

(12)

Patentschrift

(21) Anmeldenummer: A 161/2017
(22) Anmeldetag: 19.04.2017
(45) Veröffentlicht am: 15.01.2019

(51) Int. Cl.: **G01P 5/26** (2006.01)
G01P 3/36 (2006.01)
G01S 17/58 (2006.01)
G01J 3/44 (2006.01)
G01N 21/65 (2006.01)

(56) Entgegenhaltungen:
US 4,624,561 A
JP S58-205827 A
WO 80/01953 A1

(73) Patentinhaber:
Technische Universität Wien
1040 Wien (AT)

(74) Vertreter:
Häupl & Ellmeyer KG, Patentanwaltskanzlei
1070 Wien (AT)

(54) Verfahren zur kontaktlosen Bestimmung von Strömungsparametern

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur kontaktlosen Bestimmung sowohl der Geschwindigkeit einer flüssigen Strömung (1) als auch der Konzentration zumindest eines Analyten darin, wobei:

a) die Strömungsgeschwindigkeit mittels Laser-Doppler-Anemometrie, LDA, unter Einsatz von Tracer-Partikeln (2) gemessen wird, die ein Interferenzstreifenmuster im Kreuzungsbereich (3) zweier kohärenter monochromatischer Lichtstrahlen (4, 5) passieren und dadurch ein Streulichtsignal (8) erzeugen; und

b) die Konzentration des zumindest einen Analyten mittels Raman-Spektroskopie gemessen wird, indem ein monochromatischer Lichtstrahl (9) eingestrahlt und das Raman-Spektrum des an Analytenmolekülen in der Strömung (1) unelastisch gestreuten Lichts (10) aufgenommen wird; wobei

c) eine einzige Lichtquelle (11) sowohl für die LDA als auch die Raman-Spektroskopie eingesetzt wird, so dass beide Messungen in dem Kreuzungsbereich (3) der beiden aus der Lichtquelle (11) stammenden kohärenten Lichtstrahlen (4, 5) vorgenommen werden, wobei mittels an den Tracer-Partikeln (2) elastisch gestreuter Photonen (8) die Geschwindigkeit gemessen wird und mittels an Analytenmolekülen unelastisch gestreuter Photonen (10) die Konzentration gemessen wird; und d) zur Geschwindigkeitsmessung die elastisch rückgestreuten Photonen (8) mittels derselben Linsenoptik (12) detektiert werden, die auch zur Einstrahlung der Lichtstrahlen eingesetzt wird.

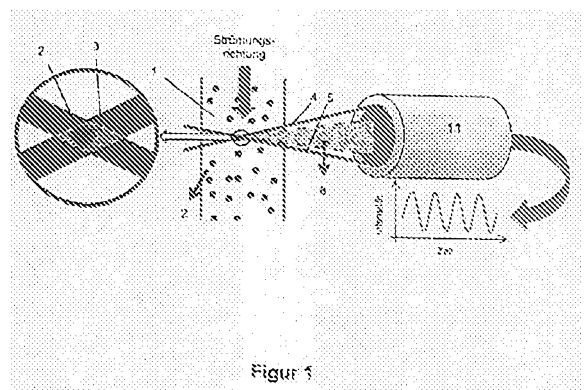


Figure 1

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur kontaktlosen Bestimmung mehrerer Parameter einer flüssigen Strömung.

[0002] Die Charakterisierung von Prozessströmen in Chemieanlagen hat große Bedeutung für die Industrie. Die Online-Erfassung von physikalischen und chemischen Eigenschaften von Strömungen wie Geschwindigkeit, Turbulenz, chemische Zusammensetzung und Konzentration spielt eine wesentliche Rolle bei der Einstellung und, Optimierung von industriellen Prozessen und Anlagen. Zur Erfassung dieser Eigenschaften sind verschiedene, darunter auch kontaktlose Techniken verfügbar, wobei zur Bestimmung der Zusammensetzung und Konzentration von in einer Strömung enthaltenen chemischen Verbindungen neuerdings vor allem Raman-Spektroskopie zum Einsatz kommt.

[0003] Raman-Spektroskopie beruht auf der Raman-Streuung von monochromatischem Licht an Molekülen, wobei das eingesetzte monochromatische Licht üblicherweise von einem Laser stammt (R. S. Das, Y. K. Agrawal, "Raman spectroscopy: recent advancements, techniques and applications", *Vibrational Spectroscopy* 57.2 (2011): 163-176). Rinke et al. (Rinke, Günter, et al., "In situ Raman imaging combined with computational fluid dynamics for measuring concentration profiles during mixing processes", *Chem. Eng.* 179 (2012): 338-348) zeigen die Verwendung eines gepulsten Raman-Imaging-Verfahrens zur Bestimmung der Konzentration von zwei Komponenten (Wasser und Ethanol) beim Austritt aus einem Makro-Mischer. Die Autoren verglichen ihre Ergebnisse auch mit Daten aus Strömungssimulationen mittels numerischer Strömungsmechanik ("computational fluid dynamics", CFD), um die Eignung von Raman-Imaging zur Messung von Konzentrationsprofilen nachzuweisen. Die erreichbare Zeitauflösung hängt dabei von der Laser-Wiederholfrequenz und der Kamerageschwindigkeit ab. Bei Anwendung von CFD in Kombination mit RS werden aus einer Vielzahl von detektierten Raman-gestreuten Photonen Konzentrationsprofile erstellt.

[0004] Zur tatsächlichen Messung der Geschwindigkeit und der turbulenten Schwankungen sind beispielsweise die nachstehenden kontaktlosen Verfahren bekannt.

[0005] Laser Doppler Velocimetry, LDV, oder auch Laser-Doppler-Anemometrie, LDA, (die beiden Begriffe werden hierin austauschbar verwendet) ist die Geschwindigkeitsbestimmung von an Teilchen reflektiertem Laserlicht anhand der Doppler-Verschiebung, d.h. an einem Punkt (also mittels einer einzigen Messung) wozu in der Regel "seeding (oder: tracer) particles", also Teilchen gezielt zugesetzt werden, an denen ohne vorherige Kalibrierung die Doppler-Streuung erfolgen kann.

[0006] LDV erfasst dabei mit hoher Genauigkeit die mittlere Geschwindigkeit und die lokale Momentangeschwindigkeit (Schwankungen) einer Strömung über Bestimmung der Geschwindigkeit von Tracer-Partikeln, die zwei kollimierte, monochromatische und kohärente Laserstrahlen passieren (L. E. Drain, "The laser Doppler techniques", Chichester, Sussex, England and New York, Wiley-Interscience, 250 p. 1 (1980)). Dabei werden zwei kohärente Laserstrahlen in einem kleinen Volumen fokussiert, wobei sie ein spezielles "Fringe"-Lichtmuster bilden. Durchlaufen Tracer-Partikel in der Strömung diese Fringe-Zone, die aus helleren und dunkleren Lichtstreifen besteht, streuen sie dieses Licht. Das rückgestreute Licht wird in einer Empfängersonde gesammelt und mittels Photomultiplier detektiert. Da der Abstand zwischen hellen und dunklen Streifen bekannt ist, kann aus der Frequenz des Streulichtes die Partikelgeschwindigkeit berechnet werden. Aus den gesammelten Geschwindigkeitsdaten können über statistische Verfahren die mittlere Strömungsgeschwindigkeit und Turbulenzinformationen (Turbulenzintensität, turbulente kinetische Energie) der Strömung berechnet werden (D. F. G. Durao, M. V. Heitor und J. C. F. Pereira, "Measurements of turbulent and periodic flows around a square cross-section cylinder", *Experiments in Fluids* 6.5 (1988): 298-304).

[0007] Bei Molecular Tagging Velocimetry, MTV, werden Moleküle mit Licht angeregt und somit markiert ("tagged"), und das von ihnen abgegebene Fluoreszenz- oder Phosphoreszenzlicht

wird detektiert, wobei aus zumindest zwei Messungen die Geschwindigkeit berechnet wird. Auch Kombinationen aus MTV und Raman-Spektroskopie sind bekannt, So kombinierten etwa Beushausen et al. (Beushausen, Volker, et al., "2D-measurement technique for simultaneous quantitative determination of mixing ratio and velocity field in microfluidic applications", Imaging Measurement Methods for Flow Analysis, Springer Berlin Heidelberg, 155-164 (2009)) kombinierten 2D Molecular-Tagging Velocimetry ("2D MTV") mit PSRS, d.h. "planar spontaneous Raman scattering", um Geschwindigkeit und Konzentrationsfeld von Wasser und Ethanol in einem Mikromischer zu untersuchen. Zusätzlich verglichen sie ihre Ergebnisse mit jenen eines üblichen μ PIV-Verfahrens.

[0008] Mittels Particle Image Velocimetry, PIV, werden anhand einer Vielzahl von Momentaufnahmen die Bewegungen von Teilchen optisch verfolgt, die in Vektorfelder und Geschwindigkeitswerte umgerechnet werden können. Eine Kombination aus PIV und Raman-Spektroskopie ist beispielsweise von Wellhausen et al. bekannt [M. Wellhausen, G. Rinke und H. Wackerbarth, "Combined measurement of concentration distribution and velocity field of two components in a micromixing process", Microfluidics and Nanofluidics 12.6 (2012): 917-926], die das Mischverhalten in einem Mikromischer untersuchten.

[0009] Die Nachteile dieser bekannten Kombinationen aus Geschwindigkeitsmessung mittels MTV oder PIV und Raman-Streuung sind unter anderem, dass einerseits eine Vielzahl von Messungen zur Bestimmung von Geschwindigkeit und Zusammensetzung bzw. Konzentration erforderlich sind, die darüber hinaus an unterschiedlichen Positionen der Strömung erfolgen und daher keine wirklich zuverlässigen Aussagen zulassen, speziell wenn die Geschwindigkeit der Strömung hoch und die Konzentration des oder der Analyten gering ist.

[0010] Aufgrund der relativ geringen Aufnahme Frequenz von Mehrfachbildern ist bei üblichen PIV-Systemen eine Erkennung hochfrequenter Schwankungsbewegungen nur unter erheblichem Aufwand möglich, beispielsweise unter Einsatz einer Aufnahme Frequenz, die gemäß dem Nyquist-Shannon-Abtasttheorem mindestens der zweifachen Frequenz der zu beobachtenden Maximalfrequenz entspricht. Somit sind entweder nur eingeschränkte Messungen von Turbulenz-Kennwerten innerhalb der Strömung oder Messungen mit erheblichem Bildspeicher- und Nachbearbeitungsaufwand möglich. Darüber hinaus benötigen PIV-Messungen einerseits zwei optische Zugänge zu der zu beobachtenden Strömung, nämlich einen für den Laser-Schnitt und normal dazu einen weiteren für die Kamera, und andererseits eine deutlich höhere Konzentration an Seeding-Partikeln als LDV.

