

## **Abschlussbericht an die Max–Buchner–Forschungsstiftung**

### **Forschungsprojekt 2946**

**Förderperiode 1.7.2011 bis 30.6.2012 (Jahr 1), 1.7.2012 bis 30.6.2013 (Jahr 2)**

### **Grundlagenstudie zur Entwicklung der Phosphorthermometrie zur Untersuchung der Gasphase reagierender Strömungen**

#### **Abstract:**

Das Projekt dient zur Weiterentwicklung der laserinduzierten Phosphoreszenz zur gleichzeitigen Bestimmung der Temperatur- und Geschwindigkeitsfelder in heißen Strömungen energietechnischer Systeme basierend auf lumineszierenden Partikeln. Durch systematische Kalibrierungen und signifikante Verbesserungen der optischen Effizienz des Phosphors und des Messsystems kann die Messunsicherheit deutlich reduziert werden.

## **1 Aufgabenstellung und Motivation**

Für energie- und verfahrenstechnische Anwendungen ist die Kenntnis räumlicher und zeitlicher Geschwindigkeits- und Temperaturfelder für ein tieferes Verständnis der ablaufenden Prozesse von großem Interesse. Insbesondere für turbulente, reagierende Strömungen ist die Kenntnis der lokalen Geschwindigkeits- und Temperaturgradienten unverzichtbar v.a. für die Modellentwicklung und die Modellvalidierung. Thermografische Phosphore werden bisher hauptsächlich zur Bestimmung von Wandtemperaturen auch unter sehr harschen Bedingungen eingesetzt (siehe z.B. [1,2]). Sie sind jedoch auch für die bildgebende Thermometrie in Gasströmungen sehr vielversprechend [3], hierbei geben die der Strömung zugegebene Partikel nach UV-Laser-Anregung ein temperaturabhängiges Signal ab. Die Bestimmung des Geschwindigkeitsfelds aus der Partikelbewegung erfolgt basierend auf der Particle Image Velocimetry (PIV). Dies hat den Vorteil, dass mit nur einer Messtechnik simultan die Temperatur- und die Geschwindigkeitsfelder bestimmt werden können. Globalziel des Forschungsvorhabens ist die Weiterentwicklung der laserinduzierten Phosphoreszenz zur Messung von Temperaturfeldern in reagierenden Strömungen, da bisher publizierte Machbarkeitsstudien teilweise sehr große Messungenauigkeiten der Temperatur aufzeigen, welche für die Entwicklung energietechnischer Systeme und auch für Modellentwicklungen nicht akzeptabel sind.

Zur Optimierung der Messtechnik wurden unterschiedliche Dotierungen in Wirtskristallen bezüglich Emissionsverhalten im Ofen und in heißen Strömungen charakterisiert und bewertet. Detektionsseitig wurde die Effizienz des optischen Systems verbessert, um das Signal-Rauschverhältnis zu maximieren. Die Temperaturkalibrierung des Pulvers erfolgte zunächst in einem Ofen und nach Auswahl geeigneter Phosphore in einem heißen Freistrahls unter realistischeren Bedingungen für spätere Anwendungen. Um auch Quereinflüsse auf die Messgenauigkeit zu untersuchen, wurde eine Strömungszelle aufgebaut, in welcher Temperatur und Druck sowie die Gaszusammensetzung variiert werden können. Nach erfolgreicher Weiterentwicklung soll die Messtechnik unter realistischen, herausfordernden Bedingungen in einem Verbrennungssystem angewendet werden.

## **2 Experimente und erzielte Ergebnisse**

Der optische Messaufbau mit Hochtemperaturofen und Freistrahls wurde bereits im Bericht des ersten Förderzeitraums beschrieben und soll an dieser Stelle nicht weiter erläutert werden. Speziell für Hochtemperaturanwendungen wurden als thermographische Phosphore mit Dysprosium (Dy) dotierte YAG-Kristalle ausgewählt. Neben dem Aktivator Dysprosium wurden auch Kristalle mit einem zusätzlichen Sensivator (Erbium (Er)) getestet. Diese

Kalibriermessungen zur Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Phosphore wurden in einem Hochtemperatur-Ofen durchgeführt. Das erzeugte Phosphorpulver wurde für die Charakterisierung im Ofen bis auf 1400°C aufgeheizt und mit einem frequenzverdreifachten Nd:YAG Laser (Wellenlänge 355 nm) zur Phosphoreszenz angeregt.

