# OPTISCHE MESSUNG DER SCHALLGESCHWINDIGKEIT UND DER VISKOSITÄT VON FLÜSSIGKEITEN

# **OPTICAL MEASUREMENT OF SPEED OF SOUND AND VISCOSITY OF LIQUIDS**

# J. Schlegel\*, R. Giezendanner-Thoben\*, O. Ohlhafer\* und A. Leder\*\*

\*Robert Bosch GmbH Zentralbereich Forschung und Vorausentwicklung Angewandte Forschung 2 – Fluid- und Thermodynamik (CR/ARH1) Postfach 30 02 40 70442 Stuttgart GERMANY

\*\*Universität Rostock Fakultät für Maschinenbau und Schiffstechnik Lehrstuhl Strömungsmechanik Albert-Einstein-Straße 2 18051 Rostock GERMANY

LITA, TGS, LITG, Schallgeschwindigkeit, Viskosität, Temperaturleitfähigkeit LITA, TGS, LITG, speed of sound, viscosity, thermal conductivity

# Zusammenfassung

Der Artikel beschreibt die LITA-Messtechnik (*"Laser Induced Thermal Acoustics"*) zur berührungslosen, räumlich hochaufgelösten Bestimmung der Schallgeschwindigkeit und der Viskosität optisch zugänglicher Flüssigkeiten. Ein Modell zur analytischen Beschreibung des Messsignals wird vorgestellt. Mit Hilfe der Levenberg-Marquardt-Methode erfolgt die Anpassung des Modells an experimentell gewonnene Messdaten. Aus den berechneten Modellparametern werden Schallgeschwindigkeit und Viskosität bestimmt.

Um das Potential der Technik zu überprüfen, werden Messungen in Hydrauliköl HLP 32 unter atmosphärischen Druck und Variation der Temperatur im Bereich von 5 °C bis 70 °C durchgeführt. Bei geeigneter Kalibrierung der LITA-Technik werden die aus der Literatur entnommenen Daten für die Schallgeschwindigkeit mit einem Fehler von etwa 0,5 % reproduziert. Die Temperaturabhängigkeit der Viskosität kann mit Abweichungen von etwa 15 % bestimmt werden.

# Einleitung

Die LITA-Messtechnik beruht auf dem Effekt der opto-akustischen Vierwellenmischung (CUMMINGS et al, 1995). Das Licht zweier gepulster, zeitlich und räumlich kohärenter Laserstrahlen ("Pumpstrahlen") wird in dem zu untersuchenden Medium zur Interferenz gebracht. Die Lichtwellen induzieren ein zeitlich moduliertes Brechungsindexgitter im Medium. An diesem Gitter wird das Licht eines dritten kontinuierlichen Laserstrahls ("Probestrahl") gebeugt. Der entstehende vierte Strahl ("Signalstrahl") weist die gleiche Wellenlänge wie der Probestrahl auf, während der zeitliche Verlauf der Intensität des Signalstrahls an das induzierte Brechungsindexgitter gekoppelt ist. Der Intensitätsverlauf lässt sich durch die Überlagerung einer gedämpften harmonischen Schwingung und eines langsam abklingenden

Gleichanteils beschreiben. Während die Modulationsfrequenz des schwingenden Anteils dabei vor allem von der lokalen Schallgeschwindigkeit des Stoffes abhängt, wird das Abklingen des Signals hauptsächlich durch die Viskosität, die Wärmeleitfähigkeit und die Intensitätsprofile der miteinander interagierenden Laserstrahlen bestimmt.

Während die LITA-Technik vor allem in der Gasphase erfolgreich zur Bestimmung der Schallgeschwindigkeit eingesetzt wird (CUMMINGS et al, 1995), berichten bisher nur wenige Autoren von LITA-Messungen in flüssigen Medien (ALDERFER et al., 2005). Obwohl das Potential der LITA-Technik zur Bestimmung von Viskosität und Wärmeleitfähigkeit aus dem Abklingen von LITA-Signalen bereits beschrieben wurde (CUMMINGS et al, 1995), sind LITA-Viskositätsmessungen bis dato nicht bekannt. Die Ursache dafür liegt zum einen in dem Verhältnis von Viskosität und Wärmeleitfähigkeit der bisher mit der LITA-Technik untersuchten Stoffe, zum anderen in dem in der Literatur verwendeten, hinsichtlich des Signal-Rausch-Verhältnisses optimierten Aufbaus der Technik. In dieser Arbeit wird am Beispiel von Messungen in Hydrauliköl gezeigt, in wie weit die aus der Literatur bekannten LITA-Modelle zur Schallgeschwindigkeitsmessung auf Flüssigkeiten übertragbar sind und welche Modifikationen der Technik zur Bestimmung der Viskosität vorgenommen werden müssen.

