden van het gas voor grote waarden van de indringdiepte, blijft er toch altijd nog een onzekerheid, die echter maar een fractie zal zijn van de totale invloed. Volgens de berekening van Newell (I-18) zou een totale invloed van 7% verwacht kunnen worden, waardoor de fout in de meetresultaten niet groter dan 1% zal kunnen zijn.

D. Zoals reeds vroeger is gemeld, werd de kalibratie van de apparatuur bij waterstofkookpunt geprefereerd, waarbij de viscositeitswaarde, door Kamerlingh Onnes en Weber (1913) gemeten, werd gebruikt. De on-

zekerheid van deze waarde bevindt zich in alle meetresultaten. Ofschoon de nauwkeurigheid bij 20 °K, het ijkpunt, kleiner is dan bij stikstofkookpunt, werd de totale nauwkeurigheid toch niet beïnvloed, omdat de viscositeitscoëfficiënt bij vloeibare—stikstoftemperatuur met het toestel gemeten binnen 0,5% overeenstemde met de viscositeitswaarden volgens Keesom (1942). Het is moeilijk de nauwkeurigheid, waarmee de heliumwaarden bekend zijn, te schatten, maar waarschijnlijk is de fout toch kleiner dan 2%. Hierbij mogen we er nog even op wijzen, dat de absolute viscositeitswaarde van minder betekenis is, indien het gaat om de temperatuurafhankelijkheid van een enkel gas.

E. De thermische contractie beïnvloedt onze resultaten op twee manieren. Op de eerste plaats is er verandering in de dimensies van de grootheden in vergel.(1). Bovendien kan door verschil in contractie van afzonderlijke delen van het toestel de schijf asymmetrisch tussen de vaste platen komen te hangen. Het eerste effect is te verwaarlozen, omdat het apparaat bij 20,4 °K werd gekalibreerd en de thermische contractie van koper tussen 20° en 80 °K zeer klein is.

Om moeilijkheden door het tweede effect te voorkomen werd het apparaatgedeelte tussen 80 °K en de kamertemperatuur van glas gemaakt. Hierdoor zal bij kleine temperatuurverschillen tussen buis en naald het contractieverschil gering blijven. Bovendien is de oscillerende schijf met behulp van een micrometerinstelling nauwkeurig in het midden van de vaste platen gebracht, terwijl het toestel zich op waterstoftemperatuur bevond. In het volgende hoofdstuk zullen we laten zien, dat kleine afwijkingen van de schijf uit het midden een geringe dempingsverandering tot gevolg hebben. De invloed zal dus verhoudingsgewijs zeer klein zijn. Een berekening van het resterende effect gaf een invloed, die kleiner dan ½% was. Een correctie voor de contractie behoefde hierom niet te worden toegepast. Een nadere controle werd nog uitgevoerd door metingen van de demping te verrichten met de meetruimte ondergedompeld in vloeibare waterstof. De resultaten bleken niet afhankelijk te zijn van de hoogte van de vloeistofspiegel.

F. Ten slotte hebben we het semi—logarithmisch papier gecontroleerd met een exponentiële functie. De schaalverdeling was tot op ½% nauwkeurig.

Indien we de verschillende foutenbronnen samenvatten, wordt de toevallige fout in de meetresultaten ongeveer 1%.

Met de systematische fout in de kalibratie wordt de totale fout 2 à 3%. Later zal in dit hoofdstuk een bevestiging van deze schatting worden gevonden.

We willen nu onze experimentele resultaten uitvoeriger bespreken. In de figuren 2, 3, 4 en 5 zijn de resultaten uitgezet als functie van de temperatuur; ook zijn hierin de gegevens van andere auteurs vermeld.

Keesom (1942) heeft laten zien, dat de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas tussen  $14^{\circ}$  en  $1000^{\circ}$  K voorgesteld kan worden door de uitdrukking:

$$\eta = 5,023 T^{0,647} \mu P. \quad (2)$$

De rechte lijn van fig. 2 brengt deze uitdrukking in beeld.

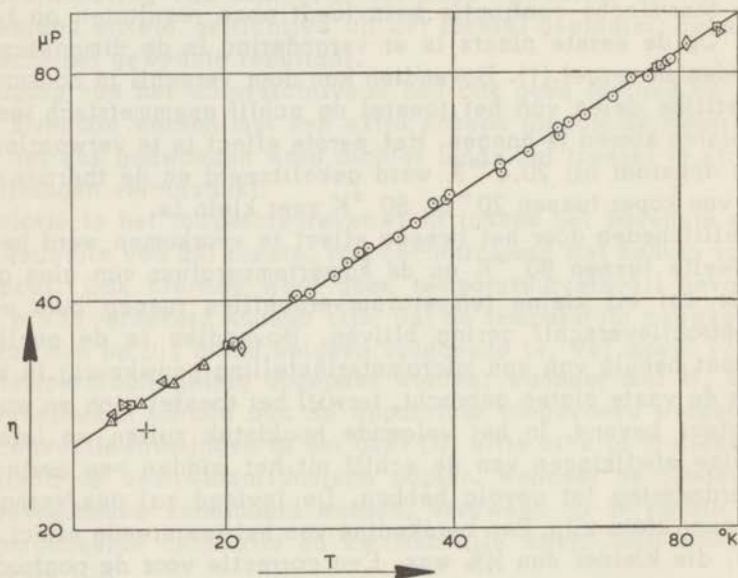


fig. 2. De viscositeitscoëfficiënt van heliumgas als functie van de temperatuur op een dubbel logarithmische schaal.

- eigen metingen
- Kamerlingh Onnes en Weber (1913)
- ▷ Van Itterbeek en Van Paemel (1940)
- △ Becker en Misenta (1955)
- ◁ Van Itterbeek en Keesom (1938)
- + Günther (1924)    ◇ Vogel (1914).



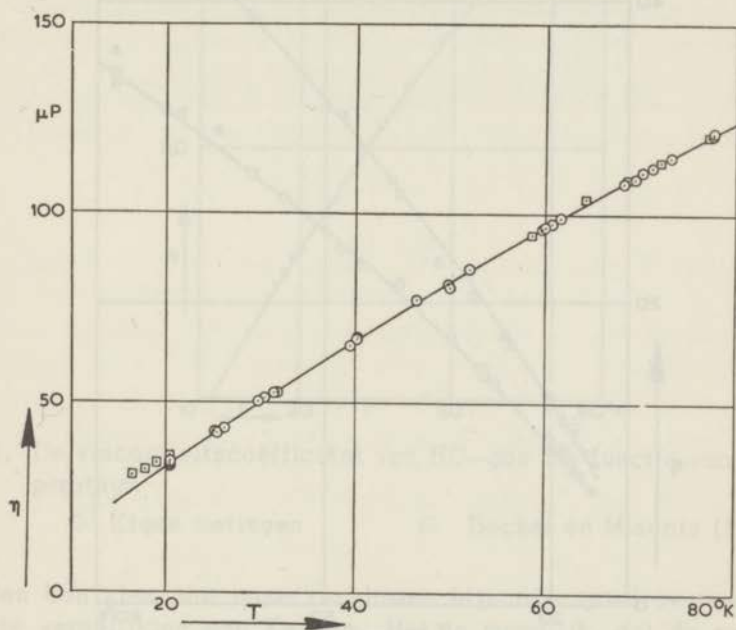


fig. 3. De viscositeitscoëfficiënt van neongas als functie van de temperatuur.

○ eigen metingen    □ Van Itterbeek en Van Paemel (1940).



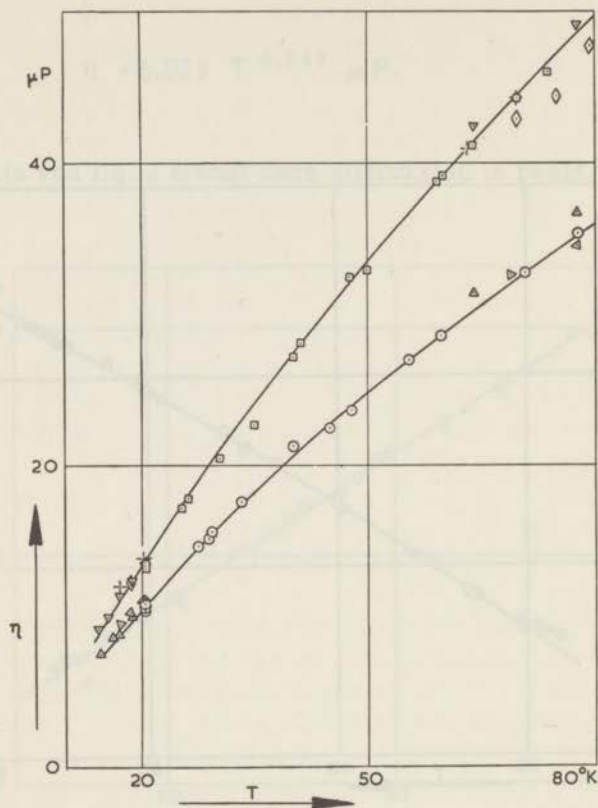


fig. 4. De viscositeitscoëfficiënt van  $\text{H}_2$  en  $\text{D}_2$  als functie van de temperatuur.

- Eigen  $\text{D}_2$ -metingen
- ▽ Becker en Misenta (1955)
- + Van Itterbeek en Van Paemel (1940)
- ◇ Van Itterbeek en Miss Claes (1938)
- Eigen  $\text{H}_2$ -metingen
- △ Becker en Misenta (1955)
- ▽ Van Itterbeek en Van Paemel (1940)
- △ Van Itterbeek en Miss Claes (1938).

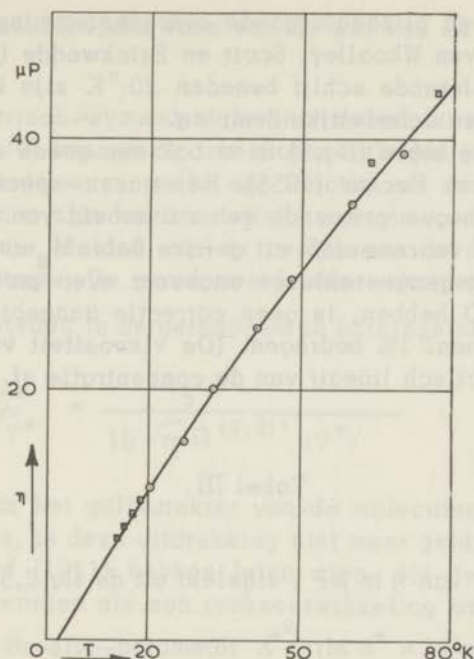


fig. 5. De viscositeitscoëfficiënt van HD-gas als functie van de temperatuur.

○ Eigen metingen

□ Becker en Misenta (1955).

Men kan zien, dat onze resultaten bijzonder goed overeenstemmen met de vergelijking van Keesom. Het is mogelijk, dat de punten van Van Itterbeek en Keesom (1938) bij de laagste temperaturen iets te hoog liggen, omdat zij niet gecorrigeerd hebben voor de spiegeltjesdemping. Later zullen we zien, dat er zelfs een indicatie is, dat de viscositeitswaarden beneden  $20^{\circ}\text{K}$  met formule (2) berekend iets te groot zijn.

In fig. 3 hebben we ook de experimentele resultaten van neon, gevonden door Van Itterbeek en Van Paemel (1940), uitgezet. Bij vloeibare-stikstof-temperatuur is er een goede overeenstemming; bij vloeibare-waterstof-temperatuur liggen hun punten hoger, waarschijnlijk weer, doordat voor de reeds eerder genoemde spiegeltjesdemping niet is gecorrigeerd. Bovendien is de dampspanning van neon beneden  $20,4^{\circ}\text{K}$  zo klein, dat deze lage dampdruk een ernstige handicap voor de metingen wordt.

Onze meetresultaten met  $\text{H}_2$  en  $\text{D}_2$  kan men in fig. 4 zien, waarin men ook gegevens van andere auteurs aantreft. Er blijkt een goede overeenstemming met de bestaande metingen te zijn, wanneer men de grote spreiding van deze waarden bij andere onderzoekers beschouwt. Bene-

den 40 °K is er een bijzonder goede overeenstemming met de geïnterpoleerde waarden van Whoolley, Scott en Brickwedde (1948). De resultaten met de oscillerende schijf beneden 20 °K zijn iets te hoog door de aanwezigheid van schadelijke demping.

Voor de HD-metingen (fig.5) is er ook een goede overeenstemming met de waarden van Becker (1955). Een massa-spectrografische analyse\*) van het HD-gas vertoonde een zuiverheid van 95(±2)%. De onzuiverheid bestond voornamelijk uit gelijke delen H<sub>2</sub> en D<sub>2</sub>. Omdat deze twee gasen een tegengestelde en ongeveer even grote invloed op de viscositeit van HD hebben, is geen correctie aangebracht. De correcties zouden maximaal 1% bedragen. (De viscositeit van een dergelijk mengsel hangt praktisch lineair van de concentratie af.—Rietveld (1959)).

Tabel III.

Waarden van  $\eta$  in  $\mu\text{P}$ , afgeleid uit de fig 2,3,4 en 5.

T in °K	Ne	He	H <sub>2</sub>	D <sub>2</sub>	HD
20	33.0	34.9	10.4	13.4	11.9
30	50.0	45.4	15.8	20.8	18.1
40	66.3	54.7	20.5	27.4	24.0
50	81.8	63.1	24.8	33.5	29.5
60	96.6	71.0	28.7	39.2	34.7
70	110.8	78.5	32.4	44.6	39.7
80	124.5	85.6	35.9	49.7	

In tabel III zijn de viscositeitswaarden vermeld, afgeleid uit de curven door de meetpunten in de figuren 2,3,4 en 5. Deze viscositeitswaarden zullen we in de volgende paragrafen vergelijken met theoretische berekeningen.

\* Uitgevoerd te Amsterdam, Laboratorium voor Massaspectrografie.

#### 4. De quantummechanische vorm van de wet van de overeenstemmende toestanden.

Voor een sferisch-symmetrische intermoleculaire potentiaal van de vorm  $U = -\epsilon f(r/\sigma)$  kunnen de transportgrootheden geschreven worden in een gereduceerde vorm, welke een functie van de gereduceerde temperatuur is.  $\epsilon$  en  $\sigma$  zijn karakteristieke energie- en lengtegrootheden;  $r$  is de onderlinge afstand van de centra van de moleculen;  $k$  is de Boltzmann-constante. De gereduceerde viscositeit  $\eta^*$  kan op deze manier uitgedrukt worden in de gereduceerde botsingsintegraal  $\Omega^{(2,2)^*}$  :

$$\frac{\eta^*}{\sqrt{T^*}} = \frac{5}{16 \sqrt{\pi} \Omega^{(2,2)^*}(T^*)} \quad (3)$$

Zodra echter door het golfkarakter van de moleculen diffractieeffecten belangrijk worden, is deze uitdrukking niet meer geldig.

De Boer en Bird (1951) hebben laten zien, dat de botsingsintegraal geschreven kan worden als een reeksontwikkeling naar machten van de gereduceerde de Broglie-parameter  $\Lambda^{*2}$ . (In  $\Lambda^* = h/\sigma\sqrt{m\epsilon}$  is  $m$  de massa van het molecuul en  $h$  de constante van Planck.):

$$\Omega^{(2,2)^*}(T^*, \Lambda^*) = \Omega_{cl}^{(2,2)^*}(T^*) + \Lambda^{*2} \Omega_I^{(2,2)^*}(T^*) + \dots \quad (4)$$

Hierin is  $\Omega_{cl}^{(2,2)^*}$  de klassieke waarde van de botsingsintegraal en  $\Omega_I^{(2,2)^*}$  de eerste term van de reeksontwikkeling. Naar aanleiding van deze uitdrukking moeten we betrekking (3) schrijven als:

$$\eta^*/\sqrt{T^*} = \eta_{cl}^*/\sqrt{T^*} + \Lambda^{*2} \eta_I^*/\sqrt{T^*} \quad (5)$$

De betekenis van de indices  $cl$  en  $I$  is dezelfde als in vergelijking (4). Aan de hand van deze vergelijking worden nu de metingen besproken, waarbij we gebruik maken van een Lennard Jones (12-6) intermoleculaire potentiaal.

$$U = 4\epsilon \{ (r/\sigma)^{-12} - (r/\sigma)^{-6} \} \quad (6)$$

Hierin is  $\epsilon$  de minimale potentiaalwaarde en  $\sigma$  de waarde van  $r$ , waarvoor  $U(r) = 0$ . Voor  $\epsilon$  en  $\sigma$  zijn waarden gebruikt, welke uit gegevens over de tweede viriaalcoëfficiënt werden afgeleid; voor de isotopen zijn dezelfde  $\epsilon$ - en  $\sigma$ -waarden gebruikt. In tabel IV zijn deze waarden en ook de gereduceerde De Broglie-golflengte en de reductiefactoren



voor temperatuur en viscositeitscoëfficiënt getabelleerd. Zij zijn afkomstig uit Hirschfelder c.s. (1954) tabel I-A.

Tabel IV.

Moleculaire constanten en reductiefactoren voor de viscositeitscoëfficiënt en de temperatuur samen met de De Broglie-golflengte.

Gas	Waarde afkomstig van	$\epsilon \times 10^{-16}$ erg	$\sigma$ Å	$\epsilon/k$ °K	$\sigma^2/\sqrt{m}\epsilon \times 10^{-3}$ g.cm <sup>-1</sup> .sec <sup>-1</sup> .	$\Lambda^* = h/\sigma\sqrt{m\epsilon}$
Ne	viscosit.coëf.	49.28	2.789	35.7	1.915	0.585
Ne	tweede vir.coëf.	48.18	2.78	34.9	1.924	0.593
<sup>4</sup> He	tweede vir.coëf.	14.11	2.556	10.22	6.747	2.675
<sup>3</sup> He	tweede vir.coëf.	14.11	2.556	10.22	7.78	3.08
H <sub>2</sub>	tweede vir.coëf.	51.08	2.928	37.00	6.557	1.730
D <sub>2</sub>	tweede vir.coëf.	51.08	2.928	37.00	4.637	1.224
HD	tweede vir.coëf.	51.08	2.928	37.00	5.355	1.413

Opmerking: zie Lunbeck R.J. (1951).

In fig. 6 worden de  $\eta^*/\sqrt{T^*}$ -waarden van de verschillende gassen als functie van de gereduceerde temperatuur aangegeven. Deze waarden worden vergeleken met de klassieke waarde, welke van de Lennard-Jones (12-6)-potentiaal werd afgeleid. De resultaten van de HD-metingen hebben we hierin niet vermeld, omdat HD een asymmetrisch molecuul is, wat niet met een Lennard-Jones-potentiaalmodel beschreven kan worden. De klassieke waarde was berekend met behulp van de tabellen I-M en I-P uit Hirschfelder, Curtiss en Bird (1954); hierin zijn ook hogere orde benaderingen in rekening gebracht. De getrokken lijnen stellen het viscositeitsverloop voor, zoals dit werd gevonden in de figuren 2, 3 en 4.