Die Intensität einzelner Emissionslinien im Phosphoreszenzspektrum ist temperaturabhängig und kann daher für die Temperaturkalibrierung verwendet werden. Hierzu wird das Phosphoreszenzsignal mit einem Spektrometer detektiert. Für die Intensitätsverhältnismethode kommen unterschiedliche temperatursensitive Emissionsbereiche des Spektrums in Betracht, wie es in Abbildung 1 (links) für einen Dy:YAG Phosphor dargestellt ist.

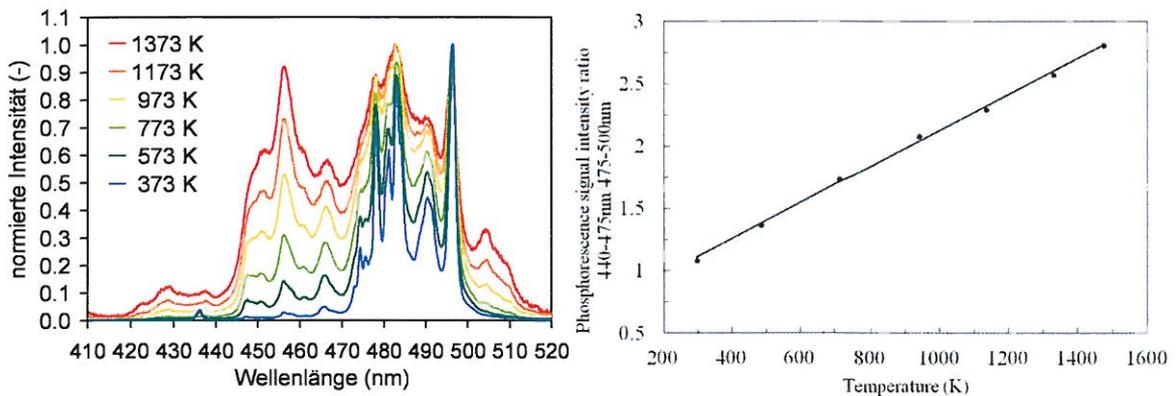


Abbildung 1: Phosphoreszenzspektrum eines Dy:YAG-Phosphors (links); Temperaturkalibrierung im Ofen aus Intensitätsverhältnissen mit zwei Kameras und Filtern für Umgebungstemperaturen zwischen 300 und 1500 K (rechts) [P3]

In Abbildung 1 rechts ist eine Kalibriergerade dargestellt, welche mit zwei Kameras und Filtern aus dem Bildverhältnis der spektralen Bereiche 440-475 nm und 475-500 nm bestimmt wurde. Die Kalibrierfunktion ist nahezu linear auch bis in den hohen Temperaturbereich von 1500 K. Im nächsten Schritt wurden Studien durchgeführt zur gleichzeitigen Messung von Temperatur- und Geschwindigkeitsfeldern in heißen Strömungen. Als Messobjekt für diese Vorstudie diente ein Luft-Freistrahler mit unterschiedlichen Vorheiztemperaturen.

Eine Momentaufnahme der Temperaturverteilung ist in Abbildung 2 zusammen mit dem zugehörigen Geschwindigkeitsfeld zu diesem Zeitpunkt dargestellt.