## Die physikalischen Grundlagen des LITA-Verfahrens

Die bei der LITA-Technik auftretenden optischen Effekte können im Wesentlichen in zwei Teilprozesse unterschieden werden. Zunächst wird ein lokaler energetischer Nichtgleichgewichtszustand in das zu untersuchende Medium induziert. Dazu werden zwei kohärente Laserlichtpulse im Messvolumen zum Schnitt gebracht. Im Bereich der gitterförmigen Interferenz der Strahlen erfolgt ein stoßartiger Energieeintrag, der zur Ausbildung einer instationären gitterförmigen Störung der lokalen Dichte- bzw. Brechungsindexverteilung des Mediums führt. Das Zeitverhalten dieses laserinduzierten Brechungsindexgitters enthält die zu messenden Informationen über die lokale Schallgeschwindigkeit und die Dämpfungseigenschaften des Fluids. Um die Gitterschwankung in eine messbare Information umzuwandeln, wird der akusto-optische Effekt ausgenutzt. Ein kontinuierlicher Probestrahl wird unter Bragg-Bedingungen so auf das Dichtegitter gelenkt, dass er an diesem gebeugt und in Folge der zeitlichen Schwankung des Brechungsindexgitters in seiner Intensität moduliert wird. Die Intensität des an dem Gitter gebeugten Strahls stellt das letztlich zu messende, schematisch im oberen Teil von Abb. 1 dargestellte, LITA-Signal dar.

Bei der Anwendung der LITA-Technik in Ölen wird der Energieeintrag in das Medium durch Absorptionsprozesse dominiert, d. h. die Pumpstrahlen induzieren eine gitterförmige Temperaturverteilung im zu untersuchenden Medium. Im Widerspruch zu den Bedingungen des thermodynamischen Gleichgewichts wird zum Zeitpunkt der Anregung kein zur Temperaturverteilung korrespondierendes Dichtegitter erzeugt. Der Grund dafür liegt in den unterschiedlichen Zeitskalen des Energieeintrags und des Massentransports. Das dadurch erzeugte lokale Ungleichgewicht kann durch die Ausbildung von sich additiv überlagernden gitterförmigen Dichtestrukturen erklärt werden. Dabei handelt es sich um das im unteren Teil von Abb. 1 skizzierte stationäre *Thermon* und die zwei sich mit der lokalen Schallgeschwindigkeit in entgegengesetzten Richtungen ausbreitende *Phononen* (CUMMINGS et al, 1995). Entsprechend der räumlichen Intensitätsverteilung innerhalb des Interferenzgebietes der Pumpstrahlen haben die Phononen und das Thermon die Form gaußscher Ellipsoiden mit sinusförmiger Dichtemodulation quer zur Strahlausbreitungsrichtung der Pumpstrahlen.

Während sich die Strukturen zu Beginn des Vorganges gegenseitig aufheben, wird die Dichteverteilung im Medium im weiteren Verlauf mit der Brillouin-Frequenz f (BOYD, 1992)

$$f = \frac{q}{2\pi}a \quad \text{mit } q = \frac{2\pi}{k} \tag{1}$$

moduliert, wobei a die lokale isotrope Schallgeschwindigkeit, q den Betrag des Gittervektors des Interferenzgitters und k den Gitterabstand der räumlichen Intensitätsverteilung der Pumpstrahlen bezeichnet.



Abb. 1: Schematisches LITA-Signal und die Phasen der Entstehung und der Modulation laserinduzierter Brechungsindexgitter in Ölen. Die für das Signal ausschlaggebende, resultierende Brechungsindexverteilung entsteht dabei aus der additiven Überlagerung der sich ausbreitenden Phononen und des stationären Thermons.