[0011] US 4.624.561 A und JP-A S58-205827 offenbaren jeweils eine Kombination aus Geschwindigkeits- und Dichtemessung in Gasströmungen unter Verwendung zweier Laserstrahlen ("pump laser" und "probe laser" bzw. He-Ne-Laser und YAG-Laser), wobei in beiden Fällen die Geschwindigkeitsmessung mittels Raman-LDV des inelastisch gestreuten Lichts erfolgt. Dabei wird auf der der Einstrahlung gegenüberliegenden Seite der Gasströmung im ersteren Fall das Streulicht über eine Linsenoptik und einen Reflektor erneut auf den Einstrahlungspunkt inmitten der Strömung fokussiert und im zweiten Fall direkt einem Detektor zugeführt, so dass zwingend zwei Laser und zwei optische Zugänge zum Gasstrom auf beiden Seiten der Strömung erforderlich sind.

[0012] Ziel der Erfindung war vor diesem Hintergrund die Bereitstellung eines verbesserten kontaktlosen Verfahrens zur Bestimmung von Geschwindigkeit und Konzentration von Strömungen.

[0013] Dieses Ziel erreicht die vorliegende Erfindung durch Bereitstellung eines Verfahrens zur kontaktlosen Bestimmung sowohl der Geschwindigkeit einer flüssigen Strömung als auch der Konzentration zumindest eines Analyten darin, wobei:

[0014] a) die Strömungsgeschwindigkeit in an sich bekannter Weise mittels Laser- Doppler-Anemometrie, LDA, unter Einsatz von Tracer-Partikeln gemessen wird, die ein Interferenzstreifenmuster im Kreuzungsbereich zweier kohärenter monochromatischer Lichtstrahlen passieren und dadurch ein Streulichtsignal erzeugen, dessen Frequenz proportional zu der senkrecht zu

den Interferenzstreifen verlaufenden Geschwindigkeitskomponente der Strömung ist; und

[0015] b) die Konzentration des zumindest einen Analyten in an sich bekannter Weise mittels Raman-Spektroskopie gemessen wird, indem ein monochromatischer Lichtstrahl eingestrahlt und das Raman-Spektrum des an Analytenmolekülen in der Strömung unelastisch gestreuten Lichts aufgenommen wird, wobei die Lichtintensität von nur im Streulicht auftretenden Frequenzen proportional zur Konzentration der Analytenmoleküle in der Strömung ist; wobei

[0016] c) eine einzige Lichtquelle sowohl für die LDA als auch die Raman-Spektroskopie eingesetzt wird, so dass beide Messungen in dem Kreuzungsbereich der beiden aus der Lichtquelle stammenden kohärenten Lichtstrahlen vorgenommen werden, wobei mittels an den Tracer-Partikeln elastisch gestreuter Photonen die Geschwindigkeit gemessen wird und mittels an Analytenmolekülen unelastisch gestreuter Photonen die Konzentration gemessen wird; und

[0017] d) zur Geschwindigkeitsmessung die elastisch rückgestreuten Photonen mittels derselben Linsenoptik detektiert werden, die auch zur Einstrahlung der Lichtstrahlen eingesetzt wird.

[0018] Die vorliegende Erfindung kombiniert somit nicht einfach LDA und Raman-Spektroskopie zu einem einzigen Verfahren, in dem die mittels LDA gemessenen Geschwindigkeitswerte mit den anhand der Raman-Streuung ermittelten Konzentrationswerten in Relation gesetzt werden, sondern geht noch einen Schritt weiter, indem eine einzige Lichtquelle für die Geschwindigkeitsmessung mittels LDV und die Konzentrationsmessung mittels Raman-Spektroskopie eingesetzt wird. Auf diese Weise können innerhalb der Strömung sowohl deren Geschwindigkeit, sowie diverse Turbulenzkennzahlen, als auch die Konzentration eines oder mehrerer Analyten darin an einer einzigen Stelle bestimmt werden, wofür darüber hinaus schon eine einzige Messung ausreichen würde.

[0019] Die erfindungsgemäße Kombination zweier an sich bekannter Verfahren, die auf neuartige Weise zu einem einzigen Messverfahren kombiniert werden, bietet somit einen Synergieeffekt, da das Streulicht derselben Laserstrahlen für unterschiedliche Zwecke genutzt wird.

[0020] Der Umstand, dass bereits aus einer einzigen Messung die gewünschten Informationen bezüglich Strömungsgeschwindigkeit und Konzentration eines oder mehrerer bestimmter Analyten gewonnen werden können, ermöglicht die Durchführung einer Vielzahl von Messungen binnen kurzer Zeit, um die Messergebnisse mitteln und so die Messgenauigkeit erhöhen oder höherfrequente Schwankungen erkennen zu können.

[0021] Zusätzlich werden gemäß vorliegender Erfindung die zur Geschwindigkeitsmessung dienenden, elastisch gestreuten Photonen mittels derselben Linsenoptik detektiert, die auch zur Einstrahlung der Lichtstrahlen eingesetzt wird, d.h. es werden die zur Linsenoptik rückgestreuten Photonen detektiert, wodurch keine gesonderte(n) Linse oder Lichtleiter zur Detektion der an den Tracer-Teilchen elastisch gestreuten Photonen vorgesehen zu werden braucht. Besonders bevorzugt werden gemäß vorliegender Erfindung jedoch auch die unelastisch gestreuten Photonen mittels derselben Linsenoptik gesammelt, um auch für die Raman-Spektroskopie keine gesonderte Optik ersetzen zu müssen. Dies ermöglicht eine äußerst kompakte Bauweise einer für die Durchführung der vorliegenden Erfindung geeigneten Messanordnung in einer einzigen, leicht transportablen Vorrichtung. Zudem ist auf diese Weise nur ein einziger optischer Zugang zur Strömung erforderlich.

[0022] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen werden die aus der Lichtquelle in die Strömung eingestrahlten Lichtstrahlen während der Messung mittels einer Bragg-Zelle geringfügig frequenzverschoben, um im Kreuzungsbereich ein bewegtes Interferenzmuster zu erzeugen, anhand dessen die Strömungsrichtung bestimmt wird. Nicht bewegte Partikel liefern daher Streulicht mit der Shift-Frequenz, bei bewegten Partikeln wird die Frequenz je nach Strömungsrichtung addiert bzw. subtrahiert. Da die Shift-Frequenz bekannt ist, kann daraus die Partikelbewegungs- bzw. Strömungsrichtung genauer ermittelt werden.

[0023] Weiters wird gemäß vorliegender Erfindung bevorzugt, dass eine polychromatische Lichtquelle eingesetzt wird, deren Licht in mehr als ein Paar kohärenter Lichtstrahlen mit unter-

schiedlichen Wellenlängen geteilt wird, vorzugsweise in zwei oder drei Strahlenpaare, die auf denselben Punkt fokussiert werden, um das Interferenzmuster zu erzeugen. Dies hat den Vorteil, dass für einen einzigen Messpunkt gleichzeitig mehrere Geschwindigkeits- und Turbulenzkomponenten erfasst werden können, nämlich jeweils eine pro Strahlenpaar, um den Strömungszustand detaillierter zu beschreiben.

[0024] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens wird der Kreuzungsbereich der Lichtstrahlen zwischen einzelnen Messungen unter Verwendung einer Traversierung, z.B. mit einem motorbetriebenen Spiegel zur ein- oder zweidimensionalen Positionierung des Messpunkts, räumlich verschoben, wodurch Messungen an mehreren verschiedenen Messpunkten vorgenommen werden können. Dies ermöglicht die Erstellung eines Geschwindigkeitsprofils der untersuchten Strömung, was die Präzision des ermittelten Geschwindigkeitsparameters natürlich erheblich erhöht.

[0025] Wie bereits erwähnt, werden gemäß vorliegender Erfindung die zur Konzentrationsmessung dienenden, unelastisch gestreuten Photonen vorzugsweise mittels derselben Linsenoptik, die auch zur Einstrahlung und zur Detektion der elastisch gestreuten Photonen verwendet wird, detektiert. Alternativ dazu können sie jedoch auch mittels einer in einem 90°-Winkel zur Einstrahlrichtung positionierten Linsenoptik detektiert werden, wie dies bei Untersuchungen von Flüssigkeiten routinemäßig erfolgt, um elastisch gestreute Photonen, die den Detektor erreichen, zu minimieren.

[0026] Als Linsenoptik wird dabei vorzugsweise das Objektiv einer CCD-Kamera eingesetzt, auf die noch bevorzugter die mittels eines Monochromators (z.B. eines Czerny-Turner-Monochromators) isolierten Wellenlängen gelenkt werden. Dabei ersetzt der CCD-Detektor der Kamera den ansonsten zur Umwandlung des Signals in elektrische Signale und Verstärkung derselben eingesetzten Photomultiplier.

[0027] An die CCD-Kamera ist besonders bevorzugt ein Spektrograph angeschlossen, der aus dem detektierten Streulichtsignal das zugehörige Spektrum erzeugt, das gegebenenfalls an eine iCCD-Kamera weitergeleitet wird. Wird (auch) diese Detektoranordnung mittels einer Traversiereinheit räumlich verschiebbar ausgeführt, können auch für die unelastisch gestreuten Photonen 2D- und 3D-Profilen aufgenommen werden, aus denen sich 2D- und 3D-Konzentrationsverteilungen berechnen lassen.

[0028] Weiters werden gemäß vorliegender Erfindung die bei LDA und Raman-Spektroskopie detektierten Signale vorzugsweise zeitlich synchronisiert, was gewährleistet, dass die Geschwindigkeits- und die Konzentrationsinformationen aus dem gleichen Strömungsvolumen stammen, was ansonsten speziell bei Mehrphasenströmungen zu Fehlern führen kann.

[0029] Die Erfindung wird nachstehend anhand spezifischer Beispiele für bevorzugte Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens und unter Bezugnahme auf die beiliegenden Zeichnungen näher erläutert, die Folgendes zeigen:

- [0030]** Fig. 1 zeigt den allgemeinen Grundaufbau für eine LDV-Strömungsmessung nach dem Rückstreu-Prinzip.
- [0031]** Fig. 2 skizziert allgemein den instrumentellen Aufbau der Raman-Spektroskopie.
- [0032]** Fig. 3 ist eine einfache Skizze des erfindungsgemäßen Verfahrens als Kombination aus Raman-Spektroskopie und LDV.
- [0033]** Fig. 4 zeigt schematisch den apparativen Aufbau zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens.
- [0034]** Fig. 5 zeigt einen Entwurf des im Verfahren eingesetzten T-förmigen Strömungskanals.
- [0035]** Fig. 6 zeigt die Anordnung der Messpositionen im T-förmigen Strömungskanal.
- [0036]** Fig. 7 zeigt die Verteilung der gemessenen Geschwindigkeitswerte für einen Messpunkt.