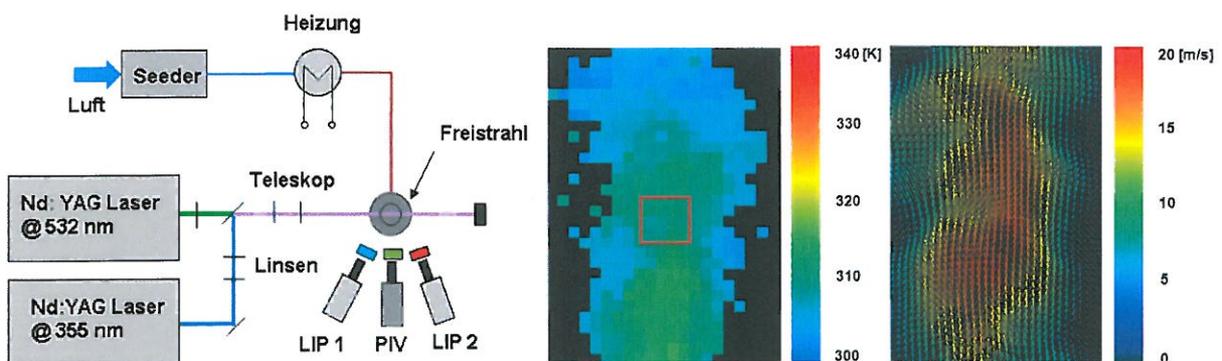


Abbildung 2: links: Versuchsanordnung zur simultanen Messung der Temperatur und Geschwindigkeit, rechts: Aus Intensitätsverhältnissen berechnete Temperaturverteilung und Geschwindigkeitsfeld in einem erwärmten Freistrahler bei  $Re = 8500$  und 323 K (Einzelschussbilder); der markierte Bereich entspricht  $5 \times 5 \text{ mm}^2$ , die Bildhöhe entspricht 30 mm [P4]

Die gute Temperatursensitivität wird für diese Temperaturstufe deutlich, die Unterschiede zwischen geringster und maximaler Temperatur betragen nur ca. 15 K. Die gemessene Temperatur- und Geschwindigkeitsverteilung erscheint sinnvoll, sowohl in radialer Richtung nach außen als auch mit zunehmender Höhe kann eine Temperaturabnahme verzeichnet werden. Die mit der laserinduzierten Phosphoreszenz bestimmte mittlere Temperatur im markierten Bereich (der Auswertebereich ist als Quadrat in Abbildung 2 markiert) beträgt 308 K im Mittelwertbild, was einer Abweichung von 4,7 % zum Thermoelement entspricht. Dies ist aber auch in der Größe des Auswertebereichs (5x5 mm<sup>2</sup>) begründet, welcher deutlich größer ist als für den Fall des Thermoelements und somit auch größere Gradienten im Freistrahл mittelt.

Durch die Optimierung des Phosphors kann die Signalintensität und somit auch die Messgenauigkeit gesteigert werden. Aus diesem Grund wurde zusätzlich zum Dy:YAG doppelt-dotierter Phosphor eingesetzt (Er:Dy:YAG), welcher in Grundlagenuntersuchungen im Ofen bereits eine größere Signalintensität und eine bessere Temperatursensitivität zeigte. Beide Phosphore wurden wiederum in einem heißen Freistrahл getestet. In Abbildung 3 links dargestellt sind ein Einzelschuss sowie ein Mittelwertbild für den Dy:YAG-Phosphor. In beiden Abbildungen ist jeweils im unteren Bildbereich der heiße Freistrahл ca. 5 mm über dem Rohrauslass sichtbar, im oberen Drittel ist der Strahl jedoch sehr chaotisch aufgrund der pulsierenden Strömung bedingt durch den Seeder, welcher zukünftig verbessert werden muss, sowie durch die Partikelabsaugung oberhalb des Freistrahls.