Das Abklingen der Dichte- bzw. Brechungsindexmodulation wird von der Viskosität, der Wärmeleitung und den geometrischen Bedingungen der Interaktion der Phononen mit dem Thermon bestimmt. Die Amplitude der Phononen klingt infolge der viskosen Dämpfung mit

$$A_{V}(t) = A_{V} \cdot \exp\left(-\frac{q^{2}}{2\rho}\eta t\right)$$
(2)

ab, wobei  $\rho$  die Dichte und  $\eta$  die kinematischen Viskosität des Fluids bezeichnet (STAMPANONI-PANARIELLO, 2003). Da die Phononen im Gegensatz zu dem Thermon nicht ortsfest sind, sondern sich mit der lokalen Schallgeschwindigkeit ausbreiten, tritt zusätzlich zur viskosen eine "geometrische" Dämpfung des LITA-Signals auf. Wie in Abb. 1 dargestellt, wird die Amplitude des resultierenden Brechungsindexgitters im zeitlichen Verlauf der Messung entsprechend der räumlichen Verschiebung der einhüllenden Glockenkurven gedämpft. Bei hinreichend kleinen Strahlkreuzungswinkeln ergibt sich für das Abklingen der Signalamplitude infolge der geometrische Dämpfung

$$A_G(t) = A_G \cdot \exp\left(-\frac{\xi \cdot a^2}{r_G^2}t^2\right)$$
(3)

wobei  $r_G$  die Halbwertsbreite (FWHM) der Pumpstrahlen und  $\xi$  einen durch die Strahlgeometrie definierten Formfaktor darstellen (CUMMINGS et al, 1995). Das Abklingen der Amplitude des Thermons wird im Wesentlichen durch die Temperaturleitfähigkeit  $\alpha$  des Stoffes bestimmt und lässt sich durch

$$A_T(t) = A_T \cdot \exp(-\alpha q^2 t) \tag{4}$$

beschreiben (STAMPANONI-PANARIELLO, 2003).

Der zeitliche Verlauf von LITA-Signalen wird durch eine Reihe weiterer optischer und strömungsmechanischer Prozesse beeinflusst (CUMMINGS et al, 1995). Dies führt zu typischen, asymmetrischen Signalverläufen, die jedoch durch Anwendung geeigneter Filter korrigiert und an die hier gegebenen vereinfachten Modelle angepasst werden können.

Die in Abb. 2 dargestellten, rechnerisch ermittelten Hüllkurven zeigen das Abklingen von LITA-Signalen in Hydrauliköl infolge der viskosen, geometrischen und thermischen Dämpfung. Die Halbwertsbreite des zu Grunde gelegten Interferenzgitters beträgt 2 mm, der Gitterabstand 23,75 µm.



Abb. 2: Zeitverhalten der Hauptanteile der Dämpfung von LITA-Signalen. Die Hüllkurven stellen Ausbreitung bzw. Abklingen laserinduzierter Gitter in Hydrauliköl HLP 32 dar.

Zur Messung der Ölviskosität mit Hilfe der LITA-Technik werden Signale benötigt, deren Abklingen von der viskosen Dämpfung der Phononen dominiert ist. Im Gegensatz zu den Verhältnissen bei Gasen (CUMMINGS et al, 1995) besitzt die gestrichelt dargestellte Dämpfung des Thermons in der flüssigen Phase keinen signifikanten Einfluss auf die Amplitude der Brechungsindexmodulation. Die dünn gedruckte Kurvenschar stellt die Temperaturabhängigkeit der viskosen Dämpfung der Phononen im Bereich von 5 °C bis 70 °C dar. Die fett gedruckten Kurven zeigen das Zeitverhalten der geometrischen Dämpfung infolge der Ausbreitung der Phononen. Um den Beitrag der viskosen Dämpfung auf das Signal genauer bestimmen zu können, wird der Einfluss der geometrischen Dämpfung durch Aufweiten des Gitters in Richtung höherer Zeitskalen verschoben. Wird die Frequenzinformation entsprechend Gleichung (1) mit dem geometrischen und dem viskosen Dämpfungsbeitrag der Gleichungen (2) und (3) verknüpft, ergibt sich für den zeitlichen Verlauf des symmetrischen Anteils der Amplituden des LITA-Signals

$$L_{Sym}(t) = L_{Sym} \cdot \exp\left(-\frac{\eta \cdot q^2}{2\rho}t - \frac{\xi \cdot a^2}{r_G^2}t^2\right) \cdot \cos(qa \cdot t).$$
(5)