Beneden 20 °K zijn na reductie de meetresultaten van andere auteurs ingetekend. Ook hebben we in de beschouwing nog gegevens van <sup>3</sup>He, door andere auteurs bepaald, betrokken. De <sup>4</sup>He-waarden van Van Itterbeek c.s. (1953) bij vloeibare-helium-temperaturen zijn, nadat ze gecorrigeerd waren voor de spiegeltjesdemping (vergel. hoofdstuk III tabel I), ook in deze figuur aangegeven.

Uit fig. 6 kan men een duidelijk beeld krijgen omtrent de toenevende invloed van de quantummechanica bij lage temperaturen.

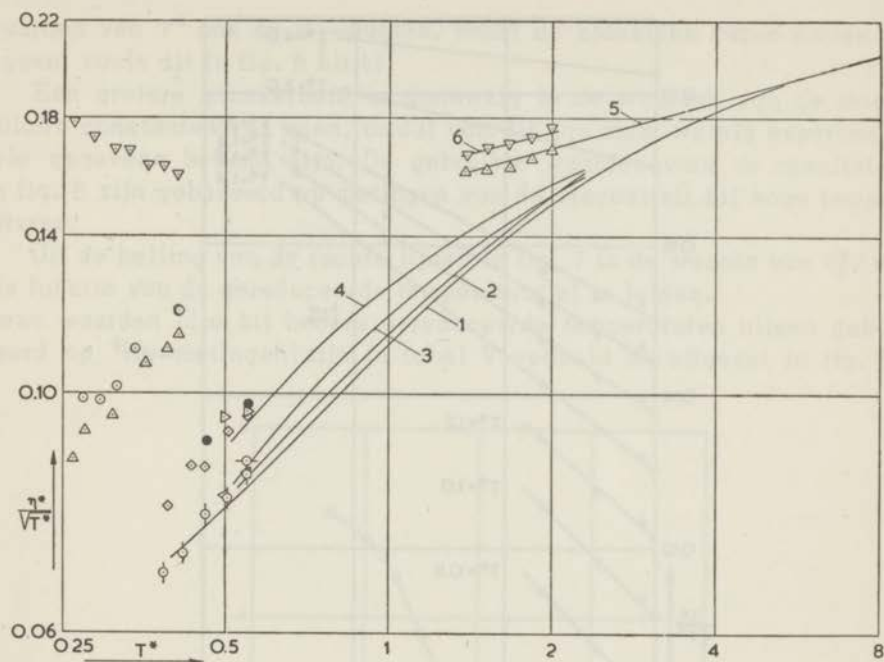


fig. 6.  $\eta^*/\sqrt{T^*}$  als functie van de gereduceerde temperatuur op een dubbel logaritmische schaal.

- |                    |           |
|--------------------|-----------|
| 1. Klassieke curve | 4. $H_2$  |
| 2. Ne              | 5. $^4He$ |
| 3. $D_2$           | 6. $^3He$ |

○ ▽ ◇ Becker en Misenta (1955)

◁ ▷ Van Itterbeek en Miss Claes (1938)

-○- ● Van Itterbeek en Van Paemel (1940)

○ Van Itterbeek (1953). ▽ Becker(1954).

Om vergel. 5 te onderzoeken hebben we de waarden van  $\eta^*/\sqrt{T^*}$  bij verschillende waarden van  $T^*$  bepaald uit fig. 6. De resultaten zijn als functie van  $\Lambda^{*2}$  uitgezet in fig. 7.

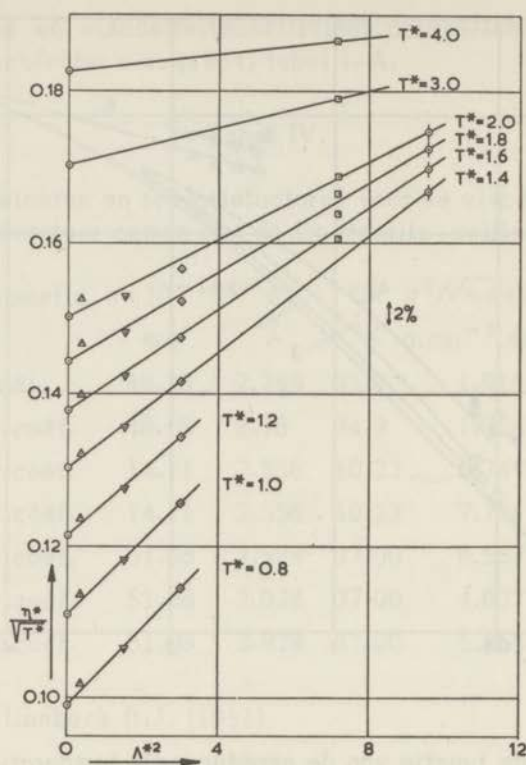


fig. 7. De afhankelijkheid van de gereduceerde viscositeitscoëfficiënt van de De Broglie-golflengte bij constante gereduceerde temperatuur.

- |   |                  |   |        |
|---|------------------|---|--------|
| ○ | klassieke waarde | ◇ | $H_2$  |
| △ | Ne               | □ | $^4He$ |
| ▽ | $D_2$            | ⊙ | $^3He$ |

Allereerst merken we op, dat boven  $T^* = 0.8$  alle punten binnen 1% op een rechte lijn liggen behalve de  $^4He$ -punten beneden  $T^* = 2$ . Hun afwijking is echter niet groter dan 2%. Hieruit zou men de indruk kunnen krijgen, dat de  $^4He$ -waarden, zoals ze in formule (2) gegeven werden iets te hoog zijn beneden  $20^\circ K$ . De overige experimentele punten in dit temperatuurgebied, zoals ze in de fig. 2, 3 en 4 zijn ingetekend, laten zien, dat dit niet in tegenspraak is met de metingen van Becker (1955). Beneden  $T^* = 0.8$  is de betrekking (5) niet langer geldig. Dit wordt onmiddellijk duidelijk uit het feit, dat de  $D_2$ -punten, en bij nog lagere

waarden van  $T^*$  ook de  $H_2$ -punten, onder de klassieke curve komen te liggen, zoals dit in fig. 6 blijkt.

Een grotere onzekerheid is aanwezig in de waarden van de moleculaire constanten van neon, omdat van dit gas maar weinig experimentele gegevens bekend zijn. De gebruikte waarden voor de resultaten in fig. 6 zijn gebaseerd op metingen van de viscositeit bij hoge temperaturen.

Uit de helling van de rechte lijnen in fig. 7 is de waarde van  $\eta_T^*/\sqrt{T^*}$  als functie van de gereduceerde temperatuur af te leiden.

Deze waarden (die bij hogere gereduceerde temperaturen alleen gebaseerd op  $^4He$ -metingen) zijn in tabel V vermeld en uitgezet in fig. 8.

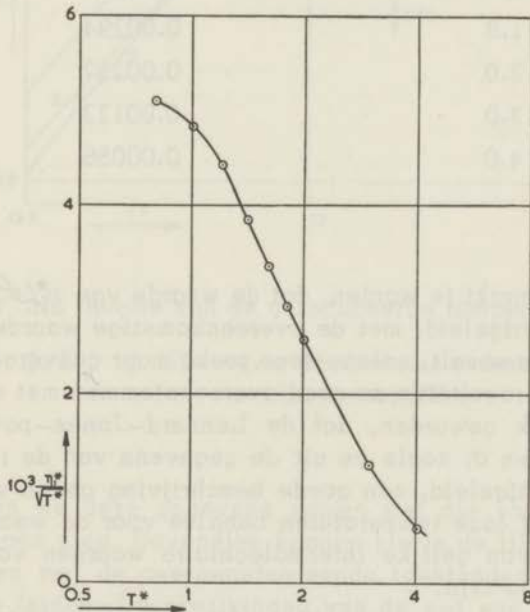


fig. 8. De eerste-orde-correctie op de gereduceerde viscositeitscoëfficiënt in de reeksontwikkeling naar de De Broglie-golflengte als functie van de gereduceerde temperatuur.

De Boer en Bird (1954) beschouwen in hun viscositeitsberekening alleen een repulsiepotentiaal, waardoor deze resultaten een hoge temperatuurbenadering geven. In tegenstelling met onze resultaten vinden zij een afname in  $\eta^*$  bij een toenemende waarde van de De Broglie-golflengte. Dit kan er op wijzen, dat de hier beschouwde temperaturen te laag zijn om het aantrekkende deel van de potentiaal te verwaarlozen.



Tabel V.

De eerste-orde-correctie van de gereduceerde viscositeitscoëfficiënt bij verschillende waarden van de gereduceerde temperatuur.

$T^*$	$\eta_1^*/\sqrt{T^*}$
0.8	0.00507
1.0	0.00485
1.2	0.00435
1.4	0.00386
1.6	0.00339
1.8	0.00294
2.0	0.00257
3.0	0.00123
4.0	0.00056

Hier dient opgemerkt te worden, dat de waarde van  $\eta_1^*/\sqrt{T^*}$ , zoals deze uit fig. 7 werd afgeleid, met de overeenkomstige waarden in de reeks-ontwikkeling samenvalt, zolang deze reeks maar convergeert.

Omdat onze resultaten zo goed overeenstemmen met vergelijking (5) is het duidelijk geworden, dat de Lennard-Jones-potential en de waarden van  $\epsilon$  en  $\sigma$ , zoals ze uit de gegevens van de toestandsvergelijking werden afgeleid, een goede beschrijving geven van de viscositeitswaarden bij lage temperaturen behalve voor de waarden van neon. Het aannemen van gelijke intermoleculaire waarden voor de isotopen blijkt ook juist te zijn.

Ten slotte mag nog opgemerkt worden, dat alle rechte lijnen in fig. 7 binnen 1% door de klassieke theoretische waarde gaan. Hierom moet de systematische fout in de viscositeitsgegevens kleiner zijn dan 2%. Als in al die waarden een zelfde foutieve factor zat, zouden de experimentele punten wel op een rechte lijn liggen, maar deze zou niet meer door de overeenkomstige theoretische waarde gaan.

In tabel IV hebben we de moleculaire constanten van HD, behalve natuurlijk de massa, gelijk aan die van  $H_2$  gekozen. Uit die gegevens waren  $\sigma^2/\sqrt{m\epsilon}$  en  $\Lambda^*$  te berekenen, waardoor ook  $\eta^*/\sqrt{T^*}$  als functie van de gereduceerde temperatuur kon worden bepaald.

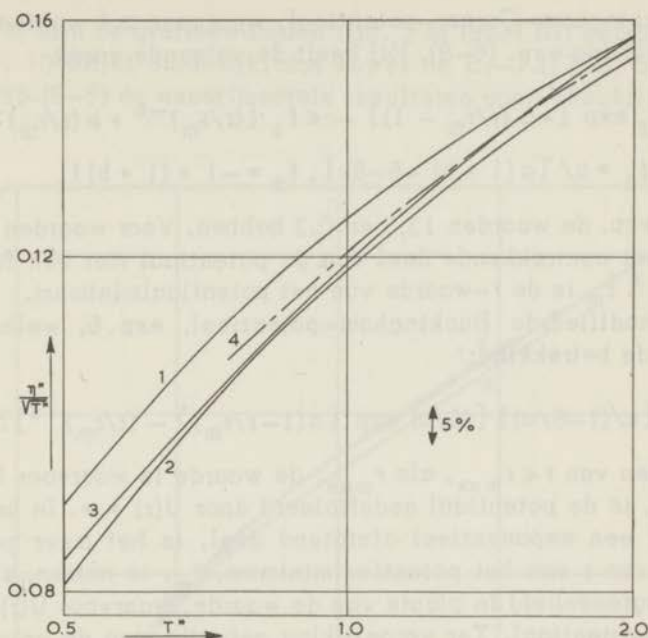


fig. 9.  $\eta^*/\sqrt{T^*}$  als functie van de gereduceerde temperatuur.

1.  $H_2$  2.  $D_2$  3. HD 4. overeenstemmende toestanden-curve voor HD

In fig. 9 laten we deze gegevens samen met die van de andere twee waterstofisotopen zien. Bovendien kunnen hierin de HD-resultaten vergeleken worden met de overeenstemmende toestandencurve, welke uit fig. 7 is af te leiden. De afwijkingen van de wet van de overeenstemmende toestanden worden waarschijnlijk veroorzaakt door de asymmetrie van het HD-molecuul, dat niet met een Lennard-Jones-potentiaalmodel beschreven kan worden.

##### 5. Berekeningen van de viscositeitscoëfficiënt met verschillende potentiaalmodellen, vergeleken met de experimentele resultaten.

Voor drie verschillende intermoleculaire potentialen zijn quantummechanische berekeningen uitgevoerd:

1. De Lennard-Jones(12-6)-potentiaal, welke we reeds eerder vermeldden. Deze potentiaal zal hierna worden afgekort tot L.-J.(12-6).

2. De Buckingham-Corner-potentiaal, waarnaar zal worden verwezen door de afkorting exp. (6-8). Hij heeft de volgende vorm:

$$U = \epsilon f_2 \exp [-a (r/r_m - 1)] - \epsilon f_1 [(r/r_m)^{-6} + b (r/r_m)^{-8}],$$

$$\text{waarin } f_1 = a / [a(1+b) - 6 - 8b], f_2 = -1 + (1+b)f_1$$

en  $a$  en  $b$  resp. de waarden 13,5 en 0.2 hebben. Voor waarden van  $r < r_m$  verandert het aantrekkende deel van de potentiaal met een factor  $\exp -4(r_m/r-1)^3$ .  $r_m$  is de  $r$ -waarde van het potentiaalminimum.

3. De gemodificeerde Buckingham-potentiaal, exp.6, welke gegeven wordt door de betrekking:

$$U(r) = \{ \epsilon / (1 - 6/a) \} [ (6/a) \exp \{ \alpha(1 - r/r_m) \} - (r/r_m)^{-6} ].$$

Voor waarden van  $r < r_{max}$ , als  $r_{max}$  de waarde is waarvoor  $U(r)$  maximaal wordt, is de potentiaal gedefinieerd door  $U(r) = \infty$ . In beide potentialen, met een exponentieel afstotend deel, is het meer gebruikelijk de waarde van  $r$  van het potentiaalminimum,  $r_m$ , te nemen, als karakteristieke lengteenheid in plaats van de waarde, waarvoor  $U(r) = 0$ , zoals in de L-J-potentiaal. Ter vergelijking gebruikt men de voor de L-J-potentiaal geldige uitdrukking  $r_m = 1.122 \sigma$ .

De Boer c.s. (1951-1939-1943) en Keller (1957) hebben met de L.-J.-(12-6) berekeningen uitgevoerd voor  $^3\text{He}$  en  $^4\text{He}$  tot een temperatuur van ongeveer 40 °K. Berekeningen voor  $\text{H}_2$  zijn door Cohen (1956) uitgevoerd tot 22 °K. Ook werden  $^4\text{He}$  en  $\text{H}_2$  berekend met de exp.(6-8) tot ongeveer 80 °K door Buckingham (1952-1957). Ten slotte heeft Keller (1957)  $^3\text{He}$  en  $^4\text{He}$  ook berekend met gebruikmaking van een exp.6. De moleculaire constanten in de berekeningen werden afgeleid uit gegevens van de toestandsvergelijking bij hoge temperaturen; de exp. (6-8) moet hiervan worden uitgezonderd. Voor verdere details verwijzen we naar de originele publicaties.

De viscositeitsberekeningen van He en  $\text{H}_2$  bij lage temperaturen kunnen we nu vergelijken met onze metingen. In fig. 10 worden de experimentele waarden van  $^4\text{He}$  vergeleken met de bovengenoemde berekeningen. De lijnen 1,2 en 3 beschrijven resp. de resultaten met de L.-J.(12-6), de exp.(6-8) en de exp.6. De experimentele resultaten in het vloeibare-helium-temperatuurgebied zijn afkomstig van Becker (1954) en Van Itterbeek (1953). Deze laatste metingen werden gecorrigeerd voor de demping van het afleesspiegeltje. Dit was mogelijk, omdat zijn apparaat gelijke afmetingen en werking bezat als het door ons gebruikte. (vergel.hoofdstuk III, tabel I) Het verschil tussen de waarden van Becker (1954) en de Leidse resultaten ligt nu binnen hun gezamenlijke experimentele onnauwkeurigheid.



Boven 14 °K zijn de grafiekwaarden (fig. 2 of tabel III) gebruikt.

Uit fig. 10 blijkt duidelijk, dat zowel de L.-J.(12-6) als de Buckingham-exp.(6-8) de experimentele resultaten goed beschrijven.

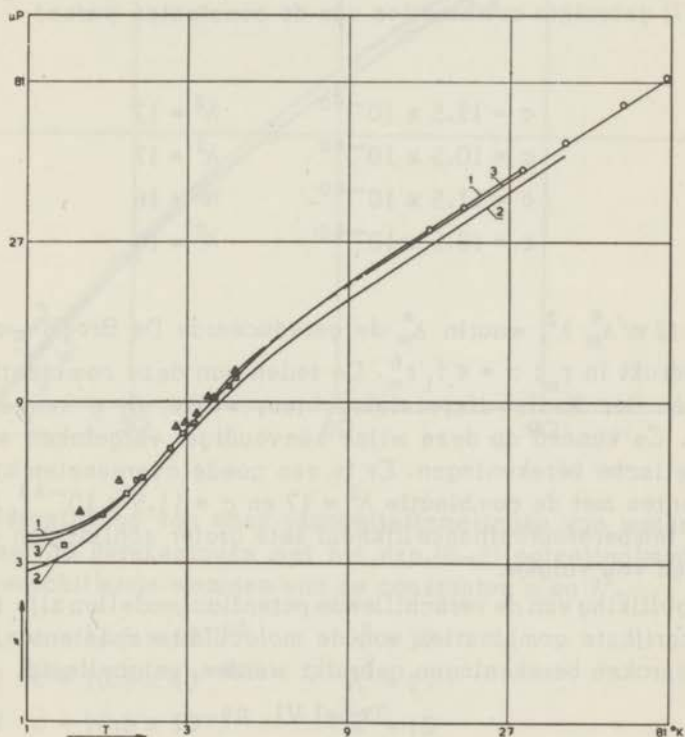


fig. 10. De viscositeit van heliumgas als functie van de temperatuur, zoals deze met verschillende potentiaalmodellen werd berekend.

