

Messverfahren für die akustische Absorption in reinen Fluiden zur Bestimmung der Volumenviskosität

Von der Fakultät für Elektrotechnik, Informatik und Mathematik der Universität Paderborn

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)

genehmigte Dissertation

von

Leander Claes, M.Sc.

Erster Gutachter:Prof. Dr.-Ing. Bernd HenningZweiter Gutachter:Prof. Dr.-Ing. habil. Jadran VrabecTag der mündlichen Prüfung:15.02.2021

Paderborn, Februar 2021

Diss. EIM-E/359

Big whirls have little whirls that feed on their velocity, and little whirls have lesser whirls and so on to viscosity.

— Lewis F. Richardson [Ric22]

Vorwort

Diese Arbeit entstand im Rahmen meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter im Fachgebiet Elektrische Messtechnik an der Universität Paderborn. An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich auf dem Weg bis hierher begleitet haben und damit zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Zunächst gilt mein Dank Prof. Dr. Bernd Henning für die Betreuung meiner Arbeit, für die wichtigen Hinweise zur Strukturierung und Formulierung der schriftlichen Fassung sowie für die Möglichkeit meine Forschungsarbeiten weitestgehend frei zu gestalten. Die hier vorgestellten Arbeiten basieren auf einer Kooperation des Fachgebiets Elektrische Messtechnik mit dem Lehrstuhl für Thermodynamik und Energietechnik an der Universität Paderborn bzw. dem Fachgebiet Thermodynamik und Thermische Verfahrenstechnik an der Technischen Universität Berlin, geleitet von Prof. Dr. Jadran Vrabec. Ihm danke ich für die Erstellung des Zweitgutachtens sowie für die vielen interessanten Einblicke in die Thermodynamik von Fluiden sowie in die Molekulardynamik-Simulation. Außerdem ermöglichte er das gemeinsame Arbeiten an den Experimentalaufbauten der Thermodynamik trotz der wiederholt erfolglosen Versuche, unsere Arbeiten zur Bestimmung der Volumenviskosität durch einen Forschungsträger fördern zu lassen. In dem Kontext gebührt mein Dank auch René Chatwell, meinem Mitstreiter bei der Antragserstellung, der außerdem die in dieser Arbeit gezeigten, simulativ ermittelten Werte für die Volumenviskosität bestimmt hat, sowie Elmar Baumhögger, der die große Anzahl an Messungen ermöglichte und begleitete. Weiterhin gilt mein Dank allen Kolleginnen und Kollegen im Fachgebiet. Besonders hervorgehoben sei an dieser Stelle zunächst Dr. Manuel Webersen, der mich seit dem ersten Tag beim Studium der Elektrotechnik begleitet, und mir durch sein unergründliches Wissen um diverse – vor allem serpentine – Programmiersprachen die Werkzeuge näher gebracht hat, mit denen diese Arbeit gebaut wurde. Außerdem sei Sarah Johannesmann genannt, die es schafft, durch beiläufige Nebensätze unabsichtlich große Probleme zu lösen. Nadine Feldmann muss sich schon seit über fünf Jahren ein Büro mit mir teilen, durchlebt mit mir die Höhen und Tiefen der wissenschaftlichen Arbeit und ist mir stets eine große Hilfe, vor allem um aus dem groben

Vorwort

Umriss einer Idee einen sinnvollen Ansatz zu formulieren. Nicht unerwähnt bleiben sollen auch die Kollegen Tim Hetkämper und Henning Zeipert, die schon mit ihren studentischen Arbeiten dazu beigetragen haben, dass überhaupt Signale ausgewertet werden können bzw. dass verirrte Wellen den Weg zur Quelle nicht wieder zurück finden. Weiterhin danke ich den ehemaligen Studenten Malte Becker, Moritz Hülskämper, Carolin Santüns, Hanna Schmiegel und Carolin Steidl des Fachgebiets Elektrische Messtechnik sowie Torben Rüther und Mazloum Sheikh Ayoub des Lehrstuhls für Thermodynamik und Energietechnik, die studentische Arbeiten im Kontext der akustischen Absorptionsmessung angefertigt haben. Ein großer Dank gilt auch den ehemaligen Mitarbeitern des Fachgebiets Elektrische Messtechnik, insbesondere Sergei Olfert, Dr. Fabian Bause, Dr. Jens Rautenberg und Dr. Dietmar Wetzlar, die mich schon als Student betreut und mich für das Fachgebiet "akquiriert" haben.

Fachgebietsübergreifend möchte ich mich weiterhin bei Jan Gierse und Peter Koppa vom Direct Manufacturing Research Center für die Einblicke in additive Fertigungstechnologien bedanken sowie bei Dr. Christof Eigner von der Arbeitsgruppe Integrierte Quantenoptik für seine Unterstützung bei der Beschreibung teilchenphysikalischer Prozesse. Weiterhin bedanke ich mich beim Team des Paderborn Center for Parallel Computing für die bereitgestellten Rechenressourcen, ohne die ich sicherlich noch heute auf die hier gezeigten Simulationsergebnisse warten würde, sowie bei den Mitarbeitern des Zentrums für Informations- und Medientechnologien für die sichere Aufbewahrung meiner Daten. Abschließend geht mein Dank an Tim Hetkämper und Ann-Christin Schenk für ihre vielen, sehr nötigen Hinweise zu einem vollkommen disjunkten Forschungsthema (der deutschen Rechtschreibung) sowie an Alexandra Asanovna Elbakyan für ihre Anstrengungen Wissen frei zugänglich zu machen.

Kurzfassung

Die vollständige Beschreibung fluiddynamischer und akustischer Vorgänge setzt voraus, dass die Eigenschaften des Fluids hinlänglich bekannt sind. Während Fluidkenngrößen, wie etwa die Schallgeschwindigkeit oder die Scherviskosität, für viele Flüssigkeiten über weite Bereiche des thermodynamischen Zustandsraums bekannt sind, existieren für die Volumenviskosität nur eine geringe Anzahl Messdaten. In dieser Arbeit wird daher ein Messverfahren zur selektiven Bestimmung der Volumenviskosität von Flüssigkeiten, basierend auf der Absorption von Ultraschallwellen, entwickelt und realisiert. Schwerpunkte bilden dabei der simulationsgestützte Entwurf von Algorithmen zur Auswertung der Messsignale sowie die Analyse und Weiterentwicklung einer Messanordnung, basierend auf dem Puls-Echo-Verfahren. Neben der Absorption im Fluid treten dabei weitere Effekte (zum Beispiel Beugung oder unvollständige Reflexion) auf, die das akustische Signal schwächen oder anderweitig beeinflussen. Die Entwicklung von Verfahren zur Trennung dieser Effekte von der akustischen Absorption bildet daher einen weiteren Schwerpunkt dieser Arbeit. Abschließend wird die Volumenviskosität aus der gemessenen akustischen Absorption für unterschiedliche Fluide in verschiedenen thermodynamischen Zuständen unter Zuhilfenahme anderer bekannter Fluidkenngrößen bestimmt sowie eine Unsicherheitsbetrachtung durchgeführt.

Abstract

The prerequisite for a complete description of fluid dynamic and acoustic processes is that all properties of the fluid are known. While fluid parameters such as the speed of sound or the shear viscosity are known for many liquids over a wide range of thermodynamic states, only limited measurement data exist for the bulk viscosity. In this thesis, a measurement method for the selective determination of the bulk viscosity of liquids, based on the absorption of ultrasonic waves, is developed and implemented. The focus is on the simulation-driven design of algorithms for processing the measurement signals as well as the analysis and further development of a measurement set-up based on the pulse-echo method. In addition to absorption in the fluid, there are other effects (for example diffraction or incomplete reflection) that weaken or otherwise influence the acoustic signal. Therefore, the development of procedures to separate these effects from acoustic absorption is another focus of this work. The bulk viscosity is determined from the measured acoustic absorption for different fluids in different thermodynamic states. An uncertainty analysis of the measured quantities concludes this thesis.

Inhaltsverzeichnis

Vo	orwor	t		v
Kı	urzfa	ssung		vii
Ał	ostra	ct		ix
Ve	erzeio	chnis d	er verwendeten Abkürzungen und Symbole	xxiii
1	Einl	eitung		1
2	Gru	ndlage	n	5
	2.1	Verlus	stbehaftete akustische Wellen	5
		2.1.1	Schallfeldkenngrößen	5
		2.1.2	Die verlustbehaftete Wellengleichung	6
		2.1.3	Dispersionsbeziehung für verlustbehaftete akustische Wellen	11
		214	Ausbreitungsgeschwindigkeiten akustischer Wellen	11 13
	2.2	Schall	felder lokal begrenzter Quellen	15 15
3	Sta	nd des	Wissens und der Technik	21
	3.1	Stand	des Wissens anderer Fluidkenngrößen	21
		3.1.1	Scherviskosität	21
		3.1.2	Wärmeleitfähigkeit	23
		3.1.3	Isobare und isochore Wärmekapazität	24
	3.2	Messv	verfahren für akustische Absorption und Volumenvis-	
		kositä	t	24
		3.2.1	Akustische Messverfahren	25
		3.2.2	Optische Messverfahren	26
		3.2.3	Messdaten	29
	3.3	Versu	chsaufbau zur Schallgeschwindigkeitsmessung	33
4	Sigr	nalvera	rbeitung zur Absorptionsbestimmung	37
	4.1	Unabl	hängige Messung der Volumenviskosität	38

Inhaltsverzeichnis

	4.2	Verfal	nren zur Bestimmung der akustischen Absorption	39
		4.2.1	Absorptionsbestimmung über die akustische Signal-	
			intensität	40
		4.2.2	Auswertung der Energiegeschwindigkeit	41
		4.2.3	Auswertung des Absorptionsspektrums	45
		4.2.4	Gewöhnliche Momente des Signalspektrums	47
		4.2.5	Verschiebung des spektralen Schwerpunkts	51
	4.3	Simul	ative Evaluation der Algorithmen zur Absorptionsbe-	
		stimm	ung	53
		4.3.1	Abnahme der akustischen Signalintensität	55
		4.3.2	Auswertung des Absorptionsspektrums	56
		4.3.3	Gewöhnliche Momente des Signalspektrums	58
		4.3.4	Verschiebung des spektralen Schwerpunkts	58
	4.4	Auswa	ahl eines Verfahrens zur Absorptionsbestimmung	61
5	Ana	lyse ur	nd Weiterentwicklung der Messanordnung	67
	5.1	Einflu	ss der Schallfeldgeometrie auf die Absorptionsmessung	67
	5.2	Ansät	ze zur Behandlung systematischer Messabweichungen	
		bei de	er Absorptionsmessung	72
		5.2.1	Geschlossene Zylinderanordnung	72
		5.2.2	Symmetrische Abstrahlcharakteristik	74
		5.2.3	Erhöhung der Sendefrequenz	75
		5.2.4	Bezugnahme auf Referenzdaten	76
	5.3	Modif	ikation der Messanordnung zur Verringerung der sys-	
		temat	ischen Messabweichungen	77
		5.3.1	Diffusorstrukturen	77
		5.3.2	Überarbeitung der Schallwandlerfassung	83
		5.3.3	Evaluation der überarbeiteten Messanordnung $\ .$.	92
6	Bes	timmu	ng der akustischen Absorption und der Volumen-	
	visk	osität		97
	6.1	Absch	nätzung nichtlinearer Effekte	98
	6.2	Refere	enzdatenbasierte Messung	103
		6.2.1	Interpolation der Referenzdaten für die Volumenvis-	
			kosität	104
		6.2.2	Messung mit der unveränderten Messanordnung	105
		6.2.3	Messung mit der überarbeiteten Messanordnung	119
	6.3	Absch	ätzung der Messunsicherheiten	126
		6.3.1	Abschätzung der Unsicherheit der gemessenen Ab-	
			sorption	126

		6.3.2 Unsicherheit der ermittelten thermoviskosen Verluste	129
		6.3.3 Unsicherheit der ermittelten Volumenviskosität	132
	6.4	Vergleich mit Ergebnissen der Molekulardynamik-Simulation	135
7	Zusa	ammenfassung und Ausblick	139
Lit	erati	urverzeichnis	145
Α	Erga	inzende Betrachtungen	161
	A.1	Umformungen mathematischer Ausdrücke	161
		A.1.1 Kosinus und Sinus des halben Arkustangens	161
		A.1.2 Schwerpunkt der Kreuzkorrelationsfunktion $\ . \ . \ .$	162
	A.2	Skalares Potenzial für verlustbehaftete akustische Wellen $% {\mathbb{R}} = {\mathbb{R}} + {\mathbb{R}}$.	164
	A.3	Einfluss der Signalbandbreite auf die Nahfeldeigenschaften	164
	A.4	Eigenschaften gewöhnlicher Momente des Spektrums akus-	
		tischer Signale	167
		A.4.1 Gaußförmiges Ausgangsspektrum	167
		A.4.2 Rechteckiges Ausgangsspektrum	169
	A.5	Identifikation von mehrparametrigen Absorptionsmodellen	170
	A.6	Einfluss der Bandbreite bei Auswertung der Signalintensität	172
В	Sim	ulation von Schallfeldern	175
	B.1	Diskretisierung der Grundgleichungen	175
		B.1.1 Eindimensionale Simulation	176
		B.1.2 Mehrdimensionale Simulation	179
	B.2	Randbedingungen	182
	B.3	Realisierung	182
	B.4	Performance	185
С	Tab	ellarische Übersicht der Messergebnisse	187

Abbildungsverzeichnis

1.1 1.2	Zweidimensionale Prinzipdarstellung der volumeninvarian- ten Formänderung (links) und der forminvarianten Volu- menänderung (rechts) eines Fluidelements	1 3
2.1	Frequenzabhängigkeit der Absorption eines Beispielmediums mit hoher Absorption ($c = 1500 \mathrm{m s^{-1}}$, $\rho_0 = 1000 \mathrm{kg m^{-3}}$, $\mu = 1 \mathrm{Pa s}$): exakte Lösung und Näherungen	13
2.2	Verlauf der Phasengeschwindigkeit über die Frequenz für ein Beispielmedium mit hoher Absorption ($c = 1500 \text{ m s}^{-1}$, $\rho_0 = 1000 \text{ kg m}^{-3}$, $\mu = 1 \text{ Pa s}$); exakte Lösung und verschiedene Näherungen	15
2.3	Nanerungen	19
2.4	lenzahl $k \approx 4188,8 \text{ m}^{-1}$	17 18
3.1	Veröffentlichte Messdaten für die Volumenviskosität von Wasser.	30
3.2	Veröffentlichte Messdaten für die Volumenviskosität von Methanol	32
3.3	Veröffentlichte Messdaten für die Volumenviskosität von n-Hexan a) und Toluol b).	32
3.4	Aufbau des Messsystems zur Schallgeschwindigkeitsbestim- mung nach Dubberke et al. [Dub14].	34

Abbildungsverzeichnis

3.5	Mit dem Messsystem zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung (Abbildung 3.4) aufgenommenes Messsignal. Das Messme- dium ist Wasser bei Umgebungsdruck und 300 K.	35
4.1	Verlauf der Energiegeschwindigkeit über die Frequenz für ein Beispielmedium mit hoher Absorption ($c = 1500 \text{ m s}^{-1}$, $\rho_0 = 1000 \text{ kg m}^{-3}$, $\mu = 1 \text{ Pa s}$, $\mu_{\text{vis}} = 0.5 \text{ Pa s}$); exakte Lösung und verschiedene Näherungen.	44
4.2	Schema eines Messaufbaus mit zwei Reflektoren zur Schall- geschwindigkeitsbestimmung.	53
4.3	Simulativ erzeugtes Messsignal aus einer eindimensiona- len Simulationsumgebung (Doppelreflektoranordnung, $c = 1500 \text{ m s}^{-1}$, $\rho = 1000 \text{ kg m}^{-3}$, $\mu = 5 \text{ mPa s}$).	54
4.4	Absorptionsspektren bestimmt aus simulativ erzeugten Si- gnalen (siehe Abbildung 4.3) für unterschiedlich große ther- moviskose Verluste μ .	57
4.5	Spektraler Schwerpunkt der Empfangssignale nach zurückge- legter Entfernung z (siehe Abbildung 4.3) für unterschiedlich große thermoviskose Verluste μ .	59
4.6	Gemessene thermoviskose Verluste für Methanol bei un- terschiedlichen Temperaturen (* 221 K, * 244 K, * 300 K, • 350 K und * 400 K) bestimmt mit den zuvor vorgestell- ten Verfahren zur Auswertung der Empfangssignale einer Puls-Echo-Messung	63
5.1	Aufbau des stark vereinfachten Simulationsmodells und ther- moviskose Verluste bestimmt aus simulativ erzeugten Mess- signalen	68
5.2	Aufbau des Simulationsmodells mit Schallwandlerfassung und thermoviskose Verluste bestimmt aus simulativ erzeug- ten Messsignalen	71
5.3	Simulationsmodell für die geschlossene Zylinderanordnung und thermoviskose Verluste bestimmt aus simulativ erzeug- ten Messsignalen für unterschiedliche Fluidparameter	73
5.4	Modell für den Probekörper für die Struktur mit Quader- anordnung mit stochastisch gleichverteilten Höhen.	78
5.5	Frequenz- bzw. Wellenlängenabhängigkeit des Reflexions- verhaltens der <i>Skyline</i> -Struktur bei senkrechtem Einfall	80

5.6	Schlierenaufnahmen des Reflexionsvorgangs einer akusti- schen Welle mit einer Mittenfrequenz von 2 MHz an der	
	Skyline-Struktur.	82
5.7	Schematische Darstellung des überarbeiteten Reflektorele- ments mit nachgelagerter Diffusorstruktur (links) und Mo- dell für den Horstellungsprozess (rechts)	83
58	Darstellung der ursprünglichen Schallwandlerfassung	84
5.9	Simulationsergebnisse für Körperschallsignale in der koni- schen Schallwandlerfassung mit unterschiedlichen Öffnungs-	04
	winkeln β	85
5.10	Überarbeitete untere Schallwandlerfassung mit paraboli- scher Form.	86
5.11	Simulationsergebnisse für Körperschallsignale der Schall- wandlerfassung mit paraboloider Form.	88
5.12	Konzept der Schallwandlerfassung zur symmetrischen Ab- strahlung in beide Richtungen.	89
5.13	Ringelement mit eingesetzten Federkontaktstiften zur Kon- taktierung und Abschattung des Schallwandlers	90
5.14	Schnittdarstellung der Schallwandlerfassung zur symmetri- schen Abstrahlung aus Richtung der parabolischen unteren Hälfte (oben) und des eingesetzten Bingelements (unten)	91
5.15	Vergleich des ersten Empfangssignals (Methanol bei etwa 300 K und 20 MPa) der ursprünglichen (a) und der überar- beiteten Messenerdnung (b)	02
5.16	Thermoviskose Verluste für Methanol bei $T \approx 300 \mathrm{K}$ gemessen mit der unveränderten und der überarbeiteten Messan-	92
	ordnung sowie Referenzdaten.	94
6.1	Dreitor-Modell für einen piezoelektrischen Schallwandler mit Belastung der mechanischen Tore durch die mechanische	
	Impedanz des Zielfluids.	100
6.2	Betrag der elektrischen Impedanz des realen Schallwandlers sowie des identifizierten Mason-Modells.	101
6.3	Minimale thermoviskose Verluste μ für lineare Schallausbreitung in Abhängigkeit der spezifischen akustischen Impedanz	100
6.4	des Mediums	102
	schiedlichen Anzahlen an Koeffizienten N_{b_i}	108