- [0037]** Fig. 8 zeigt die zeitgemittelten Daten der Raman-Messung an verschiedenen Positionen.
- [0038]** Fig. 9 zeigt den Füllstand der verwendeten Flüssigkeitstanks und die Massenströme über die Versuchszeit.
- [0039]** Fig. 10 zeigt an verschiedenen Querschnitten gemessene und simulierte Geschwindigkeitsprofile.
- [0040]** Fig. 11 zeigt an verschiedenen Querschnitten gemessene und simulierte Konzentrationsprofile.
- [0041]** Nachstehend wird die Erfindung anhand einer bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens näher erläutert.

Laser-Doppler-Anemometrie, LDA

[0042] Wie bereits oben ausgeführt, besteht die vorliegende Erfindung darin, Laser-Doppler-Anemometrie, LDA, oder auch Laser-Doppler-Velozimetrie, LDV, und Raman-Spektroskopie auf neuartige Weise miteinander zu kombinieren. Fig. 1 zeigt allgemein den Grundaufbau für eine LDA-Strömungsmessung nach dem Rückstreu-Prinzip. Dabei werden aus einer Laserlichtquelle 11 zwei kohärente Laserstrahlen 4, 5 in einem kleinen Volumen fokussiert, wo sie sich kreuzen und im Kreuzungsbereich 3 ein spezielles Streifen-Lichtmuster bilden, wie dies in der schematischen Vergrößerung im linken Teil von Fig. 1 dargestellt ist. In der zu untersuchenden Strömung 1 mitgeführte Tracer-Partikel 2 passieren dieses aus helleren und dunkleren Lichtstreifen bestehende Muster, und an ihrer Oberfläche wird dieses Licht unter Einwirkung des Dopplereffekts gestreut. Dabei wird das rückgestreute ("back scattered") Licht 8 detektiert, um dieselbe Linsenoptik wie zur Aussendung der Laserstrahlen 4 und 5 auch zum Empfangen des Streulichts 8 nutzen zu können, was es erlaubt, mit nur einem optischen Zugang zur Strömung auszukommen. Aus der Frequenz des Streulichts 8 und dem bekannten Abstand zwischen hellen und dunklen Streifen kann die Partikelgeschwindigkeit berechnet werden.

[0043] Aufgrund der kleinen Größe und der niedrigen Konzentration der Tracer-Partikel kann man annehmen, dass sie der Strömung 1 folgen und keine Auswirkung auf das Strömungsbild haben (P. K. Rastogi, Hrsg., "Photomechanics", Bd. 77, Springer Science & Business Media (2003); Richard Goldstein, "Fluid mechanics measurements", CRC Press (1996)).

$$v = d \cdot x f \quad (1)$$

[0044] In Gleichung 1 stellt v die Partikel-(bzw. Strömungs-)geschwindigkeit dar, d und f sind der Abstand der Streifen im Interferenzmuster ("fringe spacing") bzw. die Frequenz des Streulichts 8.

Raman-Spektroskopie

[0045] In Fig. 2 ist der instrumentelle Aufbau für die Raman-Spektroskopie schematisch dargestellt. Dabei wird üblicherweise ein Lichtstrahl 9 aus einem Laser 11 auf die Probe fokussiert, und das Streulicht 10 wird mittels eines Teleskops 15 aufgefangen und mittels eines Spektrographen analysiert. Dabei wechselwirken Photonen mit den Molekülen in der Probe, wobei sie entweder Energie an die Materie abgeben (Stokes-Verschiebung) oder Energie aufnehmen (Anti-Stokes-Verschiebung) und die Energieverschiebung der gestreuten Photonen 10 spezifisch und charakteristisch für ein bestimmtes Molekül ist. Die Ramanverschiebung wird dabei nach folgender Gleichung errechnet:

$$\Delta w = \left(\frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \quad (2)$$

[0046] wobei Δw die Raman-Verschiebung ist, λ_0 und λ_1 die Wellenlänge der Laserphotonen 5 bzw. die Wellenlänge der gestreuten Photonen 10 darstellt.

Computational Fluid Dynamics, CFD

[0047] Die durch die nachstehend detailliert beschriebenen Ausführungsformen der Erfindung erzielten Ergebnisse wurden mit jenen von Computersimulationen mittels Computational Fluid Dynamics abgestimmt, wie die numerische Analyse in der Strömungsmechanik genannt wird (M. Ragheb, "Computational fluid dynamics" (1976)). Diese Methode erlaubt es, einen detaillierten Einblick in fluiddynamische Systeme zu gewinnen, die normalerweise gar nicht oder nur sehr schwer zugänglich sind. Analysen können auf verschiedenste Größenordnungen angewandt werden, wie z.B. Mikromischer oder ganze Industrieanlagen. Im Allgemeinen wird dabei die CFD durch Experimente verifiziert. Anschließend können anhand der validierten Modelle verschiedenste Änderungen an der Anlage am Computer simuliert werden und so optimierte Modifikationen gefunden werden (J. D. Anderson und J. Wendt, Computational fluid dynamics, Bd. 206, New York, McGraw-Hill (1995); H. K. Versteeg und M. Weeratunge, "An introduction to computational fluid dynamics: the finite volume method", Pearson Education (2007)).

[0048] CFD basiert auf der Lösung der Kontinuitäts- und der Navier-Stokes-Gleichung für die Berechnung von Druck und Strömungsgeschwindigkeit in einem Finite-Volumen-Ansatz.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u) = 0 \quad (3)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} + (u \cdot \nabla)u = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \frac{\mu}{\rho} \nabla^2 u \quad (4)$$

[0049] Die Energieerhaltung und -transport wird über die Energiegleichung modelliert.

$$\rho \left(\frac{\partial h}{\partial t} + \nabla \cdot (hu) \right) = -\frac{Dp}{Dt} + \nabla \cdot (K \nabla T) + (\bar{\tau} \cdot \nabla)u \quad (5)$$

VERFAHREN DER VORLIEGENDEN ERFINDUNG

[0050] In Fig. 3 ist der allgemeine Ansatz der vorliegenden Erfindung schematisch skizziert. Ein in einem Kanal geführte Strömung wird gleichzeitig mittels LDV hinsichtlich ihrer Strömungsgeschwindigkeit und mittels Raman-Spektroskopie hinsichtlich ihrer Zusammensetzung analysiert, indem aus einer gemeinsamen Lichtquelle zwei Lichtstrahlen 4, 5 ausgesandt werden, die den für Raman-Spektroskopie ausgesandten Lichtstrahl 9 ersetzen, da ihre Wellenlänge ebenso auf die Natur des oder der Analyten abgestimmt ist, dessen/deren Konzentration in der Strömung zu bestimmen ist. Diese liegt üblicherweise im sichtbaren oder nahen Infrarot-Bereich. Im Kreuzungsbereich 3 der beiden Laserstrahlen wird einerseits das Interferenzmuster erzeugt, bei dessen Passage es zu elastischer Streuung der Photonen an Tracer-Partikeln kommt, gleichzeitig aber wechselwirken in der Strömung gelöste Analyten-Moleküle mit der Strahlung, wodurch Photonen unelastisch gestreut werden. Gemäß der vorliegenden Erfindung wird zur Geschwindigkeitsbestimmung mittels LDV das von den Tracer-Partikeln rückgestreute Licht 8 mittels derselben Linsenoptik detektiert, die auch zur Einstrahlung der Lichtstrahlen 4 und 5 genutzt wird und in Fig. 3 mit LDV gekennzeichnet ist. Das an den Analytenmolekülen unelastisch gestreute Licht 10 wird hingegen mittels eines Raman-Detektors, der vorzugsweise in einem Winkel von 90° zur Einstrahlrichtung angeordnet ist, detektiert. Alternativ dazu kann jedoch auch hierfür dieselbe Linsenoptik wie zur Einstrahlung genutzt werden.

[0051] In Fig. 4 ist der Messaufbau zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens anhand einer aus einem Gemisch aus Wasser und Ethanol bestehenden Strömung (vgl. Rinke et al., s.o.) schematisch dargestellt. Im Zentrum steht in T-förmiger Strömungskanal aus Glas und Aluminium, wie in den folgenden Figuren 5 und 6 vergrößert gezeigt, mit Einlässen für die Komponenten A (Wasser) und B (91%iger Alkohol) über die jeweiligen Pumpen 1 und 2, einem Einlass 20 für Tracer-Partikel, einem darauf folgenden Gleichrichter 19, einem in einen Auffangbehälter für flüssige Abfälle mündenden Auslass sowie jeweiligen Temperatur- und Drucksensoren (T_i , P_i).

[0052] Ein von einer Laserlichtquelle 11 ausgesandter Laserstrahl wird über eine Bragg-Zelle 13 frequenzgesteuert und in zwei Strahlenpaare unterschiedlicher Frequenz, d.h. insgesamt

vier Strahlen 4, 5, 6, 7 geteilt, die über jeweilige Lichtleiter einer Fokussierungsoptik 12 zugeführt werden, die die vier Strahlen 4+6 und 5+7 an einem Punkt innerhalb des Strömungskanals fokussiert, so dass im Kreuzungsbereich 3 der Strahlen ein Interferenzmuster erzeugt wird. Die Verwendung von vier anstelle von nur zwei Strahlen hat den Vorteil, dass zwei Geschwindigkeitskomponenten gleichzeitig erfasst werden können und durch Koinzidenzverfahren bei der Auswertung die Signalqualität erhöht werden kann.

[0053] Die im Kreuzungsbereich elastisch gestreuten Photonen werden als Streulicht 8 von derselben Optik 12 gesammelt und zur Signalverstärkung und -verarbeitung einem kombinierten Photomultiplier und Signalprozessor 18 zugeführt. Die unelastisch gestreuten Photonen werden hingegen als Streulicht 10 von einer in einem 90°-Winkel zur Einstrahlrichtung positionierten CCD-Kamera 15 gesammelt, die die optischen in elektrische Signale umwandelt, die in der Folge einem Spektrographen 16 zugeführt, der die Signale unterschiedlicher Intensität in ihr Spektrum zerlegt, das schließlich von einer iCCD-Kamera 17 verstärkt und gespeichert wird. Mittels einer Traversiereinheit 14 konnte der gesamte Aufbau räumlich verschoben werden, um Messungen an mehreren verschiedenen Messpunkten vorzunehmen, was die Aufnahme von Geschwindigkeitsprofilen der Strömung bzw. 2D- und 3D-Raman-Spektren und -Konzentrationsprofile des Analyten ermöglichte.