- |                               |   |
|-------------------------------|---|
| 1. Keller (1957)-L.-J.(12-6)  | ○ eigen waarden (tabel III)                     |
| 2. Keller (1957)-exp.6        | Δ gecorrigeerde Van Itterbeek-<br>waarden(1953) |
| 3. Buckingham(1952)-exp.(6-8) | ◻ Becker (1954).                                |

Experimenteel schijnt er geen enkele reden te zijn de ene potentiaal boven de andere te prefereren. Ofschoon de exp. 6 goede resultaten geeft voor berekeningen van de toestandsvergelijking in het temperatuurgebied van vloeibaar helium, is de overeenstemming met viscosi-



teitswaarden veel minder. Van waterstof zijn boven 20 °K alleen berekeningen met de exp.(6-8)-potentiaal aanwezig, zodat onze metingen alleen hiermee kunnen worden vergeleken. In fig. 11 zijn de rekenresultaten voor vier verschillende combinaties van de moleculaire constanten met de experimentele resultaten vergeleken. De door Buckingham (1957) gebruikte combinaties van de constanten waren:

$$\begin{array}{ll} c = 11.5 \times 10^{-60} & \lambda^2 = 17 \\ c = 10.5 \times 10^{-60} & \lambda^2 = 17 \\ c = 11.5 \times 10^{-60} & \lambda^2 = 16 \\ c = 10.5 \times 10^{-60} & \lambda^2 = 16 \end{array}$$

$\lambda^2 = (2\pi/\Lambda_m^*)^2$ , waarin  $\Lambda_m^*$  de gereduceerde De Broglie-golflengte is, uitgedrukt in  $r_m$ ;  $c = \epsilon f_1 r_m^6$ . De reden van deze combinatiekus ligt in de Van der Waals-dispersiekrachten, welke uit  $c$  kunnen worden afgeleid. Ze kunnen op deze wijze eenvoudiger vergeleken worden met de theoretische berekeningen. Er is een goede overeenstemming van de experimenten met de combinatie  $\lambda^2 = 17$  en  $c = 11.5 \times 10^{-60}$ , hoewel de gemeten temperatuursafhankelijkheid iets groter schijnt dan uit de berekeningen zou volgen.

Voor vergelijking van de verschillende potentiaalmodellen zijn in tabel VI de belangrijkste combinaties van de moleculaire constanten, zoals ze in de besproken berekeningen gebruikt werden, getabelleerd.

Tabel VI.

## Moleculaire constanten.

Potentiaal-model	gas	$\epsilon/k$ °K	$r_m$ Å	$\Lambda_m^*$
L.-J.(12-6) (De Boer-Lunbeck)	$^4\text{He}$	10.22	2.869	2.385
Exp.6 pot. (Kilpatrick-Keller)	$^4\text{He}$	7.56	3.189	2.536
Exp.(6-8) (Buckingham)	$^4\text{He}$	9.97	2.976	2.33
L.-J.(12-6) (De Boer-Lunbeck)	$\text{H}_2$	37.00	3.287	1.541
Exp.(6-8) (Buckingham)	$\text{H}_2$	34.32	3.350	1.57
	$\text{H}_2$	37.58	3.299	1.52
	$\text{H}_2$	32.80	3.426	1.57
	$\text{H}_2$	35.90	3.375	1.52

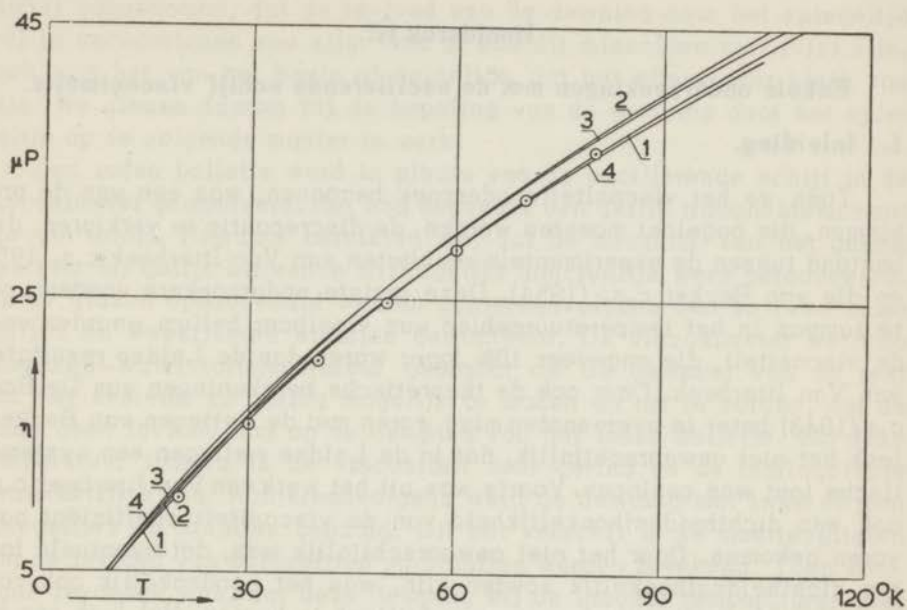


fig. 11. Vergelijking van onze viscositeitsmetingen van waterstofgas met de berekeningen met het exp.(6-8) potentiaalmodel voor verschillende waarden van de constanten  $c$  en  $\lambda^2$ .

1	$c = 11.5 \times 10^{-60}$	$\lambda^2 = 17$
2	$c = 10.5 \times 10^{-60}$	$\lambda^2 = 17$
3	$c = 10.5 \times 10^{-60}$	$\lambda^2 = 16$
4	$c = 11.5 \times 10^{-60}$	$\lambda^2 = 16$

○ eigen metingen (tabel III).

### Hoofdstuk III.

#### Enkele onderzoeken met de oscillerende schijf viscosimeter.

##### 1. Inleiding.

Toen we het viscositeitsonderzoek begonnen, was een van de problemen, die opgelost moesten worden, de discrepantie te verklaren, die bestond tussen de experimentele resultaten van Van Itterbeek c.s.(1953) en die van Becker c.s. (1954). Deze laatste onderzoekers vonden voor heliumgas in het temperatuurgebied van vloeibaar helium waarden voor de viscositeit, die ongeveer 10% lager waren dan de Leidse resultaten van Van Itterbeek. Daar ook de theoretische berekeningen van De Boer c.s.(1943) beter in overeenstemming waren met de metingen van Becker, leek het niet onwaarschijnlijk, dat in de Leidse metingen een systematische fout was geslopen. Voorts was uit het werk van Van Itterbeek c.s. ook een dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt naar voren gekomen. Daar het niet onwaarschijnlijk was, dat eventuele fouten dichtheidsafhankelijk zouden zijn, was het noodzakelijk ook voor dit effect de meetmethode nog eens kritisch te bezien. Het leek ons bij een nadere beschouwing van de experimentele methode van Van Itterbeek gewenst, dat een drietal verschijnselen nader werd bezien en wel de volgende:

- a. een eventuele extra demping tengevolge van het spiegeltje. Tot nu was wel aangenomen, dat de invloed hiervan verwaarloosbaar zou zijn. Dit was echter niet door metingen gecontroleerd. Daar de demping van heliumgas bij vloeibare heliumtemperatuur zeer klein is, behoeft deze extra demping niet erg groot te zijn om toch nog een reële betekenis te hebben.
- b. Bij de opstelling van Van Itterbeek c.s. was het niet eenvoudig te controleren, of de oscillerende schijf zich wel precies in het midden van de vaste platen bevond. Hoewel theoretische beschouwingen het niet waarschijnlijk maakten, dat dit effect van veel betekenis kon zijn, meenden we toch, dat het van belang was de theoretisch berekende invloed van een eventuele asymmetrie na te gaan.
- c. Ten slotte leek het ons van belang, vooral met het oog op de dichtheidsafhankelijkheid, de invloed van de reeds genoemde randcorrecties op de betrokken metingen nog eens nader te bezien (vergel. hoofdstuk I). Dit werd ons vereenvoudigd door recente experimentele en theoretische onderzoeken van Kestin (1955) en Newell (1959).

##### 2. Het onderzoek van de demping door het spiegeltje.

Zoals in de inleiding vermeld werd, was door Van Itterbeek c.s.



(1953) aangenomen, dat de invloed van de demping door het spiegeltje wel te verwaarlozen zou zijn. Ook al zou dit misschien niet juist zijn, toch was het van het begin af duidelijk, dat het effect zeer klein zou zijn. We gingen daarom bij de bepaling van de demping door het spiegeltje op de volgende manier te werk.

Een loden bolletje werd in plaats van de oscillerende schijf in de viscosimeter gemonteerd. Het had ongeveer een gelijk traagheidsmoment als de schijf. Hierdoor bereikten we, dat de demping van het gehele systeem bij gelijk blijvende trillingstijd aanzienlijk werd gereduceerd. Op de glazen ophangnaald werden achtereenvolgens één en twee spiegeltjes en weekijzeren staafjes gemonteerd. De viscosimeter werd op vloeibare-waterstoftemperatuur gebracht om de demping van de rest van het systeem zo gering mogelijk te maken en om te zorgen, dat de wand geen invloed had op de demping van het loden bolletje. Bij deze temperatuur immers is de viscositeit zeer gering en de indringdiepte betrekkelijk klein. Achtereenvolgens werd de demping met twee en één spiegeltjes en staafjes bepaald. Uit het verschil in de meetresultaten kon de invloed van spiegeltjes en staafjes worden berekend. Toen eenmaal gevonden was, dat deze demping bij de laagste temperaturen niet te verwaarlozen zou zijn, werden achtereenvolgens metingen in He, Ne, H<sub>2</sub>, HD en D<sub>2</sub> verricht. Aangezien het spiegeltje in een ruimte op kamertemperatuur oscilleert en de indringdiepte bij deze temperatuur vrij groot is, was het te verwachten, dat de gevonden extra demping alleen van de viscositeitscoëfficiënt van het gas en niet van de dichtheid zou afhangen. Dit bleek ook inderdaad het geval te zijn. Bij de meetnauwkeurigheid, die slechts van de orde van 25% was, was de gevonden extra demping evenredig met de viscositeitscoëfficiënt. De experimentele resultaten zijn in tabel I vermeld.

Tabel I.

Demping van één spiegeltje en één weekijzeren staafje.

gas	log. decrement ( $\Delta_s/\tau_s$ )
Ne	$5.5 \times 10^{-5}$
He	$3.4 \times 10^{-5}$
D <sub>2</sub>	$2.2 \times 10^{-5}$
HD	$1.9 \times 10^{-5}$
H <sub>2</sub>	$1.6 \times 10^{-5}$

N.B. Voor de logaritmen werd steeds het grondtal 10 gebruikt.



In dit verband is het interessant te vermelden, dat in de totale demping van de door Van Itterbeek c.s. (1953) gemeten viscositeitswaarden bij  $4^\circ\text{K}$   $\Delta/\tau = 15 \times 10^{-4}$ . Het is dus duidelijk, dat in dit geval wel degelijk gecorrigeerd dient te worden. In tabel II geven we de resultaten van Van Itterbeek, gecorrigeerd voor de extra demping van het spiegeltje.

In het vorige hoofdstuk hebben we deze waarden in fig. 5 verwerkt. De overeenstemming met de resultaten van Becker (1954) en die van De Boer (1943) is nu bevredigend. De in tabel I gegeven waarden werden voorts gebruikt bij de verwerking van onze viscositeitsmetingen, die we in het vorige hoofdstuk bespraken.

Tabel II.

Gecorrigeerde waarden van Van Itterbeek voor de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas bij vloeibare-helium-temperaturen.

Meet serie	P in cm Hg	T in $^\circ\text{K}$	$\eta$ ongecorrigeerd in $\mu\text{P}$	$\eta$ gecorrigeerd in $\mu\text{P}$
3	2.21	4.21	11.61	11.3
2	1.14	4.19	11.58	11.3
1	4.03	4.19	11.56	11.3
1	3.56	3.48	9.81	9.5
3	0.53	3.22	8.78	8.4
3	0.50	3.00	8.26	7.9
1	3.13	2.79	8.01	7.7
2	0.63	1.88	5.63	5.3
1	0.20	1.44	4.68	4.3

### 3. De asymmetrische positie van het schijfje.

Wanneer men de afleiding van de dempingsformule van een oscillerende schijf beziet, dan blijkt, dat deze gedacht wordt te zijn opgebouwd uit de som van de dempingen van onder- en bovenzijde. Voor de afleiding is het exact in het midden hangen niet essentiëel.

Stellen we de afwijking uit het midden  $x$ , dan kan men de formule (I-16) schrijven als:

$$\Delta/\tau - \Delta_0/\tau_0 = \pi\eta R^4/4I \left( \frac{1}{D+x} + \frac{1}{D-x} \right), \quad (1)$$

waaruit volgt, dat:

$$D^2 - x^2 = \frac{\pi \eta R^4 D}{2I} \left( \frac{1}{\Delta/\tau - \Delta_0/\tau_0} \right). \quad (2)$$

Wanneer we nu het omgekeerde van de demping van de schijf uitzetten tegen  $x^2$ , zullen we een lineair verband moeten vinden. Voor de verificatie van deze betrekking maken we gebruik van het toestel in fig.1.

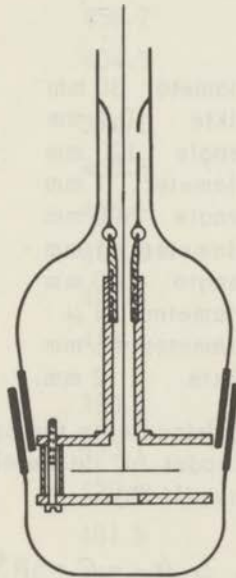


fig. 1. Platensysteem met reservoir van de schijfviscosimeter.

We beperken ons tot de essentiële delen van het toestel. Aan een glazen buis van 50 cm lengte en een inwendige diameter van  $\pm 1$  cm is een volume geblazen, dat met een komvormig slijpstuk gesloten kan worden. In dit volume is aan een chroomijzer glaslas een vlakke messingplaat gemonteerd, waarna een tweede plaat met drie afstandsringetjes evenwijdig aan de eerste is vastgemaakt. Hiertussen schommelt een Cu-Be-schijf, die loodrecht op een messing as gemonteerd is. Via een glazen naald is de schijf aan een fosforbrons draadje opgehangen, dat met zijn andere uiteinde met een micrometerschroef verbonden is. Met behulp van deze schroef kan de bewegende schijf precies in het midden van de vaste platen worden opgehangen.

Het apparaatsgedeelte voor de bepaling van de demping van het systeem is hetzelfde als het in hoofdstuk II, paragraaf 2, beschrevene. De trillingstijd van het systeem bedroeg ongeveer 11 seconden. De amplitudo van de schijf varieerde van 1 tot 0.25 radiaal. Er werd getracht de schijf zo goed mogelijk evenwijdig aan de vaste platen te laten oscilleren. Fouten van 5% in scheef hangen bij een platafstand van 0.3mm mogen echter niet uitgesloten worden geacht. Experimenteel bleek, dat het temperatuurevenwicht van de gassen bij het systeem na ongeveer 20 minuten bereikt werd. Dit werd bereikt door de dimensies van het meetvolume klein te houden.

### Dimensies

Oscillerende schijf:	diameter	30 mm
	dikte	0,2 mm
messaging asje:	lengte	120 mm
	diameter	1 mm
glazen naald:	lengte	500 mm
	diameter	1 mm
torsiedraadje:	lengte	100 mm
	diameter	33 $\mu$
vaste platen:	diameter	55 mm
	dikte	2 mm.

De verhouding van de indringdiepte ten opzichte van de platafstand was groot genomen ( $>3$ ), zodat bij de berekeningen gebruik gemaakt mocht worden van de formule (I-16):

$$\Delta' / \tau - \Delta_0 / \tau_0 = C \pi \eta R^4 / 2 ID, \quad (3)$$

waarin C de correctiefactor voor de randeffecten is. Voor de relatieve metingen is het niet noodzakelijk de constante C of de andere apparaatsconstanten voor de berekening te kennen.

Enkele van de experimentele resultaten zijn in tabel III en fig. 2 vermeld.

Deze metingen werden in heliumgas verricht bij 20.4 °K. De rechte lijnen laten dus zien, dat de totale demping is opgebouwd uit de som van de dempingen tengevolge van de boven- en onderzijde. De evenwijdigheid van de rechte lijnen bij de verschillende drukken wijst er voorts op, dat er nog niet van een noemenswaardige dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt sprake is.

Tabel III.

Metingen van de invloed van de afwijking uit het midden op de demping van de oscillerende schijf.

P in cm Hg	$\tau/\Delta$	$x^2 \cdot 10^6$ in mm <sup>2</sup>
6.27	433.5	18.5
	479.2	3.1
	479.2	0.1
	458.7	5.5
	404.5	26.9
24.3	374.1	34.6
	456.8	11.2
	478.5	2.1
	483.8	0.0
	467.4	4.1
	412.4	20.7
43.5	390.3	31.0
	453.1	9.2
	479.4	1.3
	481.5	0.6
	459.6	4.1
	428.6	15.4
75.1	342.9	45.8
	419.1	18.5
	471.5	3.1
	481.7	0.0
	479.4	0.0
	458.5	4.1
	425.0	20.7

$$D = 0.4 \text{ mm} \quad T = 20.4 \text{ }^\circ\text{K} \quad \Delta_o/\tau_o = 90 \times 10^{-6} \quad \Delta_s/\tau_s = 34 \times 10^{-6}$$



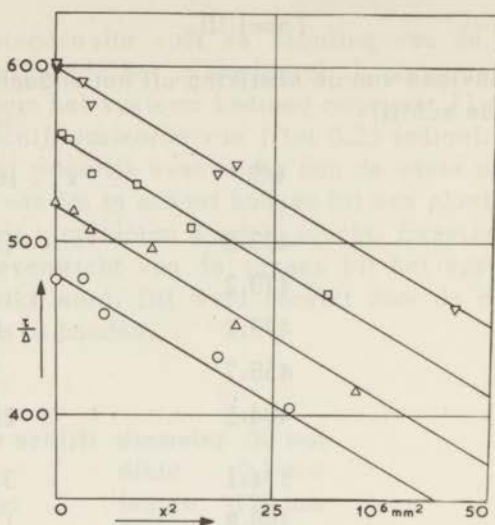


fig. 2. Het omgekeerde van de demping van de schijf als functie van het kwadraat der afwijking uit het midden bij 20.4 °K.

$$\Delta/\tau = \Delta'/\tau - \Delta_o/\tau_o - \Delta_s/\tau_s$$

▽ 75.1 cm Hg    □ 43.5 cm Hg    △ 24.3 cm Hg    ○ 6.27 cm Hg.

De meetpunten zijn evenwijdig verschoven in de grafiek.

Voor de meetpunten bij 75.1 cm Hg is  $\tau/\Delta$  vermeerderd met 600

bij 43.5 cm Hg met 400

en bij 24.3 cm Hg met 200

#### 4. Dichtheidsafhankelijkheid—metingen bij 4 °K.

Met het onder 3. besproken apparaat verrichtten we enkele metingen van de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas bij vloeibare heliumtemperatuur als functie van de dichtheid. Eerst werden enkele controlemetingen in het vloeibare—waterstof—temperatuurgebied aan H<sub>2</sub> en He verricht. Enkele resultaten vermelden we in tabel IV.