Mit Hilfe dieses Modells erfolgt die Bestimmung von Schallgeschwindigkeit und Viskosität durch den Abgleich theoretisch vorhergesagter Kurven und experimenteller Ergebnisse.

## Aufbau der LITA-Technik

Abb. 3 zeigt den Versuchsaufbau der LITA-Technik. Der Pumpstrahl wird durch einen Nd:YAG-Laser (Solo-PIV Solo III-15; 532 nm, 35 mJ/Puls, 5 ns Pulsdauer, 10 Hz Pulsfrequenz) erzeugt. Die Abmessungen des laserinduzierten Brechungsindexgitters werden durch

das Zusammenspiel eines Teleskops und einer achromatischen Linse (Fraunhofer Achromat f = 500 mm) bestimmt. Mit Hilfe eines Strahlteilers erfolgt die Aufteilung des Strahls in zwei s-polarisierte Strahlen gleicher Energie. Nach dem optischen Wegausgleich beider Teilstrahlen werden sie über zwei Umlenkspiegel auf den Achromaten gelenkt und unter einem Winkel von etwa 1,25° zum Schnitt gebracht. Die Messungen werden in einer mit Hydrauliköl HLP 32 gefüllten und mit einem Thermoelement versehenen Quarzglasküvette durchgeführt.

Die Modulation des laserinduzierten Brechungsindexgitters wird durch einen kontinuierlichen Probestrahl ausgelesen. Dafür wird der Strahl eines Argon-Ion-Laser (Coherent Innova 90, 488 nm, 5 W) mit Hilfe eines Spiegels auf den Achromaten gelenkt. Der Strahl trifft fokussiert und unter Bragg-Bedingungen auf das Brechungsindexgitter, an dem er moduliert und gebeugt wird. Der Probestrahl ist gegenüber der Ebene der Pumpstrahlen geneigt, so dass das Messvolumen eine dreidimensionale BOXCAR-Geometrie darstellt (ECKBRETH, 1988). Die Größe des Messvolumens definiert sich aus den Abmessungen der Pumpstrahlen und dem Innenmaß der Küvette und beträgt daher etwa 4 mm im Durchmesser und 1 mm in der Tiefe.



Abb. 3: Schematischer Versuchsaufbau der LITA-Messtechnik. Die Kombination aus Teleskop und Achromat erlaubt eine Variation der Gitterabmessungen von etwa 0,2 mm bis zu 4 mm im Durchmesser.

Zur Trennung von Signal und Streulicht wird ein halbdurchlässiger Auskoppelspiegel (HR @ 488 nm, HT @ 532 nm) und ein Pellin-Broca-Prisma eingesetzt. Zusätzlich wird der Signalstrahl durch einen Raumfilter und einen optischen Bandpass gefiltert. Die Datenerfassung erfolgt mit Hilfe eines Photomultipliers (Hamamatsu H-6780 MOD) und eines digitalen, mit einer Photodiode getriggerten, Oszilloskops (Tektronix TDS 3034 B, max. 2,5 GS/s).

Mit dem Aufbau wurden LITA-Messkurven für Hydrauliköl HLP 32 unter atmosphärischem Druck und Variation der Temperatur im Bereich von 5 °C bis 70 °C gemessen. Zur Bestimmung des Temperatureinflusses auf die Ölviskosität wurde ein möglichst großes Gitter durch Anpassen der Pumpstrahlen erzeugt. Die damit verbundene Senkung der Signalintensität wurde durch Mittelung von 128 Einzelmessungen zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses kompensiert.