Abbildungsverzeichnis

6.5	Vergrößerte Ansicht der Darstellung des identifizierten Werts des Koeffizienten b_{μ} über die RMSD E_{μ} unterschiedlicher Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ mit der expliziten Realisierung von vier Kandidaten für $P(c, \rho_0)$. Farblegende wie in Abbil-	
	dung 6.4	110
6.6	Darstellung der identifizierten Vorschrift zur Korrektur der systematischen Messabweichungen (Status A) in Abhängig- keit der Schallgeschwindigkeit und der Dichte	111
67	Ermittelte thermoviskose Verluste für Wasser (a) und Me-	111
0.1	thanol (\circ) und im Vergleich mit den Referenzdaten	114
6.8	Darstellung des durch die Referenzdaten gegebenen Mess- bereichs für die Messanordnung in Status A im Schallge- schwindigkeit-Dichte-Raum. Auswertbare (•) und nicht aus- wertbare (•) Messdatensätze basierend auf dem Messbereich und dem Toleranzbereich (2 % relative Abweichung)	115
6.9	Darstellung des durch die Referenzdaten gegebenen Mess- bereichs für die Messanordnung in Status B im Schallge- schwindigkeit-Dichte-Raum. Auswertbare (•) und nicht aus- wertbare (•) Messdatensätze basierend auf dem Messbereich	110
0.10	und dem Toleranzbereich (2 % relative Abweichung).	116
6.10	Ermittelte thermoviskose Verluste von Methanol (•), 1-Pro- panol (•) und 2-Propanol (•) bei zwei Isothermen und varia-	
	blem Druck sowie Vergleichsdaten (×) für 1-Propanol	117
6.11	Druckabhängige Volumenviskosität von n-Hexan (*) und n-Octan (*) bei $T \approx 300 \mathrm{K}$ sowie Vergleichsdaten (*) für	110
6.12	n-Hexan	118
	beitete Messanordnung	121
6.13	Darstellung der identifizierten Vorschrift zur Korrektur der systematischen Messabweichungen (überarbeitete Messan- ordnung) in Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit und der	
	Dichte	122
6.14	Darstellung des durch die Referenzdaten gegebenen Mess- bereichs für die überarbeitete Messanordnung im Schall- geschwindigkeit-Dichte-Raum. Auswertbare (•) und nicht auswertbare (•) Messdatensätze basierend auf dem Messbe-	
	reich und dem Toleranzbereich (2 $\%$ relative Abweichung).	123

6.15	Mit der überarbeiteten Messanordnung ermittelte thermo-	
	viskose Verluste von n-Hexan, n-Octan und n-Decan bei	
	etwa 303 K	124
6.16	Mit der überarbeiteten Messanordnung bestimmte druck-	
	abhängige Volumenviskosität von verschiedenen n-Alkanen	
	bei etwa 303 K sowie Vergleichsdaten (×) für n-Hexan	125
6.17	Ergebnis der Monte-Carlo-Simulation zur Bestimmung der	
	Unsicherheit des gemessenen Absorptionsparameters für	
	unterschiedlich große thermoviskose Verluste μ (10 mPa s ,	
	1 5 mPa s und $10 mPa s$)	127
6.18	Schematische Darstellung der Zusammensetzung der Mess-	
	unsicherheit der ermittelten thermoviskosen Verluste	129
6.19	Unsicherheit der Messung der thermoviskosen Verluste ver-	
	schiedener Alkohole bei etwa 300 K (• Methanol, • 1-Propanol	
	und • 2-Propanol; vgl. Abbildung 6.10 b)	132
6.20	Unsicherheit der Messung der Volumenviskosität verschie-	
	dener n-Alkane bei etwa 303 K (vgl. Abbildung 6.16)	134
6.21	Vergleich von Messdaten für die Volumenviskosität von Me-	
	thanol bei 220 K und mittels Molekulardynamik-Simulation	
	ermittelten synthetischen Daten	136
A 1		
A.1	Schallwechseldruckamplitude auf der akustischen Achse ei-	
	nes Kolbenschwingers bei unterschiedlichen relativen Signal-	100
1.0	bandbreiten b_{rel} .	166
A.2	Absolute Messabweichung bei Auswertung der Signalinten-	
	sitat zur Absorptionsbestimmung hervorgerufen durch eine	179
	endlich grobe Signalbandbreite o_{rel} .	173
B.1	Schematische Darstellung der versetzten Zeit- und Raum-	
	gitter zur Schallfeldsimulation mit der Methode der finiten	
	Differenzen (FDTD)	176
B.2	Ausschnitt aus dem Klassendiagramm des Pakets pyfds zur	
	Feldsimulation mit der FDTD Methode.	183
B.3	Laufzeitvergleich der Simulation eines akustischen Wellen-	
	leiters mit $pyfds$ und $CFS++$	186

Tabellenverzeichnis

3.1	Übersicht über die verwendeten Zustandsgleichungen für die Scherviskosität und deren Unsicherheiten.	22
3.2	Übersicht über die verwendeten Zustandsgleichungen für die Wärmeleitfähigkeit und deren Unsicherheiten	23
3.3	Übersicht über die verwendeten Zustandsgleichungen zur Bestimmung der spezifischen isochoren und isothermen Wär- mekapazitäten.	20
6.1	Parameter der Modelle für die Volumenviskosität (Glei- chung 6.10) im Bereich der Referenzmessungen.	105
6.2	Ubersicht über die zur Identifikation der Korrekturfunkti- on für die systematischen Messabweichungen verwendeten Stützstellen.	107
6.3	Werte der Koeffizienten der Referenzierungsvorschrift (Glei- chung 6.15) sowie deren Einheiten für die Messanordnung	
6.4	im Status A	111
65	in Status B	113
0.0	für die systematischen Messabweichungen der überarbeiteten Messanordnung verwendeten Stützstellen	119
6.6	Werte der Koeffizienten der Referenzierungsvorschrift (Glei- chung 6.18) sowie deren Einheiten für die überarbeitete	110
67	Messanordnung	120
0.1	Unsicherheit des gemessenen Absorptionsparameters a	128
6.8	ermittelten Größen für die untersuchten Fluide.	130
6.9	Beispielhafte Unsicherheiten der thermoviskosen Verluste und der Volumenviskosität für unterschiedliche Fluide	133
C.1	Messergebnisse für Wasser.	187

Tabellenverzeichnis

C.2	Messergebnisse für Methanol.	188
C.3	Messergebnisse für 1-Propanol	190
C.4	Messergebnisse für 2-Propanol	190
C.5	Messergebnisse für n-Hexan.	191
C.6	Messergebnisse für n-Octan.	192
C.7	Messergebnisse für n-Decan.	193
C.8	Messergebnisse für Toluol (Methylbenzen)	195

Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen und Symbole

Abkürzungen

Abkürzung	Bedeutung
EOS	Zustandsgleichung, von engl. equation of state
FDTD	Finite Differenzen im Zeitbereich, von engl. finite
	differences in time domain
FEM	Finite Elemente Methode
PTFE	Polytetrafluorethylen
PZT	Blei-Zirkonat-Titanat
RMSD	Wurzel der mittleren quadratischen Abweichungen,
	von engl. root-mean-square deviation
SLS	Selektives Laserschmelzen

Mathematische Symbole und Konventionen

Symbol	Bedeutung
arctan ()	Arkustangens
$J_{\nu}()$	Bessel-Funktion erster Gattung, Ordnung ν
$\operatorname{div}()$	Divergenz
$\exp\left(ight)$	Exponentialfunktion zur Basis e
$\operatorname{grad}\left(\right)$	Gradient
Im ()	Imaginärteil
$\cos\left(ight)$	Kosinus
$\operatorname{coth}()$	Kotangens hyperbolicus
$\operatorname{csch}\left(\right)$	Kosekans hyperbolicus
$\Phi_{xy}()$	Kreuzkorrelations function von \boldsymbol{x} und \boldsymbol{y}

\mathbf{Symbol}	Bedeutung
Δ	Laplace-Operator (skalar)
$ abla^2$	Laplace-Operator (vektoriell)
$\partial_y x$	Partielle Ableitung von x nach y (Euler-Notati- on [Mor36])
$\partial_{yz} x$	Partielle Ableitung von x nach y und z (Euler-Nota-
	tion $[Mor36])$
$P(x, y, \dots)$	Polynom in x, y , usw.
$\operatorname{Re}\left(ight)$	Realteil
$\operatorname{rot}\left(ight)$	Rotation
$\sin\left(ight)$	Sinus
$\mathrm{d}x$	Substantielle Ableitung von x

Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen und Symbole

Formelzeichen

Zeichen	Bedeutung	Einheit
a	Quadratisch frequenzabhängiger Absorpti- onsparameter (α/ω^2)	$\mathrm{s}^2\mathrm{m}^{-1}$
a_{ij}	Koeffizient des Volumenviskositätsmodells	${ m m}^3{ m kg}^{-1}$
a_n	Zur Potenz n frequenzabhängiger Absorptionsparameter	$s^n m^{-1}$
$a_{\rm mess}$	Gemessener quadratisch frequenzabhängi- ger Absorptionsparameter	$\mathrm{s}^2\mathrm{m}^{-1}$
A	Fläche des Schallwandlers	m^2
$oldsymbol{A}_{}$	Matrix (dünn besetzt) für FDTD Simulati-	
	on	
b	Bandbreite	s^{-1}
b_i	Koeffizient eines Polynoms	
$b_{ m rel}$	Relative Bandbreite	
С	Schallgeschwindigkeit	${ m ms^{-1}}$
c_{e}	Energiegeschwindigkeit	${ m ms^{-1}}$
$c_{ m gr}$	Gruppengeschwindigkeit	${ m ms^{-1}}$
$c_{\rm p}$	Spezifische isobare Wärmekapazität	${ m Jkg^{-1}K^{-1}}$
$c_{\rm ph}$	Phasengeschwindigkeit	${ m ms^{-1}}$
$c_{\rm v}$	Spezifische isochore Wärmekapazität	${ m Jkg^{-1}K^{-1}}$
C	Lichtgeschwindigkeit im Medium	ms^{-1}
C_0	Statische Kapazität	F

Zeichen	Bedeutung	Einheit
d	Dicke des Schallwandlers	m
d(z)	Unbekannter, frequenzunabhängiger Dämp-	
	fungsfaktor	
e	Eulersche Zahl	
e	Signalenergie	$\rm V^2s$
$e_{\rm ref}$	Referenzsignalenergie	${\rm V}^2{\rm s}$
$e_{\rm rel}$	Relative Signalenergie	
$\vec{e_i}$	Einheitsvektor in Richtung i	
E	Energiedichte	${ m Jm^{-3}}$
\bar{E}	Mittlere Energiedichte	${ m J}{ m m}^{-3}$
$f_{ m m}$	Mittenfrequenz	Hz
F	Brennpunkt	m
F_i	Kraft am Tor i	Ν
\hbar	Reduziertes Plancksches Wirkungsquantum	Js
h_{33}	Piezoelektrischer Koeffizient in Dickenrich-	${ m V}{ m m}^{-1}$
	tung	
i	Elektrischer Strom	А
$I(\Omega)$	Spektrale Intensität	${ m Wm^{-2}}$
j	Imaginäre Einheit	
J()	Kostenfunktion	
k	Kreiswellenzahl	m^{-1}
\vec{k}	Wellenzahlvektor	m^{-1}
k33	Elektromechanischer Kopplungsfaktor in	
	Dickenrichtung	
k_i	<i>i</i> te Komponente des Wellenzahlvektors	m^{-1}
\overline{K}	Kreiswellenzahl, optisch	m^{-1}
\vec{K}	Wellenzahlvektor optisch	m^{-1}
m_{i}	Gewöhnliches Moment der Ordnung <i>i</i>	
$\frac{n}{n}$	Nahfeldlänge	m
N	Anzahl der Stützstellen	
Nh	Anzahl der von Null verschiedenen Koeffi-	
- • <i>0i</i>	zienten b_i eines Polynoms	
$N_{\rm Bo}$	Akustische Revnolds-Zahl	
N _{vort}	Anzahl der Knoten in der Simulation	
\tilde{n}	Wechseldruck	Pa
r p̃	Druck	Pa
$r = n_0$	Stationärer Druck	Pa
PU		10

Zeichen	Bedeutung	Einheit
p'_0	Schallwechseldruckamplitude einer Punkt-	Pam
10	quelle	
p_0''	Schallwechseldruckamplitude einer Flächen-	${\rm Pa}{\rm m}^{-1}$
- 0	quelle	
p	Vektor mit Wechseldruckwerten für FDTD	Pa
	Simulation	
q_{ab}	Verhältnis von der Quantisierung in a zur	$[a][b]^{-1}$
	Quantisierung in b	
r	Radius (Kugelkoordinaten)	m
\vec{r}	Ortsvektor	m
$\vec{r_{q}}$	Ortsvektor der Quelle	m
\overline{R}	Radius des Kolbenschwingers	m
$R_{ m i}$	Innenwiderstand des Signalgenerators	Ω
s	Entropieänderung	$\rm JK^{-1}$
\tilde{s}	Entropie	$ m JK^{-1}$
s_0	Stationäre Entropie	$\rm JK^{-1}$
$()_{s}$	Annahme konstanter Entropie	
S^{-}	Energieflussdichte	${ m J}{ m m}^{-2}{ m s}^{-1}$
$ar{S}$	Mittlere Energieflussdichte	${\rm J}{\rm m}^{-2}{\rm s}^{-1}$
t	Zeit	S
$t_{ m comp}$	Rechenzeit	S
t_{Δ}	Zeitschrittweite (FDTD)	S
T_{-}	Temperaturänderung	Κ
$ ilde{T}$	Temperatur	Κ
T_0	Stationäre Temperatur	Κ
$T_{ m krit}$	Temperatur im kritischen Punkt	Κ
$T_{\rm norm}$	Normierte Temperatur	
u	Elektrische Spannung	V
$u_{ m gen}$	Generatorspannung	V
u_{\max}	Maximale Signalstärke	V
$u_{\rm max,ref}$	Maximale Referenzsignalstärke	V
$u_{\rm max,rel}$	Relative maximale Signalstärke	
u_x	(Standard-) Unsicherheit der Messgröße \boldsymbol{x}	[x]
$U(\mathrm{j}\omega,z)$	Spektrum des Signals $u(t, z)$ am Ort z	[u]s
$U(\omega,z)$	Spektrale Verteilung, Betragsspektrum am	[u]s
	Ort $z (U(j\omega, z))$	
$U_0(\omega)$	Ausgangsspektrum	$[u_0]s$

Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen und Symbole

Zeichen	Bedeutung	Einheit
Û	Vorfaktor einer spektralen Verteilung	[u]s
v	Amplitude der Wechselschnelle	${ m ms^{-1}}$
\vec{v}	Wechselschnelle	${ m ms^{-1}}$
$\tilde{\vec{v}}$	Schnelle	${\rm ms^{-1}}$
$\vec{v_0}$	Stationäre Schnelle	${ m ms^{-1}}$
v_i	Schnelle am Tor i	${ m ms^{-1}}$
$oldsymbol{v}_i$	Vektor mit Wechselschnellewerten (Kompo- nente i) für FDTD Simulation	${\rm ms^{-1}}$
x	Koordinate in <i>x</i> -Richtung	m
x_{Δ}	Örtliche Diskretisierung (FDTD)	m
y	Koordinate in y -Richtung	m
y_{Δ}	Örtliche Diskretisierung (FDTD)	m
z	Koordinate in z -Richtung	m
Ζ	Spezifische akustische Impedanz	$\rm kgm^{-2}s^{-1}$
$Z_{\rm el,m}$	Elektrische Impedanz des Mason-Modells	Ω
$Z_{\rm el,mess}$	Gemessene elektrische Impedanz	Ω
$Z_{\rm m}$	Mechanische Impedanz	${\rm kgs^{-1}}$
$Z_{\rm piezo}$	Spezifische akustische Impedanz des Schall- wandlermaterials	$\rm kgm^{-2}s^{-1}$
α	Akustische Absorption	m^{-1}
$\alpha_{\rm mess}$	Gemessene akustische Absorption	m^{-1}
β	Öffnungswinkel der Schallwandlerfassung	0
Γ	Brillouin-Linienbreite	s^{-1}
ε_{33}	Permittivität in Dickenrichtung	${ m AsV^{-1}m^{-}}$
θ	Streuwinkel	0
ϑ	Polarwinkel (Kugelkoordinaten)	0
λ	Wellenlänge	m
$\lambda_{ m rel}$	Relative Wellenlänge	
μ	Thermoviskose Verluste	Pas
$\mu_{ m d}$	Absolute Abweichung der thermoviskosen Verluste	Pas
$\mu_{\rm mess}$	Gemessene thermoviskose Verluste	Pas
$\mu_{ m ref}$	Referenzdaten für thermoviskose Verluste	Pas
$\mu_{ m s}$	Scherviskosität	Pas
$\mu_{ m v}$	Volumenviskosität	Pas
$\mu_{ m vis}$	Viskose Verluste $(\frac{4}{3}\mu_{\rm s} + \mu_{\rm v})$	Pas
$U_{\rm W}$ 0	Parameter des Volumenviskositätsmodells	Pas

Zeichen	Bedeutung	$\mathbf{Einheit}$
ν	Spezifische Wärmeleitfähigkeit	${ m W}{ m m}^{-1}{ m K}^{-1}$
π	Kreiszahl	
ρ	Wechseldichte	${ m kg}{ m m}^{-3}$
$\tilde{ ho}$	Dichte	${ m kg}{ m m}^{-3}$
$ ho_0$	Stationäre Dichte	${ m kg}{ m m}^{-3}$
$ ho_{ m krit}$	Dichte im kritischen Punkt	${ m kg}{ m m}^{-3}$
$ ho_{ m norm}$	Normierte Dichte	
$()_{a}$	Annahme konstanter Dichte	
au	Zeitverschiebung	S
ϕ	Akustisches Skalarpotenzial	$\mathrm{m}^2\mathrm{s}^{-1}$
φ	Azimutwinkel (Kugelkoordinaten)	0
ω	Kreisfrequenz	s^{-1}
$\omega_{ m m}$	Mittenkreisfrequenz	s^{-1}
$\omega_{ m s}$	Schwerpunktkreisfrequenz	s^{-1}
Ω	Kreisfrequenz, optisch	s^{-1}
Ω_{Δ}	Brillouin-Frequenzverschiebung	s^{-1}

Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen und Symbole

1 Einleitung

Der Begriff Viskosität wird bei der Beschreibung von Fluiden im allgemeinen Sprachgebrauch häufig als Synonym für die Scherviskosität verwendet. Die Scherviskosität eines Fluids äußert sich makroskopisch in einem zähflüssigen Verhalten. Mikroskopisch betrachtet ist die Scherviskosität $\mu_{\rm s}$ ein Maß für Verluste, also der Umwandlung von Bewegungsenergie in thermische Energie, die bei volumeninvarianter Formänderung eines Fluidelements auftreten (Abbildung 1.1, links). Dem gegenüber steht die Volumenviskosität $\mu_{\rm v}$, die ein Maß für Reibungsverluste bei forminvarianter Volumenänderung ist (Abbildung 1.1, rechts) [Smi99; Vis07]. Hier erschließt sich, dass die Volumenviskosität erst dann einen Einfluss auf ein fluiddynamisches Problem hat, wenn das Medium als kompressibel angenommen wird. Inkompressibilität wird jedoch insbesondere bei der Betrachtung von strömungsmechanischen Vorgängen von Flüssigkeiten häufig angenommen, nicht zuletzt, weil die Beschreibung kompressibler Strömungen wesentlich schwieriger zu handhaben ist und weil die Volumenviskosität der Medien häufig unbekannt ist. Dennoch zeigen analytische sowie simulative Untersuchungen von strömungsmechanischen Problemen, dass die Volumenviskosität einen nennenswerten Einfluss auf das jeweilige Ergebnis hat [Wey49; Ema92; Bet98; Bah14]. Insbesondere das Verhalten von Überschallströmungen, welche zum Beispiel bei der Auslegung atmosphärischer Eintrittskörper [Chi15] betrachtet werden müssen, und



Abbildung 1.1: Zweidimensionale Prinzipdarstellung der volumeninvarianten Formänderung (links) und der forminvarianten Volumenänderung (rechts) eines Fluidelements.