De viscositeitscoëfficiënt van heliumgas blijkt bij deze drukken vrijwel niet te variëren; voor H<sub>2</sub> is er wel een tendens aanwezig.

Alvorens de resultaten in het temperatuurgebied van vloeibaar helium nader te bezien, dienen we eerst de eventuele invloed van randcorrecties te bespreken (vergel. Hoofdstuk I). Door het recente werk van Newell (1959) is het ons mogelijk geworden de correctie te berekenen, mits de indringdiepte groot is vergeleken met de plaatafstand. Uit de experimentele onderzoeken van Kestin (1955) weten we voorts dat

Tabel IV.

Metingen met de oscillerende schijf bij waterstoftemperaturen.

meetdag	gas	plaat- afstand in mm.	T in °K	P in cm Hg	$\Delta/\tau$	$\tau$ in sec.	$\tau_0$ in sec.
9-12-'54	H <sub>2</sub>	0,2	20.38	70.94	0.001565	10.62	10.57
				51.38	0.001561	10.63	
				42.62	0.001561	10.61	
				33.58	0.001560	10.62	
				27.09	0.001556	10.63	
				18.98	0.001553	10.62	
				9.12	0.001554	10.62	
				6.65	0.001553	10.60	
				2.48	0.001545	10.60	
9-10-'56	He	0.4	20.52	82.04	0.002130	11.15	11.24
				61.77	0.002127	11.14	
				45.84	0.002132	11.14	
				31.66	0.002139	11.14	
				15.92	0.002134	11.14	
				5.06	0.002132	11.14	
9-19-'56	He	0.4	14.65	82.91	0.001784	11.37	11.24
				62.16	0.001776	11.37	
				45.15	0.001779	11.38	
				31.31	0.001779	11.35	
				20.82	0.001768	11.36	
				12.47	0.001773	11.37	
				3.17	0.001760	11.36	
$\Delta_s/\tau_s = 3.4 \times 10^{-5}$ voor He			op 9-12-'54 $\rightarrow \Delta_0/\tau_0 = 39 \times 10^{-6}$				
$1.6 \times 10^{-5}$ voor H <sub>2</sub>			op 9-10-'56 $\rightarrow \Delta_0/\tau_0 = 69 \times 10^{-6}$				

deze randcorrectie bij afnemende indringdiepte geleidelijk minder wordt. Over het exacte verloop van C als functie van  $\delta$  is echter nog weinig te zeggen. Wil de dichtheidsafhankelijkheid met behulp van een oscillerende schijf met enige

nauwkeurigheid bepaald kunnen worden, dan dienen de metingen in het gebied verricht te worden, waarin de randcorrectiefactor  $C$  nog vrijwel constant is. De verandering van deze constante introduceert anders een schijnbare drukafhankelijkheid en wel een afname van de gemeten viscositeitscoëfficiënt bij toenemende druk. In ons geval betekent dit, dat vrijwel alleen bij  $4^\circ\text{K}$  nog behoorlijke metingen met de schijf verricht kunnen worden; immers is bij deze temperatuur de indringdiepte van de orde van  $0.4\text{ mm}$  bij de hoogste druk en enkele  $\text{cm}$  bij de laagste dichtheid, waarbij we meten. Dit betekent, dat we eigenlijk al bij  $4^\circ\text{K}$  met een variërende correctiefactor  $C$  te maken hebben. Bij het door ons gebruikte apparaat is de maximale invloed van deze correctie  $4.6\%$ . Wanneer we het door Kestin (1955) bepaalde verloop van  $C$  als functie van  $\delta/R$  bezien, dan blijkt, dat de randcorrecties bij de hoogste dichtheid tot ongeveer de helft zullen afnemen. De exacte waarde van deze variaties is echter niet bekend.

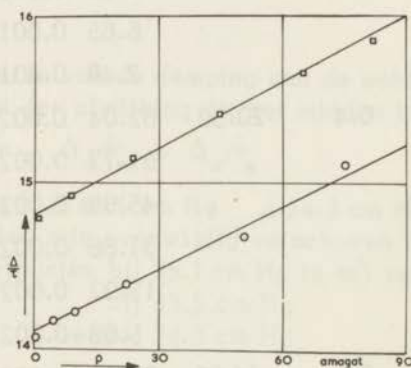


fig. 3. De demping als functie van de dichtheid bij vloeibare-helium-temperaturen.

Fig. 3 geeft de experimenteel bepaalde waarde van de demping in heliumgas als functie van de dichtheid bij  $4.2^\circ$  en  $4^\circ\text{K}$ . De gevonden toename van de demping bedraagt  $\pm 8\%$ . Uit de voorgaande beschouwing is het duidelijk, dat de variatie van de randcorrectie nooit meer dan  $2\%$  zal bedragen. We mogen dus uit deze metingen concluderen, dat de toename van de viscositeit van heliumgas bij heliumkookpunt minstens  $0.9 \pm 0.4\%$  per amagateenheid is. Hierom hebben we er van afgezien een correctie voor de verandering in de randcorrecties aan te brengen. Onze waarde is dus een onderste grens. Deze onzekerheid in de randcorrecties maken het ons onmogelijk op deze manier de temperatuurafhankelijkheid van de toename van de viscositeitscoëfficiënt nauwkeuriger als functie van de dichtheid te bepalen.



## Hoofdstuk IV.

### Onderzoek naar de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas bij waterstoftemperaturen met de oscillerende bol viscosimeter.

#### 1. Inleiding.

Uit het voorgaande hoofdstuk is duidelijk geworden, dat het onderzoek van de dichtheidsafhankelijkheid met behulp van de oscillerende schijf ernstig gehandicapt wordt door de randcorrecties die alleen voor zeer kleine plaatafstand weinig invloed hebben. Om constructieve redenen werd voor de voortzetting van ons onderzoek bij waterstoftemperaturen van deze methode afgezien. Daar de te verwachten toename van de viscositeit nog onbekend was leek het van belang een methode te gebruiken, die ons in staat zou stellen vlot de grootte-orde van het effect te bepalen ook al zou niet de hoogste precisie kunnen worden bereikt. We kozen de oscillerende bol daar hier de randcorrecties niet aanwezig zijn. De vroeger opgedane ervaring waarborgde een vlot verloop van het onderzoek. Om de dichtheidsafhankelijkheid met een redelijke nauwkeurigheid te bepalen, moesten de metingen verricht worden tot hogere drukken. We wisten immers, dat het gezochte effect niet groot was. In het gebouwde toestel kon de druk worden opgevoerd tot 20 atmosfeer, wat met dichtheden van 300 tot 400 amagat correspondeert bij respectievelijk  $20^{\circ}$  en  $14^{\circ}$  K. Een tafeltennisballetje bleek goed dienst te kunnen doen als oscillerende bol. Deze bolletjes kunnen op minder dan 3% na bolvormig zijn. Bovendien zijn ze zeer licht, wat een grote gevoeligheid garandeert.

#### 2. Experimentele methode en resultaten.

Fig. 1 geeft het toestel schematisch weer. De bol is met behulp van een roestvrij stalen naald aan een torsiedraad van fosforbrons opgehangen. Op de naald zijn een spiegeltje en een staafje van weekijzer bevestigd; deze kunnen in een huisje H oscilleren. De demping van de bol werd op de reeds eerder beschreven wijze bepaald. (zie hoofdstuk II). Het volume V, de verbindingsbuis en het huisje H vormen een vacuüm-dicht geheel. Nadat het systeem met een kwik-diffusiepompe leeg gepompt was, werd de meetruimte V op waterstoftemperatuur gebracht. Hierna werd het toestel met heliumgas gevuld. Het heliumgas werd binnengeleid over actieve houtskool, door vloeibare lucht gekoeld. Nadat in het toestel evenwicht in temperatuur was bereikt, werd het logaritmisch decrement bij verschillende dichtheden bepaald. De temperatuur van het heliumgas werd uit metingen van de dampspanning van de vloeibare waterstof bepaald. Voor de berekening werd de dampspanningsta-



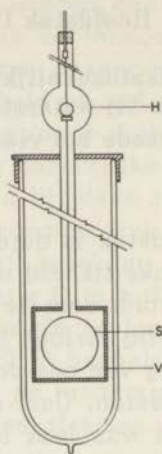


fig. 1. Het toestel.

### Dimensies

torsiedraad	: lengte	10 cm, diameter	33 $\mu$ (fosforbrons)
ophangnaald	: lengte	59 cm, diameter	1 mm (roestvrij staal)
oscillerende bol S	: diameter	38 mm, wanddikte	0.35 mm (celluloid)
volume V	: inw. hoogte	50 mm, inw.diam.	55 mm (messing)
verbindingsbuis	: lengte	50 cm, inw.diam.	10 mm (nieuw zilver)
huisje H	: inw.diameter	25 mm, diepte	4 cm (messing)
spiegeltje	: diameter	9 mm, dikte	0.5 mm
weekijzeren staafje	: lengte	10 mm, diameter	3 mm
verlichte schaal	: kromtestraal	2 m, booglengte	1 m.

bel van Varekamp (zie Durieux (1960)) gebruikt. Voor het meten van de druk van het gas in ruimte V werd gebruik gemaakt van een reeds eerder door Drs.P.Dekking in het trappenhuis van het laboratorium opgestelde, gesloten manometer. Het ene been was vacuüm gezogen met behulp van actieve houtskool op vloeibare-lucht-temperatuur; het andere been was aangesloten op de apparatuur. Het niveauverschil van het kwik werd afgelezen met behulp van een meetlint, dat langs de manometer was opgehangen. De onnauwkeurigheid van het lint was gering. Ook de temperatuurfluctuaties van de manometer waren klein. De druk werd op deze wijze tot op 2 % nauwkeurig bepaald, hetgeen voor ons doel voldoende was. De dichtheid van het gas werd berekend uit de gemeten druk, waarbij van de "adopted values"-viriaalcoëfficiënten van Keesom (1942) gebruik werd gemaakt. De resultaten werden berekend met de volgende formule (Zie ook I-30):

$$\Delta/\tau - \Delta_0/\tau_0 = \frac{2}{3} \sqrt{\pi\eta\rho} (R_1^4/I) (A - \Delta B + 2\delta/R_1 + \frac{B}{2} \frac{\delta^2}{R_1^2}) \quad (1)$$

$$+ \frac{2}{3} \sqrt{\pi\eta\rho} (R_2^4/I) (A - \Delta B - 2\delta/R_2 + \frac{B}{2} \frac{\delta^2}{R_2^2}) (1 - \frac{3}{2} \pi^2 \frac{r^2}{R_2^2}).$$

Hierin is:

$\eta$  de viscositeitscoëfficiënt,

$I$  het traagheidsmoment van de bol,

$R_1$  de straal van de buitenkant van de bol,

$R_2$  de straal van de binnenkant van de bol,

$\tau$  de oscillatie-periode,

$\tau_0$  de oscillatie-periode in vacuüm,

$\Delta$  het logarithmisch decrement,

$\Delta_0$  het logarithmisch decrement in vacuüm,

$\delta$  de indringdiepte,

$\rho$  de dichtheid van het gas,

$r$  de straal van het sluitrandje,

$$A = [(1 + \Delta^2)^{1/2} - \Delta]^{1/2},$$

$$B = [(1 + \Delta^2)^{1/2} + \Delta]^{1/2}.$$

In formule (1) beschrijft het eerste gedeelte van het rechterlid de demping van de buitenkant van de bol; het tweede deel geeft de demping van de binnenkant weer. De factor  $(1 - \frac{3}{2} \pi^2 r^2/R_2^2)$  is aangebracht voor de aanwezigheid van het sluitrandje. Dit randje oscilleert in het

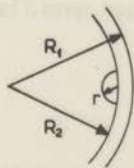


fig. 2. Het sluitrandje.

equatorvlak. Voor de demping betekent de aanwezigheid ervan in de eerste plaats een effectieve oppervlaktevergroting. De correctiefactor beschrijft daarom uitsluitend de oppervlaktevergroting en niet de wijzigingen in het stromingsprofiel. De grootte van de correctie bedraagt voor onze metingen minder dan 1%.

De formule (1) kan in een andere vorm geschreven worden, nl:

$$\frac{\sqrt{\eta}}{31/2 R_1^4 \sqrt{\pi}} = \frac{(\Delta/\tau - \Delta_0/\tau_0) \sqrt{\pi \rho}}{A - \Delta B + 2 \delta/R_1 + \frac{B}{2} \frac{\delta^2}{R_1^2} + \left(\frac{R_2}{R_1}\right)^4 \left(A - \Delta B - 2 \delta/R_2 + \frac{B}{2} \left(\frac{\delta^2}{R_2^2}\right)\right) \left(1 - \frac{3}{2} \pi^2 \frac{r^2}{R_2^2}\right)} \quad (2)$$

Door nu het rechterlid uit te zetten als functie van de dichtheid, kan uit de helling van de aldus verkregen curven de relatieve verandering van  $\eta$  als functie van de dichtheid eenvoudig berekend worden. Het verband tussen  $\sqrt{\eta}$  en de dichtheid  $\rho$  bleek experimenteel, met inachtneming van de meetnauwkeurigheid, lineair te zijn. Hierom mogen we in eerste instantie het verband beschrijven met:

$$\sqrt{\eta} = \sqrt{\eta_0} (1 + a \rho) \quad (3)$$

Omdat de verandering van de viscositeit met de dichtheid maar gering is, mogen bij de berekening hogere-orde-termin verwaarloosd worden en kunnen we schrijven:

$$\eta = \eta_0 (1 + b \rho), \text{ waarin } b = 2a. \quad (4)$$

De nulddemping werd ter voorkoming van demping door dampen gemeten bij vloeibare-waterstof-temperatuur. Daartoe werd het toestel eerst vacuüm gepompt, daarna gekoeld en vervolgens werden de metingen verricht. De hierbij gemeten trillingstijd stemde als regel niet overeen met de periode, die verkregen werd door extrapolatie naar een dichtheid nul van de metingen van  $\tau$  als functie van de dichtheid. De afwijking is gemakkelijk te verklaren door het slechte warmtecontact van de bol met het bad, als het toestel vacuüm gepompt was. Immers de periode wordt beschreven door de formule:

$$\tau = 2\pi\sqrt{I/C} \quad (5)$$

Een warme bol heeft een groter traagheidsmoment. De gemeten waarde van de periode in vacuüm (bij de bepaling van de nulddemping) was dan ook steeds groter dan de geëxtrapolerde waarde. Deze laatste waarden stemden op de verschillende meetdagen overeen met afwijkingen van maximaal 3%.



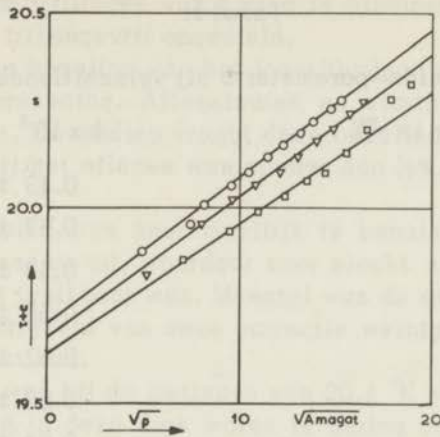


fig. 3. Extrapolatie van de gemeten perioden  $\tau$  naar de dichtheid 0. De resultaten voor de verschillende temperaturen zijn onderling verschoven over een afstand  $c = 0.05$  sec. en  $c = 0.10$  sec.

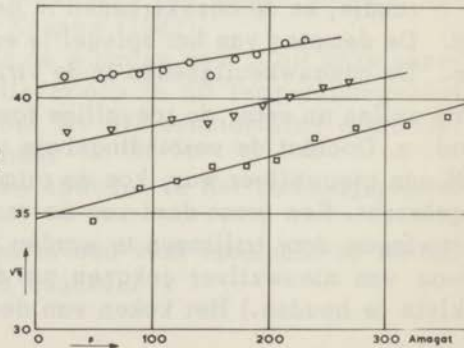
- metingen bij 20.4 °K  $c = 0$  sec.
- ▽ metingen bij 17.1 °K  $c = -0.05$  sec.
- metingen bij 14.2 °K  $c = -0.10$  sec.

Het verband tussen periode en dichtheid ontstaat door de effectieve vergroting van het traagheidsmoment van de oscillerende bol door het meebewegende gas. Deze samenhang is door Kestin (1954) afgeleid en onderzocht. In fig. 3 zijn de experimentele waarden van  $\tau$  uitgezet als functie van de dichtheid. De toename komt overeen met de theoretisch verwachte waarde.

In fig. 4 geven wij enkele van de door ons gemeten viscositeitsisothermen, terwijl in tabel I de met behulp van formule 3 en 4 berekende waarden voor  $b$  zijn opgegeven met hun geschatte nauwkeurigheid.

fig. 4. De viscositeit van heliumgas als functie van de dichtheid bij verschillende temperaturen.

- 20.4 °K
- ▽ 17.1 °K
- 14.2 °K.





Tabel I.

De drukafhankelijkheids-parameter  $b$  bij verschillende temperaturen.

temperatuur in °K	$b \times 10^3$ in amagat
20.40	$0.43 \pm 0.05$
18.75	$0.37 \pm 0.08$
17.85	$0.50 \pm 0.10$
17.12	$0.56 \pm 0.11$
15.66	$0.52 \pm 0.15$
15.15	$0.68 \pm 0.09$
14.18	$0.84 \pm 0.10$

$\rho$  is opgegeven in amagateenheden en  $b$  heeft de dimensie van  $\text{amagat}^{-1}$ . Op de opgegeven nauwkeurigheid zullen we in de volgende paragraaf terugkomen.

### 3. Bespreking van de verschillende fouten.

Tot de toevallige fouten behoren:

- Storingen door het koken van de koelvloeistof en door trillingen, in en om het laboratorium.
- Afreesfouten bij de grafische berekeningen.
- De onzekerheid in de nulddemping.
- De variatie in temperatuur van het bad en fluctuaties van de kamertemperatuur.

Als bronnen van systematische fouten kunnen we noemen:

- Het niet in een oneindige ruimte oscilleren van de bol.
- De verandering van de diameter van de bol bij temperatuurveranderingen.
- Onvolkomenheden van de bol, zoals de aanwezigheid van een sluitrandje, en de onzekerheden in het stromingsprofiel.
- De demping van het spiegeltje en het weekijzeren staafje.
- De onnauwkeurigheden in de viriaalcoëfficiënten.