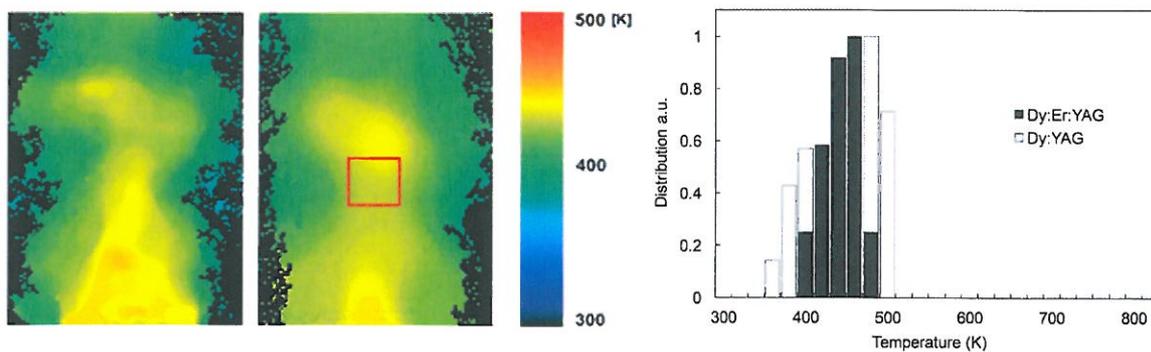


Abbildung 3: Einzelschuss und Mittelwertbild des Freistrahls (links) sowie Häufigkeitsverteilung der Temperaturen für Dy:YAG und Dy:Er:YAG (rechts) bei einer mittleren Gastemperatur von 447 K im rot markiertem Auswertebereich [P4]

Die mit einem Thermoelement im Freistrahл gemessene zeitgemittelte Temperatur betrug dabei 447 K. Der Messort ist in Form des roten Quadrats dargestellt und befindet sich 20 mm oberhalb des Rohrauslasses. Für den Dy:YAG-Phosphor wurde die mittlere Temperatur mit 461 K um 3,1 % überschätzt. Für den Dy:Er:YAG-Phosphor beträgt die Abweichung zum Thermoelement nur 1,8 % und bestätigt die gesteigerte Messgenauigkeit. Für beide Phosphore ist die Standardabweichung sehr groß, was jedoch auf den großen Auswertebereich und die pulsierende Strömung im Freistrahл zurückzuführen ist. Diese Standardabweichung setzt sich aus räumlichen Abweichungen und Schuss-zu-Schuss Schwankungen zusammen. Durch eine bessere Einstellung des Partikelseedings und der homogenen Strömungs- und Randbedingungen, z.B. mit einem verbesserten Seeder und einer Strömung in einer Kalibrierzelle, kann eine homogenere Partikelverteilung und Temperatur als im Freistrahл erzielt werden. Dann können geringere Schwankungen der Partikelkonzentration und somit der Signalintensitäten resultieren, was folglich zu einer kleineren Standardabweichung als auch zu höheren Messgenauigkeiten führt.

Für die Weiterentwicklung der Gasphasen-Phosphorthermometrie wurde daher eine am LTT-Erlangen existierende Hochdruck-Hochtemperaturzelle [4] umgebaut, welche speziell für Partikelströmungen angepasst wurde. Die Zelle wurde bisher für Gase und Dämpfe eingesetzt, was ein geändertes Heizkonzept zur Erhitzung des partikelbeladenen Gasstroms sowie einen nachgeschalteten Partikelfilter erforderlich machte. Für die Heizstrecke wurden

Rohre mit größeren Querschnitten sowie Flansche gefertigt. Ferner ist eine Rohrheizung mit größerer Leistung erforderlich. Das Kammerkonzept ist in Abbildung 4 (links) dargestellt.