1 Einleitung

von Stoßwellen [Gil53] lässt sich ohne Kenntnis der Volumenviskosität nur bedingt vorhersagen.

Problemstellung

Auch bei akustischen Wellen kann die Annahme der Inkompressibilität nicht getroffen werden, da es sich bei einer akustischen Welle selbst um ein Phänomen handelt, das auf der lokalen Kompression eines Mediums basiert [Ler09]. Im einfachsten Fall, der sogenannten ebenen akustischen Welle, findet eine eindimensionale Kompression in Ausbreitungsrichtung statt, bei der durch Scherviskosität und Volumenviskosität Verluste auftreten, also Teile der Bewegungsenergie der akustischen Welle in thermische Energie umgewandelt werden [Rud77]. Entsprechend stellen sowohl Scherviskosität als auch Volumenviskosität Ursachen für akustische Absorption dar. Beide Effekte überlagern sich stets, so dass aus einer gemessenen akustischen Absorption immer nur auf die Summe der Effekte von Scherund Volumenviskosität geschlossen werden kann. Die Bestimmung der Volumenviskosität aus einer gemessenen akustischen Absorption bedingt also unter anderem, dass die Scherviskosität für das Fluid im untersuchten thermodynamischen Zustand bekannt ist.

Die Herausforderung bei der Realisierung eines Verfahrens zur Bestimmung der akustischen Absorption besteht primär in der Trennung der unterschiedlichen Effekte, welche das Messsignal beeinflussen. Abbildung 1.2 zeigt in Baumstruktur die wichtigsten Einflüsse auf. Zunächst sei dabei der Schallwandler sowie der elektrische Signalweg genannt, die das Signal durch ihre frequenzabhängigen Übertragungseigenschaften beeinflussen. Durch die endliche Größe des Schallwandlers weitet sich ein emittiertes, akustisches Signal durch Beugungseffekte auf und bedingt so eine Verringerung der akustischen Signalstärke. Weiterhin werden im Messsystem akustische Reflektoren eingesetzt, die in der Regel nicht ideal sind. Es wird also ein Teil der Energie in das Material des Reflektors transmittiert und so das akustische Signal weiter beeinflusst. Allen in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen liegt, wenn nicht anders vermerkt, weiterhin die Annahme linearer Schallausbreitung und das Superpositionsprinzip zugrunde. Entsprechend muss sichergestellt werden, dass im Messsystem keine nichtlinearen Effekte auftreten. Soll eine messtechnische Bestimmung der akustischen Absorption gelingen, müssen alle diese Einflussgrößen und Effekte analysiert und behandelt werden. Aus der gemessen akustischen Absorption kann dann, sofern die Scherviskosität und die Wärmeleitfähigkeit



Abbildung 1.2: Übersichtsgrafik über die Beeinflussung eines Signals in einem akustischen Absorptionsmesssystem.

bekannt sind, die Volumenviskosität bestimmt werden.

Wissenschaftliche Fragestellungen

Aufbauend auf der Problemstellung ergeben sich eine Anzahl wissenschaftlicher Fragestellungen. Nach einer adäquaten Beschreibung des Stands des Wissens zur Volumenviskosität der in dieser Arbeit untersuchten Fluide sollen zunächst theoretische Fragen zur akustischen Wellenausbreitung in verlustbehafteten Fluiden behandelt werden (Kapitel 4):

- I. Wie ändern sich die Parameter eines akustischen Signals bei der Transmission durch ein verlustbehaftetes, reines Fluid?
- II. Wie können ortsabhängige Änderungen unterschiedlicher Eigenschaften des Signals ausgenutzt werden, um die Parameter eines gegebenen Absorptionsmodells zu ermitteln?
- III. Beeinflusst die Absorption die Laufzeit eines akustischen Signals?

1 Einleitung

Weiterhin werden Fragestellungen zum Einfluss des Experimentalaufbaus auf eine gemessene akustische Absorption bearbeitet (Kapitel 5):

- IV. Wie beeinflusst die Schallausbreitung einer gegebenen, nicht-idealen Messanordnung das Ergebnis einer Absorptionsmessung?
- V. Wie hängen beobachtete Abweichungen durch die nicht-ideale Messanordnung von den Parametern des Fluids ab?
- VI. Wie kann die gegebene Messanordnung modifiziert werden, um Abweichungen durch den experimentellen Aufbau zu minimieren?

Abschließend werden Maßnahmen zur Korrektur der Einflüsse des Experimentalaufbaus sowie deren Auswirkungen auf den Messbereich und die Messunsicherheiten des Messverfahrens behandelt (Kapitel 6):

- VII. Welche Maßnahmen können ergriffen werden, um beobachtete Abweichungen basierend auf Referenzdaten rechnerisch zu korrigieren?
- VIII. Wie groß ist der Messbereich der jeweiligen Methode zur Absorptionsmessung bzw. welche Fluide können untersucht werden?
 - IX. Wie groß sind die Messunsicherheiten der ermittelten Messgrößen?

2 Grundlagen

Im Folgenden werden einige ausgewählte theoretische Grundlagen für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Betrachtungen dargelegt. Der Fokus liegt dabei auf der mathematischen Beschreibung verlustbehafteter akustischer Wellen, wobei zum einen die Frequenzabhängigkeit der unterschiedlichen Ausbreitungseigenschaften im Vordergrund steht. Diese sollen in den folgenden Kapiteln zur Bestimmung der akustischen Absorption ausgewertet werden. Zum anderen soll durch eine schrittweise Herleitung ausgehend von Grundgleichungen verdeutlicht werden, welche Näherungen zur Beschreibung akustischer Wellen getroffen werden. Da die im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten akustischen Quellen stets endliche Geometrien haben, wird abschließend auf Möglichkeiten zur Beschreibung der Schallfelder dieser Quellen eingegangen.

2.1 Verlustbehaftete akustische Wellen

2.1.1 Schallfeldkenngrößen

Da die Ausbreitung von akustischen Wellen in fluiden Medien zentraler Aspekt dieser Arbeit ist, sollen die Schallfeldkenngrößen zunächst definiert werden. Die Notation entspricht dabei weitestgehend der Empfehlung 101 der Deutschen Gesellschaft für Akustik e.V. [DEG06]. Die Größen, durch welche ein Schallfeld beschrieben wird, sind die Dichte $\tilde{\rho}$, der Druck \tilde{p} und die Schnelle $\tilde{\vec{v}}$. Alle Größen lassen sich in einen Gleichanteil und einen Wechselanteil zerlegen [Ler09]:

$$\tilde{\rho}(t) = \rho_0 + \rho(t) \tag{2.1}$$

$$\tilde{p}(t) = p_0 + p(t)$$
 (2.2)

$$\tilde{\vec{v}}(t) = \vec{v_0} + \vec{v}(t).$$
 (2.3)

Die stationären Anteile werden entsprechend mit einer 0 indiziert, während die zeitvarianten Anteile aufgrund ihrer häufigen Verwendung keine weitere Kennzeichnung erhalten. Weiterhin wird im Folgenden darauf verzichtet, die

2 Grundlagen

Abhängigkeit von der Zeit t zu notieren. Die zeitvarianten Anteile werden Wechselgrößen, also Wechseldichte, Wechseldruck bzw. Schallwechseldruck und Wechselschnelle, genannt.

2.1.2 Die verlustbehaftete Wellengleichung

An dieser Stelle soll die Wellengleichung für lineare, verlustbehaftete, akustische Longitudinalwellen in Fluiden hergeleitet werden. Die Herleitung stellt dabei eine Zusammenführung der Darstellungen von Lerch et al. [Ler09] und Rudenko et al. [Rud77] dar, wobei gelegentlich auf weitere Details eingegangen werden soll. Als Begründung, warum von linearer Schallausbreitung ausgegangen werden kann, wird angenommen, dass alle Wechselgrößen so klein sind, dass deren Quadrat und höhere Potenzen vernachlässigt werden können. Bei der Herleitung der Burgers-Gleichung [Bur74] für nichtlineare Schallausbreitung wird von Rudenko et al. eine ähnliche Argumentation geführt [Rud77]. Hier wird davon ausgegangen, dass die quadrierten Wechselgrößen nicht vernachlässigt werden können, wohl aber die der dritten Potenz. Eine derartige Annahme vereinfacht an vielen Stellen der Herleitung die Argumentation, warum bestimmte Terme vernachlässigt werden können. Dies ist gerade in Hinblick auf die große Anzahl an Näherungen, welche im Folgenden zur Linearisierung der Wellengleichung gemacht werden müssen, hilfreich. Insbesondere gilt dies nicht nur für das Quadrieren einzelner Wechselgrößen, sondern auch für eventuell auftretende Produkte zweier verschiedener Wechselgrößen, zum Beispiel das Produkt aus Dichte und Schnelle in der Kontinuitätsgleichung.

Um die für die Beschreibung von akustischen Wellen angenommenen Vereinfachungen der Navier-Stokes-Gleichung aufzuzeigen, wird diese hier zunächst in ihrer Grundform betrachtet:

$$\tilde{\rho} \mathrm{d}\tilde{\vec{v}} = -\mathrm{grad}\,\tilde{p} + \mu_{\mathrm{s}} \nabla^2 \tilde{\vec{v}} + \left(\mu_{\mathrm{v}} + \frac{1}{3}\mu_{\mathrm{s}}\right) \mathrm{grad}\,(\mathrm{div}\,\tilde{\vec{v}}).$$
(2.4)

Die Parameter μ_{v} und μ_{s} sind hier die Volumen- und die Scherviskosität. Die substantielle Ableitung der Wechselschnelle $d\tilde{\vec{v}}$ kann mit Hilfe partieller Ableitungen wie folgt notiert werden [Ler09]:

$$d\tilde{\vec{v}} = \partial_t \tilde{\vec{v}} + \operatorname{grad} \frac{\tilde{\vec{v}}^2}{2} - \tilde{\vec{v}} \times \operatorname{rot} \tilde{\vec{v}}.$$
 (2.5)

Es wird nun die Annahme getroffen, dass der stationäre Anteil der Schnelle $\vec{v_0}$ nicht vorhanden ist, also keine stationäre Strömung im Medium vorliegt.

Unter dieser Voraussetzung muss nur noch die substantielle Ableitung des Wechselanteils der Schnelle betrachtet werden:

$$\mathrm{d}\vec{v} = \partial_t \vec{v} + \mathrm{grad}\,\frac{\vec{v}^2}{2} - \vec{v} \times \mathrm{rot}\,\vec{v}.$$
(2.6)

Mit der zuvor getroffenen Annahme, dass quadrierte Wechselgrößen vernachlässigbar klein sind, muss der Ausdruck grad $\frac{\vec{v}^2}{2}$ nicht weiter mitgeführt werden. Wird das Schnellefeld \vec{v} weiterhin als wirbelfrei angenommen, so kann auch der dritte Term $\vec{v} \times \operatorname{rot} \vec{v}$ vernachlässigt werden. Unter diesen Annahmen lässt sich die substantielle Ableitung in der Navier-Stokes-Gleichung durch die partielle Ableitung ersetzen:

$$\tilde{\rho}\partial_t \vec{v} = -\operatorname{grad} \tilde{p} + \mu_{\rm s} \nabla^2 \vec{v} + \left(\mu_{\rm v} + \frac{1}{3}\mu_{\rm s}\right) \operatorname{grad}\left(\operatorname{div} \vec{v}\right).$$
(2.7)

Weiterhin ist ersichtlich, dass der Druck nun nur noch in differenzierter Form vorkommt. Entsprechend kann auch hier statt des Gesamtdrucks \tilde{p} der Wechseldruck p eingesetzt werden. Auf der linken Seite der Gleichung steht nun der Ausdruck:

$$\tilde{\rho}\partial_t \vec{v} = \rho_0 \partial_t \vec{v} + \rho \partial_t \vec{v}. \tag{2.8}$$

Auch hier kann wieder die Annahme eingesetzt werden, dass quadrierte, bzw. miteinander multiplizierte Wechselgrößen (hier zusätzlich abgeleitet: $\rho \partial_t \vec{v}$), vernachlässigbar klein sind. Unter den bisher getroffenen Näherungen nimmt die Navier-Stokes-Gleichung die folgende Form an:

$$\rho_0 \partial_t \vec{v} = -\operatorname{grad} p + \mu_{\rm s} \nabla^2 \vec{v} + \left(\mu_{\rm v} + \frac{1}{3}\mu_{\rm s}\right) \operatorname{grad}\left(\operatorname{div} \vec{v}\right). \tag{2.9}$$

Unter erneuter Annahme von Wirbelfreiheit des Schnellefelds können die beiden letzten Summanden mit Hilfe der Vektoridentität rot (rot \vec{A}) = grad (div \vec{A}) – $\nabla^2 \vec{A}$ zusammengefasst werden:

$$\rho_0 \partial_t \vec{v} = -\text{grad}\, p + \left(\frac{4}{3}\mu_{\rm s} + \mu_{\rm v}\right) \nabla^2 \vec{v}. \tag{2.10}$$

Als weitere Gleichung zur Beschreibung von Schallausbreitung kommt die Kontinuitätsgleichung zum Einsatz:

$$\partial_t \tilde{\rho} = -\text{div}\,(\tilde{\rho}\vec{v}).\tag{2.11}$$

2 Grundlagen

Linksseitig steht die Dichte in differenzierter Form. Die stationäre Dichte ρ_0 hat keinen Einfluss auf das Ergebnis der Ableitung. Entsprechend kann hier die Wechseldichte ρ eingesetzt werden. Um den rechtsseitigen Ausdruck zu vereinfachen, wird erneut davon ausgegangen, dass im betrachteten Feld keine stationäre Strömung vorliegt, $\vec{v_0}$ also gleich Null ist. Der Ausdruck nimmt entsprechend die Form

$$\partial_t \rho = -\operatorname{div}\left((\rho + \rho_0)\vec{v}\right) \tag{2.12}$$

an. Wird nun wie zuvor angenommen, dass miteinander multiplizierte Wechselgrößen vernachlässigbar klein sind, ergibt sich die Kontinuitätsgleichung für den akustischen Fall:

$$\partial_t \rho = -\rho_0 \operatorname{div} \vec{v}. \tag{2.13}$$

Zur Herleitung der Wellengleichung wird weiterhin eine Zustandsgleichung für das zu beschreibende Fluid benötigt, die den Zusammenhang zwischen Druck, Dichte und der Entropie \tilde{s} herstellt:

$$\tilde{p} = f(\tilde{\rho}, \tilde{s}). \tag{2.14}$$

Linearisiert man diese Annahme im Arbeitspunkt mit Hilfe einer Taylor-Reihenentwicklung im Punkt $\tilde{\rho} = \rho_0$ und $\tilde{s} = s_0$ (wobei auch für die Entropie gilt $\tilde{s} = s + s_0$), ergibt sich folgender Ausdruck [Rud77]:

$$p = (\partial_{\tilde{\rho}} \tilde{p})_s \rho + (\partial_{\tilde{s}} \tilde{p})_o s.$$
(2.15)

Der zweite Term der rechten Seite dieser Gleichung kann mit Hilfe thermodynamischer Zusammenhänge weiter umgeformt werden und führt letztlich auf die Berücksichtigung von Verlusten in der Schallausbreitung, die auf die endlich kleine Wärmeleitfähigkeit ν des Fluids zurückzuführen sind. Dieser Zusammenhang wird zuerst von Kirchhoff [Kir68] beschrieben. Ausgangspunkt ist hier eine Entropiebilanz in linearer Näherung [Gro62; Rud77]:

$$\rho_0 T_0 \partial_t s = \nu \Delta T, \tag{2.16}$$

wobei analog zu den Schallfeldkenngrößen T die als klein angenommene, lokale Temperaturänderung und T_0 die Ausgangstemperatur ist ($\tilde{T} = T + T_0$). ν ist hier die Wärmeleitfähigkeit des Fluids. Unter Annahme eines ebenfalls linearen Zusammenhangs zwischen Druck und Temperatur

$$T = \left(\partial_{\tilde{p}}T\right)_s p \tag{2.17}$$
ergibt sich aus Gleichung 2.16 der folgende Ausdruck für die Entropieänderung $\partial_t s$:

$$\partial_t s = \nu \frac{1}{\rho_0 T_0} (\partial_{\tilde{p}} \tilde{T})_s \Delta p.$$
(2.18)