We zullen nu eerst de toevallige fouten nader bezien.

ad a. Doordat de verbindingbuis van de meetruimte  $V$  met het huisje  $H$  van nieuwzilver was, kon de ruimte  $V$  gemakkelijk in trilling worden gebracht. Een groot deel van de onnauwkeurigheden dient dan ook aan storingen door trillingen te worden toegeschreven. (De verbindingbuis was van nieuwzilver gekozen om de opwarming van de koelvloeistof klein te houden.) Het koken van de koelvloeistof was één van de tril-

lingsoorzaken. Om trillingen van buiten te elimineren was het toestel zo goed mogelijk trillingsvrij opgesteld.

ad b. De grafische bepaling van het logaritmisch decrement is te prefereren boven berekening. Afleesfouten en storingen worden er door zichtbaar gemaakt. Bovendien vraagt deze bepaling minder tijd. De onnauwkeurigheid bij het aflezen was minder dan  $\frac{1}{2}\%$ . (Zie verder Hoofdstuk II.)

ad c. De nulddemping was zeer moeilijk te bepalen. Kleine storingen dempten zeer langzaam uit, waardoor zeer slecht zichtbaar was of de meting al dan niet bruikbaar was. Meestal was de nulddemping klein, zodat de onnauwkeurigheid van deze correctie weinig invloed op de viscositeitscoëfficiënt had.

ad d. De baddruk was bij de metingen van  $20.4^\circ\text{K}$  steeds de barometerdruk. De variaties in deze druk waren te gering om de meetresultaten hiervoor te moeten corrigeren. Veranderingen in de kamertemperatuur veroorzaken dichtheidsvariaties van het kwik van de hoge—druk—manometer. Voor de maximaal mogelijke afwijkingen van de temperatuur bedragen deze dichtheidsveranderingen slechts  $0.5\%$ .

Met betrekking tot de systematische fouten kan het volgende worden opgemerkt:

ad a. Door de afmetingen van het omhullende cryostaatglas kon de diameter van meetreservoir V niet groter genomen worden. Bij hoge drukken is de indringdiepte gering en kunnen we er zeker van zijn, dat de bol in een oneindige ruimte zal oscilleren. We moeten echter aannemen, dat de wanden van de meetruimte beneden een druk van 3 atmosfeer invloed op de demping van de bol kunnen gaan uitoefenen. Daarom hebben we onze metingen niet verricht beneden 3 atmosfeer.

ad b. De verandering van de diameter van de bol bij afkoeling van  $20^\circ\text{K}$  tot lagere temperaturen is zeer gering. Dit is bovendien vrij goed te controleren, daar het traagheidsmoment dan sterk zal veranderen en dus ook de periode. Een dergelijk effect werd niet gevonden. Bovendien controleerden we, of de naar een dichtheid nul geëxtrapoleerde viscositeitswaarde overeenkwam met de resultaten van andere auteurs, zoals bijvoorbeeld met de formule van Keesom (1942).

In fig. 5 geven we een overzicht van de waarden voor  $\eta_0$  uit onze experimenten bepaald en het viscositeitsverloop in dit temperatuurgebied berekend met de formule van Keesom. De overeenstemming wijst niet in de richting van systematische fouten.

ad c. Er kunnen verschillende fouten optreden in het stromingsprofiel van het gas:

1e. Het sluitrandje moet oscilleren in een vlak loodrecht op de as. Hierbij zijn natuurlijk montagefouten mogelijk.

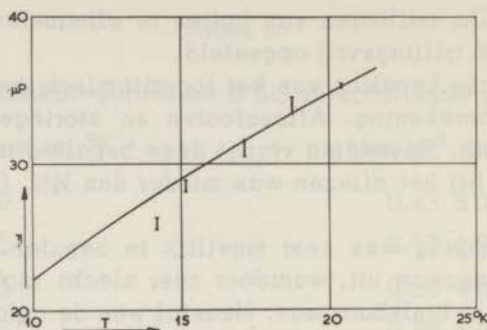


fig. 5. De naar een dichtheid nul geëxtrapoleerde viscositeitswaarden als functie van de temperatuur, ingetekend met hun onnauwkeurigheid. De getrokken curve is het verloop van de viscositeitscoëfficiënt als functie van de temperatuur volgens de formule van Keesom (1942).

2e. Eventuele verdikkingen van het sluitrandje kunnen afwijkingen veroorzaken.

3e. De as van de bol moet centrisc zijn aangebracht. Daartoe werd de bol geplaatst in de kop van een draaibank en werden de gaatjes voor de as aangebracht met behulp van een boor in het support.

Hiernaast kunnen nog andere onzekerheden verandering brengen in het stromingsprofiel. Volgens persoonlijke mededeling van Kestin kunnen buiten de bol gemakkelijk turbulenties optreden. Deze zouden kleine afwijkingen van de harmonische demping kunnen veroorzaken. Bovendien zou hun reproduceerbaarheid gering zijn.

ad d. Door het plaatsen van twee identieke huisjes H in het toestel en metingen te verrichten met respectievelijk een en twee spiegeltjes en weekijzeren staafjes op de ophangnaald, is geprobeerd de demping, door spiegeltje en staafje veroorzaakt, te meten. Later zal blijken, dat de demping te klein was om de invloed met enige zekerheid te bepalen.

ad e. Fouten in de dichtheid worden veroorzaakt door de onnauwkeurigheid van de viriaalcoëfficiënten en meetfouten in de druk. De gebruikte dichtheden waren op 2 à 3% nauwkeurig. Dit brengt eveneens een onzekerheid in de viscositeit met zich mee van 2 à 3%.

Resumerend mag gezegd worden, dat enkele systematische fouten zich qua grootte-orde niet laten schatten. Het zijn speciaal de fouten, die door de afwijkingen in het stromingsprofiel ontstaan. Daar het hier relatieve metingen betreft, kunnen de andere genoemde systematische fouten in het eindresultaat van b geen of slechts een onzekerheid van 0.5 tot 1% veroorzaken in het logaritmisch decrement. Hierdoor kan helaas de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt niet



beter dan tot op 20% nauwkeurig worden bepaald. Het was dus noodzakelijk de storende invloeden en de onzekerheden in het stromingsprofiel nader te onderzoeken. We willen reeds nu vermelden, dat uit dit onderzoek bleek, dat de grootste foutenbron gezocht moet worden in onstabilleiten in het stromingsprofiel. Van een uitgesproken systematische fout in dit profiel kan niet worden gesproken.

#### 4. Het onderzoek naar de mogelijke systematische fouten in het stromingsprofiel.

De eenvoudigste wijze om het stromingsprofiel op een verantwoorde manier te veranderen is het wijzigen van de trillingstijd van het oscillerende systeem. Hierdoor wijzigt zich de indringdiepte van de visceuse golf en dus het gehele stromingspatroon. Dit werd bereikt door de lengte van de torsiedraad te veranderen. Metingen werden verricht met perioden tussen 10 en 50 seconden. Voorts werden ook metingen verricht met een en twee spiegeltjes en weekijzeren staafjes op de ophangnaald. In tabel II en fig. 6 zijn de resultaten weergegeven.

Tabel II.

De dichtheidsafhankelijkheids-parameter  $b$  bij 20.4 °K gemeten bij verschillende waarden van de oscillatieperiode.

Periode $\tau_0$ in sec.	$b \times 10^3$ in amagat	Aantal spiegeltjes en weekijzeren staafjes
9.90	$0.45 \pm 0.04$	2
17.86	$0.28 \pm 0.10$	2
19.71	$0.40 \pm 0.05$	1
27.71	$0.30 \pm 0.08$	2
27.71	$0.53 \pm 0.15$	2
27.72	$0.37 \pm 0.10$	2
27.74	$0.24 \pm 0.08$	2
27.75	$0.54 \pm 0.10$	1
27.76	$0.39 \pm 0.13$	1
27.81	$0.44 \pm 0.13$	2
49.94	$0.54 \pm 0.32$	2



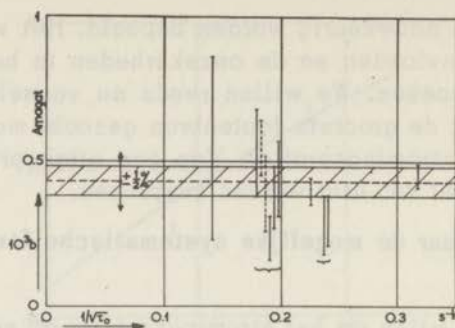


fig. 6.  $b$  als functie van  $1/\sqrt{\tau_0}$ .

- Metingen met 1 spiegelte en 1 weekijzeren staafje.  
 ————— Metingen met 2 spiegeltes en 2 weekijzeren staafjes.

Duidelijk blijkt, dat de onnauwkeurigheid te groot is om correcties voor spiegelte en staafje noodzakelijk te maken.

N.B.a. Als "periode der meting" werd genomen de naar een dichtheid nul geëxtrapoleerde waarde van de periode ( $\tau_0$ ). Deze werd gevonden uit de metingen van demping en periode als functie van de dichtheid. (Zie fig.3)  
 b. Alle berekeningen werden uitgevoerd met een nauwkeurigheid, die beter was dan tot op 1%. Dit zou anders een fout kunnen veroorzaken van 3% in parameter  $b$ .

Als abcis werd in fig. 6  $1/\sqrt{\tau_0}$  genomen. Bij kleine waarden van de indringdiepte ( $\sqrt{\frac{\eta\tau}{\pi\rho}}$ ) is de grootste verandering van het stromingsprofiel te verwachten. Het leek hierom het gunstigst het gezochte effect als functie van  $1/\sqrt{\tau_0}$  te beschrijven. Metingen met nog grotere perioden waren niet mogelijk. De nauwkeurigheid in de bepaling van het logaritmisch decrement wordt dan sterk verminderd, zoals reeds blijkt bij de meting met  $\tau = 49.94$  sec. (Zie fig. 6 en tabel II). Bovendien wordt de indringdiepte groter, waardoor het gevaar ontstaat, dat de bol niet meer in een oneindige ruimte zal oscilleren. Bij kleinere perioden dan de gemeten  $\tau = 9.90$  sec. zou het bijzonder moeilijk worden de amplitudo der trilling af te lezen. Hoewel de nauwkeurigheid ons belet een beslisse uitspraak te doen, mogen we uit fig. 6 wel besluiten, dat de metingen periode-onafhankelijk zijn, met andere woorden: de invloed van systematische fouten schijnt niet groot te zijn. Om te laten zien aan welke hoge eisen de bolviscosimeter zou moeten voldoen om de parameter  $b$  nauwkeurig te kunnen bepalen, zijn de grenzen ingetekend, waartussen  $b$  ligt, als de fout in de meetpunten over het gehele dichtheidsgebied  $\frac{1}{2}\%$  bedraagt. (Vergelijk form.(3) en (4)). In fig. 7 (Zie ook

tabel I) zijn de resultaten van de dichtheids—afhankelijkheids—metingen als functie van de temperatuur vermeld. Bij afnemende temperatuur schijnt de dichtheidsafhankelijkheid iets toe te nemen.

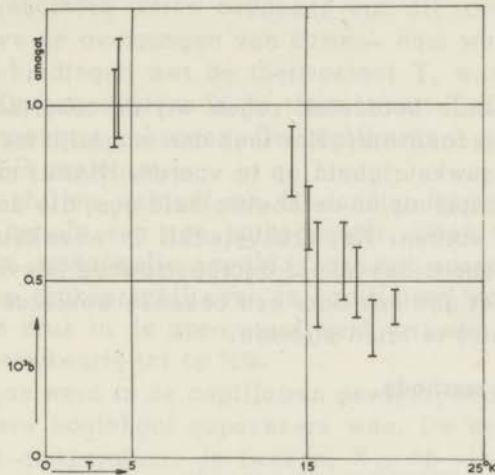


fig. 7.  $b$  als functie van de temperatuur (met ingetekende nauwkeurigheid).

Bovendien zijn in de figuur 7 ook de eerder gevonden resultaten van metingen met de oscillerende schijf-viscosimeter bij vloeibare-helium-temperaturen opgenomen. De resultaten zijn gezien het zeer kleine effect niet onbevredigend. Het is echter gewenst de nauwkeurigheid van de metingen verder op te voeren. Hiertoe moet echter de oscillerende viscosimeter worden verlaten. In het volgende hoofdstuk zullen enkele metingen met een capillaire doorstromingsmethode worden besproken.





houding van de weerstanden van de capillairen 3 en 4 bekend is.

Om diametervariaties door de druk te voorkomen waren de meetcapillairen omhuld door roodkoperen capillairen met een inwendige diameter van 3 mm, waarin dezelfde druk als in de eerstgenoemde heerste. Alle verbindingsbuisjes waren eveneens van dit roodkoperen capillair gemaakt, behalve de overgangen van kamer- naar waterstoftemperatuur en ook alle verbindingen met de thermostaat T, waarvoor nieuwzilver genomen was. De temperatuur in de thermostaat T (Colora-electronic) werd op  $0.01^\circ$  constant gehouden. De capillairen 3 en 4 waren in eenzelfde waterbad B geplaatst.

De drukverschillen werden van dikwandige glazen oliemanometers afgelezen met behulp van een kathetometer. Deze manometers waren met hoogvacuüm apiëzonolie gevuld. Door het openen van de uitlaatkraan O kon een drukverschil over de capillairen worden aangebracht.

De absolute druk in de apparatuur werd met een Heise-manometer ( $M_4$ ) bepaald, nauwkeurig tot op  $\frac{1}{2}\%$ .

Het heliumgas werd in de capillairen gevoerd, nadat het twee reservoirs met actieve houtskool gepasseerd was. De eerste,  $K_1$ , was op vloeibare-lucht-temperatuur, de tweede,  $K_2$ , op vloeibare-waterstof-temperatuur. Zij hadden een tweevoudig doel:

1. een zuivering van het gas,
2. in verband met de geringe stroomsnelheid dienden ze als buffer-ruimte om een constant drukverschil over de brug te kunnen handhaven.

In verband met de kleine diameter van het waterstofcapillair moest het gas van een zeer hoge zuiverheid zijn. De absorptie van de houtskool bleek niet afdoende. Betere resultaten werden verkregen door het gas bovendien door een zeef, bestaande uit een aantal parallel geschakelde capillairen van  $150\mu$  op waterstoftemperatuur te sturen. Als bufferreservoir bleken de koolpotten niet voldoende te zijn. Door de lange duur van de meting veranderde de absolute druk te veel, waardoor ook dode ruimte als valse stroombron ging fungeren. Ter verbetering werd de druk in de apparatuur met een regelkraan gestabiliseerd. De differentiaal oliemanometer  $M_1$  fungeerde als drukindicator. Het referentie volume van deze  $M_1$  bedroeg circa 0.5 liter en bevond zich in een waterbad om snelle temperatuurfluctuaties te voorkomen. Met deze regelapparatuur kon de druk in de capillairen op enkele mm oliedruk na (op ongeveer 1 op  $10^4$  na) constant worden gehouden, wat voldoende bleek te zijn.

De diameter van de verbindingleiding van het waterstof- met het thermostaatcapillair moet zo klein mogelijk worden gekozen, opdat de extra gasproductie door het zakken van het waterstofbadniveau een zo klein mogelijke fout veroorzaakt. Een capillair met een diameter van 1 mm bleek goed te voldoen.



### 3. Experimentele resultaten.

Voor de berekening van de viscositeitscoëfficiënt maken we gebruik van de Hagen-Poiseuille-vergelijking (I-36):

$$\frac{p_1^2 - p_2^2}{2p_1} (1 - 4\xi/R) = \frac{8\eta l}{\pi R^4} \cdot \frac{Q}{t} + (m + \ln \frac{p_1}{p_2}) \frac{\rho Q^2}{\pi^2 R^4 t^2} \quad (1)$$

Hierin zijn:

$p_1$  en  $p_2$  : de drukken aan het begin en het einde van het capillair.

$\xi$  : de glijdingscoëfficiënt

$R$  : de straal van het capillair

$\eta$  : de viscositeitscoëfficiënt

$l$  : de lengte van het capillair

$Q$  : de doorgestroomde hoeveelheid gas

$t$  : de tijd van doorstroming

$m$  : een dimensieloze grootheid.

In goede benadering kan de glijdingscoëfficiënt  $\xi$  (Zie Lignac (1949)) vervangen worden door de gemiddelde vrije weglengte van het gas. De invloed van  $\xi$  blijkt voor de metingen verwaarloosbaar klein te zijn.

$\Delta p$  stelt het drukverschil over het capillair voor. Als dit verschil klein is ten opzichte van  $p_1$  of  $p_2$  kan de vorm  $\frac{p_1^2 - p_2^2}{2p_1}$  vervangen worden

door  $\Delta p (1 - \Delta p/2p_2)$  en de vorm  $\ln p_1/p_2$  door  $\Delta p/p_2$ . Deze voorwaarde reduceert vergelijking (1) tot:

$$\Delta p (1 - \Delta p/2p_2) = \frac{8\eta l}{\pi R^4} \cdot \frac{Q}{t} + (m + \frac{\Delta p}{p_2}) \frac{\rho Q^2}{\pi^2 R^4 t^2} \quad (2)$$

Deze vergelijking kan voor de capillairen 1 en 2 met de respectievelijke indices 1 en 2 voor de specifieke grootheden van deze twee weerstanden opgeschreven worden. Voor het quotiënt van beide vergelijkingen mag in eerste benadering worden geschreven:

$$\frac{\Delta p_1}{\Delta p_2} \left(1 - \frac{\Delta p_1}{2p_a} + \frac{\Delta p_2}{2p_b}\right) = \left(\frac{\eta_1}{\eta_2}\right) \left(\frac{l_1 R_2^4 \rho_2}{l_2 R_1^4 \rho_1}\right) + \quad (3)$$

$$\frac{R_2^8 \Delta p_2 \rho_2^2}{64 R_1^4 l_2^2 \eta_2 \rho_1} \left\{ m_1 + \frac{\Delta p_1}{p_a} - \frac{\eta_1 l_1}{\eta_2 l_2} \left( m_2 + \frac{\Delta p_2}{p_b} \right) \right\}.$$

Vanzelf sprekend moet bij het opschrijven van deze vergelijking met het feit rekening worden gehouden, dat de capillairen zich op verschillende temperaturen bevinden. Dit betekent, dat de doorgestroomde hoeveelheid gas bij kamertemperatuur met de verhouding der dichtheid  $\rho_1/\rho_2$  vermenigvuldigd moet worden.

$p_a$  stelt de absolute druk voor in de ruimte tussen de capillairen 1 en 2,  $p_b$  de absolute druk voor de uitlaat O. De factor  $1 - \frac{\Delta p_1}{2p_a} + \frac{\Delta p_2}{2p_b}$  ver-

schildt maar weinig van 1 voor een absolute druk van enkele atmosferen en  $\Delta p_1$ -waarden van  $\pm 25$  cm oliedruk. Om dezelfde reden is deze factor lineair afhankelijk van  $\Delta p_2$  en is ook het verband tussen  $\Delta p_1/\Delta p_2$  en  $\Delta p_2$  in vergelijking 3 rechtlijnig. Door extrapolatie naar een druk

$\Delta p_2 = 0$  is in de grafieken van  $\Delta p_1/\Delta p_2$  versus  $\Delta p_2$  de waarde  $\frac{\eta_1}{\eta_2} \left( \frac{l_1 R^4 \rho_2}{l_2 R^4 \rho_1} \right)$

af te lezen.