[0054] Der gesamte Aufbau bestand konkret aus den folgenden Komponenten:

[0055] PDPA System von TSI Inc., 2-Komponenten-Phasen-Doppler-Partikel-Analysator- Laser;

[0056] CVI Melles-Griot, luftgekühlter Argon-Ionen-Laser (nominell 300 mW);

[0057] Strahlenteiler: TSI Inc., fasergekoppelter Wellenlängen-Separator mit Bragg-Zelle (488 nm blau, 514,5 nm grün);

[0058] Laser-Sender/Receiver-Sonde: TSI Inc., TR260 (350 mm Fokuslänge, 61 mm Durchmesser), fasergekoppelte Sonde für 180°-Detektierung; beprobte Länge am Fokuspunkt 0,91 mm, Fringe-Spacing 3,6 µm;

[0059] Detektor: TSI Inc. PDM 1000 Photomultiplier System;

[0060] Signalprozessor: TSI FSA 4000 3-Kanal-Digital-Burst-Prozessor (800 MHz Sampling-Frequenz, 175 MHz max. Doppler-Frequenz);

[0061] Software: FlowSizer (TSI Inc.)

[0062] Sigma 33-88 mm Kamera-Objektiv mit einem 150 µm großen Pinhole (Sigma);

[0063] "round to slit" Faserbündel zur Kopplung des Lichts in den Spektrographen (Avantes); Spectrograph (PI Acton 2750);

[0064] iCCD Kamera (PI-MAX, 1024x268 Pixel);

[0065] ISEL XYZ-Traversiereinheit.

Material und Durchführung

[0066] Um geeignetes Material für die LDV/Raman-Messungen zu ermitteln, wurden verschiedene Flüssigkeiten getestet. Wasser (Leitungswasser) und Ethanol (91,12% Ethanol + 8,88% Wasser) wurden schließlich aus folgenden Gründen ausgewählt:

[0067] - ungiftig

[0068] - einfache Verfügbarkeit

[0069] - passendes Raman-Spektrum (beide Flüssigkeiten können eindeutig identifiziert werden, ausreichende Intensität)

[0070] - ähnliche physikalische Eigenschaften.

[0071] In Fig. 5 ist eine vergrößerte Ansicht des T-förmigen Strömungskanals dargestellt. Wasser wurde durch den geraden Einlass "Einlass Komponente A", Ethanol durch den seitlichen

Einlass "Einlass Komponente B" in den Kanal gepumpt. Um die Massenströme der beiden Flüssigkeiten zu ermitteln, wurde ein gravimetrisches Verfahren angewendet, wobei das Gewicht der Flüssigkeitstanks mittels Waage gemessen und aufgezeichnet wurde. An beiden Einlässen wurden Gleichrichter eingebaut, um Einlasseffekte auf die Strömung zu reduzieren und eine homogene Strömung im Kanal zu gewährleisten. Der Querschnitt des Kanals betrug 10 x 30 mm.

[0072] Die LDV-Messzeit pro Messpunkt wurde auf 10 s oder 10.000 gültige Partikelsignale (Counts) eingestellt, während die Zusammensetzung mittels Raman jede Sekunde gemessen wurde. Sphärische Aluminiumpartikel (Durchmesser < 0,045 mm, Stokes-Zahl < 1) wurden als Tracer-Partikel für die LDV-Messung verwendet, wobei die Konzentration in beiden Strömen ~100 ppm betrug. Die Aufgabe und Dispersion der Partikel erfolgte durch Zugabe in die Flüssigkeitstanks.

[0073] LDV-Messdaten wurden mit folgenden Signalprozessor-Einstellungen erhalten:

[0074] - Burst threshold: 50 mV

[0075] - Bandpassfilter: 1-10 MHz

[0076] - Downmix frequency: 35 MHz

[0077] Die Messung der zwei Geschwindigkeitskomponenten erfolgte an vier Positionen des Kanals, wie in Fig. 6 gezeigt wird. Da nur Reinkomponenten an den Einlässen vorliegen, wurde bei Profil 1 und 2 nur eine LDA-Messung an 11 Punkten durchgeführt. In der Mischzone bei Profil 3 und 4 hingegen wurden LDA- und Raman-Messungen an 16 Punkten durchgeführt. Alle Messungen wurden in der Mitte des Kanals in Z-Richtung bei 298 K und Umgebungsdruck (10^5 Pa) durchgeführt.

[0078] Um die Messergebnisse zu verifizieren, wurde eine CFD-Simulation des Experiments mit dem Open-source-Programm OpenFOAM® [www.openfoam.com] durchgeführt.

[0079] Basierend auf der OpenFOAM®-Plattform wurde ein neuer Solver (viscoFoam) für die Simulation von mischenden Strömen entwickelt. Die Randbedingungen für die Simulationen wurden entsprechend der experimentellen Bedingungen gewählt (Eintrittstemperatur, Umgebungsdruck, Massenstrom). Da die Reynoldszahl im Kanal im Bereich der kritischen Reynoldszahl lag (Wassereinlass: ~3700, EtOH-Einlass 2: ~1700, nach Vermischung: ~5000) wurde das Übergangsturbulenzmodell von Menter et al. verwendet (F. R. Menter et al., "A correlation-based transition model using local variables Part I: model formulation", Journal of Turbomachinery 128.3 (2006): 413-422; R. B. Langtry et al., "A correlation-based transition model using local variables Part II: test cases and industrial applications", Journal of Turbomachinery 128.3 (2006): 423-434; R. B. Langtry und F. R. Menter, "Correlation-based transition modeling for unstructured parallelized computational fluid dynamics codes", AIAA journal 47.12 (2009): 2894-2906; R. B. Langtry und F. R. Menter, "Transition modeling for general CFD applications in aeronautics", 43rd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit. 2005).

Datenauswertung

[0080] Fig. 7 zeigt einen Auszug der Daten, die mittels LDA-Messung gewonnen wurden (zehnter Messpunkt von Profil 3, Geschwindigkeitskomponente in x-Richtung). Daraus wurden für jeden Messpunkt die mittlere Geschwindigkeit sowie die turbulente kinetische Energie berechnet und dargestellt.

[0081] Turbulente kinetische Energie ist definiert als die mittlere kinetische Energie der turbulenten Fluktuationen (lokale Geschwindigkeitsschwankungen, Wirbel) bezogen auf die Masse des Fluids (D. C. Wilcox, "Turbulence modeling for CFD", Bd. 2, La Canada, CA: DCW industries (1998); P. T. Harsha und S. C. Lee, "Use of turbulent kinetic energy in free mixing studies", AIAA Journal 8.6 (1970): 1026-1032). Für eine zweidimensionale Strömung kann die turbulente kinetische Energie wie folgt berechnet werden (P. Saarenrinne und M. Piirto, "Turbulent kinetic energy dissipation rate estimation from PIV velocity vector fields", Experiments in Fluids 29

(2000): S300-S307):

$$k = \frac{1}{2} (\overline{(u')^2} + \overline{(v')^2}) \quad (6)$$

[0082] worin k die turbulente kinetische Energie, u' die Geschwindigkeitsfluktuationen in der ersten Richtung und v' die Geschwindigkeitsfluktuationen in der zweiten Richtung bezeichnet.

[0083] Fig. 8 zeigt zeitgemittelte Daten der Raman-Spektroskopie von Profil 3 (siehe in Fig. 6). Mithilfe einer Kalibrationskurve konnten die Daten ausgewertet und die Konzentrationen von Wasser und Ethanol für jeden Punkt berechnet und dargestellt werden. Pro Messpunkt wurden 10 Raman-Messungen durchgeführt, wobei jede Messung 1 s benötigte.

[0084] Die Masse der Flüssigkeitstanks wurde während des Experiments aufgezeichnet und daraus die Massenströme ermittelt. Wie in Fig. 9 erkenntlich, liegt der durchschnittliche Massenstrom für Wasser (Komponente A) bei $\sim 0,08$ kg/s und für Ethanol (Komponente B) bei $\sim 0,04$ kg/s. Die Sprungstellen am Wassereinlass lassen sich durch das zweimalige Nachfüllen des Wassertanks während des Experiments erklären.

Ergebnisse und Diskussion

LDA-Messungen

[0085] Die Ergebnisse der LDA-Messungen aller Profile wurden ausgewertet und dargestellt. Der Vergleich mit der CFD-Simulation zeigt, dass die Ergebnisse gut mit der Vorhersage übereinstimmen.

[0086] Fig. 10 zeigt gemessene und simulierte Geschwindigkeitsprofile an verschiedenen Querschnitten. Vertikale Balken zeigen die Schwankungsbreite der Geschwindigkeit aufgrund der Turbulenz, d.h. die durchschnittliche Geschwindigkeitsfluktuation basierend auf der turbulenten kinetischen Energie an und horizontale Balken den Fehler, der durch die Toleranz der Positionierung des Laserfokuspunkts im Strömungskanal entsteht. In Profil 3 und 4 wurden einige ungültige Messpunkte (Dreiecke) durch Messpunkte eines anderen Experiments unter denselben Bedingungen ersetzt. Die durchgehende Linie entspricht den Ergebnissen der CFD.

[0087] Betrachtet man die Geschwindigkeitsprofile 1 und 2, ergibt sich ein durchschnittlicher Massenstrom von $0,07$ kg/s für den Wassereinlass und $0,04$ kg/s für den Alkoholeinlass, was gut mit den aus der Bilanz erhaltenen Werten übereinstimmt. Fig. 10 zeigt die Messergebnisse im Vergleich mit den Ergebnissen der CFD-Simulation. Innerhalb der zu erwarteten Messgenauigkeit stimmen diese überein, was beispielsweise am Geschwindigkeitsmaximum nahe der Wand in Profil 3 zu sehen ist.

Raman-Messungen

[0088] Die Konzentrationsdaten der Raman-Messung wurden nur an den Profilen 3 und 4 aufgezeichnet, da nur diese Profile in der Mischzone lagen und deswegen ein Konzentrationsgradient zu erwarten war. Die Punkte in Fig. 11 zeigen die experimentellen Daten (zeitgemittelte Konzentrationsinformation), wobei die horizontalen Balken den Fehler durch die Toleranz der Positionierung des Laserfokuspunkts und die vertikalen Balken die Konzentrationsfluktuation über der Zeit angeben.