Um diesen Ausdruck in die linearisierte, allgemeine Zustandsgleichung (Gleichung 2.15) einsetzen zu können, muss diese zunächst nach der Zeit abgeleitet werden. Da die in Gleichung 2.15 vorhandenen Ableitungen des Drucks nach der Dichte und der Entropie als Materialkonstanten nicht zeitabhängig sind, nimmt der Ausdruck die folgende Form an:

$$\partial_t p = (\partial_{\tilde{\rho}} \tilde{p})_s \partial_t \rho + (\partial_{\tilde{s}} \tilde{p})_\rho \partial_t s.$$
(2.19)

Einsetzen von Gleichung 2.18 liefert dann:

$$\partial_t p = (\partial_{\tilde{\rho}} \tilde{p})_s \partial_t \rho + (\partial_{\tilde{s}} \tilde{p})_\rho \nu \frac{1}{\rho_0 T_0} (\partial_{\tilde{p}} \tilde{T})_s \Delta p.$$
(2.20)

Nach Rudenko [Rud77] gilt unter Annahme eines idealen Gases der folgende Zusammenhang:

$$\frac{1}{T_0} (\partial_{\tilde{s}} \tilde{p})_{\rho} (\partial_{\tilde{p}} \tilde{T})_s = \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}}.$$
(2.21)

Hier stehen $c_{\rm p}$ und $c_{\rm v}$ für die isobare und die isochore spezifische Wärmekapazität des Fluids. Empirisch kann durch Einsetzen von Referenzdaten [Lem13] gezeigt werden, dass dieser Zusammenhang auch für nichtideale Zustände in guter Näherung Gültigkeit behält [Vra19]. Im Weiteren wird außerdem ersichtlich, dass der Ausdruck $(\partial_{\rho} \tilde{p})_s$, also die Ableitung des Drucks nach der Dichte bei konstanter Entropie, gerade der quadrierten Schallgeschwindigkeit c entspricht. Für die Linearisierung der nach der Zeit abgeleiteten Zustandsgleichung ergibt sich dann der folgende Zusammenhang:

$$\partial_t p = c^2 \partial_t \rho + \frac{\nu}{\rho_0} \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}} \Delta p. \qquad (2.22)$$

Aus den drei linearisierten Gleichungen (Navier-Stokes-Gleichung 2.10, Kontinuitätsgleichung 2.13 und Zustandsgleichung 2.22) kann nun durch Einsetzen eine akustische Wellengleichung hergeleitet werden. Zunächst wird die Navier-Stokes-Gleichung in die Zustandsgleichung eingesetzt. Dazu muss der Gradient gebildet werden, um anschließend den Ausdruck grad pzu eliminieren. Nach der Umstellung liefert das Einsetzen der Navier-Stokes-

2 Grundlagen

Gleichung:

$$\rho_0 \partial_{tt} \vec{v} = -c^2 \partial_t \operatorname{grad} \rho + \left(\frac{4}{3}\mu_{\rm s} + \mu_{\rm v} + \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}}\nu\right) \nabla^2 \partial_t \vec{v} - \frac{\nu}{\rho_0} \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}} \left(\frac{4}{3}\mu_{\rm s} + \mu_{\rm v}\right) \nabla^4 \vec{v}.$$
(2.23)

Der letzte Term kann unter dem Gesichtspunkt der Linearisierung wie zuvor aufgrund der vierten örtlichen Ableitung ∇^4 vernachlässigt werden. Weiterhin werden zur Verbesserung der Übersichtlichkeit die thermoviskosen Verluste in μ zusammengefasst [Rud77]:

$$\mu = \frac{4}{3}\mu_{\rm s} + \mu_{\rm v} + \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}}\nu.$$
(2.24)

Die vorherige Gleichung lässt sich entsprechend kompakter notieren:

$$\rho_0 \partial_{tt} \vec{v} = -c^2 \partial_t \operatorname{grad} \rho + \mu \nabla^2 \partial_t \vec{v}.$$
(2.25)

Hier kann nun die Kontinuitätsgleichung 2.13 eingesetzt werden, um die Wechseldichte ρ zu eliminieren. Dividieren durch die statische Dichte ρ_0 liefert die Wellengleichung für die Wechselschnelle \vec{v} :

$$\partial_{tt}\vec{v} = c^2 \nabla^2 \vec{v} + \frac{\mu}{\rho_0} \nabla^2 \partial_t \vec{v}.$$
 (2.26)

Die Wellengleichung lässt sich in gleicher Form auch für den Wechseldruck p aufstellen [Rud77; Ler09]:

$$\partial_{tt}p = c^2 \Delta p + \frac{\mu}{\rho_0} \Delta \partial_t p. \qquad (2.27)$$

Alle bisher durchgeführten Betrachtungen beziehen sich auf akustische Longitudinalwellen. Auf die Betrachtung von akustischen Transversalwellen wird an dieser Stelle verzichtet, auch wenn diese prinzipiell aufgrund der von Null verschiedenen Scherviskosität in den zu beschreibenden Fluiden ausbreitungsfähig sind. Transversalwellen in Fluiden haben eine begrenzte Eindringtiefe, die abhängig von der Frequenz, der Dichte und der Scherviskosität ist [Lan91]. Diese Eindringtiefe liegt bei den Gegebenheiten der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente im Bereich einiger Mikrometer, so dass davon ausgegangen werden kann, dass Transversalwellen im Fluid einen vernachlässigbaren Einfluss haben.

2.1.3 Dispersionsbeziehung für verlustbehaftete akustische Wellen

Für den Schallwechseldruck in kartesischen Koordinaten wird eine ebene Welle als Ansatzfunktion gewählt:

$$p = p_0 e^{j(k_x x + k_y y + k_z z - \omega t)} = p_0 e^{j(k \vec{e_k} \cdot \vec{r} - \omega t)}.$$
(2.28)

Unter dieser Annahme liefert die Transformation der Wellengleichung 2.27 in den Frequenzbereich die Dispersionsbeziehung der durch absorbierende Medien gedämpften Welle:

$$\omega^2 = (c^2 - j\omega \frac{\mu}{\rho_0})k^2.$$
 (2.29)

Der obenstehende Ausdruck kann nur erfüllt sein, wenn eine der enthaltenen Größen komplex ist. Es ist üblich, die Kreiswellenzahl k als komplex anzunehmen; die Absorption entspricht dann gerade dem Imaginärteil [Ler09; Rud77]. Ohne weitere Näherungen hat der Ausdruck für die Kreiswellenzahl die folgende Form:

$$k = \frac{\omega}{\sqrt[4]{c^4 + \omega^2 \frac{\mu^2}{\rho_0^2}}} \exp(\pm \frac{j}{2} \arctan(\frac{\omega\mu}{\rho c^2})).$$
(2.30)

Für weitere Berechnungen, vor allem der Absorption sowie der Phasenund Energiegeschwindigkeit, bietet es sich an, die Dispersionsbeziehung für die Wellenzahl k in Real- und Imaginärteil zu zerlegen. Die entstehenden Ausdrücke $\cos\left(\frac{1}{2}\arctan\left(\ldots\right)\right)$ und $\sin\left(\frac{1}{2}\arctan\left(\ldots\right)\right)$ lassen sich in Wurzelterme umformen (siehe Anhang A.1.1). Dadurch ergibt sich die unter den gegebenen Annahmen weiterhin exakte Lösung für die Dispersionsbeziehung:

$$k = \frac{\omega}{c\sqrt{2}\sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1}} \left(\sqrt{\sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1} + 1} \pm j\sqrt{\sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1} - 1}\right).$$
 (2.31)

2 Grundlagen

Die Absorption $\alpha = \text{Im}(k)$ lässt sich nun direkt aus dem Imaginärteil ablesen [Buc05]:

$$\alpha = \frac{\omega \sqrt{\sqrt{\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} + 1} - 1}}{c\sqrt{2}\sqrt{\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} + 1}}.$$
(2.32)

Es ist zu beachten, dass sowohl eine Dispersionsbeziehung mit positivem Imaginärteil, als auch mit negativem Imaginärteil Lösungen der verlustbehafteten Wellengleichung im Frequenzbereich darstellen. In der Regel wird α als positive Größe dargestellt. Das Vorzeichen in der Dispersionsbeziehung wird entsprechend so gewählt, dass sich der physikalisch sinnvolle Fall einer über die Entfernung abklingenden Welle ergibt. Buckingham [Buc05] führt in seinen Arbeiten zur Kausalität der Differentialgleichung für Wellen in verlustbehafteten Fluiden Näherungen des obenstehenden Ausdrucks für die Absorption auf. Für geringe Absorption und geringe Frequenzen $(\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} \ll 1)$ liefert eine Reihenentwicklung in μ für $\mu = 0$ oder in ω für $\omega = 0$ einen quadratisch frequenzabhängigen Ausdruck:

$$\alpha \approx \frac{\omega^2 \mu}{2\rho_0 c^3}.\tag{2.33}$$

Für hohe Absorption bzw. hohe Frequenzen $\left(\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} \gg 1\right)$ ergibt sich für α eine wurzelförmige Frequenzabhängigkeit:

$$\alpha \approx \sqrt{\frac{\rho_0 \omega}{2\mu}}.\tag{2.34}$$

Eine graphische Darstellung der Zusammenhänge für ein stark absorbierendes Fluid (Abbildung 2.1) zeigt die Gültigkeitsbereiche der jeweiligen Näherungen auf. Da im Rahmen dieser Arbeit primär schwach absorbierende Fluide untersucht werden sollen, wird die erstgenannte Näherung für alle weiteren Betrachtungen gewählt.

Zerlegt man μ nun wieder in die unterschiedlichen Verlustmechanismen, wird insbesondere der Zusammenhang zwischen Scher- und Volumenviskosität, Wärmeleitfähigkeit, den Wärmekapazitäten und Absorption deutlich:

$$\alpha = \frac{\omega^2}{2\rho_0 c^3} \left(\frac{4}{3} \mu_{\rm s} + \mu_{\rm v} + \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}} \nu \right).$$
(2.35)



Abbildung 2.1: Frequenzabhängigkeit der Absorption eines Beispielmediums mit hoher Absorption ($c = 1500 \,\mathrm{m \, s^{-1}}, \rho_0 = 1000 \,\mathrm{kg \, m^{-3}}, \mu = 1 \,\mathrm{Pa \, s}$); exakte Lösung und Näherungen.

2.1.4 Ausbreitungsgeschwindigkeiten akustischer Wellen

Auf Grundlage der Dispersionsbeziehung (Gleichung 2.31) können Ausdrücke für die verschiedenen Ausbreitungsgeschwindigkeiten, zum Beispiel für die Phasengeschwindigkeit, akustischer Wellen im verlustbehafteten Fall bestimmt werden. Die Phasengeschwindigkeit ergibt sich aus dem Quotienten der Kreisfrequenz ω und des Realteils der Kreiswellenzahl k_r [Buc05]:

$$c_{\rm ph} = \frac{\omega}{k_{\rm r}}.\tag{2.36}$$

Für die Phasengeschwindigkeit resultiert damit folgender Ausdruck [Buc05]:

$$c_{\rm ph} = \frac{c\sqrt{2}\sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1}}{\sqrt{\sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1} + 1}}.$$
(2.37)

2 Grundlagen

Für kleine Frequenzen und geringe Absorption konvergiert die Phasengeschwindigkeit erwartungsgemäß gegen die Schallgeschwindigkeit c [Buc05]:

$$c_{\rm ph} \approx c.$$
 (2.38)

In diesem Fall würde die Absorption vollständig vernachlässigt. Um jedoch zumindest Abschätzungen für die Phasengeschwindigkeit durchzuführen, soll an dieser Stelle eine weitere Näherung des exakten Ausdrucks für die Phasengeschwindigkeit (Gleichung 2.37) aufgeführt werden. Diese ergibt sich durch Reihenentwicklung des exakten Ausdrucks in μ für $\mu = 0$ oder in ω für $\omega = 0$, ähnlich wie für Gleichung 2.33, wobei die Reihe nach dem quadratischen Glied abgebrochen wird:

$$c_{\rm ph} \approx c + \frac{3\mu^2 \omega^2}{8c^3 \rho_0^2}.$$
 (2.39)

Bei großen Frequenzen und starker Absorption $\left(\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} \gg 1\right)$ schlägt Buckingham die folgende Näherung vor [Buc05]:

$$c_{\rm ph} \approx \sqrt{\frac{2\omega\mu}{\rho_0}}.$$
 (2.40)

Beide von Buckingham vorgestellten Näherungen stellen Grenzfälle dar, die, wie in Abbildung 2.2 beispielhaft gezeigt, asymptotisch den Verlauf der Phasengeschwindigkeit für kleine und große Frequenzen beschreiben. Wie Abbildung 2.2 zeigt, beschreibt Gleichung 2.39 die Phasengeschwindigkeit für kleine Frequenzen, ohne den Einfluss der Absorption vollständig zu vernachlässigen. Die im Beispiel verwendeten Parameter beschreiben ein Fluid mit der Dichte und der Schallgeschwindigkeit von Wasser, jedoch mit einer um etwa zwei Größenordnungen größeren Absorption. Daraus lässt sich schließen, dass für die in dieser Arbeit betrachteten Fluide die Phasengeschwindigkeit als der Schallgeschwindigkeit gleich angenommen werden kann.

Neben der Phasengeschwindigkeit wird für sich ausbreitende Wellen häufig die Gruppengeschwindigkeit bestimmt. Diese ist über den bekannten Zusammenhang

$$c_{\rm gr} = \partial_k \omega \tag{2.41}$$

definiert [Aul90]. Voraussetzung für die Herleitung der Gruppengeschwindigkeit aus der Ableitung der Kreisfrequenz nach der Wellenzahl ist jedoch, dass beide Größen reell sind, das Medium also verlustfrei ist. Die Gruppen-





Abbildung 2.2: Verlauf der Phasengeschwindigkeit über die Frequenz für ein Beispielmedium mit hoher Absorption ($c = 1500 \,\mathrm{m\,s^{-1}}$, $\rho_0 = 1000 \,\mathrm{kg\,m^{-3}}$, $\mu = 1 \,\mathrm{Pa\,s}$); exakte Lösung und verschiedene Näherungen.

geschwindigkeit in ihrer klassischen Form dient daher nur zur Beschreibung von geführten Wellen oder Wellen in Kristallen und verliert ihre physikalische Bedeutung, sobald das Medium verlustbehaftet ist [Aul90; Mai87]. Anstelle der Gruppengeschwindigkeit kann die Energiegeschwindigkeit betrachtet werden. Der Ansatz dazu ist in Abschnitt 4.2.2 beschrieben.

2.2 Schallfelder lokal begrenzter Quellen

Während zur Herleitung der Dispersionsbeziehung (Abschnitt 2.1.3) und des Zusammenhangs zwischen akustischer Absorption und den Verlusttermen der Ansatz einer ebenen Elementarwelle gewählt wurde, werden in der Realität selten ebene akustische Wellen beobachtet. Der Grund dafür liegt primär darin, dass reale akustische Quellen eine endliche Ausdehnung haben und daher stets gekrümmte Wellenfronten aussenden. Eine Ausnahme bilden hier die Grundmoden schallhart begrenzter, fluidgefüllter Wellenleiter, die näherungsweise als eben angenommen werden können [Mös15]. Eine

2 Grundlagen

Methode zur analytischen Berechnung der Schallfelder örtlich begrenzter Schallquellen besteht in der Überlagerung von Punktquellen nach dem Huygensschen Prinzip [Huy90]. Das von Huygens bereits 1678 beschriebene Verfahren zur Beschreibung der Ausbreitung von Licht lässt sich analog auch für Schallwellen anwenden. Voraussetzung ist die mathematische Beschreibung einer Punktquelle, die unterschiedliche Formen annehmen kann. An dieser Stelle soll von folgendem Ansatz ausgegangen werden, um das Schallfeld abhängig von den Ortskoordinaten \vec{r} einer am Ort $\vec{r_q}$ befindlichen Quelle zu beschreiben [Mös15; Ler09]:

$$p = \frac{p'_0}{|\vec{r} - \vec{r_q}|} e^{jk|\vec{r} - \vec{r_q}|}.$$
 (2.42)

Ausgehend von dieser Beschreibung können mit Hilfe von Integralen über $\vec{r_q}$ analytische Lösungen von bestimmten Schallwandlerformen gefunden werden. Gebräuchlich ist hier vor allem die Variante für flächenhafte Schallwandler, welche auf Integrale über eine Fläche im Raum führt. Der Ausdruck für eine Punktquelle muss dafür über eine Konstante angepasst werden. Anstelle der Schallwechseldruckamplitude der Punktquelle p'_0 , welche die Einheit Pa m hat, tritt nun eine auf die Fläche bezogene Quellendichte p''_0 mit der Einheit Pa m $^{-1} = Pa m/m^2$. Das zu lösende Integral für eine Schallwandlerfläche $A(\vec{r_q})$, die über die komplette Fläche mit gleicher Phase und gleicher Amplitude schwingt, hat also die folgende Form [Mös15; Ler09]:

$$p = \int_{A} \frac{p_0''}{|\vec{r} - \vec{r_q}|} e^{jk|\vec{r} - \vec{r_q}|} dA(\vec{r_q}).$$
(2.43)

Für eine kreisförmige Schallwandlerfläche, welche gleichphasig und mit gleicher Amplitude schwingt, ergibt sich ein häufig betrachteter Spezialfall von Gleichung 2.43: Der Kolbenschwinger [Mös15; Ler09]. Für diese spezielle Lösung bietet es sich an, ein polares Koordinatensystem (r, ϑ, φ) zu verwenden. Die Lösung des resultierenden Integrals ist direkt nicht möglich [Ber90; Ler09], es gibt jedoch für bestimmte Bereiche des Felds des Kolbenschwingers Näherungslösungen. Eine exakte Lösung existiert für den Schalldruck auf der akustischen Achse, also auf der Mittelsenkrechten der Schallwandlerfläche [Ler09]:

$$p = \frac{j2\pi p_0''}{k} \left(e^{jkr} - e^{jk\sqrt{r^2 + R^2}} \right), \qquad (2.44)$$



Abbildung 2.3: Schallwechseldruckamplitude auf der akustischen Achse eines Kolbenschwingers mit einem Radius R = 10 mmund einer Frequenz f = 1 MHz; Schallgeschwindigkeit des umgebenden Mediums $c = 1500 \text{ m s}^{-1}$; resultierende Kreiswellenzahl $k \approx 4188,8 \text{ m}^{-1}$.

wobei R der Radius der Schallwandlerfläche ist. Der Verlauf des Betrags dieses komplexen Ausdrucks zeigt abhängig von der Wahl der Parameter mehrere lokale Minima und Maxima in der unmittelbaren Nähe des Schallwandlers (siehe Abbildung 2.3), die durch konstruktive und destruktive Interferenz der Elementarwellen entstehen. Die Position des letzten Maximums wird als Nahfeldlänge oder natürlicher Fokus bezeichnet [Ler09]. Für die Nahfeldlänge n lässt sich durch Analyse des Betrags von Gleichung 2.44 der folgende Zusammenhang herleiten [Kra86]:

$$n = \frac{R^2 k^2 - \pi^2}{2\pi k} = \frac{4R^2 - \lambda^2}{4\lambda},$$
(2.45)

wobei die zweite Variante zur Berechnung über die Wellenlänge in der Literatur gebräuchlicher ist.