## Auswertung und Diskussion der Ergebnisse

Abb. 4 zeigt den zeitlichen Verlauf eines typischen LITA-Signals für eine Probentemperatur von 40 °C. In den ersten 1,5 µs bildet sich infolge der Interaktion der Phononen mit dem Thermon die für die LITA-Technik typische gedämpfte harmonische Schwingung der Intensi-

tät des Signals aus. In den folgenden 500 µs wird ein mit der Dämpfung des Thermons korrespondierendes Abklingen beobachtet.



Abb. 4: Zeitverhalten eines aus 128 Einzelmessungen gemittelten LITA-Signals von Hydrauliköl HLP 32. Die ersten 1,4 μs des Signals sind im großen, die folgenden 500 μs im kleinen Bild dargestellt. Die Öltemperatur beträgt 40 °C, die Halbwertsbreite des Gitters ca. 2 mm und der Gitterabstand des induzierten Brechungsindexgitters etwa 23,75 μm.

Die Auswertung der Messungen erfordert eine Frequenzanalyse des Signals zur Berechnung der zur Frequenz proportionalen Schallgeschwindigkeit und eine Auswertung der Signaldämpfung zur Bestimmung der Viskosität. Dafür wird das Signal zunächst symmetrisiert, indem das zeitliche Mittel aus der oberen und unteren Hüllkurve berechnet und von der Messung abgezogen wird. Das so gefilterte Signal ist in Abb. 5 dargestellt.



Abb. 5: Zeitlicher Verlauf eines gefilterten LITA-Signals von Hydrauliköl bei  $\vartheta$  = 40 °C. Die fett gedruckte Einhüllende der Schwingung stellt das gefittete Abklingverhalten des Signals dar. Der viskose und der geometrische Dämpfungsanteil ist gestrichelt bzw. punktiert dargestellt.

Anschließend erfolgt die Auswertung des Signals mit Hilfe der Levenberg-Marquardt-Methode, wobei die Gitterparameter  $\xi$ ,  $r_G$  und q der LITA-Gleichung (5) zunächst an Hand eines Referenzpunktes kalibriert und anschließend konstant belassen werden. Die Optimierung erfolgt in zwei Phasen. Zunächst wird die Frequenz der Schwingung durch Variation der Schallgeschwindigkeit angepasst. Dabei wurden mit der Wavelet-Transformation (SCHLEGEL et al.) berechnete Startwerte für eine gute Konvergenz des Verfahrens verwendet. Im Anschluss an die Anpassung der Frequenz wird das Abklingen des LITA-Signals durch Variation der Viskosität gefittet. Abb. 5 stellt die so ermittelte Einhüllende und den Einfluss der viskosen und geometrischen Dämpfung dar.

Abb. 6 zeigt die mit der LITA-Technik gemessen Werte für die Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit von Hydrauliköl HLP 32 im Vergleich zu einer internen Referenzmessung (LEONHARDT, 2008). Die Abweichungen der gemessenen Werte betragen im Mittel etwa 0,5 %. Einzelne Messwerte weisen Fehler von etwa 2 % auf. Sie lassen sich hauptsächlich auf die bei diesen Messungen beobachteten Temperaturschwankungen von bis zu  $\pm$  3 °C zurückführen. Die Messwerte werden daher mit Fehlerbalken angegeben, die die Temperaturdrift und die Bandbreite der aus dem Fit von Signal und Modell bestimmten Werte für die Schallgeschwindigkeit berücksichtigen. Der unterschiedliche Gradient der LITA-Messkurve und der Referenzmessung weist auf die in dieser Arbeit nicht berücksichtigte Temperaturabhängigkeit der Brechzahl und die damit verbunden Änderung der Gitterkonstanten um etwa - 0,01 µm / °C hin. Wie in Abb. 6 zu erkennen ist, wird der Gradient der linearisierten Schallgeschwindigkeits-Temperatur-Kurve bei den LITA-Messungen durch diesen Effekt um etwa 0,4 m / (s · °C) unterschätzt.