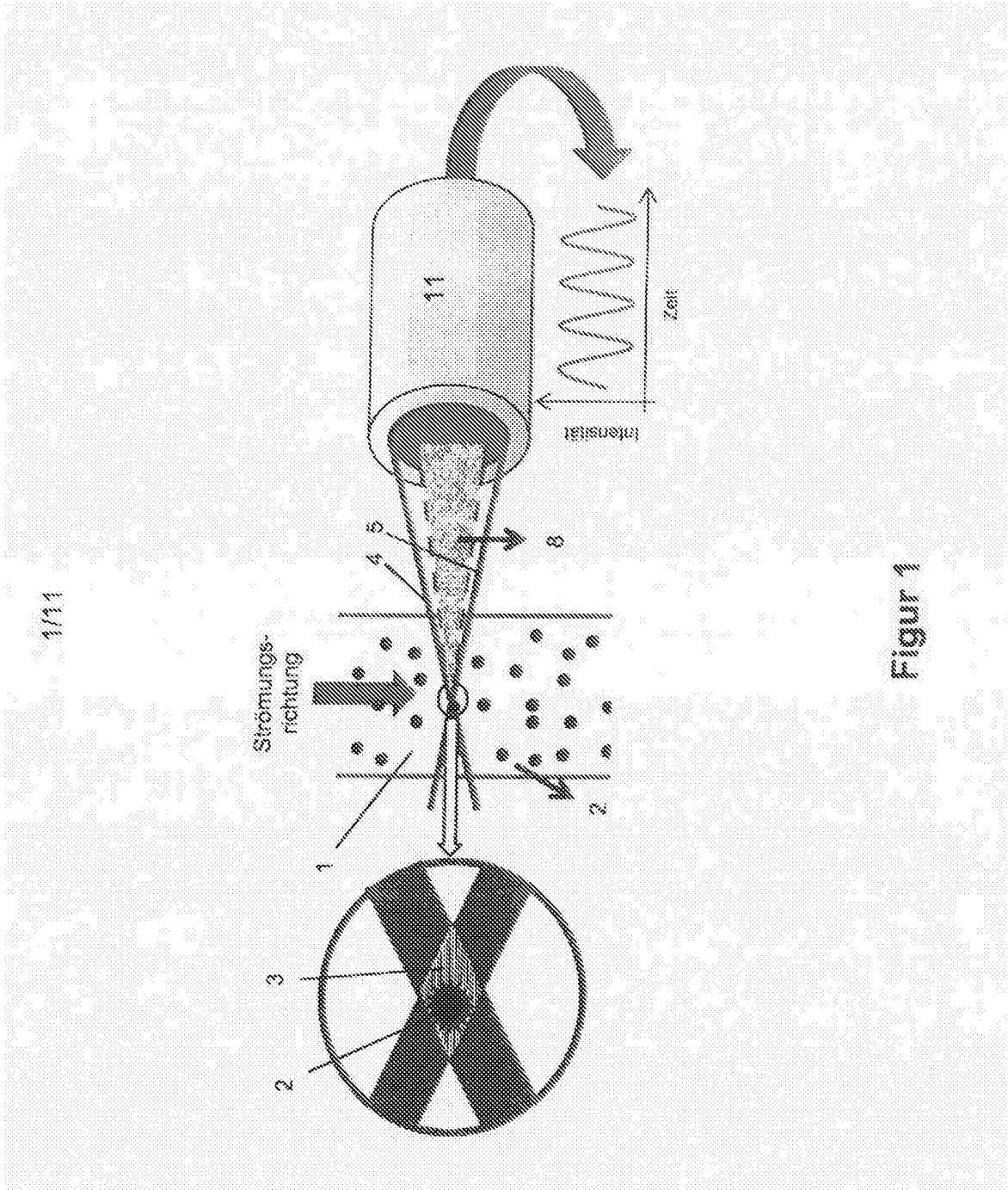
[0089] Wie in Fig. 11 zu sehen ist, stimmen die experimentellen Daten recht gut mit den Simulationsergebnissen überein. Profil 3 gibt die Position der Ethanol-Konzentrationsänderung sowie die Maximalkonzentration gut wieder. Auch Profil 4 zeigt eine akzeptable Übereinstimmung der Maxima und Minima sowie beim allgemeinen Konzentrationsverlauf.

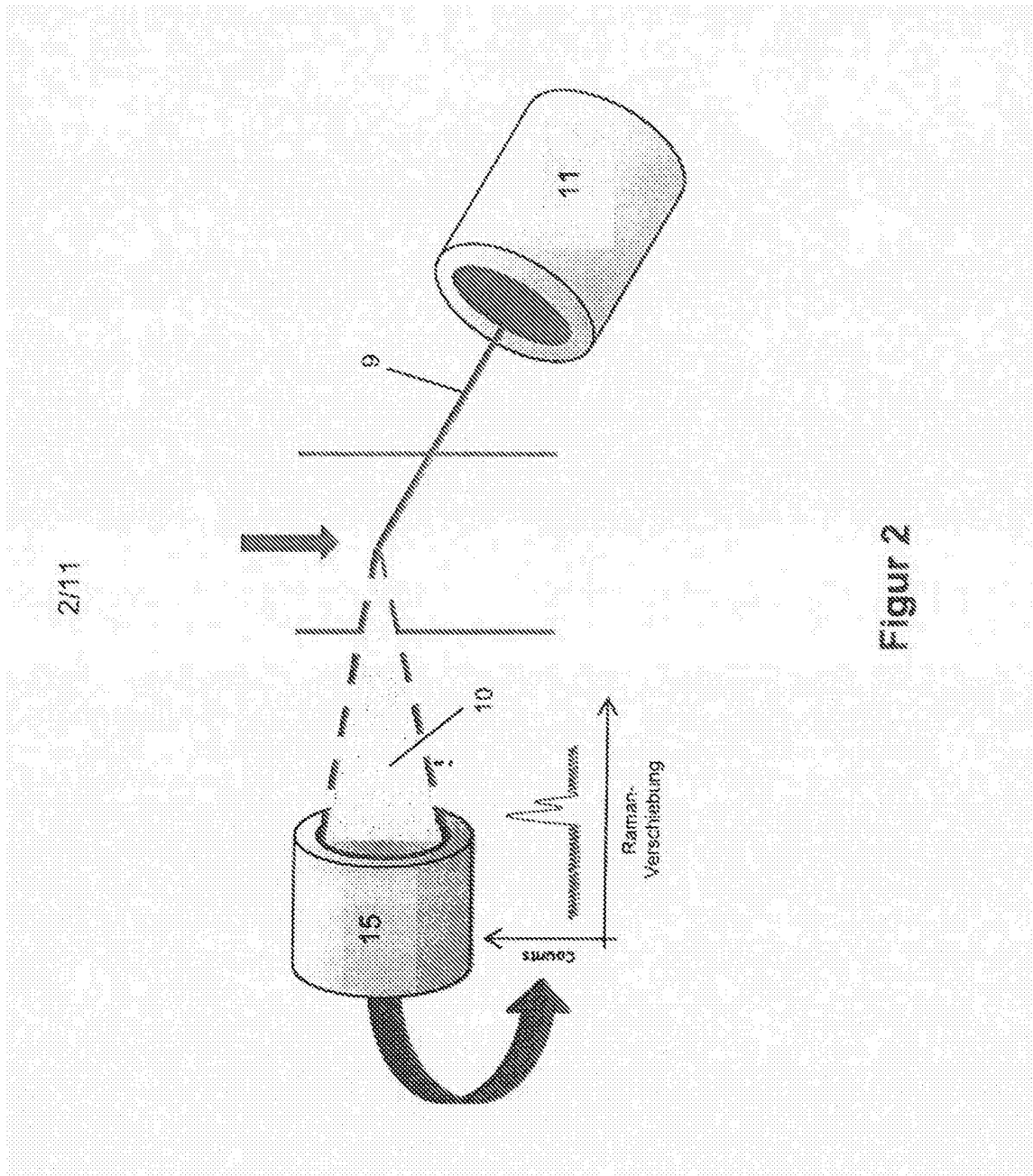
Patentansprüche

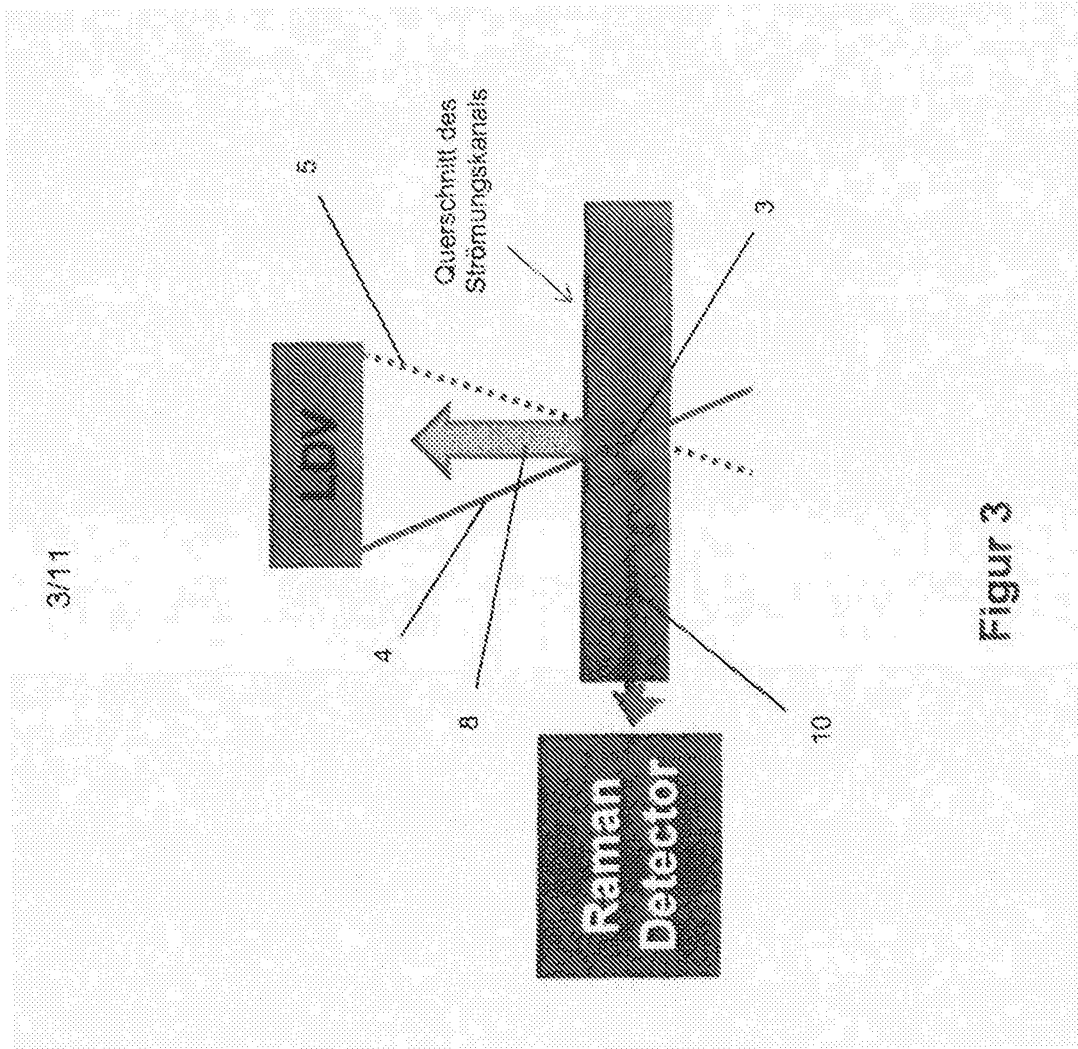
1. Verfahren zur kontaktlosen Bestimmung sowohl der Geschwindigkeit einer flüssigen Strömung (1) als auch der Konzentration zumindest eines Analyten darin, wobei:
 - a) die Strömungsgeschwindigkeit in an sich bekannter Weise mittels Laser-Doppler-Anemometrie, LDA, unter Einsatz von Tracer-Partikeln (2) gemessen wird, die ein Interferenzstreifenmuster im Kreuzungsbereich (3) zweier kohärenter monochromatischer Lichtstrahlen (4, 5) passieren und dadurch ein Streulichtsignal (8) erzeugen, dessen Frequenz proportional zu der senkrecht zu den Interferenzstreifen verlaufenden Geschwindigkeitskomponente der Strömung (1) ist; und
 - b) die Konzentration des zumindest einen Analyten in an sich bekannter Weise mittels Raman-Spektroskopie gemessen wird, indem ein monochromatischer Lichtstrahl (9) eingestrahlt und das Raman-Spektrum des an Analytenmolekülen in der Strömung (1) unelastisch gestreuten Lichts (10) aufgenommen wird, wobei die Lichtintensität von nur im Streulicht (10) auftretenden Frequenzen proportional zur Konzentration der Analytenmoleküle in der Strömung (1) ist; wobei
 - c) eine einzige Lichtquelle (11) sowohl für die LDA als auch die Raman-Spektroskopie eingesetzt wird, so dass beide Messungen in dem Kreuzungsbereich (3) der beiden aus der Lichtquelle (11) stammenden kohärenten Lichtstrahlen (4, 5) vorgenommen werden, wobei mittels an den Tracer-Partikeln (2) elastisch gestreuter Photonen (8) die Geschwindigkeit gemessen wird und mittels an Analytenmolekülen unelastisch gestreuter Photonen (10) die Konzentration gemessen wird; und
 - d) zur Geschwindigkeitsmessung die elastisch rückgestreuten Photonen (8) mittels derselben Linsenoptik (12) detektiert werden, die auch zur Einstrahlung der Lichtstrahlen eingesetzt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass auch die zur Konzentrationsmessung dienenden, unelastisch gestreuten Photonen (10) mittels derselben Linsenoptik (12) detektiert werden, die auch zur Einstrahlung der Lichtstrahlen eingesetzt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass die zur Konzentrationsmessung dienenden, unelastisch gestreuten Photonen (10) mittels einer in einem 90°-Winkel zur Einstrahlrichtung positionierten Linsenoptik (15) detektiert werden.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, dass die aus der Lichtquelle (11) in die Strömung (1) eingestrahelten Lichtstrahlen (4, 5) während der Messung mittels einer Bragg-Zelle (13) frequenzverschoben werden, um im Kreuzungsbereich (3) ein bewegtes Interferenzmuster zu erzeugen, anhand dessen die Strömungsrichtung bestimmt wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, dass eine polychromatische Lichtquelle (11) eingesetzt wird, deren Licht in mehr als ein Paar kohärenter Lichtstrahlen (4, 5, 6, 7) mit unterschiedlichen Wellenlängen geteilt wird, die auf denselben Punkt fokussiert werden, um das Interferenzmuster zu erzeugen.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet**, dass der Kreuzungsbereich (3) der Lichtstrahlen (4, 5, 6, 7) unter Verwendung einer Traversierung (14) räumlich verschoben wird und Messungen an mehreren verschiedenen Messpunkten vorgenommen werden.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 3 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass als zur Konzentrationsmessung dienende Linsenoptik (15) das Objektiv einer CCD-Kamera eingesetzt wird.
8. Verfahren nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet**, dass an die CCD-Kamera ein Spektrograph (16) angeschlossen ist, der aus dem detektierten Streulichtsignal (10) das zugehörige Spektrum erzeugt, das gegebenenfalls an eine iCCD-Kamera (17) weitergeleitet wird.