Weiterhin kann eine Lösung zur Beschreibung des Fernfelds gefunden werden. Diese Art der Beschreibung des Felds einer bestimmten Quellen-

2 Grundlagen



Abbildung 2.4: Fernfeld eines Kolbenschwingers mit einem Radius R = 10 mm und einer Frequenz f = 1 MHz; Schallgeschwindigkeit des umgebenden Mediums $c = 1500 \text{ m s}^{-1}$; resultierende Kreiswellenzahl $k \approx 4188,8 \text{ m}^{-1}$.

anordnung liegt dann vor, wenn sich die resultierende Feldstärke durch ein (skaliertes) Feld einer Punktquelle multipliziert mit einem winkelabhängigen Term beschreiben lässt. Für den Kolbenschwinger nimmt die Fernfeldbeschreibung folgende Form an:

$$p = p_0'' 2\pi R \frac{\mathrm{e}^{\mathrm{j}kr}}{r} \frac{\mathrm{J}_1(Rk\sin\vartheta)}{k\sin\vartheta}.$$
 (2.46)

Diese Winkelabhängigkeit, in diesem Fall $\frac{J_1(Rk\sin\vartheta)}{k\sin\vartheta}$, wird auch als Richtoder Abstrahlcharakteristik [Ler09] bezeichnet. Wie Abbildung 2.3 zeigt, konvergiert die Fernfeldnäherung auf der akustischen Achse gegen die exakte Lösung. Es ist jedoch auch ersichtlich, dass die Fernfeldnäherung erst für Entfernungen deutlich größer als die Nahfeldlänge gilt.

Betrag und Realteil der Fernfeldbeschreibung sind in Abbildung 2.4 dargestellt (hier in kartesischen Koordinaten). Als dargestellter Ausschnitt

bezüglich des Abstands vom Kolbenschwinger wird der Bereich z > 20 mmgewählt, da ab dieser Entfernung die Fernfeldbeschreibung der exakten Beschreibung der Abstrahlcharakteristik näherungsweise entspricht (siehe Abbildung 2.3). Im Betrag des Schallwechseldrucks zeigt sich deutlich die sogenannte Hauptkeule der Abstrahlcharakteristik bei x = 0 mm, umgeben von den Nebenkeulen. Der Realteil der Fernfeldbeschreibung zeigt weiterhin, dass die Phasen benachbarter Keulen jeweils um 180° versetzt sind.

Neben den etablierten Lösungen für das Fernfeld und für die akustische Achse existieren auch analytische Ausdrücke für das Nahfeld des Kolbenschwingers [Ber90], welche jedoch Kombinationen aus Hankel-Funktionen und Fresnel-Integralen enthalten.

Obwohl die Volumenviskosität $\mu_{\rm v}$ als Parameter der Navier-Stokes-Gleichung auftritt, existiert nur eine geringe Anzahl an Messdaten. Begründet liegt dieser Umstand im Mangel eines etablierten Messverfahrens für die Volumenviskosität. Im Folgenden werden zunächst Messverfahren und der Kenntnisstand für andere Verlustgrößen beschrieben, da diese nach Gleichung 2.35 bekannt sein müssen, um aus einer gemessenen akustischen Absorption die Volumenviskosität zu bestimmen. Weiterhin wird auf die bisher bekannten Messverfahren zur akustischen Absorption eingegangen und eine Übersicht über die vorhandene Datenlage für die Volumenviskosität in Flüssigkeiten gegeben.

3.1 Stand des Wissens anderer Fluidkenngrößen

3.1.1 Scherviskosität

Während für die Volumenviskosität kein etabliertes Messverfahren existiert, kann die Scherviskosität getrennt von den anderen Verlustmechanismen im Fluid erfasst werden. Dies lässt sich auch anhand der zugrundeliegenden fluiddynamischen Grundgleichungen erklären. Bei genauerer Betrachtung der Navier-Stokes-Gleichung

$$\tilde{\rho} \mathrm{d}\tilde{\vec{v}} = -\mathrm{grad}\,\tilde{p} + \mu_{\mathrm{s}} \nabla^2 \tilde{\vec{v}} + \left(\mu_{\mathrm{v}} + \frac{1}{3}\mu_{\mathrm{s}}\right) \mathrm{grad}\,(\mathrm{div}\,\tilde{\vec{v}}) \tag{3.1}$$

fällt auf, dass die Feldbeschreibung unabhängig von der Volumenviskosität wird, wenn die Divergenz des Geschwindigkeitsfelds gleich Null ist [Poz09]:

$$\operatorname{div} \tilde{\vec{v}} = 0. \tag{3.2}$$

Fluid	Gleichung	Unsicherheit
Wasser	Huber et al. [Hub09]	1%3%
Methanol	Xiang et al. [Xia06]	2%5%
n-Hexan	Michailidou et al. [Mic13]	2%
n-Octan	Huber et al. [Hub05b]	2%
n-Decan	Huber et al. [Hub05b]	2%
Toluol	Avgeri et al. [Avg15]	0,7%3%

Tabelle 3.1: Übersicht über die verwendeten Zustandsgleichungen für die Scherviskosität und deren Unsicherheiten.

Unter dieser Annahme werden auch die durch die Wärmeleitfähigkeit hervorgerufenen Verluste vernachlässigt (siehe Gleichung 2.22). Über die Kontinuitätsgleichung (Gleichung 2.13) folgt mit dieser Annahme dann, dass die Ableitung der Dichte nach der Zeit gleich Null ist. Es handelt sich hierbei um die Annahme eines inkompressiblen Fluids, das heißt es wird davon ausgegangen, dass die Fluidbewegung derart ist, dass keine Dichteänderungen auftreten [Poz09].

Basierend auf diesen Annahmen stehen unterschiedliche, etablierte Messverfahren zur Verfügung. Die Kapillarviskosimetrie wird für den größten Teil der Messungen, welche die Grundlage für die in dieser Arbeit verwendeten Zustandsgleichungen für die Scherviskosität bilden, verwendet und soll daher an dieser Stelle kurz beschrieben werden. Das Messprinzip des Kapillarviskosimeters basiert auf der Messung der Fließgeschwindigkeit einer Flüssigkeit durch eine dünnes Rohr, die Kapillare, und ist in der DIN 51562–1 [DIN99] beschrieben. Unter der Voraussetzung, dass die Flüssigkeitsbewegung durch eine konstante Druckdifferenz hervorgerufen wird und das Strömungsprofil laminar ist, kann die Fließgeschwindigkeit des Fluids durch die Kapillare als antiproportional zur kinematischen Viskosität ($\mu_{\rm s}/\rho_0$) der Flüssigkeit angenommen werden. Der Proportionalitätsfaktor, welcher die beiden Größen verknüpft, ist ein Parameter des jeweiligen Messgerätes und nach dem Gesetz von Hagen-Poiseuille abhängig von der Druckdifferenz und der vierten Potenz des Radius der Kapillaren [Sut93].

In dieser Arbeit werden zur Ermittlung der Scherviskosität Zustandsgleichungen verwendet, welche auf der Interpolation von Messdaten auf Grundlage eines physikalisch motivierten Modells basieren. Die Quellen dieser Gleichungen, die im thermodynamischen Kontext auch als *Korrelationen* bezeichnet werden, werden an dieser Stelle kurz in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Die angegebenen relativen Unsicherheiten unterscheiden sich abhängig vom Fluid, liegen aber in der gleichen Größenordnung.

Fluid	Gleichung	Unsicherheit
Wasser	Huber et al. [Hub12]	1,5%2%
Methanol	Sykioti et al. [Syk13]	2%4,4%
n-Hexan	Assael et al. [Ass13]	4,2%
n-Octan	Huber et al. [Hub05a]	3%
n-Decan	Huber et al. [Hub05a]	3%
Toluol	Assael et al. [Ass12]	3%

Tabelle 3.2: Übersicht über die verwendeten Zustandsgleichungen für die Wärmeleitfähigkeit und deren Unsicherheiten.

Bei Fluiden mit vergleichsweise geringer Scherviskosität, insbesondere bei Methanol, ist die relative Unsicherheit am größten. Ursächlich hierfür ist der Umstand, dass der Messeffekt bei den meisten Messverfahren für die Scherviskosität mit der Messgröße ansteigt. Dadurch werden konstante Unsicherheitsbeiträge, etwa die der verwendeten Messgeräte, im Verhältnis bei größerer Scherviskosität geringer.

3.1.2 Wärmeleitfähigkeit

Ähnlich wie bei der Scherviskosität stehen zur Messung der Wärmeleitfähigkeit unterschiedliche Ansätze zur Verfügung. Ein vor allem im Kontext thermodynamischer Referenzmessungen verbreitetes Verfahren ist die sogenannte transient hot-wire Methode [Gro74]. Bei diesem Ansatz wird ein dünner Draht (zumeist aus Platin) in vertikaler Richtung im zu untersuchenden Medium aufgehängt. Durch einen konstanten elektrischen Strom wird dieser Draht aufgeheizt, während gleichzeitig dessen elektrischer Widerstand zur Bestimmung der Temperatur gemessen wird. Die Wärmeleitfähigkeit des zu untersuchenden Mediums kann dann aus der Temperaturänderung des Drahts bestimmt werden. Sollen fluide Medien vermessen werden, so muss weiterhin ausgeschlossen werden, dass der Abtransport der thermischen Energie vom Draht ins Medium durch Konvektion beeinflusst wird. Aus diesem Grund wird der Draht mit transienten Signalen, zum Beispiel mit Strompulsen mit einer Dauer im Bereich einer Sekunde [Gro74], betrieben. Konvektive Effekte setzen aufgrund der dazu notwendigen Bewegung des Materials verzögert ein und können daher eliminiert werden, wenn nur kurzzeitig thermische Energie eingebracht wird. Weiterhin zeigt sich das Einsetzen der Konvektion im Zeitverlauf der Drahttemperatur [Gro74].

Für die untersuchten Fluide liegen jeweils Zustandsgleichungen für die

Tabelle 3.3: Übersicht über die verwendeten Zustandsgleichungen zur Bestimmung der spezifischen isochoren und isothermen Wärmekapazitäten.

Fluid	Gleichung	Unsicherheit
Wasser	Wagner et al. [Wag02]	0,1%
Methanol	Piazza et al. [Pia13]	1%
n-Hexan	Span et al. [Spa03]	1%2%
n-Octan	Span et al. [Spa03]	1%2%
n-Decan	Lemmon et al. [Lem06]	1%
Toluol	Lemmon et al. [Lem06]	1%2%

Wärmeleitfähigkeit vor, die in Tabelle 3.2 zusammengefasst sind. Auch hier liegt die von den Autoren angegebene Unsicherheit im Bereich einiger Prozent. Die größte Unsicherheit findet sich bei der Wärmeleitfähigkeit von Methanol und n-Hexan mit über 4 %. Um den Einfluss der Unsicherheit der Wärmeleitfähigkeit auf die Unsicherheit der zu messenden Volumenviskosität zu beschreiben, muss auch die Unsicherheit der Wärmekapazitäten bekannt sein.

3.1.3 Isobare und isochore Wärmekapazität

Während Scherviskosität und Wärmeleitfähigkeit zusätzlicher Gleichungen bedürfen, können die spezifische isobare Wärmekapazität c_p und die spezifische isochore Wärmekapazität c_v aus kalorischen Zustandsgleichungen hergeleitet werden [Bae16]. Die verwendeten Zustandsgleichungen, welche auch zur Bestimmung der Dichte aus Druck und Temperatur sowie der Schallgeschwindigkeit verwendet werden, sind in Tabelle 3.3 aufgeführt. Auffällig sind hier vor allem die kleinen Unsicherheiten, welche aus dem Umstand resultieren, dass die Zustandsgleichungen auf Basis einer teils sehr großen Menge an Messergebnissen aus unterschiedlichen Messmethoden parametrisiert und identifiziert werden können.

3.2 Messverfahren für akustische Absorption und Volumenviskosität

Messverfahren für die Volumenviskosität basieren aktuell ausschließlich auf einer Messung der akustischen Absorption im zu untersuchenden Fluid. Hier wird stets vorausgesetzt, dass die Scherviskosität sowie die Wärmeleitfähigkeit und die Wärmekapazitäten des Fluids aus unabhängigen Untersuchungen bekannt sind. Zur Bestimmung der akustischen Absorption werden jedoch unterschiedliche Ansätze gewählt.

3.2.1 Akustische Messverfahren

Wohl am verbreitetsten sind Messverfahren, bei denen die Abschwächung einer akustischen Welle bei der Transmission durch das zu untersuchende Fluid betrachtet wird. Die am häufigsten angewandte Methode ist hier die Puls-Echo-Messung, bei der ein Schallwandler sowohl zum Senden als auch zum Empfangen der akustischen Signale verwendet wird. Mit Hilfe eines Reflektors werden die Signale an den Schallwandler zurückgesandt. Die Vorgehensweise in älteren Publikationen deutet auf einen Ursprung des Puls-Echo-Verfahrens in der Radar-Technologie hin. So geben zum Beispiel Pellam et al. [Pel46] die ebenfalls gemessene Laufzeit auch als äquivalente Radar-Entfernung an. Ausgehend von dem Puls-Echo-Verfahren gibt es je nach Entstehungszeitraum des Verfahrens einige Unterschiede in der Realisierung der Messanordnung. Allen Experimentalaufbauten zur Messung der akustischen Absorption gemein ist die Notwendigkeit, andere dissipative Effekte zu korrigieren. Primär sind dies die Aufweitung der akustischen Wellenfront sowie die unvollständige Reflexion und Transmission dieser an den Reflektoren. Zur Korrektur der Aufweitung gibt Born [Bor43] unter Annahme eines Kolbenschwingers bereits 1943 einen Zusammenhang an.

Pinkerton [Pin47; Pin49] verwendet einen Aufbau mit variabler Reflektordistanz, wobei der Reflektor im Nahfeld des Schallwandlers positioniert wird. Schallfeldaufweitung sowie unvollständige Reflexion werden nach Born [Bor43] eliminiert. Weiterhin wird das Ergebnis der Messung überprüft, indem der Schallwandler neben seiner Grundfrequenz auch auf seinen Harmonischen betrieben wird, um die quadratische Abhängigkeit des Absorptionsmechanismus von der Frequenz auszunutzen.

Eine weitere Variante der Puls-Echo-Anordnung besteht aus einem flüssigkeitsgefüllten Zylinder mit variabler Länge. Als Schallwandler dient auch hier eine an einer Stirnfläche vollflächig angebrachte Quarzscheibe. Litovitz et al. [Lit55] verwenden einen derartigen Aufbau. Die Zylinderanordnung wird hier als eine Art Wellenleiter betrachtet, in dem das akustische Signal ohne Verluste geführt wird. Johnson Jr. et al. [Joh68] greifen diese Versuchsanordnung wieder auf, führen jedoch eine umfangreiche Korrekturrechnung für parasitäre Verluste durch, bei der Mehrfachreflexionen zwischen Schallwandler und Reflektor ausgenutzt werden. Eine weitere Variante der Zylinderanordnung wird von Hawley [Haw67] im Rahmen

seiner Dissertation entworfen und zusammen mit Allegra publiziert [All72]. Im Gegensatz zu den zuvor vorgestellten Versuchsanordnungen werden zum Senden und zum Empfangen getrennte Schallwandler an beiden Stirnflächen eines Zylinders mit einstellbarer Länge verwendet.

Alternativ zu diesen Verfahren existieren einige Ansätze, welche auf einer Messung des akustischen Strahlungsdrucks bzw. auf einer Messung der Schallstrahlungskraft basieren. Fox et al. [Fox46] beschreiben eine Methode, bei der der Strahlungsdruck auf eine Kunststoffkugel im Schallfeld bei kontinuierlicher Anregung ausgewertet wird. Smith et al. [Smi48] wählen einen ähnlichen Ansatz, wobei hier die Kraft ausgewertet wird, die der Schall bei verschiedenen Frequenzen auf eine ebene Fläche ausübt.

In jüngeren Publikationen werden des Weiteren kommerziell verfügbare Geräte (zum Beispiel *Malvern Panalytical GmbH* Ultrasizer) zur Messung der akustischen Absorption verwendet [Hol11]. Das hier eingesetzte Messprinzip basiert auf der Analyse der Resonanzeigenschaften einer mit dem Messmedium gefüllten Kavität und ist primär für die Untersuchung von Fluiden bei Atmosphärendruck ausgelegt.