$l_1$ ,  $l_2$ ,  $R_1$  en  $R_2$  zijn apparaatsconstanten; de dichtheden  $\rho_1$  en  $\rho_2$  zijn uit de meting van de absolute druk berekend met behulp van de z.g. "adopted values"-viriaalcoëfficiënten van Keesom (1942).

Onderzoekingen van Ross c.s. (1957) en Kestin (1959) tonen, dat de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt bij kamertemperatuur verwaarloosbaar klein is voor het gebruikte dichtheidsgebied. De waarde van  $\eta_2$  kan dus constant worden verondersteld. Door

metingen van  $\eta_1/\eta_2 \cdot \left( \frac{l_1 R^4 \rho_2}{l_2 R^4 \rho_1} \right)$  bij verschillende drukken is op deze ma-

nier de viscositeitscoëfficiënt  $\eta_1$  als functie van de dichtheid bepaald.

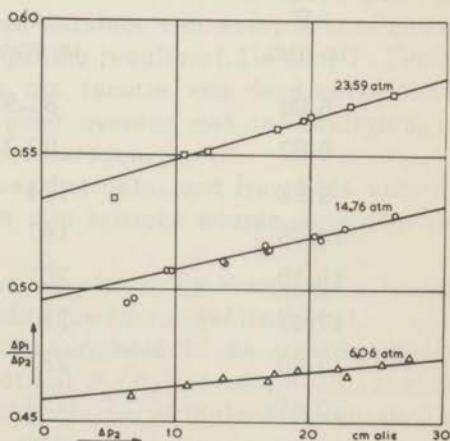


fig. 2. Enkele  $\Delta p_1/\Delta p_2 \leftrightarrow \Delta p_2$  extrapolatiegrafieken bij 20.4 °K.

In fig. 2 zijn enkele van de extrapolatiegrafieken " $\Delta p_1/\Delta p_2$  versus  $\Delta p_2$ " weergegeven.

Indien we  $\eta_1 = \eta_0 f_T(\rho)$  veronderstellen, waarbij  $f_T(\rho) = 1$  voor  $\rho = 0$ , is  $f_T(\rho)$  de gezochte dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt.

Resultaten van  $f_T(\rho)$  bij 20.4°K zijn in fig. 3 en tabel I aangegeven. Al deze metingen bij waterstofkookpunt zijn op dezelfde temperatuur herleid, waarbij we verondersteld hebben, dat  $f_T(\rho)$  niet sterk van de temperatuur afhangt.

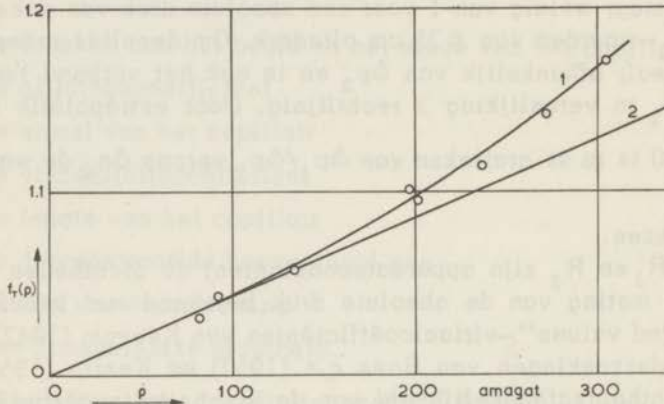


fig. 3.  $f_T(\rho)$  bij 20.4 °K, gemeten met de brugmethode (curve (1)).

Curve (2) stelt de viscositeitstoename voor, zoals deze met de oscillerende-bol-viscosimeter werd gevonden.

Tabel I.

Meetresultaten bij 20.4 °K.

P in atm.	$\rho$ in amagat	$f_T(\rho)$
6.06	81.9	1.03
6.82	92.2	1.04
9.92	134	1.06
14.76	197	1.10
15.10	201	1.095
17.47	230	1.13
17.90	237	1.11
20.80	272	1.14
23.59	305	1.17



Voordat de resultaten verder besproken worden, maken we eerst enkele opmerkingen over de nauwkeurigheid, waarmee de metingen verricht zijn. De in- en uitstromingseffecten, beschreven door de Hagenbach-Couette-correctie (I-34), beïnvloeden de resultaten niet, omdat de afmetingen van de capillairen en de stroomsnelheid van het gas zodanig zijn gekozen, dat de correctie maar een geringe invloed heeft. Deze effecten worden, zoals uit (3) blijkt, teruggevonden in de helling van de curven van  $\Delta p_1/\Delta p_2$  versus  $\Delta p_2$ :

$$\frac{R_2^8 \rho_2^2}{64 R_1^4 l_2^2 \eta_2^2 \rho_1} \left\{ m_1 + \Delta p_1/p_a - \frac{\eta_1 l_1}{\eta_2 l_2} (m_2 + \Delta p_2/p_b) \right\}.$$

De theoretische waarde stemde niet overeen met de experimenteel bepaalde helling. Voor de nauwkeurigheid van onze resultaten is deze afwijking niet essentiëel, daar wij goed naar een snelheid nul konden extrapoleren. Het leek echter nuttig, dit probleem nader te onderzoeken. Dit werd door P. Zandbergen gedaan. Hiertoe werd de opstelling aanzienlijk vereenvoudigd door slechts met twee capillairen in serie te werken, waardoor in het toestel snel wijzigingen aangebracht konden worden. Hierbij bleek, dat de spiralisering van het capillair op watertemperatuur de oorzaak van de eerder vermelde storing was. Dit verschijnsel is door White (1929) uitvoerig bestudeerd; de door ons gemeten afwijking komt wel in grootte-orde, maar niet in vorm, met de door hem aangegeven correctie overeen. Ter controle werd de gespiraliseerde capillair vervolgens door een rechte capillair vervangen, waarmee het spiraliserings-effect ook inderdaad verdween:

De verklaring moet in de middelpuntvliedende kracht gezocht worden, die aan de wand van de gespiraliseerde capillair nul is, maar in het midden een eindige waarde heeft. Hierdoor wordt voortdurend gas van binnen naar buiten getransporteerd en ontstaat een soort schroefbeweging, wat in een schijnbare lengtevergroting resulteert. De door P. Zandbergen gemeten viscositeitstoename als functie van de dichtheid met de verbeterde viscosimeter stemde goed overeen met de resultaten, die met het gespiraliseerde capillair zijn verkregen.

In het meest ongunstige geval bedroeg het getal van Reynolds voor de stroomsnelheid van het gas 10% van zijn kritieke waarde, waardoor een laminaire stroming zeker is.

Fouten door de compressibiliteit van de olie in de manometers treden niet op. In het quotiënt  $\Delta p_1/\Delta p_2$  wordt deze factor geëlimineerd.

Als verdere oorzaak van onnauwkeurigheid in de meetresultaten moeten we de onzekerheid in het quotiënt  $\rho_2/\rho_1$  noemen, hoofdzakelijk veroorzaakt door de onnauwkeurigheid van de viriaalcoëfficiënten. De maximale fout, welke hierdoor ontstaan kan, zal niet groter zijn dan 2 à 3%.



Kleine verontreinigingen in het waterstofcapillair kunnen een spreiding van de meetpunten veroorzaken. Bovendien treden dan ook afwijkingen voor de helling van de extrapolatiegrafieken op in verschillende metingen.

De grootste foutenbron werd door de temperatuursgradiënten over de verbindingscapillairen gevormd, waardoor drukfluctuaties op de manometers ontstonden. Nauwere leidingen verminderden dit effect wel, maar waren niet afdoende.

In tabel I en fig. 3 zagen we de toename van de viscositeitscoëfficiënt als functie van de dichtheid, verkregen uit metingen met de capillaire "Wheatstone-brug". De overeenstemming met de resultaten van de oscillerende bol is goed te noemen, wat in fig. 3 te zien is. Daar de capillaire viscosimeter nauwkeurig is, komt nu ook een zwakke kromming in de toename van  $\eta$  als functie van de dichtheid naar voren. De overeenstemming is een sterk argument tegen het aanwezig zijn van grote systematische fouten in de oscillerende-bol-viscosimeter. Het is echter duidelijk, dat het gewenst is, de nauwkeurigheid nog verder op te voeren. Hiertoe zal de capillaire viscosimeter nog belangrijk gewijzigd moeten worden.

## Hoofdstuk VI.

### Overeenstemmende toestanden voor de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt.

#### 1. Inleiding.

Na afloop van de bespreking van de dichtheidsafhankelijkheidsmetingen van de viscositeitscoëfficiënt van heliumgas bij waterstoftemperaturen rijst de vraag, in hoeverre quantummechanische invloeden belangrijk zijn in deze eindresultaten. Een quantummechanische theorie bij hogere dichtheden is thans nog niet bekend, terwijl de Enskogtheorie slechts een benadering is voor de viscositeitstoename. Het leek hierom belangrijk onze metingen te vergelijken met resultaten voor andere gassen gevonden met behulp van de wet van overeenstemmende toestanden. Hiervoor bestaan 2 methoden:

1. Temperatuur en druk uitdrukken in kritische grootheden.

2. Moleculaire grootheden gebruiken als reductiefactoren.

De eerste methode heeft het nadeel, dat een onbepaald gedeelte van de quanteuze invloeden door het reduceren van de druk verrekend wordt, omdat de kritische grootheden reeds sterke quanteuze effecten kunnen bezitten. De tweede vergelijkingsmethode biedt meer perspectief. Het bleek hier mogelijk om uit de bestaande experimentele viscositeitsgegevens een empirische formule af te leiden voor de relatieve toename van de viscositeitscoëfficiënt als functie van de gereduceerde dichtheid en temperatuur. In een verdere analyse is op semi-empirische manier de Enskogformule onderzocht.

#### 2. Een overzicht van de beschikbare experimentele gegevens.

Voordat we de gegevens van de verschillende gassen onderling gingen vergelijken, is eerst de overeenstemming in de meetresultaten van de verschillende auteurs gecontroleerd. Zeer uitgebreide metingen zijn verricht door Michels c.s. (1931-1953-1954-1957). Uit het literatuuronderzoek bleek, dat hun gegevens betrouwbaar zijn; in alle beschouwde gevallen stemden hun resultaten overeen met het overgrote deel van de andere gegevens. Bovendien hebben Michels c.s. steeds hun metingen gepubliceerd als functie van de dichtheid. Omdat deze dichtheid een van de fundamentele grootheden is voor de viscositeitstoename, prefereren we in de volgende beschouwingen de gegevens van Michels. In onze analyse betrekken we de volgende gegevens over:

1.  $N_2$ : Michels c.s. (1931), Lazzarre en Vodar (1956), Ross c.s. (1957), Kestin c.s. (1958), Sibbitt c.s. (1943), Iwasaki (1954) en Makita (1957). Alle resultaten stemmen onderling goed overeen. De oudere

- resultaten van Boyd (1930) vertonen een te grote spreiding om in deze vergelijking te betrekken. We gebruiken in het volgende de isothermen van Michels bij temperaturen van 25° en 75°C en drukken tot 1000 atm. en tevens de isotherm van Ross bij -50°C tot 750 atm.
2. A: Michels c.s. (1954), Makita (1957) en Kestin c.s. (1958). Er is hier een goede overeenstemming. We namen de isothermen van Michels bij 0° en 75°C.
  3. CH<sub>4</sub>: Kuss (1952), Ross c.s. (1957) en Carr (1953). Ook hier komen de resultaten onderling goed overeen. We gebruiken de isothermen van Kuss bij 25° en 100°C. De metingen van Ross bij -50°C komen voor het verdere onderzoek niet in aanmerking omdat onvoldoende gegevens bij lage dichtheden aanwezig zijn om te extrapoleren naar een dichtheid nul.
  4. CO<sub>2</sub>: Michels c.s. (1957), Warburg en Von Babo (1882), Philips (1912), Stakelbeck (1933) en Comings en Egly (1941). Alle resultaten stemmen onderling goed overeen. Schröer en Becker (1935) maten met een rollende bol; hun resultaten verschillen aanmerkelijk van de andere auteurs. Zij laten een grotere dichtheidsafhankelijkheid zien. We gebruikten weer de isothermen van Michels bij 0° en 75°C, maar beperkten ons tot drukken van 500 atm. om vergelijkingsmateriaal met andere gassen in hetzelfde gereduceerde dichtheidsgebied te hebben.
  5. H<sub>2</sub>: Michels c.s. (1953), Kestin c.s. (1958) en Gibson (1933). Ook hier komen de resultaten goed met elkaar overeen. Opnieuw werden de metingen van Boyd (1930) buiten beschouwing gelaten. Ten slotte zijn er resultaten van Kuss (1952), die aanmerkelijk verschillen van de anderen. We gebruikten weer de isothermen van Michels bij 25° en 75°C tot drukken van 1000 atm.
  6. D<sub>2</sub>: Michels c.s. (1953). Hier hebben we alleen de isotherm bij 25°C genomen, omdat er geen aanmerkelijk verschil bestond met de H<sub>2</sub> resultaten.
  7. He: Ross c.s. (1957), Kestin c.s. (1958) en onze eigen metingen (V-tabel I). Alleen in het eerste werk strekken de metingen zich over een groot dichtheidsgebied uit. We namen in ons verdere onderzoek de isothermen bij -25°C tot drukken van 750 atm.

Voor de dichtheid is gebruik gemaakt van de waarden, welke in de oorspronkelijke publicaties werden vermeld. Voor CH<sub>4</sub>, waarvan geen dichtheden werden vermeld, zijn de gegevens van Kvalnes en Gaddy (1931) genomen. In fig. 1 zijn de meeste van de viscositeitsisothermen, welke in de volgende beschouwingen werden gebruikt, ingetekend.



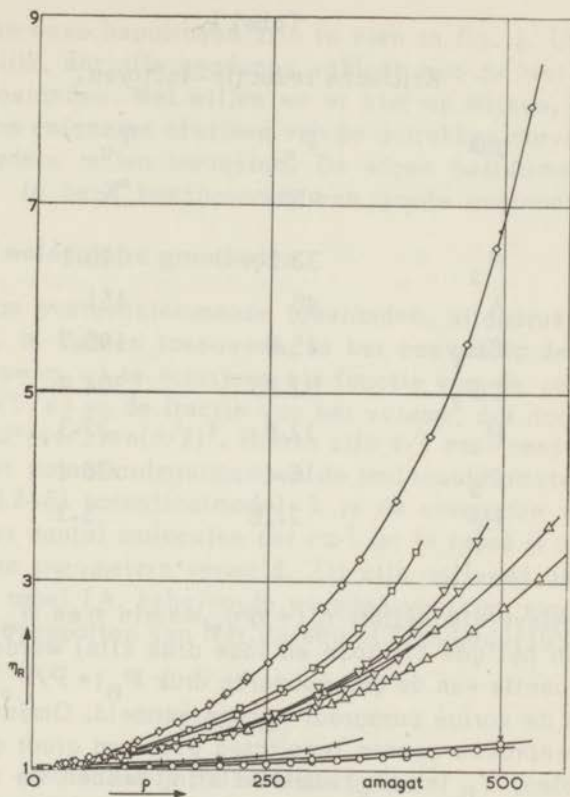


fig. 1. Viscositeitsisothermen van verschillende gassen.

- ▽  $N_2$  Michels c.s. (1931), Ross c.s. (1957)
- △ A Michels c.s. (1954)
- $CH_4$  Kuss (1952)
- ◇  $CO_2$  Michels c.s. (1957)
- $H_2$  Michels c.s. (1953)
- ×  $D_2$  Michels c.s. (1953)
- + He eigen metingen.

### 3. Reductie met kritische grootheden.

Voor de volledigheid willen we hier de resultaten vermelden, welke volgen uit een beschouwing van overeenstemmende toestanden door reductie met kritische grootheden. Tabel I vormt een overzicht van de kritische drukken,  $P_c$ , en temperaturen,  $T_c$ , zoals wij ze gebruikt hebben. Zij zijn ontleend aan Hirschfelder c.s. (1954), tabel 4, 1-2.



Tabel I.

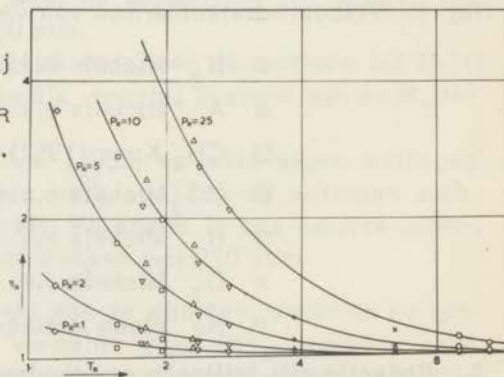
Kritische reductie-factoren.

gas	$P_c$ atm.	$T_c$ °K
$N_2$	33.5	126.1
A	48	151
$CH_4$	45.8	190.7
$CO_2$	72.85	304.2
$H_2$	12.8	33.3
$D_2$	16.4	38.4
He	2.26	5.3

Van de relatieve viscositeit  $\eta_R (= \eta/\eta_0)$ , waarin  $\eta$  en  $\eta_0$  de viscositeitswaarden van het gas bij hoge en lage druk zijn) werden grafieken gemaakt als functie van de gereduceerde druk  $P_R (= P/P_c)$  voor de isothermen, die in de vorige paragraaf werden vermeld. Omdat van geen enkel van deze besproken gassen resultaten over een groot gereduceerd temperatuurgebied,  $T_R (= T/T_c)$ , bekend zijn, hebben we uit deze grafieken  $\eta_R$  bepaald als functie van  $T_R$  bij verschillende waarden van  $P_R$ .

fig. 2.  $\eta_R$  als functie van  $T_R$  bij verschillende waarden van  $P_R$  (dubbel logarithmische schaal).

- ▽  $N_2$  Michels c.s. (1931),  
Ross c.s. (1957)
- △ A Michels c.s. (1954)
- $CH_4$  Kuss (1952)
- ◇  $CO_2$  Michels c.s. (1957)
- $H_2$  Michels c.s. (1953)
- ×  $D_2$  Michels c.s. (1953)
- + He eigen metingen.



De uitkomsten van deze bepalingen zijn te zien in fig. 2. Uit deze figuur blijkt duidelijk, dat alle gegevens voldoen aan de wet van overeenstemmende toestanden. Wel willen we er hier op wijzen, dat de resultaten van argon enigszins afwijken van de getrokken curve. Dit zullen we nog meerdere malen terugzien. De eigen heliummetingen bij 20.4 °K vertonen in deze beschouwing een goede overeenstemming.