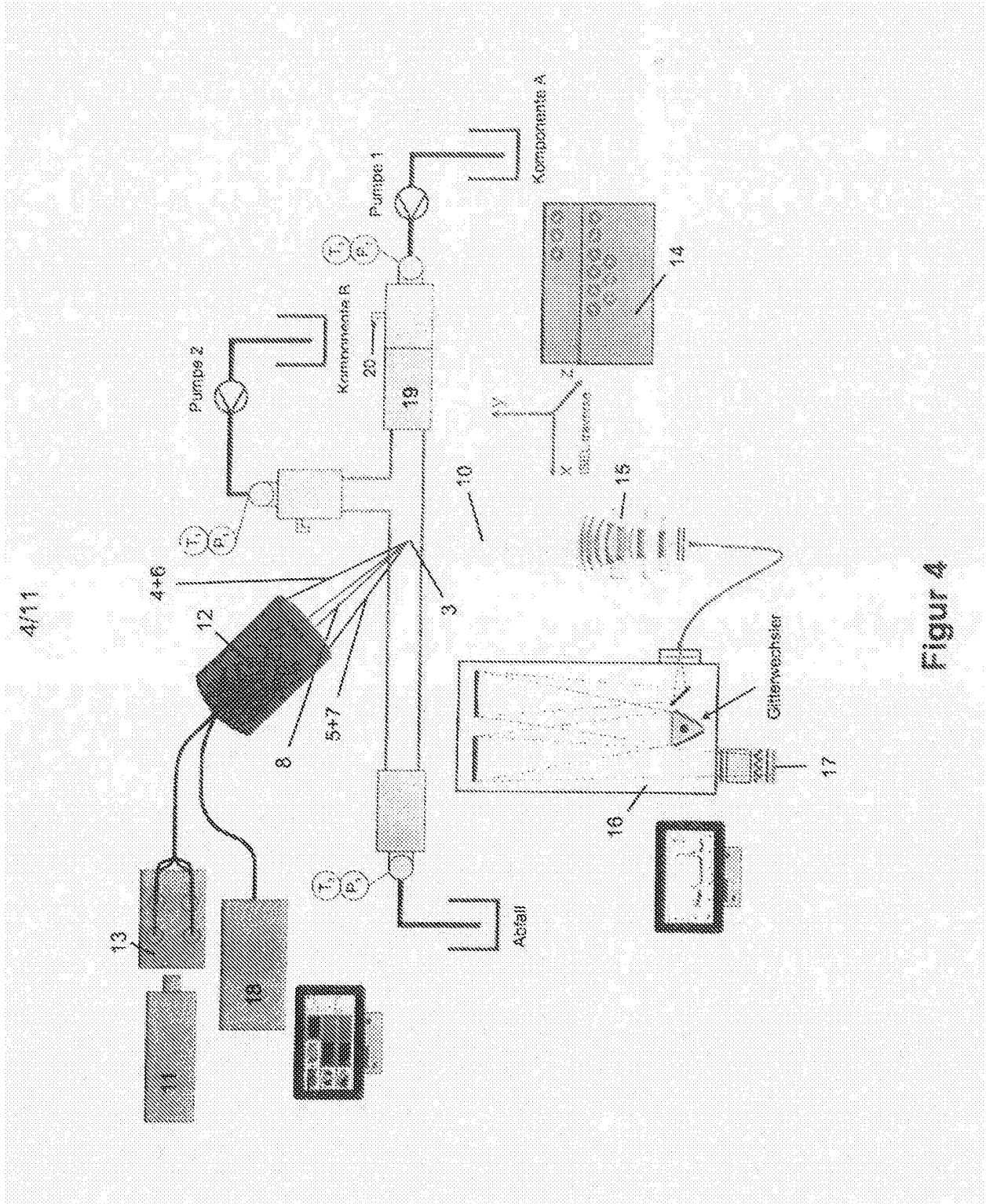
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, **dadurch gekennzeichnet**, dass die bei LDA und Raman-Spektroskopie detektierten Signale (8, 10) zeitlich synchronisiert werden.