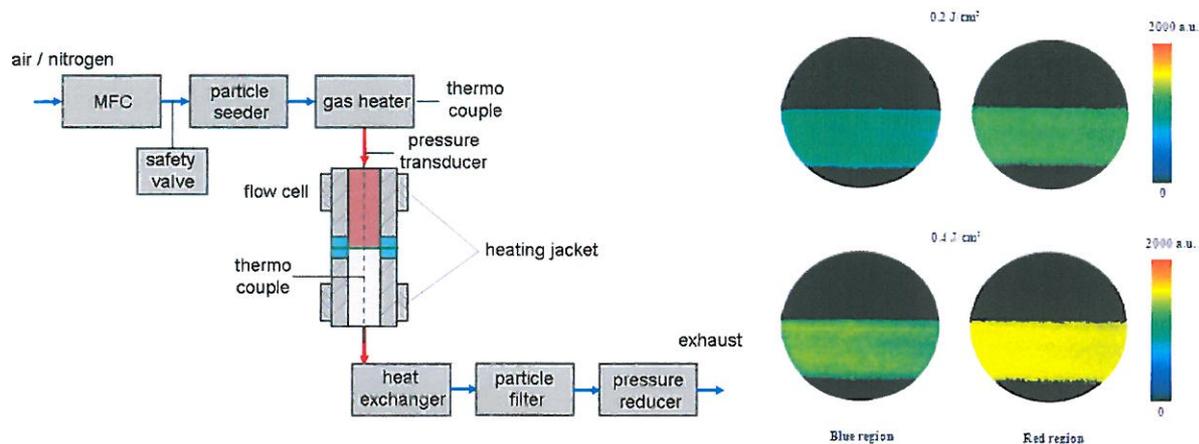


Abbildung 4: Konzept der modifizierten durchströmten Kalibrierzelle (links) und erste beispielhafte Mittelwert-Bildpaare bei Verwendung des Phosphorpulvers in der Kalibrierzelle bei Raumtemperatur für zwei Laserbestrahlungen (rechts) [P3]

Der Zellenkörper hat vier Quarzglasfenster, welche einen Sichtbereich von 20 mm im Durchmesser ermöglichen. Die Temperaturgradienten in der Kammer sind minimal durch eine Wandbeheizung mit Heizmanschetten sowie eine externe Isolierung. Es existieren mehrere Druck- und Temperaturmessstellen. Nach der Zelle wurden zwei Partikelfilter angebracht, welche die lumineszierenden Partikel zur Wiederverwendung herausfiltern. Deren Funktion wurde bereits an der Zelle erfolgreich getestet. Sie erlauben einen Betrieb von 60 min mit einer partikelbeladenen Strömung, bevor sie geleert werden müssen. Vorher muss die Gasströmung auf unter 40°C abgekühlt werden, hierzu wurde ein Wärmeübertrager ausgelegt. Nach dem Filter wird ein Nadelventil zur Druckregelung angebracht, da dies durch Partikel und zu hohe Temperaturen beschädigt werden kann. Erste Testmessungen an der vorhandenen Kalibrierzelle bei Raumtemperatur wurden erfolgreich durchgeführt und belegen die Funktion des Kalibrierkonzepts, siehe Abbildung 4, rechts. Gezeigt sind je zwei Phosphoreszenz-Bildpaare bei zwei Laserbestrahlungen. Die Lichtschnitthöhe beträgt 10 mm. Die Mittelwertbilder wurden aus 100 Einzelaufnahmen erstellt. Es ist die Phosphoreszenz im Wellenlängenspektrum von 440-485 nm gezeigt (jeweils linkes Halbbild) und 470-510 nm (rechts). Die Signalqualität ist für die untersuchte kalte Strömung (293 K, 1 bar) sehr gut. Geplant sind Untersuchungen zur Variation der Partikelkonzentration, Partikelgröße, Druck, Gaszusammensetzung und Temperatur.