#### 4. Reductie met moleculaire grootheden.

Om de wet van overeenstemmende toestanden, uitgedrukt in moleculaire eenheden, te kunnen toepassen, is het eenvoudig de relatieve viscositeitstoename  $\eta_R - 1$  te schrijven als functie van de gereduceerde temperatuur  $T^*$  ( $=kT/\epsilon$ ) en de fractie van het volume, dat door de moleculen is bezet:  $\frac{1}{4}d^* = (4/3)\pi n(\sigma/2)^3$ . Hierin zijn  $\epsilon/k$  en  $\sigma$  respectievelijk de grootte van het potentiaalminimum en de molecuuldiameter van een Lennard-Jones (12-6) potentiaalmodel;  $k$  is de constante van Boltzmann, terwijl  $n$  het aantal moleculen per  $\text{cm}^3$  is. In tabel II zijn de gebruikte moleculaire parameters vermeld. Zij zijn ontleend aan Hirschfelder c.s. (1954) tabel IA, behalve de waarden voorzien van een sterretje; deze zijn uit rapporten van Nat. Bureau of Standards (1955) afkomstig.

Tabel II.

Moleculaire reductie factoren.

gas	$\epsilon/k$ °K	$\sigma$ Å
N <sub>2</sub>	91.46 *	3.681 *
A	119.5 *	3.421 *
CH <sub>4</sub>	148.2	3.817
CO <sub>2</sub>	200 *	3.952 *
H <sub>2</sub>	37.00	2.928
D <sub>2</sub>	37.00	2.928
He	10.22	2.556

Weer hebben we grafieken van  $\eta_R$  als functie van  $d^*$  voor de verschillende isothermen gemaakt. Uit deze krommen zijn de waarden van  $\eta_R$  als functie  $d^*$  bij verschillende waarden van  $T^*$  bepaald. Deze waarden laten we in tabel III zien. In fig. 3 zijn deze waarden van  $(\eta_R - 1)$  versus  $T^*$  dubbellogaritmisch uitgezet. Allereerst kan men zien dat in

een dergelijke beschouwing de meetresultaten onderling goed overeenstemmen. Zelfs onze heliummetingen bij vloeibare waterstoftemperatuur liggen praktisch op de getrokken curven. Uit deze figuur blijkt verder, dat de temperatuurafhankelijkheid in het beschouwde dichtheidsgebied, praktisch overal gelijk is. Hierdoor is het mogelijk de dichtheidsafhankelijkheid van de viscositeitscoëfficiënt te beschrijven met de functie:

$$\eta_R - 1 = T^{*\alpha} \cdot f(d^*), \text{ waarin } \alpha = -0.59.$$

Tabel III.

gas	auteur	$\eta_R$ waarden					
		$T^*$	$d^* = 0.04$	0.2	0.4	0.8	1.2
$N_2$	Michels c.s.(1931)	3.26	1.013	1.071	1.220	1.685	2.59
		3.80	1.014	1.080	1.195	1.62	2.43
	Ross c.s. (1957)	2.44	1.014	1.087	1.222	1.71	2.71
A	Michels c.s. (1954)	2.28	1.018	1.125	1.307	2.00	3.395
		2.91	1.015	1.100	1.275	1.855	2.98
$CH_4$	Kuss (1952)	2.12	1.013	1.098	1.266	1.813	2.90
		2.65	1.013	1.089	1.241	1.754	—
$CO_2$	Michels c.s. (1957)	1.74	1.022	1.110	1.300	1.975	3.19
$H_2$	Michels c.s. (1953)	8.05	1.006	1.040	1.109	1.388	1.92
		9.41	1.003	1.028	1.089	1.344	—
$D_2$	Michels c.s. (1953)	8.05	1.008	1.046	1.119	1.405	1.94
He	Ross c.s. (1957)	24.29	1.005	1.032	1.09	—	—
	Eigen metingen	2.00	1.024	1.122	—	—	—

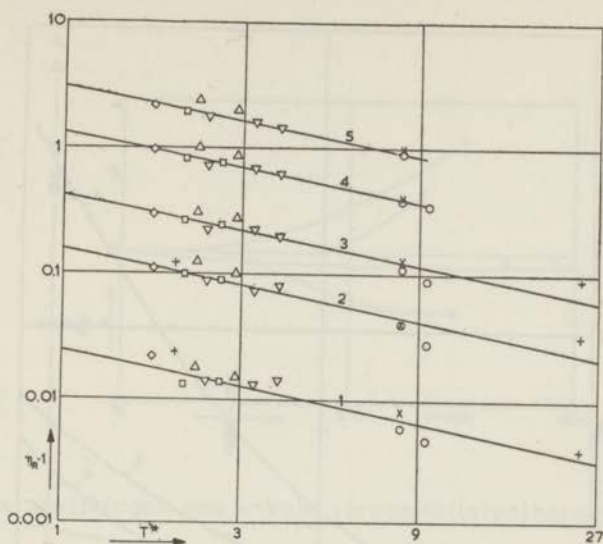


fig. 3. Relatieve viscositeitstoename als functie van  $d^*$ .

- |                |                   |                                      |
|----------------|-------------------|--------------------------------------|
| 1 $d^* = 0.04$ | $\nabla$ $N_2$    | Michels c.s.(1931), Ross c.s. (1957) |
| 2 $d^* = 0.2$  | $\Delta$ A        | Michels c.s. (1954)                  |
| 3 $d^* = 0.4$  | $\square$ $CH_4$  | Kuss (1952)                          |
| 4 $d^* = 0.8$  | $\diamond$ $CO_2$ | Michels c.s. (1957)                  |
| 5 $d^* = 1.2$  | $\circ$ $H_2$     | Michels c.s. (1953)                  |
|                | $\times$ $D_2$    | Michels c.s. (1953)                  |
|                | $+$ He            | Ross c.s. (1957), eigen metingen.    |

Om het verloop van  $f(d^*)$  te analyseren, maakten we een grafiek van  $(\eta_R - 1) T^{*-0.59}$  versus  $d^*$  (vergel.fig.4). Zoals verwacht kon worden, liggen alle experimentele resultaten praktisch op dezelfde curve. De overeenstemming mag goed genoemd worden, zeker als er met de onzekerheid in de moleculaire constanten rekening gehouden wordt. Het bleek mogelijk  $f(d^*)$  te beschrijven met een reeks in  $d^*$  nl:

$$f(d^*) = C_1 d^* + C_2 d^{*2} + C_3 d^{*3}.$$

Hierin is  $C_1 = 0.55$ ,  $C_2 = 0.96$  en  $C_3 = 0.61$ .

In fig. 4 is deze formule voor  $f(d^*)$  voorgesteld door curve 1.



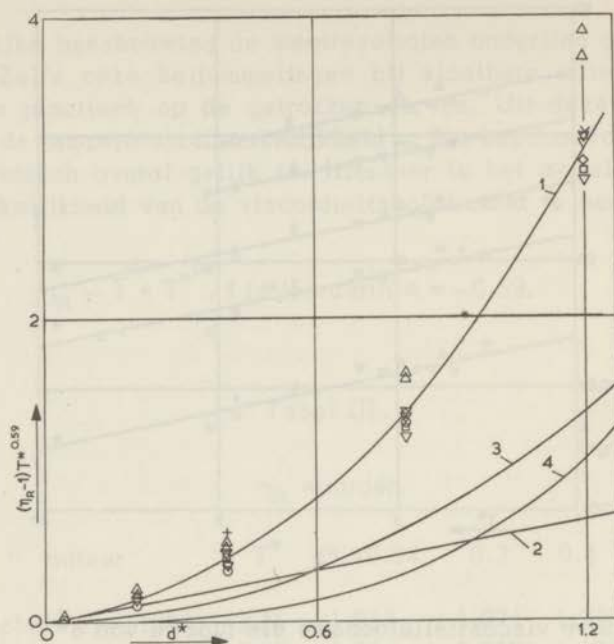


fig. 4.  $(\eta_R - 1) T^{*0.59}$  als functie van  $d^*$ .

- $\nabla$   $N_2$  Michels c.s. (1931), Ross c.s. (1957)
- $\Delta$  A Michels c.s. (1954)
- $\square$   $CH_4$  Kuss (1952)
- $\diamond$   $CO_2$  Michels (1957)
- $\circ$   $H_2$  Michels c.s. (1953)
- $\times$   $D_2$  Michels c.s. (1953)
- $+$  He Ross c.s. (1957), eigen metingen.

Samenvattend kan dus de viscositeitstoename voor het onderzochte dichtheids- en temperatuurgebied voorgesteld worden door de uitdrukking:

$$\eta_R = 1 + (0.55 d^* + 0.96 d^{*2} + 0.61 d^{*3}) T^{*-0.59} \quad (1)$$

Om de praktische bruikbaarheid van deze relatie te onderzoeken hebben we de afwijking van isothermen van He,  $H_2$ ,  $N_2$  en  $CH_4$  t.o.v. deze formule nagegaan. De gereduceerde temperaturen van deze isothermen liggen tussen  $T^* = 1.7$  en  $T^* = 25$ .

De gevonden afwijkingen zijn weergegeven in fig. 5.

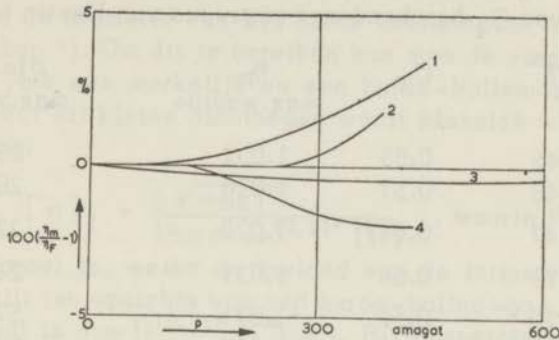


fig. 5. De afwijkingen van enkele viscositeitsisothermen van formule 1.

1 He	$T^* = 24.29$	Ross	c.s. (1957)
2 CH <sub>4</sub>	$T^* = 1.67$	Ross	c.s. (1957)
3 H <sub>2</sub>	$T^* = 8.73$	Michels	c.s. (1953)
4 N <sub>2</sub>	$T^* = 2.71$	Ross	c.s. (1957).

De isothermen, die we hier namen, zijn niet bij de afleiding van de formule (1) gebruikt. De afwijking blijkt in het algemeen kleiner te zijn dan 3%. Hieruit mogen we concluderen, dat uitdrukking (1) bruikbaar is voor de berekening van de viscositeitstoename voor eenvoudige moleculen in het beschouwde dichtheids- en temperatuurgebied.

Omdat uit theoretisch oogpunt de limiet van  $\frac{\partial \eta}{\partial d^*}$  in het lage dichtheidsgebied belangrijk is, hebben we getracht de nauwkeurigheid te schatten, waarmee de waarde van  $C_1$  bepaald kan worden. Deze bleek ongeveer 10% te zijn. Het is interessant deze waarde te vergelijken met recente resultaten van Kestin c.s. (1959). Zij verrichtten uitsluitend metingen in het lage dichtheidsgebied. Uit hun metingen berekenden zij de lineaire term uit de ontwikkeling van de relatieve viscositeit naar machten van  $\rho$ . Omdat in dit gebied de viscositeitstoename hoogstens een paar procent bedraagt, diende hun meetnauwkeurigheid zeer groot te zijn. We willen ons bij het vergelijken beperken tot die gevallen, waar de viscositeitstoename minstens 2% bedroeg, omdat de kans op systematische fouten bij kleinere veranderingen erg groot is.

Tabel IV.

Waarden van  $C_1$  berekend met gegevens van Kestin (1959).

gas	$T^*$	$C_1$	$\eta_R$ max.waarde	$\rho$ in am. max.waarde
A	2.45	0.65	1.031	29.3
	2.49	0.57	1.026	26.0
CO <sub>2</sub>	1.47	0.047	1.020	22.4
Kr	1.71	0.63	1.031	21.1
N <sub>2</sub>	3.20	0.52	1.071	57.7
	3.26	0.50	1.077	63.1
O <sub>2</sub>	2.54	0.465	1.050	49.0
Xe	1.35	0.48	1.070	31.0

Over het algemeen is er een goede overeenstemming met onze  $C_1$ -waarde. Dit heeft een bijzondere betekenis, omdat onze  $C_1$ -waarde hoofdzakelijk uit gegevens bij grotere dichtheden afgeleid is. Voor  $C_2$  is de nauwkeurigheid veel kleiner, omdat deze volledig afhankelijk is van het meerekenen van de 3e graads term in  $d^*$ . Deze 3e graads term is voor praktisch gebruik ingevoerd, namelijk om een betere overeenstemming bij grotere dichtheden te krijgen. Hierom moet aan deze term niet te veel fysische betekenis gehecht worden. Om een idee te krijgen van de bijdragen van de verschillende termen in formule 1, hebben we in fig. 4 de invloeden van de lineaire, kwadratische en kubische term afzonderlijk aangegeven door resp. de curven 2, 3 en 4.

### 5. Enkele opmerkingen over de Enskogformule.

Enskog heeft (Zie Hirschfelder (1954)), zoals bekend, een afleiding gegeven voor de invloed van de dichtheid op de viscositeitscoëfficiënt voor een harde-bollen-molecuulmodel.

Voor de relatieve viscositeit vond hij een uitdrukking van de vorm:

$$\eta_R = 1/\chi + 0.8 \tilde{d}^* + 0.7574 \tilde{d}^{*2}, \quad (2)$$

$$\text{waarin } \chi = 1 + 0.625 \tilde{d}^* + 0.2869 \tilde{d}^{*2} \text{ en } \tilde{d}^* = 2/3 \pi n \sigma_{hs}^3.$$

$\sigma_{hs}$  is hier de diameter van de harde bol. Duidelijk is, dat deze formule een temperatuurafhankelijke toename vertoont van  $\eta_R$  als functie van de dichtheid. Het leek interessant eens te kijken, of de eenvoudige



temperatuurafhankelijkheid zoals we die in de vorige paragraaf vonden, gemakkelijk in deze Enskogformule is in te voeren. De meest eenvoudige manier is de diameter van het harde bolmolecuul temperatuurafhankelijk te maken \*). Om dit te bereiken kan men de viscositeitsformules vergelijken voor een werkelijk en een harde-bollen-gas. De viscositeitscoëfficiënt bij kleine dichtheden wordt klassiek weergegeven door de uitdrukking:

$$[\eta]_1 = \frac{5\sqrt{\pi mkT}}{16\pi\sigma^2 \Omega^{(2,2)*}(T^*)}, \text{ waarin } \Omega^{(2,2)*}(T^*) \text{ de}$$

botsingsintegraal is, welke de invloed van de intermoleculaire potentiaal beschrijft ten opzichte van een harde-bollen-gas. Voor een harde-bol-potentiaal is dus  $\Omega^{(2,2)*}(T^*) \equiv 1$ . Bij temperaturen tussen  $T^* = 2$  en  $T^* = 20$  is  $\Omega^{(2,2)*}$  ongeveer evenredig met  $T^{*-0.2}$ . Hierdoor zou de diameter van een harde-bollen-gas evenredig met  $T^{*-0.1}$  zijn. Omdat de Enskogformule een ontwikkeling is naar machten van  $(\sigma^3)$  zal de kwadratische term op deze manier evenredig met  $T^{*-0.6}$  worden. Het algemene gedrag in verband met de temperatuur zal dus bij niet al te grote dichtheden goed worden weergegeven. Om een meer quantitative vergelijking te maken scheen het nuttig een temperatuurafhankelijke diameter van het harde-bol-molecuulmodel op de volgende manier in te voeren:

$$\sigma_{h,s} = \sigma_{L,J} [\Omega^{(2,2)*}(T^*)]^{1/2}.$$

Hierin is  $\sigma_{L,J}$  de Lennard-Jones diameter. De waarden van  $\Omega^{(2,2)*}(T^*)$  zijn getabelleerd in Hirschfelder c.s. (1954), tabel I-M. Als we vergelijking (3) substitueren in vergelijking (2), krijgen we een uitdrukking, die nu afhankelijk is van van  $d^* [\Omega^{(2,2)*}(T^*)]^{1/2}$ . Om te onderzoeken, of de gassen aan deze betrekking voldoen, werd  $\eta_R - 1$  uitgezet als functie van  $d^* \Omega^{3/2}$  (vergel.fig.6). Uit ons voorgaande werk is duidelijk, dat in deze beschouwing van de punten een grotere spreiding verwacht mag worden, omdat de temperatuurafhankelijkheid van het lineaire deel niet meer in orde is. Voor het dichtheidsgebied, waarin de kwadratische term de belangrijkste bijdrage vormt in de viscositeitstoename, is er, zoals verwacht mocht worden, een goede overeenstemming. De absolute waarden, zoals ze uit Enskog werden berekend, wijken aanmerkelijk af van de meetresultaten. Als in de Enskogbetrekking  $(1/1,2)d^*\Omega^{3/2}$  (curve 2) of  $(1/1,3)d^*\Omega^{3/2}$  (curve 3) gebruikt wordt in plaats van  $d^*\Omega^{3/2}$  (curve 1) is de overeenstemming te verbeteren. Dit betekent dat de molecuuldiameter, zoals die voorkomt in de Enskogformule, niet alleen temperatuurafhankelijk moet worden gemaakt, maar ook iets moet veranderen. Het is duidelijk, dat een dergelijke empirische beschouwing

\*) vergelijk: Gardner (Zie Sibbitt c.s. (1943)).



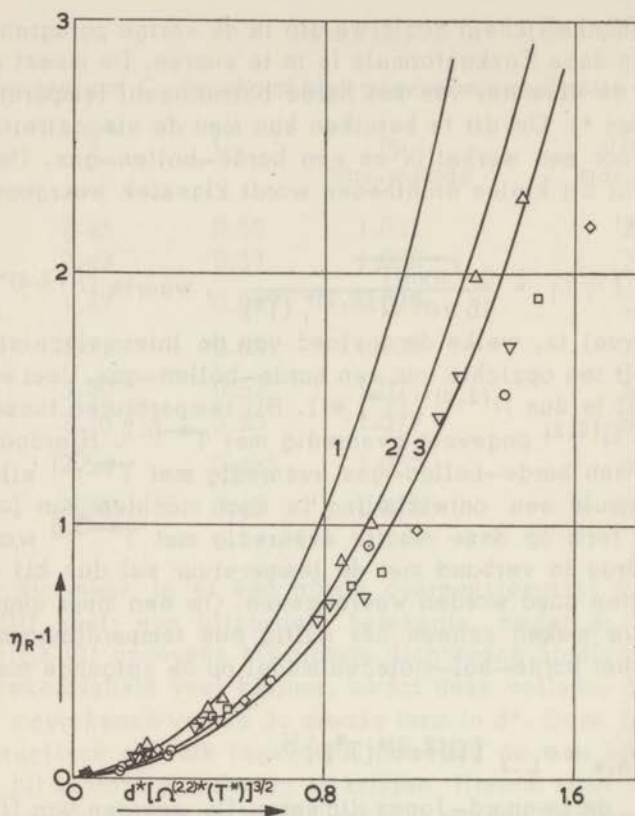


fig. 6.  $\eta_R - 1$  versus  $d^* [\Omega^{(2,2)*} (T^*)]^{3/2}$ .