3.2.2 Optische Messverfahren

Alternativ zu akustischen Verfahren zur Bestimmung der Absorption und damit der Volumenviskosität kann auch ein optisches Messverfahren angewandt werden. Für dieses Verfahren wird die Brillouin-Streuung genannte Interaktion zwischen akustischen und elektromagnetischen Wellen ausgenutzt. Für die Beschreibung des zugrundeliegenden Effekts kann eine teilchenphysikalische Modellbetrachtung durchgeführt werden [Mon68; Röm09; Sut96]. Ausgangspunkt ist die Interaktion eines Photons mit einem akustischen Phonon im zu untersuchenden Material. Die Interaktion kann auf zwei unterschiedliche Arten erfolgen: Zum einen kann das Photon bei der Interaktion mit dem zu untersuchenden Material ein akustisches Phonon erzeugen und verliert so an Energie, was die Frequenz des Photons verringert. Zum anderen kann das Photon die Energie eines im zu untersuchenden Material vorhandenen Phonons aufnehmen und so an Energie gewinnen, wodurch die Frequenz des Photons erhöht wird. Der Betrag der Frequenzverschiebung ist in beiden Fällen gleich, so dass sich im Spektrum der gestreuten Strahlung neben der anregenden Strahlung zwei weitere Linien zeigen. Der Abstand Ω_{Δ} dieser so genannten Brillouin-Linien lässt sich durch Annahme von Energie- und Impulserhaltung der interagierenden Teilchen bestimmen. Für eine Kreisfrequenz Ω des einfallenden Photons und eine Kreisfrequenz ω des wechselwirkenden Phonons ergibt sich über

den Energieerhaltungssatz die Kreisfrequenz des gestreuten Photons Ω' :

$$\hbar\Omega \pm \hbar\omega = \hbar\Omega', \tag{3.3}$$

wobei \hbar das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum ist und die unterschiedlichen Vorzeichen jeweils die Energieauf- und Abnahme beschreiben. Analog liefert der Impulserhaltungssatz einen Ausdruck für den Wellenzahlvektor des gestreuten Photons $\vec{K'}$:

$$\hbar \vec{K} \pm \hbar \vec{k} = \hbar \vec{K'}.$$
(3.4)

 \vec{K} und \vec{k} sind hier die Wellenzahlvektoren des einfallenden Photons und des wechselwirkenden Phonons. Unter Vernachlässigung von Dämpfung und der Annahme, dass die Schallgeschwindigkeit c viel kleiner ist als die Lichtgeschwindigkeit C im Medium, liefert das Einsetzen der jeweiligen Dispersionsbeziehungen

$$\Omega = C|\dot{K}|,\tag{3.5}$$

$$\omega = c|\vec{k}| \quad \text{und} \tag{3.6}$$

$$\Omega' = C|\vec{K'}| \tag{3.7}$$

einen Ausdruck für die Frequenzverschiebung Ω_{Δ} der gestreuten Photonen [Mou66]:

$$\Omega_{\Delta} = \Omega' - \Omega = \pm 2c \frac{\Omega}{C} \sin \frac{\theta}{2}, \qquad (3.8)$$

wobei θ der Winkel zwischen dem Wellenvektor der einfallenden und der gestreuten Strahlung ist. Die lineare Abhängigkeit der Frequenzverschiebung von der Schallgeschwindigkeit c ermöglicht die Auswertung von Brillouin-Streuung zur Bestimmung der Schallgeschwindigkeit. Es ist weiterhin ersichtlich, dass der Ausdruck für $\theta = 180^{\circ}$ maximal wird. Der Messeffekt ist also am größten, wenn die direkt in Richtung der Quelle zurück gestreute Strahlung analysiert wird (Rückstreuung). In diesem Fall ergibt sich die Frequenzverschiebung zu [Sut96]:

$$\Omega_{\Delta} = \pm 2c \frac{\Omega}{C}.\tag{3.9}$$

Ist die Ausbreitung der akustischen Welle verlustbehaftet, so äußert sich dies in einer Verbreiterung der Brillouin-Linien, die im verlustfreien Fall ideal schmal sein müssen. Teilchenphysikalisch wird der dissipative Term

in der akustischen Dispersionsbeziehung als Lebensdauer des Phonons interpretiert. Dies wird vor allem dann ersichtlich, wenn man die Verluste im Ansatz für die Dispersionsbeziehung nicht wie in Abschnitt 2.1.3 über eine komplexe Wellenzahl, sondern über eine komplexe Frequenz modelliert. Die Dispersionsbeziehung unter Annahme einer komplexen Kreisfrequenz lautet dann wie folgt:

$$\omega = |\vec{k}|c - j \frac{|\vec{k}|^2 \mu}{2\rho_0}.$$
 (3.10)

Der Imaginärteil hat hier gerade die Einheit s⁻¹; sein Kehrwert entspricht also einer Zeitkonstanten, die teilchenphysikalisch als mittlere Lebensdauer interpretiert werden kann. Eine Menge Teilchen mit endlicher Lebensdauer kann als energetisch unscharf betrachtet werden [Sch02]. Diese Unschärfe wird bei der Interaktion mit Photonen als Resultat der Energieerhaltung übertragen und führt zu einer Verbreiterung der Brillouin-Linien. Die Verteilung der Intensität im resultierenden optischen Spektrum lässt sich für eine Linie mit einer Cauchy-Verteilung beschreiben [Lan60]:

$$I(\Omega) = \frac{I_0}{\pi} \frac{\Gamma}{\left(\Omega - \Omega_\Delta\right)^2 - \Gamma^2}.$$
(3.11)

 Ω_{Δ} ist hier die zuvor bestimmte Frequenzverschiebung, während Γ Linienbreite genannt wird. Diese ergibt sich unter Annahme von Energieund Impulserhaltung aus dem Imaginärteil der Frequenz des gestreuten Photons, wenn für das Phonon die Dispersionsbeziehung (Gleichung 3.10) gilt.

$$\Gamma = \frac{\mu \Omega^2}{\rho_0 C^2} (1 - \cos(\theta)). \tag{3.12}$$

Die Breite dieser Linien Γ ist also ein Maß für die thermoviskosen Verluste μ [Sut96; Lan60; Mey79]. Auch hier zeigt sich, dass der Messeffekt für zurückgestreute Photonen ($\theta = 180^{\circ}$) am größten ist.

Messverfahren basierend auf Brillouin-Streuung sind im Vergleich zum akustischen Ansatz vor allem deshalb weniger verbreitet, weil an die verwendeten optischen Komponenten höchste Anforderungen hinsichtlich der spektralen Auflösung gestellt werden. Ursächlich hierfür ist die geringe Energie der akustischen Phononen und die daraus resultierende geringe Änderung der Energie der Photonen bei der Interaktion. Die durch Brillouin-Streuung hervorgerufene Frequenzverschiebung liegt bei Experimenten zur Bestimmung der akustischen Absorption in Fluiden im Bereich einiger Gigahertz [Xu03], während die anregende Strahlung in der Regel im sichtbaren Bereich liegt (400 THz bis 789 THz). Entsprechend muss die verwendete Strahlungsquelle sehr schmalbandig sein, um die Brillouin-Linien nicht zu überlagern. Weiterhin muss das Spektrum der gestreuten Strahlung im Frequenzbereich hoch aufgelöst messtechnisch erfasst werden, um die Breite der Brillouin-Linien mit geringer Unsicherheit bestimmen zu können. Die Methode hat jedoch den Vorteil, dass hier keine Effekte wie akustische Aufweitung und unvollständige akustische Reflexion über Referenzierung korrigiert werden müssen. Es ist daher weniger wahrscheinlich, dass Ergebnisse von Absorptionsmessungen über Brillouin-Streuung systematische Messabweichungen aufweisen.

Ausgehend von der Anzahl der Publikationen wird die Messung der akustischen Absorption mittels Brillouin-Streuung häufiger in Gasen als in Flüssigkeiten angewandt. Hier werden vorwiegend die Bestandteile von Luft (zum Beispiel [Gu14b; Gu14a; Ma14]) und Edelgase (zum Beispiel [Fle69; Bah75]) analysiert. Es existieren jedoch auch einige Untersuchungen an (flüssigem) Wasser, die im folgenden Abschnitt mit aufgenommen werden [Rou76; Xu03].

3.2.3 Messdaten

Für das im Rahmen dieser Arbeit vorgestellte Messverfahren werden zur Korrektur von systematischen Messabweichungen Referenzdaten benötigt. An dieser Stelle sollen die Datensätze, welche als Referenz verwendet werden, nach der jeweiligen Flüssigkeit unterteilt über den Zustandsraum dargestellt werden. Dargestellt wird dabei die Volumenviskosität über Temperatur und Dichte. Von der vielleicht gebräuchlicheren Darstellungsform über Temperatur und Druck wird abgesehen, da kleine Dichteänderungen für Flüssigkeiten in der Regel große Druckänderungen bedeuten. Durch die Darstellung über die Dichte wird also vermieden, dass eine sich über mehrere Größenordnungen erstreckende Druck-Skala verwendet werden muss. Zur Berechnung der Dichte im jeweiligen gegebenen Zustand werden die in *REFPROP* [Lem13] gesammelten Zustandsgleichungen verwendet. In nahezu allen in diesem Abschnitt referenzierten Publikationen wird für die jeweiligen Messergebnisse ein Wert für die akustische Absorption angegeben, um dann, in den meisten Fällen, daraus die Volumenviskosität zu bestimmen. Wie in Abschnitt 2.1.3 beschrieben, müssen zur Bestimmung der Volumenviskosität $\mu_{\rm v}$ aus der akustischen Absorption α andere Fluidkenngrößen (Scherviskosität μ_s , Wärmeleitfähigkeit ν , isochore Wärmekapazität $c_{\rm v}$ und isobare Wärmekapazität $c_{\rm p}$) sowie Dichte ρ_0 und



Abbildung 3.1: Veröffentlichte Messdaten für die Volumenviskosität von Wasser.

Schallgeschwindigkeit c bekannt sein:

$$\mu_{\rm v} = \mu - \frac{4}{3}\mu_{\rm s} - \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}}\nu \tag{3.13}$$

$$= \frac{2\alpha c^{3}\rho_{0}}{\omega^{2}} - \frac{4}{3}\mu_{\rm s} - \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}}\nu.$$
(3.14)

Die dazu nötigen Berechnungen sind in den aufgeführten Publikationen ebenfalls durchgeführt, werden aber hier, auf Basis der in *REF-PROP* [Lem13] hinterlegten aktuellen Gleichungen für die Verlust- und Zustandsgrößen neu durchgeführt. So wird dem aktuellen Stand der Forschung bezüglich der anderen Verlustgrößen Rechnung getragen.

Die Messdaten für die Volumenviskosität von Wasser sind in Abbildung 3.1 dargestellt. Sonderfälle, wie etwa das in [Rou76] ebenfalls untersuchte unterkühlte Wasser, sind nicht mit aufgeführt. Die Mehrzahl der Messungen liegt für eine Dichte ρ_0 von etwa $1000 \,\mathrm{kg}\,\mathrm{m}^{-3}$ bei unterschiedlichen Temperaturen vor. Diese Daten entsprechen gerade isobaren Messungen bei Atmosphärendruck. Ausnahmen sind die in [Lit55] und [Haw70] durchgeführten isothermen Messungen (beide mit einer geschlossenen Zylinderanordnung) bei zwei unterschiedlichen Temperaturen (jeweils 275,15 K und 303,15 K bzw. 2 °C und 30 °C). Allgemein zeigt sich die Volumenviskosität $\mu_{\rm v}$ von Wasser nach den vorhandenen Untersuchungen als stark temperaturabhängig. Bei Atmosphärendruck beträgt sie in der Nähe des Tripelpunkts etwa 7 mPas, während Pinkerton (Anordnung mit variablem Reflektor) bei 363,15 K (90 °C) weniger als 1 mPas misst [Pin49]. Auch wenn die Datenlage bezüglich der Dichteabhängigkeit (bzw. Druckabhängigkeit) der Volumenviskosität nicht umfangreich ist, zeigt sich ein geringer Trend hin zu einer größeren Volumenviskosität bei größerer Dichte. Weiter sind die Ergebnisse von Hall (variable Reflektoranordnung, [Hal48]) und einige der Ergebnisse von Rouch (Brillouin-Streuung, [Rou76]) hervorzuheben, die jeweils vergleichsweise stark von den anderen Messungen abweichen. Vor allem Hall zeigt in allen Ergebnissen eine größere Volumenviskosität als andere Autoren bei ähnlichen Zuständen. Rouchs Messergebnisse weichen nur teilweise ab, hier jedoch stark nach unten. Weiterhin sind die ebenfalls auf Basis von Brillouin-Streuung erlangten Messergebnisse von Xu zu nennen [Xu03], die trotz des anderen Messprinzips gut mit den Ergebnissen anderer Autoren übereinstimmen.

Für Methanol ist die Literaturdatenbasis deutlich kleiner als für Wasser (Abbildung 3.2). Es liegen jeweils zwei Messreihen bei konstantem Druck (Atmosphärendruck; Reflektor im Fernfeld [Awa77] und geschlossener Zylinder [Kor71c]) und bei konstanter Temperatur (303,15 K; beides geschlossene Zylinderanordnungen [Kor71a; Haw70]) vor. Die Temperaturund Dichteabhängigkeit der Volumenviskosität von Methanol zeigt sich nach der vorliegenden Datenlage ähnlich der von Wasser: Eine Erhöhung der Temperatur führt zu einer geringeren Volumenviskosität, während eine steigende Dichte in einer höheren Volumenviskosität resultiert.

Es liegen weiterhin einige Messdaten für n-Hexan und Toluol (Methylbenzen) vor. Für n-Hexan ist nur ein Datensatz aus den Untersuchungen von Allegra [All70] verfügbar (Abbildung 3.3 a). Er zeigt die Volumenviskosität bei konstanter Temperatur (303,15 K) in Abhängigkeit des Drucks. Auch wenn aufgrund der geringen Datenlage für n-Hexan keine Aussage zur Temperaturabhängigkeit der Volumenviskosität gemacht werden kann, zeigt



Abbildung 3.2: Veröffentlichte Messdaten für die Volumenviskosität von Methanol.



Abbildung 3.3: Veröffentlichte Messdaten für die Volumenviskosität von n-Hexan a) und Toluol b).

3.3 Versuchsaufbau zur Schallgeschwindigkeitsmessung

sich die Dichteabhängigkeit ähnlich den zuvor betrachteten Flüssigkeiten. Für Toluol existieren zwei Datensätze mit jeweils vier Messungen (Abbildung 3.3 b). Die beiden ebenfalls von Allegra publizierten Datensätze zeigen die Volumenviskosität in Abhängigkeit der Temperatur bei Atmosphärendruck [All72] und in Abhängigkeit des Drucks bei konstanter Temperatur 303,15 K [All70]. Trotz der geringen Datenlage deuten die Messungen auf eine Dichte- und Temperaturabhängigkeit der Volumenviskosität hin, die den zuvor betrachteten Flüssigkeiten entspricht. Allegra setzt für alle hier genannten Messungen eine geschlossene Zylinderanordnung mit getrennten Sende- und Empfangsschallwandlern ein [All70; All72].

Es existieren weiterhin einige Messungen für die Volumenviskosität von weiteren Alkoholen (Ethanol [Kor71e; Awa77; Pin49; Kor71d; Haw70], 1-Propanol und 1-Butanol [Car55]). Der Datensatz für 1-Propanol wird nicht als Referenz verwendet, jedoch zum Vergleich mit den ermittelten Ergebnissen herangezogen.

3.3 Versuchsaufbau zur Schallgeschwindigkeitsmessung

Grundlage für die in dieser Arbeit beschriebenen Untersuchungen ist ein vorhandener Experimentalaufbau zur Bestimmung der Schallgeschwindigkeit in Fluiden in unterschiedlichen Zuständen. Den Kern dieses Messsystems bildet eine Anordnung aus einem Quarz-Schallwandler und zwei akustischen Reflektoren, die zuerst von Kortbeek et al. [Kor85] beschrieben wird. Der scheibenförmige Quarzkristall (X-Schnitt) wird dabei nur am Rand fixiert, so dass akustische Wellen in beide Richtungen abgestrahlt werden können. Die akustischen Reflektoren befinden sich im Abstand von etwa 20 mm und etwa 30 mm zu beiden Seiten des Schallwandlers. Beim Anlegen eines elektrischen Signals an den Schallwandler sendet dieser akustische Signale in Richtung beider Reflektoren aus. Nach der Reflexion an den Reflektorflächen werden die akustischen Signale mit unterschiedlichen Verzögerungszeiten wieder vom Schallwandler empfangen. Aus diesem Laufzeitunterschied kann, bei bekannter Lauflängendifferenz, die Schallgeschwindigkeit bestimmt werden.

Aufbauend auf den Arbeiten von Kortbeek et al. [Kor85] realisieren Dubberke et al. [Dub14] ein ähnliches Messsystem für die Schallgeschwindigkeit in Fluiden. Der Aufbau der Messanordnung ist in Abbildung 3.4 schematisch dargestellt. Zum Einstellen unterschiedlicher thermodynami-



Abbildung 3.4: Aufbau des Messsystems zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung nach Dubberke et al. [Dub14].

scher Zustände befindet sich das Messsystem in einem thermostatisierten Druckbehälter. Weiterhin werden für die Realisierung des Messsystems thermisch stabile Materialien (zumeist Edelstahl) gewählt, so dass neben dem Druck auch die Temperatur variiert werden kann. Diese Maßnahmen ermöglichen die Untersuchung von Fluiden bei einem Druck bis zu 100 MPa und Temperaturen von 220 K bis 480 K.

Bis auf einige Elemente ist die Anordnung bezüglich der akustischen Achse rotationssymmetrisch. Der Quarz-Schallwandler liegt einseitig auf einem invers-konischen Element auf und wird von Federelementen (nicht eingezeichnet) gehalten und elektrisch kontaktiert. Der Schallwandler wird mit Hilfe eines Halbleiterschalters [Het16] je nach Sende- oder Empfangsbetrieb entweder mit einem Signalgenerator oder einem Oszilloskop verbunden. Sowohl der Ausgang des Signalgenerators als auch der Eingang des Oszilloskops sind mit einer Impedanz von 50 Ω terminiert. Der Schallwandler ist also in beiden Betriebsfällen elektrisch gleich belastet. Als Sendesignal wird eine Folge von zwei Rechteck-modulierten Sinussignalen mit der Resonanzfrequenz des Schallwandlers (8 MHz) verwendet, wobei das zweite Signal angepasst wird, um das Nachschwingen des Schallwandlers zu unterdrücken [Dub15]. Das elektrische Empfangssignal (Abbildung 3.5) wird digital erfasst und die reflektierten Signalgruppen werden bezüglich

3.3 Versuchsaufbau zur Schallgeschwindigkeitsmessung



Abbildung 3.5: Mit dem Messsystem zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung (Abbildung 3.4) aufgenommenes Messsignal. Das Messmedium ist Wasser bei Umgebungsdruck und 300 K.

der Laufzeitdifferenz t_{Δ} ausgewertet. Wie Abbildung 3.5 zeigt, folgen auf die eigentlichen Nutzsignale weitere Signalgruppen, die durch Mehrfachreflexion in der Messanordnung entstehen. Diese bleiben unberücksichtigt, da zum Beispiel Doppelreflexionen an den beiden Grenzflächen des Quarz-Schallwandlers die Einhüllende des Signals beeinflussen (siehe $t = 55 \,\mu\text{s}$ und $t = 82 \,\mu\text{s}$). Das vergleichsweise starke Signal bei $t = 68 \,\mu\text{s}$ kommt durch die konstruktive Überlagerung zweier Signalgruppen zustande (siehe Abschnitt 4.3 bzw. Abbildung 4.2).

Die zur Bestimmung der Schallgeschwindigkeit verwendete Lauflängendifferenz wird zunächst durch Referenzmessungen an einer bekannten Flüssigkeit (Wasser) bestimmt. Die durch Temperatur- und Druckvariation hervorgerufene Änderung der Lauflängendifferenz wird über eine Korrekturvorschrift berücksichtigt [Jav19]. Für die so ermittelte Schallgeschwindigkeit geben die Autoren eine erweiterte, relative Unsicherheit von etwa 0,1 % an [Dub14; Jav19].