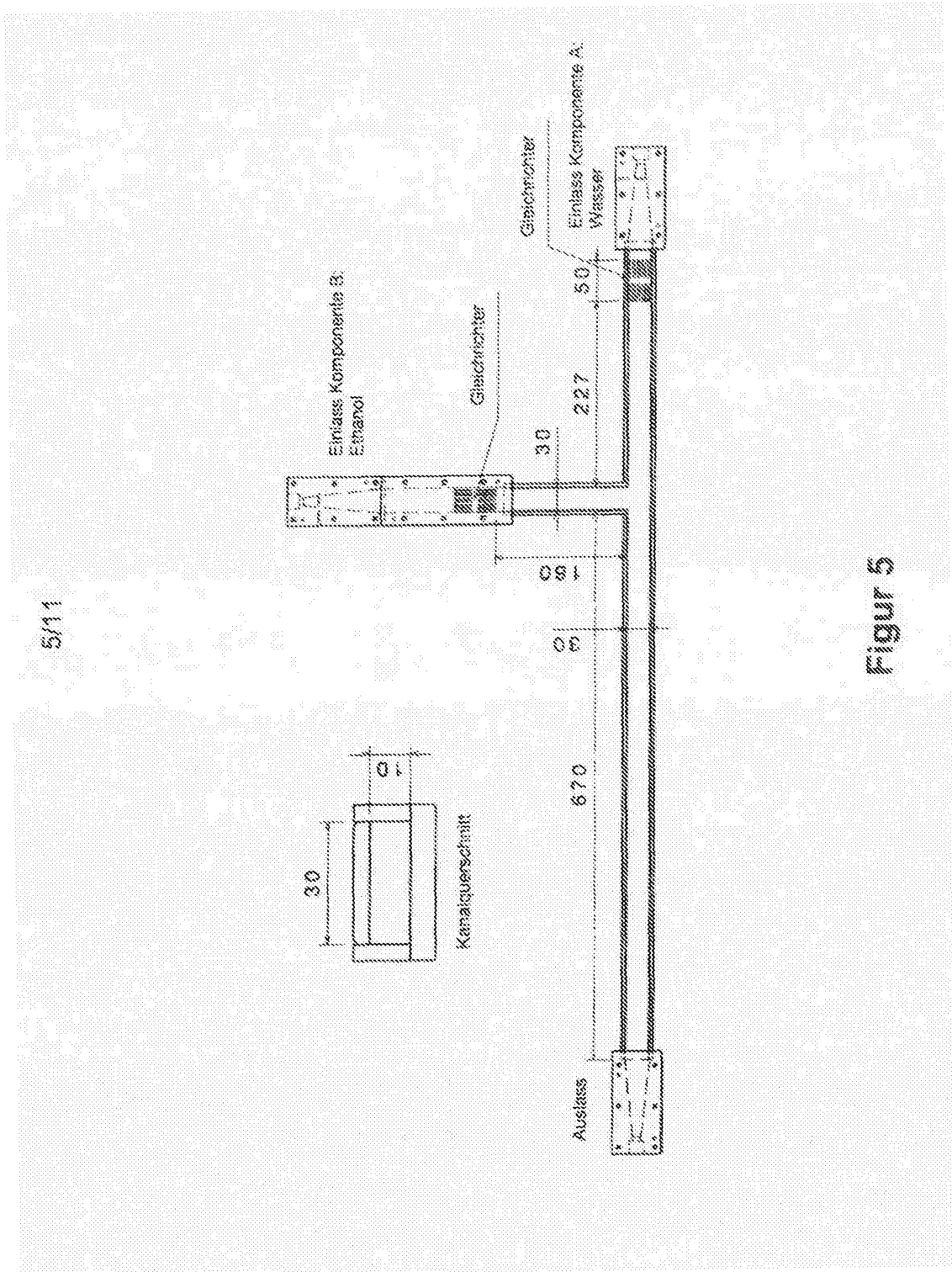
Hierzu 11 Blatt Zeichnungen

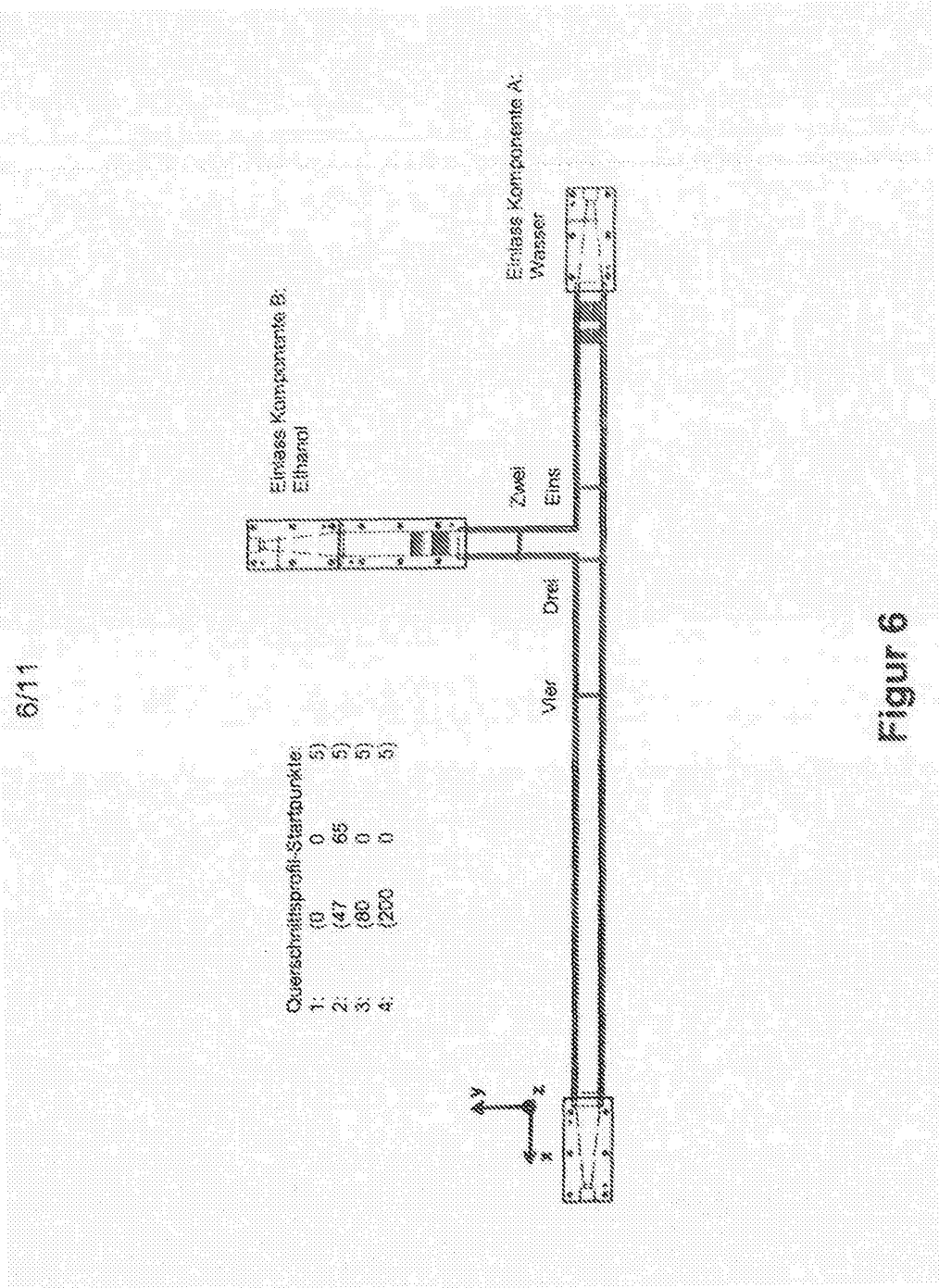


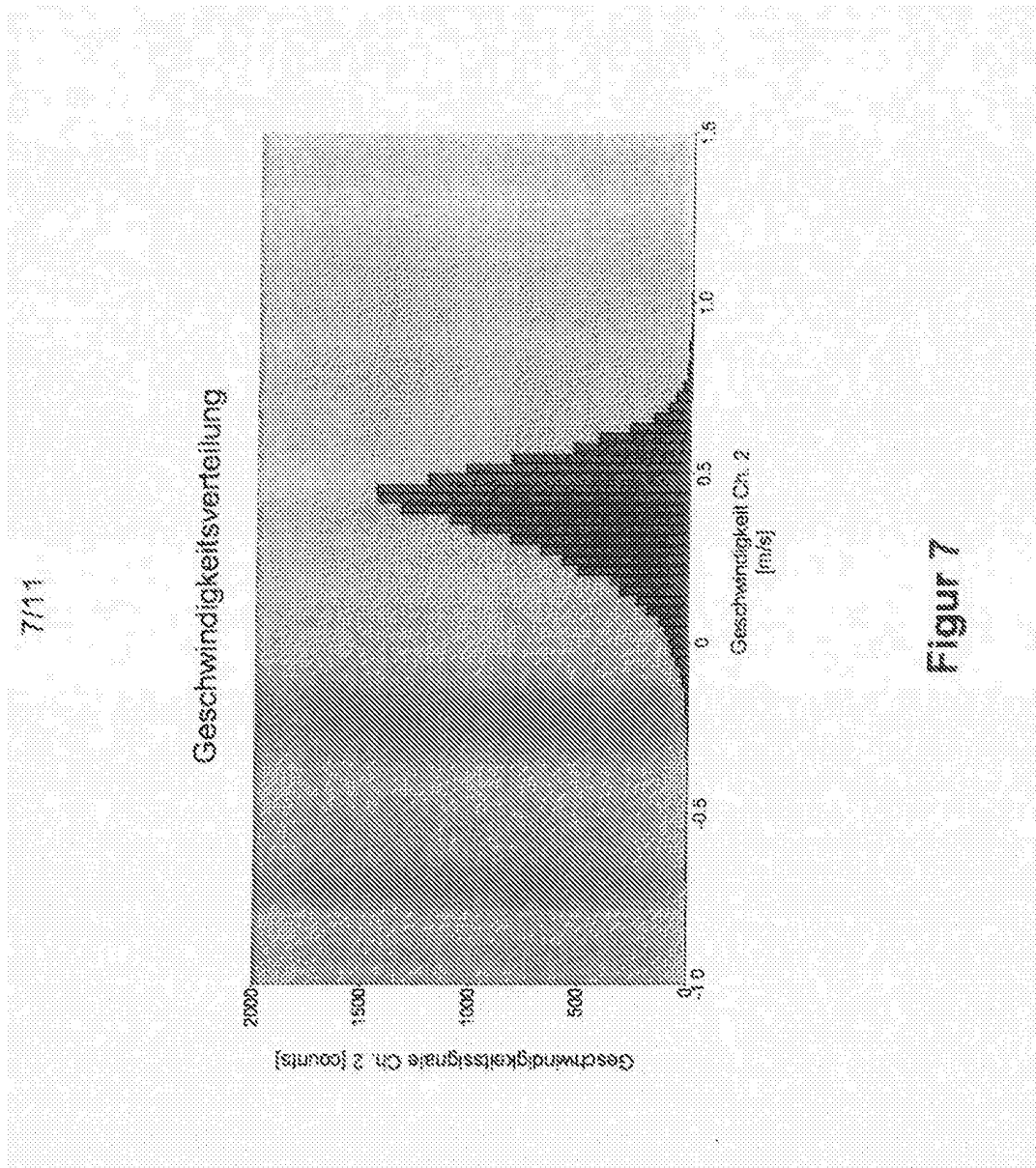


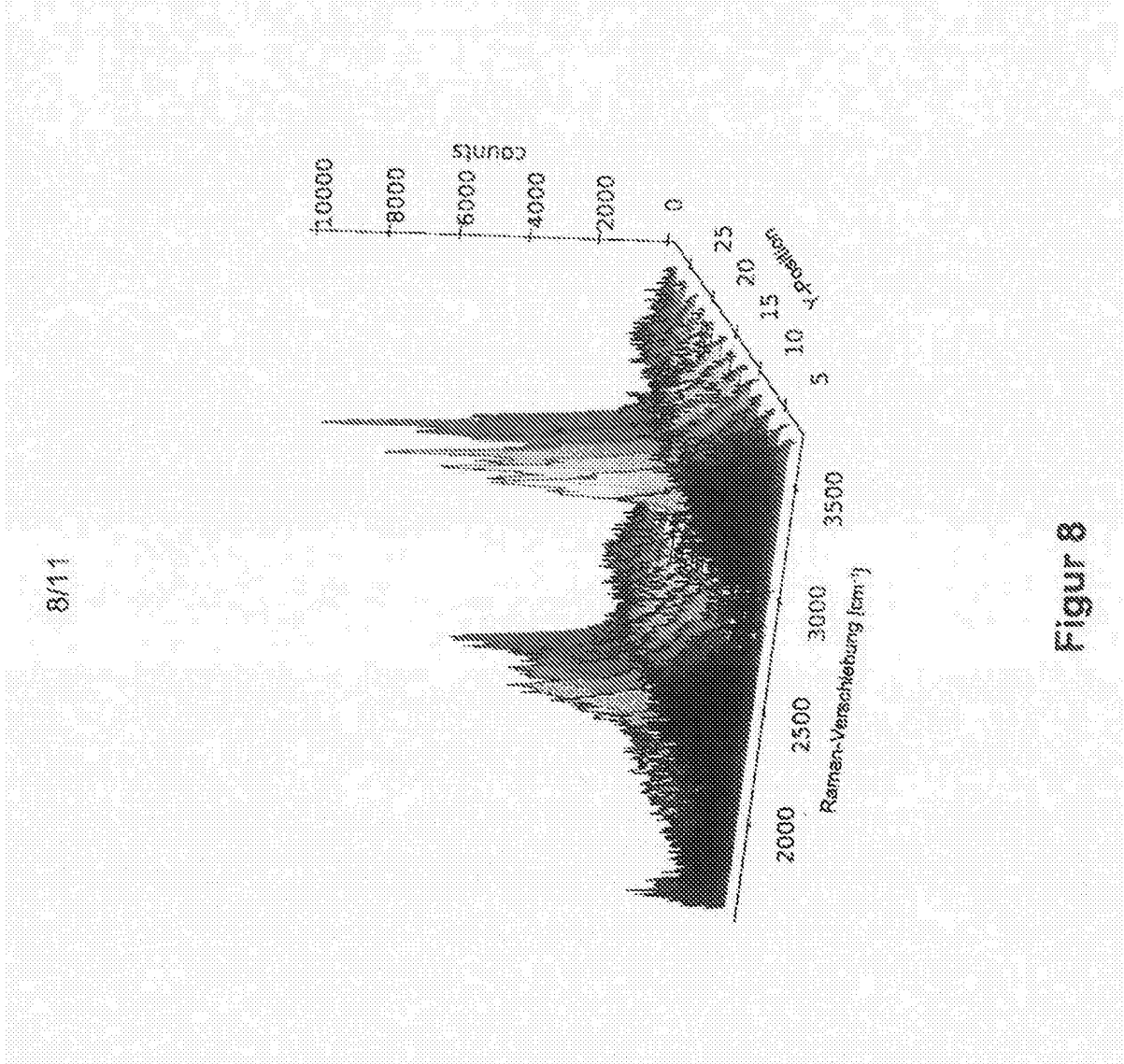


