

NUCLEATION AND CONDENSATION IN A STATIONARY
SUPERSONIC FLOW –
DESIGN, MODELING AND TEST OF AN EXPERIMENT
BASED ON A TRANSPARENT LAVAL NOZZLE

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZURICH

for the degree of
DOCTOR OF NATURAL SCIENCES

presented by

Olof MATTIAS KARLSSON

M.Sc. Applied Physics and Electrical Engineering,
Linköping University

born 6 September 1975

citizen of Sweden

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Alexander Wokaun, examiner
Prof. Dr. Reinhard Strey, co-examiner
Dr. Hans Rudolf Tschudi, co-examiner

Abstract

An insight in the kinetics of the nucleation of vapor zinc is important for the development of an effective solar reactor based on the Zn/ZnO cycle. In the present work a concept to study vapor phase homogeneous nucleation and condensation of zinc is developed and tested. An experimental setup based on a Laval nozzle in which vapor phase nucleation and condensation can be induced was designed, built and tested. A physical model that describes nucleation and condensation in a flow was developed and implemented in a C++ program that runs on a desktop computer. The output of the experiment is related to phenomenological parameters of the model that hold the kinetic information. Experiments with *n*-butanol were performed to validate the conceptional idea and to test the experimental setup, the data acquisition, the nucleation model, and its numerical implementation.

The experimental setup is based on an adiabatic expansion of vapor diluted in an inert gas in a converging-diverging nozzle. The flow is driven by the pressure difference between the entrance of the nozzle and its exit. The setup is designed for an stagnation pressure of up to 10 bar of the flow expanding to atmospheric pressure at the exit. The flow is accelerated to the local speed of sound at the throat of the nozzle and is further accelerated in the supersonic regime in the diverging part. The acceleration causes the temperature of the flow to rapidly decrease with a subsequent increase of saturation. When the degree of saturation becomes sufficiently high nucleation and condensation are induced. The particles created by homogeneous nucleation and grown by condensation are monitored by scattering the light of a laser beam propagating along the nozzle axis in the direction of the flow. The light scattered on the particles is monitored with an ICCD camera perpendicularly to the direction of the beam.

The physical model for nucleation and condensation developed in this work is based on the classical nucleation theory. It results in a system of differential equations from which the particle size distribution can be calculated at any point without prior assumptions on its shape. The model was implemented in a C++ code for the case of a one dimensional flow representing the flow conditions on the axis of the nozzle used in the experimental setup. This one dimensional

model disregards boundary effects which are only taken into account summarily by treating the opening angle of the nozzle as a free parameter of the model. With the implemented code, quantities such as e.g. the temperature, the pressure, or the flow speed, as well as the particle size distribution can be calculated. The second moment of the size distribution that is proportional to the intensity of the scattered light in the Rayleigh regime is used to simulate the intensity of the scattered light that is the primary experimental output. A parametric study was performed showing the influence of the boundary conditions of the flow and of the parameters of the nucleation and condensation model on the scattering profile.

The experimental concept was tested and verified by performing experiments with *n*-butanol. In these experiments, the stagnation temperature was in the range of 110–125°C and the stagnation pressure in the range of 3.6–4.3 bar. The parameters of the physical model were determined by fitting the simulated scattering profiles to the experimentally obtained scattering intensities. The values obtained in this manner produce nucleation and growth kinetics reasonably consistent with other authors.

The setup was designed to studying the nucleation and condensation process of zinc vapor at temperatures up to 1100 K. The latter study is the final aim of the project of which this work is part. The experience gained from the experiments with *n*-butanol has provided information that will be valuable when the setup will be adapted for experiments with zinc vapor. The study on zinc vapor will be the theme for the doctoral student continuing this project.