4 Signalverarbeitung zur Absorptionsbestimmung

In diesem Kapitel werden verschiedene Ansätze zur messtechnischen Bestimmung der akustischen Absorption vorgestellt und anhand von simulativ erzeugten Signalen evaluiert. Zunächst soll zur Abgrenzung kurz die Möglichkeit diskutiert werden, die Volumenviskosität direkt und unabhängig von anderen Verlustgrößen zu messen. Bei den Verfahren zur Ermittlung der akustischen Absorption handelt es sich primär um Ansätze, welche durch die Absorption hervorgerufene dispersive Eigenschaften akustischer Wellen ausnutzen. Dabei wird die Annahme getroffen, dass die später zu realisierende Messanordnung auf dem Puls-Echo-Prinzip basiert. Von einem Schallwandler wird also ein zeitlich begrenztes akustisches Signal abgestrahlt, welches durch das zu untersuchende Medium transmittiert. Die Versuchsanordnung soll so aufgebaut sein, dass das Signal in einer oder mehreren Distanzen zum Schallwandler wieder aufgenommen werden kann. Realisiert werden kann dies zum Beispiel durch akustische Reflektoren, welche das akustische Signal zurück zum Schallwandler senden.

Neben der Beschreibung der einzelnen Verfahren soll zusätzlich untersucht werden, inwiefern sich die Ansätze eignen, bestimmte Einflüsse (siehe Abbildung 1.2) direkt durch geschickte Verarbeitung der Signale zu eliminieren. Weiterhin führt die Frequenzabhängigkeit des Absorptionsmechanismus bei Signalen endlich kleiner Bandbreite dazu, dass zur Bestimmung des Absorptionsparameters $a = \frac{\alpha}{\omega^2}$ nicht die Absorption α bestimmt werden kann, um dann durch ω^2 zu teilen. Stattdessen werden Verfahren zur Auswertung im Frequenzbereich vorgestellt. Da die genaue Form der Messanordnung zunächst nicht festgelegt werden soll, wird im Rahmen der Beschreibung der einzelnen Verfahren erläutert, welche Randbedingungen (zum Beispiel Messung im Fernfeld, siehe Abbildung 2.3) für die Anordnung gelten müssten, um bestimmte Effekte minimieren zu können.

4.1 Unabhängige Messung der Volumenviskosität

Sowohl für die Scherviskosität als auch für die Wärmeleitfähigkeit existieren von anderen Verlustgrößen des Fluids unabhängige Messverfahren. Entsprechend stellt sich die Frage nach einer unabhängigen Messung der Volumenviskosität, da die Bestimmung über eine Messung der akustischen Absorption immer die Kenntnis der anderen Verlustgrößen voraussetzt. Diese Frage soll an dieser Stelle diskutiert werden.

Es lässt sich zunächst einschränken, welche Art der Fluidbewegung für ein hypothetisches Messsystem für die Volumenviskosität in Frage kommt. Wie in Abschnitt 2.1 gezeigt, hängen akustische Phänomene von allen drei Verlustmechanismen ab. Daher kommt eine rein akustische Messmethode für eine unabhängige Volumenviskositätsmessung nicht in Frage. Inkompressible Fluidbewegungen können zur unabhängigen Bestimmung der Scherviskosität verwendet werden (siehe Abschnitt 3.1.1) und zeigen demnach keine Abhängigkeit von der Volumenviskosität. Für eine unabhängige Messung der Volumenviskosität kommt also nur eine Messanordnung mit einer kompressiblen Fluidbewegung in Frage, die den im Folgenden beschriebenen Bedingungen genügen muss.

Als Ausgangspunkt dient wieder die Navier-Stokes-Gleichung:

$$\tilde{\rho} \mathrm{d}\tilde{\vec{v}} = -\mathrm{grad}\,\tilde{p} + \mu_{\mathrm{s}} \nabla^2 \tilde{\vec{v}} + \left(\mu_{\mathrm{v}} + \frac{1}{3}\mu_{\mathrm{s}}\right) \mathrm{grad}\,(\mathrm{div}\,\tilde{\vec{v}}). \tag{4.1}$$

Zur Bestimmung der Scherviskosität kann gezeigt werden, dass unter Annahme von Inkompressibilität (div $\tilde{\vec{v}} = 0$) die Abhängigkeit der Gleichung von der Volumenviskosität verschwindet (siehe Abschnitt 3.1.1). Durch Ausklammern von μ_s in Gleichung 4.1 lässt sich weiterhin eine Bedingung aufstellen, die für ein von der Scherviskosität unabhängiges, aber von der Volumenviskosität abhängiges Schnellefeld gelten muss:

$$\nabla^2 \tilde{\vec{v}} + \frac{1}{3} \text{grad} \left(\text{div} \, \tilde{\vec{v}} \right) = 0, \qquad (4.2)$$

bzw. über den Rotationsoperator ausgedrückt

$$\frac{4}{3}\operatorname{grad}\left(\operatorname{div}\tilde{\vec{v}}\right) - \operatorname{rot}\left(\operatorname{rot}\tilde{\vec{v}}\right) = 0.$$
(4.3)

Die doppelt angewandte Rotation des Schnellefelds muss also gerade einem Ausdruck genügen, der anschaulich etwa einer skalierten zweiten örtlichen

4.2 Verfahren zur Bestimmung der akustischen Absorption

Ableitung des gleichen Schnellefelds entspricht, wobei die Terme ungleich Null sein müssen. Lösungen, bei denen beide Terme zu Null werden, zum Beispiel ein Schnellefeld, für das gilt div $\vec{v} \neq 0$, aber grad (div \vec{v}) = 0 sowie rot $\vec{v} = 0$, stellen zwar Lösungen der Differentialgleichung 4.3 dar, bewirken aber bei genauerer Betrachtung der Navier-Stokes-Gleichung (Gleichung 4.1), dass die Lösung ebenso unabhängig von der Volumenviskosität wird. Neben dieser Bedingung muss das Schnellefeld außerdem dem Gleichungssystem aus Navier-Stokes-Gleichung, Kontinuitätsgleichung und Zustandsgleichung (Abschnitt 2.1.2) genügen. Die Lösung dieses Gleichungssystems ist in vielen Fällen nur numerisch möglich und stellt schon in der inkompressiblen Form (welche die Effekte der Volumenviskosität vernachlässigt) eins der bis dato ungelösten Millennium-Probleme dar [Car06]. Entsprechend anspruchsvoll gestaltet sich die Lösung des Gleichungssystems unter der oben beschriebenen Nebenbedingung (Gleichung 4.2), bzw. das Ableiten einer geeigneten Messanordnung aus einer gefundenen Lösung. Dies zeigt, warum zum aktuellen Zeitpunkt kein direktes Messverfahren für die Volumenviskosität existiert und die Auswertung der akustischen Absorption den einzigen Lösungsansatz darstellt. Eine Möglichkeit sich dem Problem der Realisierung eines Messsystem zu nähern, wäre die simulationsgestützte Auslegung, zum Beispiel eines Strömungskanals, bei dem die obenstehende Bedingung (Gleichung 4.2) als Zielfunktion im inversen Verfahren minimiert wird [Sch20].

4.2 Verfahren zur Bestimmung der akustischen Absorption

Im Folgenden werden verschiedene Ansätze zur Ermittlung der akustischen Absorption aus den Parametern empfangener Signale beschrieben. Neben dem klassischen Ansatz über die Abnahme der Signalintensität stehen Verfahren im Vordergrund, die auf den dispersiven Eigenschaften akustischer Wellen in verlustbehafteten Fluiden basieren. Es wird weiterhin untersucht, inwiefern die Energiegeschwindigkeit einer akustischen Welle zur Bestimmung der Absorption ausgewertet werden kann.

4.2.1 Absorptionsbestimmung über die akustische Signalintensität

Aus der in Kapitel 2 hergeleiteten Dispersionsbeziehung ergibt sich unter Annahme einer ebenen Welle eine exponentiell abklingende Amplitude über den Ort:

$$p = p_0 \mathrm{e}^{\mathrm{j}(k_\mathrm{r}z - \omega t)} \mathrm{e}^{-\alpha z}.$$
(4.4)

Eine Messung des Schallwechseldrucks an zwei unterschiedlichen Positionen $(z_1 \text{ und } z_2)$ ermöglicht demnach die Bestimmung der Absorption α durch Betrachtung des Betrags von p:

$$\alpha = \frac{1}{z_2 - z_1} \ln\left(\frac{|p(z_1)|}{|p(z_2)|}\right).$$
(4.5)

Zur Auswertung realer Messsignale lässt sich dieser idealisierte Ansatz nur bedingt verwenden. Zum einen gilt Gleichung 4.5 nur für monofrequente Signale, da α für Fluide frequenzabhängig ist. Im Puls-Echo-Messverfahren folgt alleine aus der Tatsache, dass die ausgesendeten Signale endlich lang sein müssen, dass der Ansatz in dieser Form nur bedingt verwendet werden kann. Wird dennoch die Näherung getroffen, dass die Signale monofrequent sind, und zur Bestimmung der thermoviskosen Verluste aus einer gemessenen Absorption α etwa die Mittenfrequenz des akustischen Signals angenommen, so ergeben sich, abhängig von der Bandbreite des Signals, systematische Abweichungen (siehe Anhang A.6). Zum anderen lässt sich die Annahme einer ebenen Welle im realen Versuchsaufbau meist nicht halten. Ein endlich großer Schallwandler erzeugt ohne weitere Randbedingungen ein sich aufweitendes Schallfeld (geometrische Dispersion), welches dazu führt, dass die akustische Signalstärke zusätzlich beeinflusst wird (Abschnitt 2.2). Eine Möglichkeit, den daraus resultierenden Abfall der Schallwechseldruckamplitude zu beschreiben, besteht in der sogenannten Fernfeldnäherung (siehe Abschnitt 2.2). Diese ist jedoch erst ab einem bestimmten Abstand (etwa dem zwei- bis dreifachen der Nahfeldlänge n) zum Schallwandler gültig, wie Abbildung 2.3 zeigt. Auf der akustischen Achse nimmt die Schallwechseldruckverteilung im Fernfeld dann die folgende Form an:

$$p(z) \propto \frac{p_0''}{z} \mathrm{e}^{\mathrm{j}(k_{\mathrm{r}}z - \omega t)} \mathrm{e}^{-\alpha z}.$$
(4.6)

Analog lässt sich auch in diesem Fall die Absorption bestimmen, indem in zwei unterschiedlichen Abständen $(z_1 \text{ und } z_2)$ zur Quelle der Schallwechseldruck gemessen wird.

$$\alpha = \frac{1}{z_2 - z_1} \ln \left(\frac{|p(z_1)|}{|p(z_2)|} \frac{z_1}{z_2} \right).$$
(4.7)

Voraussetzung hierbei ist dann, dass beide Messstellen im Fernfeld liegen.

Die Einschränkung, dass dieser Zusammenhang strenggenommen nur für monofrequente Signale gilt, ist jedoch noch nicht aufgehoben. Im Folgenden werden Verfahren zur Bestimmung der Absorption über die durch Absorption hervorgerufenen dispersiven Eigenschaften akustischer Wellen vorgestellt.

4.2.2 Auswertung der Energiegeschwindigkeit

Da auch der Realteil der Kreiswellenzahl $k_{\rm r}$ durch die Absorption im Fluid beeinflusst wird, verändert sich die Ausbreitungsgeschwindigkeit akustischer Wellen. Dies zeigt sich unter anderem in einer frequenzabhängigen Phasengeschwindigkeit $c_{\rm ph}$ (siehe Gleichung 2.37), die aber messtechnisch in einer Puls-Echo-Anordnung nur schwer zugänglich ist. Die Gruppengeschwindigkeit ist für verlustbehaftete Medien nicht definiert [Aul90; Mai87]. Einen alternativen Ansatz stellt die Auswertung der Energiegeschwindigkeit dar, für die jedoch für den vorliegenden Fall der Wellenausbreitung zunächst ein Ausdruck hergeleitet werden muss.

Die Energiegeschwindigkeit ist definiert als das Verhältnis der mittleren akustischen Energieflussdichte \bar{S} zur mittleren akustischen Energiedichte \bar{E} [Hay79; Mai87]. Aufgrund der Betrachtungsweise mit einer komplexen Ansatzfunktion wird sich aus diesem Zusammenhang ein ebenfalls komplexer Ausdruck für die Energiegeschwindigkeit ergeben. Während der Realteil die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Energie beschreibt, korrespondiert der Imaginärteil mit den Verlusten. Es soll daher an dieser Stelle nur der Realteil des Ausdrucks betrachtet werden:

$$c_{\rm e} = \operatorname{Re}\left(\frac{\bar{S}}{\bar{E}}\right). \tag{4.8}$$

Zur Bestimmung energetischer Größen ist es in der Regel notwendig, dass beide Feldgrößen (hier Schnelle- und Wechseldruckfeld) bekannt sind. Da es aufgrund der Anwesenheit von Verlusten im Feld nicht trivial ist, aus einem gegebenen Schnellefeld ein Wechseldruckfeld (oder umgekehrt) zu bestimmen, bietet es sich an, die weiteren Schritte auf Basis des Skalarpotenzials ϕ (siehe Anhang A.2) durchzuführen. Weiterhin werden die Betrachtungen

4 Signalverarbeitung zur Absorptionsbestimmung

in diesem Abschnitt der Übersichtlichkeit halber auf einer eindimensionalen Lösung der Wellengleichung für das Skalarpotenzial durchgeführt. Diese lautet:

$$\phi = \phi_0 e^{\mathbf{j}(kz - \omega t)} = \phi_0 e^{\mathbf{j}((k_r + \mathbf{j}\alpha)z - \omega t)}.$$
(4.9)

Der Realteil der komplexen Wellenzahl k wird hier mit $\operatorname{Re}(k) = k_{\rm r}$ bezeichnet. Zur Bestimmung der mittleren Energieflussdichte S_z in Ausbreitungsrichtung z der akustischen Welle kann der folgende Zusammenhang genutzt werden [Šut84]:

$$\bar{S}_z = p v_z^*. \tag{4.10}$$

Dieser Ausdruck ist etwa vergleichbar mit einer Komponente des Poynting-Vektors in der Elektrodynamik, bei dem die jeweils beteiligten Feldgrößen ebenfalls miteinander multipliziert werden. Zunächst müssen Druckund Schnellefeld aus der gegebenen Lösung für das Skalarpotenzial (Gleichung 4.9) bestimmt werden (Gleichungen A.18 und A.19):

$$v_{z} = -j (j\alpha + k_{r}) \phi \qquad (4.11)$$

$$p = \left(-j\omega\rho_{0} + \left(\frac{4}{3}\mu_{s} + \mu_{v}\right)(j\alpha + k_{r})^{2}\right)\phi \qquad (4.12)$$

$$= \left(-j\omega\rho_{0} + \mu_{vis}(j\alpha + k_{r})^{2}\right)\phi, \qquad (4.12)$$

wobei die auf Scher- und Volumenviskosität zurückzuführenden Terme als μ_{vis} zusammengefasst werden. Da sich die mittlere Energiedichte \bar{E} als reell herausstellen wird (Gleichung 4.15), genügt es, nur den Realteil der mittleren Energieflussdichte zu bestimmen. Dieser ergibt sich zu:

$$\operatorname{Re}\left(\bar{S}_{z}\right) = \left(-\alpha^{3}\mu_{\mathrm{vis}} - \alpha k_{\mathrm{r}}^{2}\mu_{\mathrm{vis}} + k_{\mathrm{r}}\omega\rho_{0}\right)\phi_{0}^{2}\mathrm{e}^{-2\alpha z}.$$
(4.13)

Die mittlere Energiedichte \overline{E} lässt sich für ein gegebenes Schnelle- und Druckfeld unter Annahme von Schallausbreitung in z-Richtung wie folgt bestimmen [Ler09]:

$$\bar{E} = \frac{1}{\rho_0} |v_z|^2 + \frac{1}{2} \frac{1}{2c^2 \rho_0} |p|^2.$$
(4.14)

Anschaulich entspricht der erste Term des Ausdrucks gerade der im Schnellefeld gespeicherten kinetischen Energie. Der zweite Term entspricht der im Wechseldruck gespeicherten potenziellen Energie. Angewandt auf die vorliegende Lösung für das Skalarpotenzial (Gleichung 4.9) ergibt sich der folgende Ausdruck:

$$\bar{E} = (\alpha^4 \mu_{\rm vis}^2 + \alpha^2 c^2 \rho_0^2 + 2\alpha^2 k_{\rm r}^2 \mu_{\rm vis}^2 - 4\alpha k_{\rm r} \mu_{\rm vis} \omega \rho_0 + c^2 k_{\rm r}^2 \rho_0^2 + k_{\rm r}^4 \mu_{\rm vis}^2 + \omega^2 \rho_0^2) \frac{\phi_0^2 e^{-2\alpha z}}{2c^2 \rho_0}.$$
(4.15)

Einsetzen in Gleichung 4.8 liefert dann:

$$c_{\rm e} = \frac{2c^2\rho_0 \left(k_{\rm r}\omega\rho_0 - \alpha^3\mu_{\rm vis} - \alpha k_{\rm r}^2\mu_{\rm vis}\right)}{\alpha^4\mu_{\rm vis}^2 + \alpha^2 c^2\rho_0^2 + 2\alpha^2 k_{\rm r}^2\mu_{\rm vis}^2 - 4\alpha k_{\rm r}\mu_{\rm vis}\omega\rho_0 + c^2 k_{\rm r}^2\rho_0^2 + k_{\rm r}^4\mu_{\rm vis}^2 + \omega^2\rho_0^2}.$$
(4.16)

Hier müssen nun noch die zuvor bestimmten Ausdrücke für den Realteil k_r der Wellenzahl und die Absorption α (Gleichung 2.31) eingesetzt werden. Damit ergibt sich die Energiegeschwindigkeit ebener Wellen im verlustbehafteten Fluid zu:

$$c_{\rm e} = \frac{\sqrt{2}c}{\sqrt{\sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1} + 1}} \frac{\frac{\omega^2\mu}{\rho_0^2c^4}(\mu - \mu_{\rm vis}) + \sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1} + 1}{\frac{\omega^2}{\rho_0^2c^4}(\mu - \mu_{\rm vis})^2 + \sqrt{\frac{\omega^2\mu^2}{\rho_0^2c^4} + 1} + 1}.$$
 (4.17)

Ähnlich wie bei der Phasengeschwindigkeit zuvor, sollen nun einige Grenzfälle betrachtet werden. Der Ausdruck für die Energiegeschwindigkeit wird vor allem dann kompakter, wenn die durch Scher- und Volumenviskosität hervorgerufenen Verluste die thermischen Verluste deutlich überwiegen $(\mu = \mu_{\text{vis}})$ oder nur thermische Verluste das Verhalten bestimmen $(\mu_{\text{vis}} = 0)$. Er nimmt dann für beide Fälle die folgende Form an:

$$c_{\rm e} = \frac{\sqrt{2}c}{\sqrt{\sqrt{\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} + 1} + 1}}.$$
(4.18)

Für kleine Frequenzen und geringe Absorption $\left(\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} \ll 1\right)$ ergibt sich gerade wieder der dispersionsfreie Fall

$$c_{\rm e} \approx c,$$
 (4.19)

bei dem die Energiegeschwindigkeit der Schallgeschwindigkeit entspricht. Unter der für Gleichung 4.18 getroffenen Vereinfachung können weitere Näherungen hergeleitet werden. Als Approximation für kleine Frequenzen und Absorption liefert analog zur Phasengeschwindigkeit eine Reihenent-

4 Signalverarbeitung zur Absorptionsbestimmung



Abbildung 4.1: Verlauf der Energiegeschwindigkeit über die Frequenz für ein Beispielmedium mit hoher Absorption ($c = 1500 \,\mathrm{m\,s^{-1}}$, $\rho_0 = 1000 \,\mathrm{kg\,m^{-3}}$, $\mu = 1 \,\mathrm{Pa\,s}$, $\mu_{\mathrm{vis}} = 0.5 \,\mathrm{Pa\,s}$); exakte Lösung und verschiedene Näherungen.

wicklung in μ für $\mu = 0$ oder in ω für $\omega = 0$ einen Ausdruck, der dispersive Effekte nicht vollständig vernachlässigt:

$$c_{\rm e} \approx c - \frac{\mu^2 \omega^2}{8c^3 \rho_0^2}.\tag{4.20}$$

Weiter ergibt sich für große Frequenzen und starke Absorption $\left(\frac{\omega^2 \mu^2}{\rho_0^2 c^4} \gg 1\right)$ der folgende Zusammenhang:

$$c_{\rm e} \approx \frac{\sqrt{2\rho_0}c^2}{\sqrt{\omega\mu}}.$$
 (4.21)

Eine graphische Darstellung zeigt die Gültigkeitsbereiche der jeweiligen Näherungen (Abbildung 4.1). Ähnlich wie bei der Phasengeschwindigkeit (Abbildung 2.2) zeigen sich erst bei hohen Frequenzen signifikante Unterschiede zwischen Energiegeschwindigkeit und Schallgeschwindigkeit. Der Übergangsbereich liegt dabei für die Energiegeschwindigkeit bei deut-
4.2 Verfahren zur Bestimmung der akustischen Absorption

lich höheren Frequenzen als bei der Phasengeschwindigkeit (1 GHz vs. 100 MHz). Da die Absorption im dargestellten Beispielmedium etwa zwei Größenordnungen größer als in den untersuchten Fluiden ist, kann davon ausgegangen werden, dass für die untersuchten Fluide keine nennenswerte Beeinflussung der Energiegeschwindigkeit durch die Absorption zu erwarten ist. Eine Auswertung der Energiegeschwindigkeit stellt also keinen geeigneten Ansatz zur Bestimmung der akustischen Absorption in den zu untersuchenden Fluiden dar. Dennoch ist dieses Ergebnis vor allem im Kontext der Schallgeschwindigkeitsmessung von Relevanz, da nun der Einfluss der Verluste im Fluid auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit eines akustischen Signals abgeschätzt werden kann.