Abb. 6: Schallgeschwindigkeits-Temperatur-Kurve für Hydrauliköl HLP 32. Die Abweichungen der LITA-Technik von der Referenzmessung betragen im Mittel etwa 0,5 %

In Abb. 7 wird die mit der LITA-Technik gemessene Viskositäts-Temperatur-Kurve im Vergleich zur Referenzkurve (LEONHARDT, 2008) gezeigt. Die Messfehler liegen im Bereich von etwa 5 % bis 15 %. Bei den mit geringerer Ölviskosität verbundenen höheren Temperaturen treten zum Teil deutlich größere Abweichungen bis zu 50 % auf. Die Fehler resultieren zum einen aus der bereits beschriebenen Temperaturdrift bei der Durchführung der LITA-Messungen. Zum anderen stellt die Anpassung der Dämpfung der LITA-Gleichung an die experimentellen Ergebnisse höhere Ansprüche an die Messung als die Frequenzanpassung von LITA-Modell und Messsignal. Im Gegensatz zur Messung der Modulationsfrequenz des LITA-Signals hängt die Erfassung des Abklingens der Schwingungsamplituden des Signals stark von den Randbedingungen des Experimentes ab. Da die LITA-Signale infolge der Aufweitung der Pumpstrahlen ein niedriges Signal-Rausch-Verhältnis aufweisen, ist eine Mittelung über einen langen Messzeitraum notwendig. Treten nun Temperatur- und mit ihnen verbundene leichte Frequenzänderungen der gemittelten Signale auf, kann es zu Schwebungen und Verschiebungen der Schwingungsamplituden kommen. Darüber hinaus kann die temperaturbedingte Änderung des Brechungsindex der Probe zu einer Dejustage der Pumpstrahlen führen. Die Intensitätsprofile der Strahlen überlagern sich nun nicht mehr in ihren Zentren und die Gleichungen (3) bzw. (5) beschreiben den Verlauf der in diesem Fall auftretenden geometrischen Dämpfung unzureichend.



Abb. 7: Viskositäts-Temperatur-Kurve für Hydrauliköl HLP 32. Die Abweichungen zu den Referenzdaten betragen etwa 15 %, in Einzelfällen treten Abweichungen bis zu 50 % auf.

Die Ergebnisse dieser Studie verdeutlichen, dass die LITA-Technik zur berührungslosen, räumlich hochaufgelösten Messung von Schallgeschwindigkeit und Viskosität in Ölen und ähnlichen Stoffen geeignet ist. Die aktuellen Forschungsschwerpunkte bilden sowohl die Anwendung der LITA-Technik zur Messung der Temperaturleitfähigkeit als auch die Durchführung weiterer Messungen, bei denen insbesondere das Signal-Rausch-Verhältnis und die Temperaturregulierung zu verbessern ist. Darüber hinaus wird die Entwicklung der Technik zu einem Single-Shot-Verfahren zur berührungslosen, räumlich und zeitlich hochaufgelösten Schallgeschwindigkeits-, Viskositäts- und Temperaturleitfähigkeitsmessung angestrebt.

## Dankesworte

Die Studie entstand im Rahmen einer Dissertation. Für die Unterstützung der Universität Rostock und der Robert Bosch GmbH Stuttgart sei an dieser Stelle gedankt.

## Literatur

- Cummings E. B., Leyva I. A. und Hornung H. G., 1995: Laser-induced thermal acoustics (LITA) signals from finite beams. *APPLIED OPTICS* **34(18): 3290-3302**
- Alderfer D. W., Herring G. C., Danehy P. M., Mizukaki T. und Takayama K., 2005: Submicrosecond temperature measurement in liquid water with laser-induced thermal acoustics. *APPLIED OPTICS* **44(14): 2818-2826**
- Boyd R. W., 1992: Nonlinear Optics. Academic Press, San Diego, Calif.
- Stampanoni-Panariello A. C., 2003: Laser-induced Gratings in the Gas Phase: Formation Mechanisms and Applications for Diagnostics. *DISS. ETH NO. 14972, ETH Zurich*
- Eckbreth A. C., 1988: Laser Diagnostics for Combustion Species and Temperature. Abacus, Cambridge, Mass.
- Schlegel J. Giezendanner-Thoben R. und Leder A., 2007: Kontinuierliche Wavelet-Transformation zur Frequenzanalyse von LITA-Signalen. Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik 15. Fachtagung der GALA e.V., S. 40.1 – 40.8
- Leonhardt R., 2008: Persönliche Mitteilung R. Leonhardt, Robert Bosch GmbH Stuttgart.