Zusammenfassung

Das Verständnis der Kinetik der Nukleation von Zinkdampf ist zur Entwicklung von effizienten Solarreaktoren für den Zn/ZnO Zyklus wichtig. In der vorliegenden Arbeit wird ein Konzept zur Untersuchung der homogenen Nukleation und Kondensation von Zinkdampf entwickelt und ausgetestet. Eine entsprechende Experimentiereinrichtung wurde geplant, gebaut und ausgetestet. Sie basiert auf einer Laval-Düse, in der Zinkdampf zur Nukleation und Kondensation gebracht wird. Es wurde ein Modell entwickelt, das Nukleation und Kondensation in einer Strömung beschreibt. Das Modell wurde in einem C++ Programm implementiert, welches auf einem Desktop PC läuft. Die Messwerte des Experiments werden benutzt, um die phänomenologischen Parameter des Modells zu bestimmen, in welchen die Information über die Kinetik enthalten ist. Es wurden Experimente mit *n*-Butanol durchgeführt, um das Konzept zu validieren sowie das Experiment, Datenerfassung und Auswertung auszutesten.

Das Experiment benutzt eine adiabatische Expansion von mit Inertgas verdünntem Dampf in einer Laval-Düse. Die Expansion wird durch eine Druckdifferenz zwischen Düsenein- und -ausgang angetrieben. Das Experiment ist für einen maximalen Druck von 10 bar am Düseneingang und Atmosphärendruck am Ausgang ausgelegt. Die Strömung wird im konvergierenden Teil der Düse bis auf Schallgeschwindigkeit beschleunigt; im divergierenden Teil wird eine Überschallströmung erreicht. Ein schneller Temperaturabfall und ein gleichzeitiger starker Anstieg der Sättigung sind die Folge. Sobald die Sättigung genügend hoch ist, werden Nukleation und Kondensation ausgelöst. Ein Laserstrahl wird entlang der Strömung durch die Düse geschickt und an Tröpfchen gestreut, die sich durch homogene Nukleation und anschließende Kondensation bilden. Das Streulicht wird mit Hilfe einer ICCD Kamera senkrecht zur Strömungsrichtung detektiert.

Das in dieser Arbeit entwickelte physikalische Modell basiert auf der klassischen Theorie der Nukleation. Es liefert einen Satz Differentialgleichungen, aus denen die Teilchengrößenverteilung ohne weitere Annahmen zur erwarteten Form der Verteilung berechnet werden kann. Ein C++ Programm führt die numerische Integration für den eindimensionalen Fall der Strömungsbedingungen

auf der Düsenachse, wie er im Experiment realisiert ist, durch. Durch die Düsenform vorgegebene Randbedingungen werden summarisch berücksichtigt, indem der Öffnungswinkel der Düse als freier Parameter behandelt wird. Mit dem Programm werden Temperatur, Druck, Strömungsgeschwindigkeit sowie die Teilchengrößenverteilung berechnet. Das zweite statistische Moment der Teilchengrößenverteilung, das proportional zur Streuamplitude der Rayleigh-Streuung ist, wird dazu benutzt, die experimentell zugängliche Intensität des gestreuten Laserlichts entlang der Düsenachse zu simulieren. Eine Parameterstudie zeigt den Einfluss der verschiedenen Parametern auf die Streukurve auf.

Das Konzept wurde anhand von Experimenten mit *n*-Butanol verifiziert. Für diese Experimente wurden Stagnationstemperaturen im Bereich 110–125°C und Stagnationsdrücke in einem Bereich von 3.6–4.3 bar eingesetzt. Die freien Parameter des physikalischen Modells wurden durch eine Angleichung der experimentellen Streukurven an die Modellvoraussagen bestimmt. Die so erhaltenen Werte für die Nukleations- und Wachstumskinetik decken sich mit den Resultaten anderer Autoren.

Das Experiment wurde für den Einsatz bei Temperaturen bis zu 1100 K ausgelegt, wie sie bei den Untersuchungen zum Nukleations- und Kondensationsverhalten von Zinkdampf — dem Endziel des Projekts — benötigt werden. Die Untersuchungen an *n*-Butanol haben wichtige Erkenntnisse geliefert, welche für einen erfolgreichen Umbau des Experiments für den Betrieb mit Zinkdampf benötigt werden. Dieser Teil des Projekts wird im Rahmen einer nachfolgenden Dissertation angegangen werden.