- 1 Enskog theorie (form.2)
- ▽ N<sub>2</sub> Michels c.s. (1931), Ross c.s. (1957)
- △ A Michels c.s. (1954)
- CH<sub>4</sub> Kuss (1952)
- ◇ CO<sub>2</sub> Michels c.s. (1957)
- H<sub>2</sub> Michels c.s. (1953)
- × D<sub>2</sub> Michels c.s. (1953)
- + He Ross c.s. (1957), eigen metingen .

alleen redelijke resultaten zal geven bij die temperaturen, waar het repulsieve deel van de potentiaal domineert, zoals dit voor de betrokken metingen het geval was.

## 6. Slotbeschouwing.

In onze voorafgaande beschouwingen hebben we gezien, hoe in een uitgebreid temperatuurgebied waarin quantumeffecten nog te verwaarlozen zijn, een zeer eenvoudige betrekking voor de afhankelijkheid van de viscositeit van de dichtheid uit de experimenten kan worden afgeleid. Wij zagen voorts hoe onze meetresultaten van heliumgas bij vloeibare waterstoftemperatuur goed met een dergelijke beschouwing overeenstemden. Ter illustratie geven we nog eens onze resultaten bij  $20.4^{\circ}\text{K}$  zoals deze gevonden zijn met de oscillerende-bol en de capillaire viscosimeter (curve 1 en 2) en de waarden, zoals deze volgen uit formule 1. De overeenstemming is opmerkelijk goed. Toch houdt dit niet in, dat in de dichtheidsafhankelijk van heliumgas bij lage temperaturen bij deze temperaturen in het geheel geen quantumeffecten een rol spelen. Immers we reduceerden door de viscositeitscoëfficiënt te delen door de gemeten waarde bij atmosferische druk. Deze waarde is reeds sterk beïnvloed door diffractie-effecten. We moeten dus uit de overeenstemming met de "klassieke resultaten" concluderen dat de invloed van deze diffractie-effecten op dezelfde wijze tot uitdrukking komt in de viscositeit bij hoge en lage drukken. Dat de ware quantummechani-

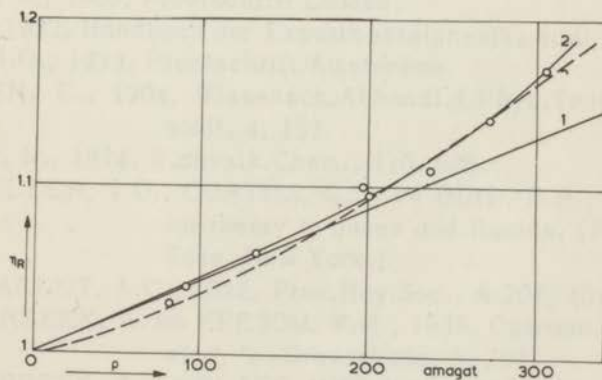


fig. 7.  $\eta_R$  als functie van de dichtheid  $\rho$  bij  $20.4^{\circ}\text{K}$ .

- 1 meetresultaten met de oscillerende-bol-viscosimeter.
- 2 meetresultaten met de capillaire viscosimeter.
- 3 viscositeitstoename volgens formule 1.

sche dichtheidsafhankelijkheid, d.w.z. het effect dat de Broglie golf-  
 lengte vergelijkbaar wordt met de onderlinge afstand tussen de mole-  
 culen, nog geen rol speelt is niet verwonderlijk daar in het onderzochte  
 dichtheidsgebied de moleculen nog slechts 5% van het totale volume  
 bezetten. Meer uitgesproken quantummechanische effecten kunnen ver-  
 wacht worden bij aanzienlijk hogere dichtheden.



## LITTERATUUR

- ANDRONIKASHVILLI, E.L., 1948, *J.Exp.Theor.Phys.U.S.S.R.*, 18, 429.
- BECKER, E.W., MISENTA, R. en SCHMEISSNER, F., 1954, *Z.Phys.*, 137, 126.
- BECKER, E.W. en MISENTA, R., 1955, *Z.Phys.*, 140, 535.
- DE BOER, J. en MICHELS, A., 1939, *Physica*, 6, 409.
- DE BOER, J., 1943, *Physica*, 10, 348.
- DE BOER, J. en COHEN, E.G.D., 1951, *Physica*, 17, 993.
- DE BOER, J. en BIRD, R.B., 1951, *Phys.Rev.*, 83, 1259.  
1954, *Physica*, 20, 185.
- BOYD Jr., J.H., 1930, *Phys.Rev.*, 35, 1284.
- BUCKINGHAM, R.A. en SCRIVEN, R.A., 1952, *Proc.phys.Soc.Londen*, B 65, 376.
- BUCKINGHAM, R.A., DAVIES, A.E. en DAVIES, A.R., 1957, *Proc. Conference on Thermodynamic and Transport Properties of fluids. Londen.*
- CARR, N.L., 1953, *Inst.Gas Technol., Research Bull.*, 23.
- COHEN, E.G.D., OFFERHAUS, M.J., VAN LEEUWEN, J.M.J., ROOS, B.W. en DE BOER, J., 1956, *Physica*, 22, 791.
- COMINGS, E.A. en EGLY, R.S., 1941, *Ind.and Eng.Chem.*, 33, 1224.
- DASH, J.G. en DEAN TAYLOR, R., 1957, *Phys.Rev.*, 105, 7.
- DURIEUX, M., 1960, *Proefschrift Leiden.*
- ERKS, S., 1932, *Handbuch der Experimentalphysik*, 4, 461.
- GIBSON, R.O., 1933, *Proefschrift Amsterdam.*
- GRUNEISEN, E., 1904, *Wissensch.Abhandl.d.Phys.Techn.Reichsanstalt*, 4, 153.
- GUNTHER, P., 1924, *Z.physik.Chem.*, 110, 626.
- HIRSCHFELDER, J.O., CURTISS, C.F. en BIRD, B.R., 1954, *Molecular theory of gases and liquids. (John Wiley & Sons, New York.)*
- HOLLIS HALLET, A.C., 1952, *Proc.Roy.Soc.*, A 201, 404.
- VAN ITTERBEEK, A. en KEESOM, W.H., 1938, *Commun.No.252a; Physica*, 's-Gravenhage, 5, 257.
- VAN ITTERBEEK, A. en CLAES, MISS A., 1938, *Physica*, 5, 938.
- VAN ITTERBEEK, A. en VAN PAEMEL, O., 1940, *Physica*, 7, 265.
- VAN ITTERBEEK, A., SCHAPINK, F.W., VAN DEN BERG, G.J. en VAN BEEK, H.J.M., 1953, *Commun.No. 294b; Physica* 19, 1158.
- IWASAKI, H., 1954, *Sci.Rep.R.I.T.U.*, A 6, 296.
- JOHNSTON, H.L. en GRILLY, E.R., 1942, *J.Phys.Chem.*, 46, 938.
- KAMERLINGH ONNES, H. en WEBER, S., 1913, *Commun.No.134b; Proc.roy.Acad., Amsterdam*, 15, 1396.



- KEESOM, W.H., 1942, *Helium* (Elsevier, Amsterdam), p.108.
- KELLER, W.E., 1957, *Phys.Rev.*, 105, 41.
- KESTIN, J. en PERSEN, L.N., 1954, *Rapport Brown Univ.*, AF-891/1;  
AF-891/2; AF-891/3.
- KESTIN, J. en WANG, H.E., 1955, *Rapport Brown Univ.*, AF-891/5;  
1958, *TRANS ASME*, 80, 11.
- KESTIN, J. en LEIDENFROST, W., 1959, *Physica*, 25, 1033.
- KUSS, E., 1952, *Z.angew.Phys.*, 4, 203.
- KVALNES, H.M. en Gaddy, V.L., 1931, *J.Am.Chem.Soc.*, 53, 394.
- LAZARRE, F. en VODAR, B., 1956, *Comptes Rendus*, 243(I), 487.
- LIGNAC, W.P.J., 1949, *Proefschrift Leiden*.
- LUNBECK, R.J., 1951, *Proefschrift Amsterdam*.
- MAC WOOD, G.E., 1938, *Physica*, 5, 374.
- MAKITA, T., 1957, *Rev.Phys.Chem.Japan*, 27, 16.
- MARIENS, P. en VAN PAEMEL, O., 1955, *Appl.sci.Res.*, A 5, 411.
- MARIENS, P. en SCHELKENS, R., 1957, *Med.Kon.Vl.Ak.v.België*, No.3.
- MEYER, O.E., 1865, *Poggendorff 's Ann.*, 125.
- MICHELS, A. en GIBSON, R.O., 1931, *Proc.roy.Soc.*, A 134, 288.
- MICHELS, A., SCHIPPER, A.C.J. en RINTOUL, W.H., 1953, *Physica*, 19,  
1011.
- MICHELS, A., BOTZEN, A. en SCHUURMAN, W., 1954, *Physica*, 20, 1141;  
1957, *Physica*, 23, 95.
- NEWELL, G.F., 1959, *ZAMP*, 10, 160.
- PHILIPS, P., 1912, *Proc.roy.Soc.*, A 87, 48.
- RIETVELD, A.O., VAN ITTERBEEK, A. en VELDS, C.A., 1959, *Phy-  
sica*, 25, 205.
- ROSS, J.F. en BROWN, G.M., 1957, *Ind. and Eng.Chem.*, 49, 2026.
- SCHILLER, L., 1922, *Zeitschr.f.angew.Math.u.Mech.*, 2, 96.
- SCHROER, E. en BECKER, G., 1935, *Z.phys.Chem.*, A 173, 178.
- SIBBITT, W.L., HAWKINS, G.A. en SOLBERG, H.L., 1943, *TRANS  
ASME*, 65, 401.
- STAKELBECK, H., 1933, *Z.F.D.ges.Kälte Ind.*, 40, 33.
- TABLES OF THERMAL PROPERTIES OF GASES, 1955, *Nat.Bur. of  
Standards, Circular 364*.
- VOGEL, H., 1914, *Ann.Physik*, 43, 1235.
- WARBURG, E. en VON BABO, L., 18882, *Ann.Physik*, 17, 390.
- WHITE, C.M., 1929, *Proc roy. Soc.*, 123, 645.
- WOOLLEY, H.W., SCOTT, R.B. en BRICKWEDDE, F.G., 1948, *J.Res.  
nat.Bur.Stand.Wash.*, 41, 379.

## SUMMARY

In this thesis we give an account of the Leiden experiments on the coefficient of viscosity of gases at low temperatures. Some measurements have already been published in *Physica* \*). We performed the measurements with 3 different viscometers, namely: an oscillating disk, an oscillating sphere and a capillary viscometer. Chapter I gives a survey of the formulae which describe the relations between the coefficient of viscosity and the measured quantities. In principal, for the oscillating viscometers, we followed the theory of Kestin e.a.(1954). In chapter II measurements are reported of the coefficient of viscosity of He, Ne, H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> and HD between 20° and 80°K with an oscillating disk viscometer. A description is given of a simple thermostat that was developed to enable measurements in this temperature range. The results of the measurements are in good agreement with the existing data below 20°K and above 60°K. Also, a comparison with theoretical predictions based on the quantum-mechanical modification of the law of corresponding states is given. The first term of the series expansion of the reduced viscosity in powers of the De Broglie parameter is determined from the experimental data. Furthermore, the data are compared with calculations based on different models for the intermolecular potential.

The damping of the detection mirror in the oscillating disk viscometer and the damping at an asymmetrical position of the moving disk are discussed in chapter III. We also checked the possibility of determining the dependence on density of the coefficient of viscosity with this type of viscometer. As the results could easily be influenced by systematic errors, we also performed this kind of measurement with an oscillating sphere viscometer (chapter IV) and with an apparatus based on the capillary flow method (chapter V). The results of the different measurements are in good agreement.

Finally, a corresponding states treatment based on molecular units is given in chapter VI for the density dependence of the viscosity coefficient for several gases. The increase in the viscosity showed a very simple temperature dependence. An empirical relation is given that makes it possible to predict the increase of the viscosity coefficient for simple gases over a large range of densities and temperatures.

\*) *Physica* 24 1958(557), 24 1958(1102) and 26 1960(653).

The first part of the paper is devoted to a description of the experimental apparatus and the method of measurement. The results are then presented in the form of a series of curves and tables. The discussion is given in the last part of the paper.

The apparatus consists of a cylindrical vessel of diameter 10 cm and height 20 cm, filled with water. A piston is placed at the bottom of the vessel and is connected to a vertical rod which passes through the center of the vessel. The piston is driven up and down by a motor which is connected to a variable frequency oscillator. The frequency of the oscillator is varied from 10 to 100 cycles per second. The displacement of the piston is measured by a micrometer screw gauge. The pressure in the water is measured by a pressure gauge connected to the side of the vessel. The temperature of the water is measured by a thermometer.

The results show that the pressure in the water is proportional to the square of the frequency of the oscillator. This is in agreement with the theoretical prediction. The displacement of the piston is also proportional to the square of the frequency. This is also in agreement with the theoretical prediction.

The following table gives the results of the experiment. The pressure is given in dynes per square centimeter and the displacement is given in centimeters.

Frequency (cycles per second)	Pressure (dynes/cm <sup>2</sup> )	Displacement (cm)
10	1.0	0.1
20	4.0	0.2
30	9.0	0.3
40	16.0	0.4
50	25.0	0.5
60	36.0	0.6
70	49.0	0.7
80	64.0	0.8
90	81.0	0.9
100	100.0	1.0

It is seen from the table that the pressure and displacement are both proportional to the square of the frequency. This is in agreement with the theoretical prediction.



## STELLINGEN.

### I.

Het is waarschijnlijk onjuist de dichtheidsafhankelijkheid van de warmtegeleiding te berekenen uit experimentele waarden van de viscositeitscoëfficiënt als functie van de dichtheid met gebruikmaking van de beschouwingen van Enskog.

E.W. Comings en M.F. Nathan, *Ind.Eng.Chem.*39(1947)964.

B.W. Gamson, *Chem.Eng.Progr.*45(1949)154.

### II.

Aan de viscositeitsmetingen van vloeibaar He II door Heikkila en Hollis Hallett met de roterende-cylinder-viscosimeter dient een grotere waarde toegekend te worden dan aan dezelfde soort metingen met behulp van een oscillerende-schijf-viscosimeter.

W.J. Heikkila en A.C. Hollis Hallett, *Can.J.Phys.*33(1955)420.

### III.

Het is twijfelachtig, of Kestin de gegevens, die nodig zijn voor de berekening van de viscositeitscoëfficiënt van gassen bij hogere dichtheden op een juiste manier heeft bepaald.

J. Kestin en W. Leidenfrost, *Phys.*25(1959)1033.

### IV.

De sterke intensiteitsstijging van de molekuulstralen bij toenemende expansiedruk, zoals deze door Kistiakowsky bij ammoniak is gevonden, kan worden verklaard door een gedeeltelijke condensatie van de molekulen.

G.B. Kistiakowsky en W.P. Slichter, *Rev.Scientif.Instr.*22(1951)333.

## V.

Yosida heeft bij de uitwerking van zijn model, betreffende verdunde metaallegeringen met overgangsmetalen als onzuiverheid, bepaalde niet toegestane verwaarlozingen toegepast. Het is mogelijk, dat hij hierdoor het optreden van een minimum in de elektrische weerstand als functie van de temperatuur niet heeft kunnen verklaren. Tevens geeft de gecorrigeerde theorie een aanknopingspunt om de experimenteel gevonden thermokracht, in sommige metalen tot  $10^4$  x de waarde volgens de theorie van Sommerfeld, te kunnen verklaren.

K. Yosida, Phys.Rev.107(1957)396.

## VI.

De manier, waarop Keller en Hammel in hun beschouwingen over de warmtegeleiding in He II tot de Allen-Reekie-regel gekomen zijn, is aanvechtbaar.

W.E. Keller en E.F. Hammel, Annals of Phys.10(1960)202.

## VII.

Zolang de fysicus zich beweegt op striktnatuurwetenschappelijk terrein, kan er geen sprake zijn van een problematiek, die betrekking heeft op of raakt aan het gebied van de levensbeschouwing.

## VIII.

Bij de beschouwingen omtrent de energieoverdracht tussen Fe-ionen en het kristalrooster in  $(\text{CoFe})\text{NH}_4$ -tuttonzouten, gebaseerd op zijn experimentele resultaten, heeft Haseda geen rekening gehouden met het optreden van afwijkingen van de thermodynamische theorie van Casimir en Du Pré.

T. Haseda, Phys.24(1958)93 .

## IX.

De vergelijking van de theoretische resultaten betreffende de optredende paramagnetische resonantie-verschijnselen in evenwijdige velden door Semakov met de experimentele gegevens, waarnaar hij verwijst, is misleidend.

B.V. Semakov, Doklady.4(1960)1061.

X.

De theorie van Bardeen, Cooper en Schrieffer voor de soortgelijke warmte van supergeleidende electronen geeft afwijkingen met gemeten waarden; het is voorbarig hieruit te concluderen dat hun theorie onvolledig of onjuist is.

H.A.Boorse, Phys.Rev.Letters 2(1959)391.

L.N.Cooper, Phys.Rev.Letters 3(1959)17.

XI.

Het valt te betreuren, dat Parsonage c.s. niet vermeld hebben, uit welke bron de moleculaire constanten afkomstig zijn, die zij gebruikt hebben bij de berekening van thermodynamische excesfuncties van vloeistofmengsels.

N.G. Parsonage en L.A.K. Staveley, Quarterly Rev.13(1959)306.

XII.

De experimenten van Mathur en Lakshmanan leveren geen voldoende bevestiging van de door hen afgeleide formule voor de afstand tussen Liesegangse ringen.

P.M. Mathur en A.S. Lakshmanan, Journ.Colloid Science.15(1960)205.

J.M.J.Coremans, Proefschrift, Leiden (1960)



The results of the present study are in agreement with those of other workers in the field. It is suggested that the present study should be repeated in other parts of the country to confirm the results obtained here. The present study is a preliminary one and it is suggested that a more detailed study should be carried out in the future.

The author is indebted to the Director of the Department of Agriculture, Government of India, for the facilities provided for the present study. He is also indebted to the staff of the Department for their assistance during the course of the study.

Received for publication, 15th October 1954.  
Revised MS. received, 15th November 1954.

The experiments were carried out in the Department of Agriculture, Government of India, during the period 1953-54. The results are being published in the Journal of the Department of Agriculture, Government of India, in the near future.

REFERENCES  
B. S. CHANDRAN, 1953. The effect of temperature on the development of the pupae of the house fly, *Musca domestica* L. *Indian Journal of Entomology*, 15, 1-10.  
S. S. CHANDRAN, 1954. The effect of temperature on the development of the pupae of the house fly, *Musca domestica* L. *Indian Journal of Entomology*, 16, 1-10.

1954. The effect of temperature on the development of the pupae of the house fly, *Musca domestica* L. *Indian Journal of Entomology*, 16, 1-10.