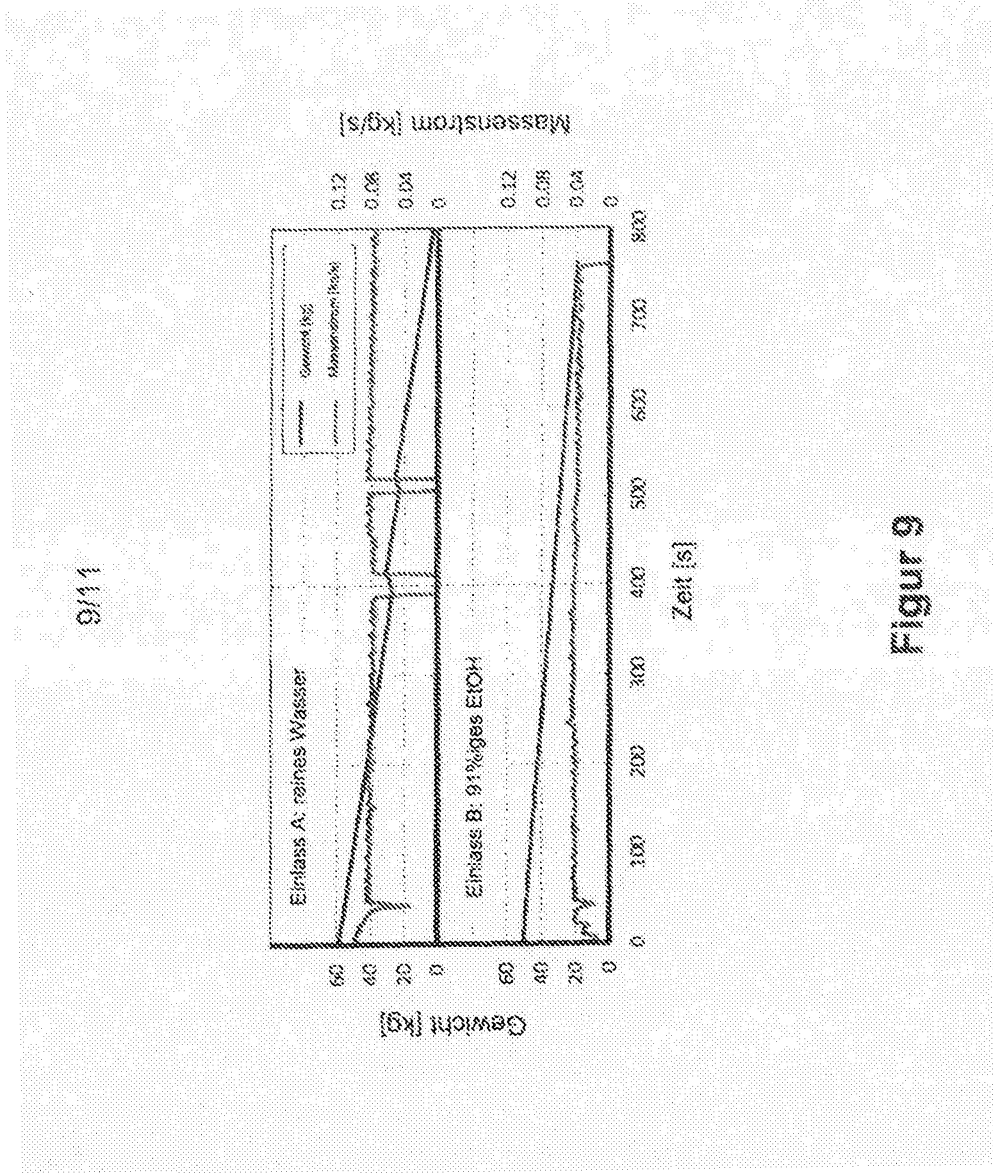




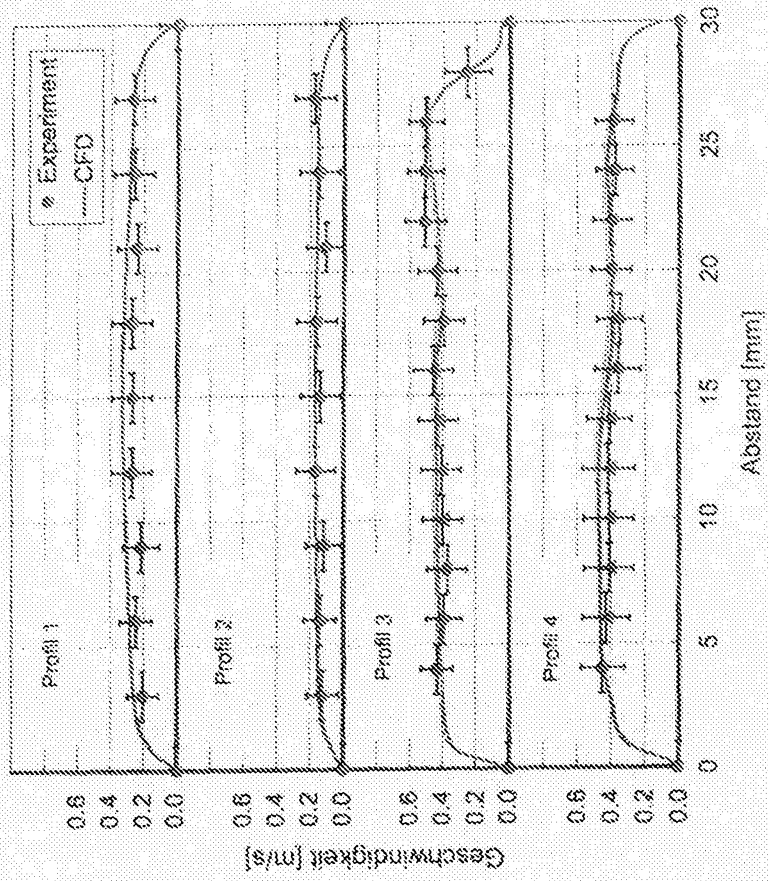




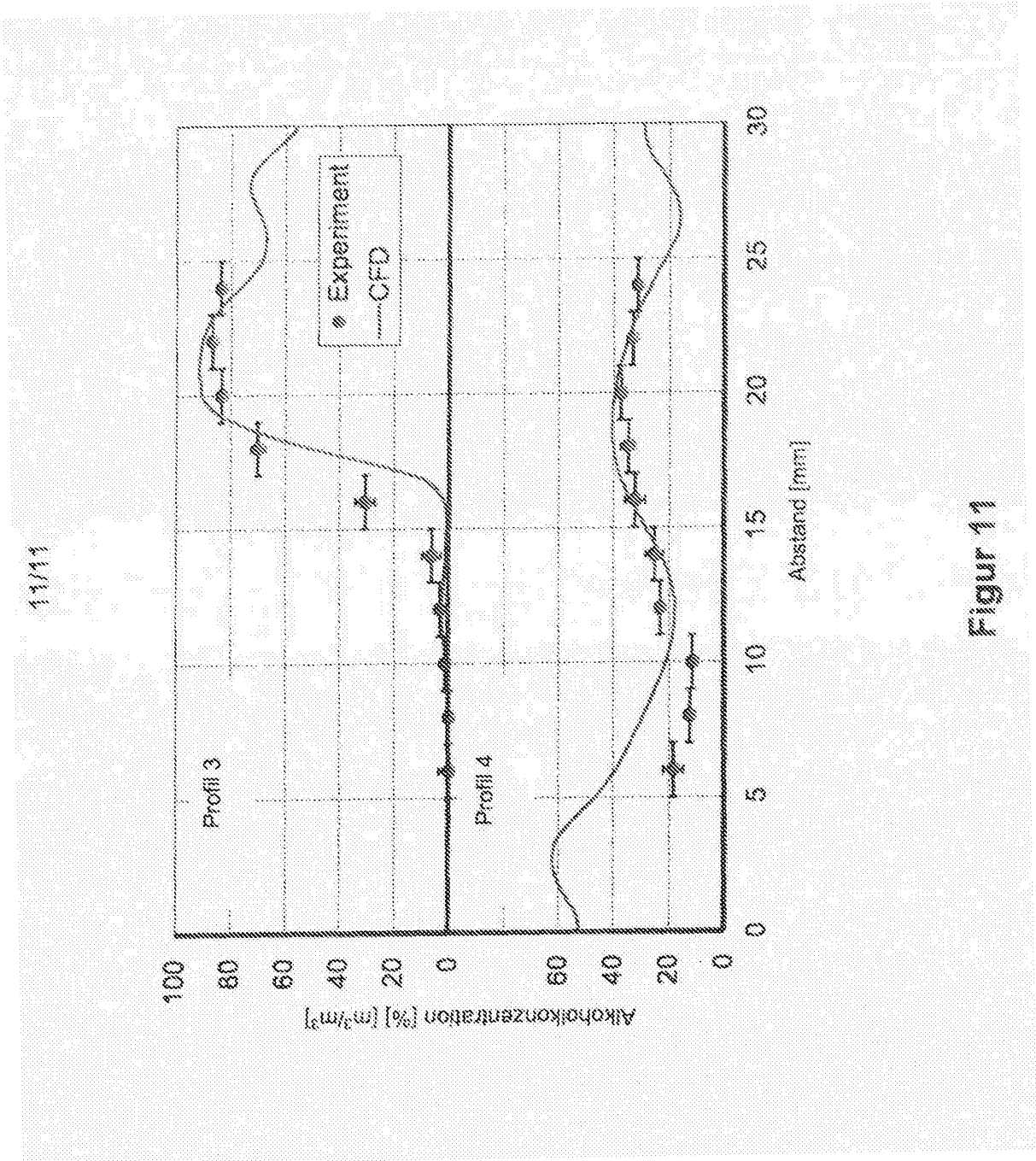




10/11



Figur 10



Figur 11