### Zusammenfassung der Ergebnisse aus Förderjahr 1 und 2:

Die vorliegenden Studien zeigen, dass eine Bestimmung von Temperaturverteilungen in der Gasphase mit Hilfe der laserinduzierten Phosphoreszenz-Thermometrie möglich ist, die Messungengenauigkeit konnte deutlich reduziert werden. Dies wurde durch eine Optimierung des Aufbaus sowie durch eine in-situ Kalibrierung unter anwendungsnahen Bedingungen ermöglicht. Eine Kalibrierzelle wurde geschaffen, um höhere Temperaturen zu kalibrieren sowie auch Quereinflüsse wie Druck und Gaszusammensetzung zu untersuchen. In Zukunft müssen die Phosphore weiter optimiert werden, um die Signalintensität zu steigern. Mit der Zelle sind auch Einflüsse unterschiedlicher Partikelgrößen und deren Effekte auf das Temperaturansprechverhalten und Messgenauigkeit einfach herauszuarbeiten. Basierend auf den bereits gesammelten Erkenntnissen und nach erfolgreicher Weiterentwicklung der Phosphorthermometrie für die Gasphase heißer und reagierender Strömungen soll die Messtechnik unter realistischen, herausfordernden Bedingungen in einem Verbrennungssystem angewendet werden.

## Veröffentlichungen

Erste Ergebnisse wurden auf einer Vielzahl an nationalen und internationalen Konferenzen vorgestellt und werden ferner in peer-gereviewten Journalen veröffentlicht. Weitere Konferenzbeiträge wurden für das aktuelle Kalenderjahr eingereicht. Die Dissertation zu diesem Thema wird voraussichtlich Anfang 2014 fertig gestellt. Sonderdrucke der Journal-Veröffentlichungen werden nach deren Druck der Stiftung zugesandt. Auf die freundliche Förderung der Autorin durch die Max-Buchner-Forschungstiftung wurde verwiesen.

P1 Jovicic, G., L. Zigan, L., Will, S., Leipertz, A.: Temperatur- und Geschwindigkeitsbestimmung in Gasströmen mittels laserinduzierter Phosphoreszenz. 26. Deutscher Flammentag, Duisburg, September 2013 (angenommen)

P2 S. Jovicic, G., L. Zigan, L., Will, S., Leipertz, A.: Simultaneous thermometry and velocimetry in hot gas flows using laser-induced phosphorescence. OICE Symposium, Erlangen, September 2013 (angenommen)

P3 Jovicic, G., L. Zigan, L., Will, S., Leipertz, A.: Gas Phase Phosphorescence Thermometry Applied in Free Air Jet and Pressurized Test Cell. Proceedings of the European Combustion Meeting, Lund, Sweden, 2013 (Poster und Proceedings)

P4 Jovicic, G., Zigan, L., Pfadler, S., Leipertz, A.: Simultaneous Two-dimensional Temperature and Velocity Measurements in a Gas Flow Applying Thermographic Phosphors. 16th Int Symp on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics Lisbon, Portugal, 09-12 July, 2012 (Vortrag und Proceedings)

P5 Jovicic, G., Zigan, L., Pfadler, S., Leipertz, A.: Two-dimensional simultaneous temperature and velocity measurements in heated gas flow with application of thermographic phosphors. Proceedings of the 34th International Symposium on Combustion, Warsaw, 2012 (Poster Abstract)

P6 Jovicic, G., Zigan, L., Pfadler, S., Leipertz, A.: Laser-induced Phosphorescence for Gas Phase Thermometry in Combustion Applications. Gordon Research Conference, Waterville Valley, USA, 2011 (Poster)

## Literatur

1. J. P. Feist, A. L. Heyes, K. L. Choy, B. Su, "Phosphor thermometry for high temperature gas turbine applications." 18<sup>th</sup> International Congress on Instrumentation in Aerospace Simulation Facilities (1999).
2. A. Jaber, L. Zigan, A. Sakhrieh, A. Leipertz: Surface temperature measurements in a porous media burner using a new laser-induced phosphorescence intensity ratio technique. Measurement Science and Technology 24 (2013) 075202 (8pp)
3. R. Hasegawa, I. Sakata, H. Yanagihara, B. Johansson, A. Omrane, M. Alden, "Two-dimensional gas-phase temperature measurements using phosphor thermometry." Applied Physics B 88 (2007) 291-296
4. S.C. Eichmann, J. Trost, T. Seeger, L. Zigan, A. Leipertz: Application of linear Raman spectroscopy for the determination of acetone decomposition. Optics Express 19 (12) (2011) 11052-11058