4.2.3 Auswertung des Absorptionsspektrums

Kuc et al. [Kuc79] stellen ein Verfahren zur Bestimmung der Absorption von Lebergewebe mit Hilfe der logarithmischen spektralen Differenzen vor. Dieses Verfahren kann angepasst werden, um die Absorption von Fluiden zu ermitteln. Grundlegend für dieses Auswertungsverfahren ist die Veränderung im Betragsspektrum $|U(j\omega, z)| = U(\omega, z)$ des Signals u(t, z), welches die Entfernung z zurückgelegt hat, hervorgerufen durch die Frequenzabhängigkeit der akustischen Absorption $\alpha(\omega)$. Die Verlustmechanismen werden hier jedoch zunächst nicht getrennt betrachtet. Stattdessen soll α in Abhängigkeit der Frequenz bestimmt und dann nur der quadratische Anteil isoliert werden. Grundannahme für die ortsabhängige spektrale Verteilung ist hier also:

$$U(\omega, z) = U_0(\omega) e^{-\alpha(\omega)z}.$$
(4.22)

Betrachtet werden zunächst die Betragsspektren zweier Signale, welche die Strecken z_1 und z_2 zurückgelegt haben:

$$U(\omega, z_1) = U_0(\omega) e^{-\alpha(\omega)z_1} \quad \text{und} \quad U(\omega, z_2) = U_0(\omega) e^{-\alpha(\omega)z_2}.$$
(4.23)

Im Vergleich der beiden Betragsspektren kann $U_0(\omega)$ eliminiert werden:

$$\frac{U(\omega, z_1)}{e^{-\alpha(\omega)z_1}} = \frac{U(\omega, z_2)}{e^{-\alpha(\omega)z_2}}.$$
(4.24)

Damit lässt sich die akustische Absorption wie folgt bestimmen:

$$\alpha(\omega) = -\frac{\ln U(\omega, z_1) - \ln U(\omega, z_2)}{z_1 - z_2}.$$
(4.25)

Anders notiert, zeigt sich die Verwandtschaft zum klassischen Ansatz über die Abnahme der akustischen Signalstärke:

$$\alpha(\omega) = \frac{1}{z_2 - z_1} \ln\left(\frac{U(\omega, z_1)}{U(\omega, z_2)}\right).$$
(4.26)

Letztlich handelt es sich bei dieser Variante zur Absorptionsbestimmung um eine frequenzabhängige Modifikation von Gleichung 4.5.

Wird nun angenommen, dass die Elemente der Messkette (zum Beispiel Schallwandler und Verstärkerschaltungen) einen Einfluss auf die spektrale Verteilung haben, so lässt sich deren Einfluss durch Annahme eines unbekannten Amplitudengangs $G(\omega)$ modellieren. Die empfangene spektrale Verteilung entspricht analog zu Gleichung 4.22 folgendem Ausdruck:

$$U'(\omega, z) = G(\omega) \cdot U(\omega, z) = G(\omega) \cdot U_0(\omega) e^{-\alpha(\omega)z}.$$
 (4.27)

Da $G(\omega)$ für alle Empfangssignale gleich ist, lässt es sich rechnerisch eliminieren. Dies kann gezeigt werden, indem $U'(\omega, z)$ statt $U(\omega, z)$ in Gleichung 4.25 eingesetzt wird:

$$\alpha'(\omega) = -\frac{\ln U'(\omega, z_1) - \ln U'(\omega, z_2)}{z_1 - z_2}$$
(4.28)

$$= -\frac{\ln(G(\omega) \cdot U(\omega, z_1)) - \ln(G(\omega) \cdot U(\omega, z_2))}{z_1 - z_2}$$

$$(4.29)$$

$$= -\frac{\ln G(\omega) + \ln U(\omega, z_1) - \ln G(\omega) - \ln U(\omega, z_2)}{z_1 - z_2}$$
(4.30)

$$= -\frac{\ln U(\omega, z_1) - \ln U(\omega, z_2)}{z_1 - z_2}$$
(4.31)

$$=\alpha(\omega). \tag{4.32}$$

Die Auswertung des Absorptionsspektrums ist also demnach unempfindlich gegenüber nachgelagerten Einflüssen der Messkette auf das Signalspektrum.

Unter idealen Bedingungen (ebene Welle, reines Fluid) ergibt sich für $\alpha(\omega)$ ein quadratisch mit ω ansteigender Zusammenhang. Teilt man diesen durch das Quadrat der Kreisfrequenz, so ergibt sich der Absorptionsparameter $a = \frac{\alpha}{\omega^2}$. Im realen Messaufbau zeigen sich jedoch in der Regel weitere überlagerte Dämpfungseffekte. Für die Auswertung bietet es sich daher eher an, den frequenzabhängigen Verlauf von $\alpha(\omega)$ weiter zu untersuchen. Im realen Aufbau kann sich zum Beispiel eine überlagerte frequenzunabhängige Dämpfung durch die geometrischen Parameter des Schallfelds zeigen. Für eine Bestimmung des quadratischen Anteils kann folgender Ansatz für $\alpha(\omega)$ gewählt werden:

$$\alpha(\omega) = a_0 + a \cdot \omega^2. \tag{4.33}$$

Mit Hilfe der Methode der kleinsten Abweichungsquadrate kann der Ansatz auf den aus den gemessen Daten nach Gleichung 4.25 gewonnenen Verlauf für $\alpha(\omega)$ abgeglichen werden, um *a* zu bestimmen.

4.2.4 Gewöhnliche Momente des Signalspektrums

Aus der Dispersionsbeziehung, bzw. aus dem daraus bestimmten Zusammenhang zwischen Viskosität und Absorption, folgt, dass der Absorptionsmechanismus eine quadratische Frequenzabhängigkeit zeigt. Der Einfluss der frequenzabhängigen Absorption $\alpha(\omega)$ auf die spektrale Verteilung $U(\omega, z)$ eines Signals lässt sich wie folgt beschreiben:

$$U(\omega, z) = U_0'(\omega) e^{-\alpha(\omega)z}, \qquad (4.34)$$

wobei $U'_0(\omega)$ das als unbekannt angenommene Betragsspektrum des ursprünglich vom Schallwandler emittierten Signals ist.

An dieser Stelle können Einflüsse des empfangenden Schallwandlers sowie die Einflüsse der elektrischen Signalkette im Empfangszweig berücksichtigt werden. Voraussetzung hierfür ist, dass sich diese durch eine Übertragungsfunktion mit dem Amplitudengang $G(\omega)$ modellieren lassen. Da das Betragsspektrum des gesendeten Signals $U'_0(\omega)$ ohnehin als unbekannt angenommen wird, können die beiden Größen zusammengefasst werden:

$$U_0(\omega) = U'_0(\omega) \cdot G(\omega). \tag{4.35}$$

Als Zusammenhang für das empfangene Betragsspektrum ergibt sich demnach:

$$U(\omega, z) = U_0(\omega) e^{-\alpha(\omega)z}.$$
(4.36)

Ähnlich wie es Fink [Fin83] und Quan [Qua97] zur Bestimmung des Einflusses der Dämpfung auf die Mittenfrequenz beschreiben, kann ein Zusammenhang zwischen Absorption $\alpha(\omega)$ und der Änderung der gewöhnlichen Momente des Signals hergestellt werden. Das gewöhnliche Moment

der Ordnung i wird dabei definiert durch:

$$m_i(U(\omega, z)) = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^i \cdot U(\omega, z) d\omega = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^i \cdot U_0(\omega) e^{-\alpha(\omega)z} d\omega.$$
(4.37)

Für die weiteren Schritte soll $\alpha(\omega)$ zunächst allgemein als Polynom in ω aufgefasst werden:

$$\alpha(\omega) = \sum_{n} a_n \omega^n. \tag{4.38}$$

Dieser allgemeinere Ansatz für die Absorption kann in späteren Betrachtungen dazu dienen, andere dissipative Effekte zu berücksichtigen. Für das gewöhnliche Moment der Ordnung i des Signalspektrums gilt dann der folgende Zusammenhang:

$$m_i(U(\omega, z)) = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^i \cdot U_0(\omega) \exp\left(-z\sum_n a_n \omega^n\right) d\omega.$$
(4.39)

Die Ableitung dieses Ausdrucks nach der zurückgelegten Entfernung zergibt dann:

$$\partial_z m_i(U(\omega, z)) = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^i \cdot \left(-\sum_n a_n \omega^n\right) \cdot U_0(\omega) \exp\left(-z\sum_n a_n \omega^n\right) d\omega$$
(4.40)

$$= -\sum_{n} a_{n} \int_{-\infty}^{\infty} \omega^{i+n} \cdot U_{0}(\omega) \exp\left(-z\sum_{n} a_{n} \omega^{n}\right) \mathrm{d}\,\omega. \quad (4.41)$$

Der Integralausdruck entspricht gerade wieder dem Moment der Ordnung i + n des Signalspektrums:

$$\partial_z m_i(U(\omega, z)) = -\sum_n a_n \cdot m_{i+n}(U(\omega, z)).$$
(4.42)

Demnach ist die Ableitung eines gewöhnlichen Moments ein Maß für die Absorption im Medium. Aus Gleichung 4.42 lassen sich je nach Anwendungsfall unterschiedliche weitere Zusammenhänge herleiten. Für die Identifikation von mehrparametrigen Absorptionsmodellen kann das in Anhang A.5 beschriebene Verfahren verwendet werden. Für einparametrige Absorptionsmodelle mit dem Parameter a_n , welcher eine Frequenzabhängigkeit des Absorptionsverhaltens zur Potenz n beschreibt, ergibt sich eine vereinfachte Form von Gleichung 4.42:

$$\partial_z m_i(U(\omega, z)) = -a_n \cdot m_{i+n}(U(\omega, z)), \qquad (4.43)$$

bzw.

$$a_n = -\frac{\partial_z m_i(U(\omega, z))}{m_{i+n}(U(\omega, z))}.$$
(4.44)

Es soll nun davon ausgegangen werden, dass das Signal in zwei unterschiedlichen Entfernungen z_1 und z_2 aufgenommen wird. Dementsprechend liegen auch die Spektren der Signale und deren gewöhnliche Momente vor. Abkürzend sollen hier wieder folgende Bezeichnungen geführt werden:

$$m_i(U(\omega, z_1)) = m_i(z_1), m_i(U(\omega, z_2)) = m_i(z_2).$$
(4.45)

Gleichung 4.44 enthält jedoch weiterhin die Ableitung eines Moments. Näherungsweise ließe sich diese Ableitung durch das Einsetzen des Differenzenquotienten annähern:

$$a_n \approx -\frac{m_i(z_1) - m_i(z_2)}{(z_1 - z_2) \cdot m_{i+n}(z)}.$$
 (4.46)

Wird diese Schätzvorschrift verwendet, so werden implizit mehrere Näherungsannahmen über die Signalspektren sowie die zugehörigen gewöhnlichen Momente getroffen. So geht man bei der Verwendung finiter Differenzen davon aus, dass der Verlauf der gewöhnlichen Momente über den Ort linear ist. Berechnet wird die Ableitung dann allerdings für $z = (z_2 - z_1)/2$, wobei dies für den angenommenen linearen Verlauf unerheblich ist. Weiterhin ist jedoch problematisch, dass das Moment der Ordnung i + n in dieser Form entweder bei z_1 oder z_2 eingesetzt werden kann. Man könnte nun auch hier Linearität annehmen und $m_{i+n}(z = (z_2 - z_1)/2)$ durch den arithmetischen Mittelwert bestimmen. Genauere Betrachtung von Gleichung 4.43 zeigt jedoch, dass für den Fall, dass $m_i(z)$ linear in z ist, $m_{i+n}(z)$ aufgrund der Ableitung konstant in z sein muss. Demnach müsste $m_{i+n}(z)$ für beliebige $i \ge 0$ und z identische Werte liefern. Dass dies nicht der Fall ist, lässt sich numerisch zeigen. Um Gleichung 4.44 dennoch anwenden zu können, muss also zunächst aufgeklärt werden, welchen Verlauf $m_i(z)$ bzw. $\partial_z m_i(U(\omega, z))$ nimmt.

Auswertungen von Simulationsdaten zeigen, dass die gewöhnlichen Momente der Spektren bandbegrenzter Signale bei Annahme quadratischer

Frequenzabhängigkeit des Absorptionsmechanismus $(a_n = a_2 = a)$ näherungsweise exponentiell über z abklingen. Für Signale mit gaußförmigem oder rechteckigem Ausgangsspektrum $U_0(\omega)$ kann man dies auch analytisch zeigen (siehe Anhang A.4). Da mit den vorangegangenen Annahmen Messungen der gewöhnlichen Momente für zwei unterschiedliche Entfernungen z_1 und z_2 vorliegen, kann somit eine Exponentialfunktion für jedes gewöhnliche Moment identifiziert werden:

$$m_i(z) = A_i \mathrm{e}^{B_i z}.\tag{4.47}$$

Einsetzen der bekannten Größen $m_i(z_1)$ und $m_i(z_2)$ sowie z_1 und z_2 liefert:

$$A_{i} = \frac{m_{i}(z_{1})}{\exp\left(\frac{\ln(m_{i}(z_{1})) - \ln(m_{i}(z_{2}))}{z_{1} - z_{2}}z_{1}\right)}$$
(4.48)

und

$$B_i = \frac{\ln(m_i(z_1)) - \ln(m_i(z_2))}{z_1 - z_2}.$$
(4.49)

Die Bestimmung der Ableitung des gewöhnlichen Moments der Ordnung i nach z ist nun analytisch möglich:

$$\partial_z m_i(z) = A_i B_i \mathrm{e}^{B_i z}.\tag{4.50}$$

Mit Hilfe dieser Ausdrücke kann nun Gleichung 4.44 erneut untersucht und ausgewertet werden:

$$a = -\frac{A_i B_i e^{B_i z}}{A_{i+2} e^{B_{i+2} z}}.$$
(4.51)

Zur Bestimmung von a muss nun durch Festlegung von i entschieden werden, welche gewöhnlichen Momente ausgewertet werden. Es bietet sich hier wieder an, i = 0 zu verwenden, zusätzliche Unsicherheit durch Multiplikation mit ω zu vermeiden und die notwendige Rechenleistung zu minimieren. Weiterhin muss festgelegt werden, für welche Entfernung z die Gleichung ausgewertet werden soll. Hier bietet es sich an, z entsprechend einer der beiden Messstellen z_1 oder z_2 einzusetzen. Wird $z = z_1$ gewählt, ergibt sich als Schätzvorschrift für a nach Vereinfachung des Ausdrucks der folgende Zusammenhang [Cla19b]:

$$a = \frac{1}{z_2 - z_1} \frac{m_0(z_1)}{m_2(z_1)} \ln\left(\frac{m_0(z_1)}{m_0(z_2)}\right).$$
(4.52)

Man erkennt hier eine Ähnlichkeit zum klassischen Ansatz über das logarithmische Verhältnis der Schallwechseldrücke (Gleichung 4.5). Zusätzlich kommt hier der Ausdruck $m_0(x_1)/m_2(x_1)$ hinzu, welcher dazu führt, dass nicht α sondern *a* bestimmt wird und somit die Frequenzabhängigkeit von α auflöst.

4.2.5 Verschiebung des spektralen Schwerpunkts

Wie es von Fink [Fin83] für Humangewebe und von Quan [Qua97] für Gestein gezeigt wird, soll an dieser Stelle der Zusammenhang zwischen akustischer Absorption in Fluiden und dem spektralen Schwerpunkt, bzw. der Schwerpunkt- oder Mittenkreisfrequenz $\omega_s(z)$ eines Signals, gezeigt werden [Cla17a]. Diese ist über die gewöhnlichen Momente des Signalspektrums mit der in Gleichung 4.45 beschriebenen Kurzschreibweise wie folgt bestimmt:

$$\omega_{\rm s}(z) = \frac{m_1(z)}{m_0(z)}.\tag{4.53}$$

Einsetzen der Bestimmungsgleichung für die Momente ergibt

$$\omega_{\rm s}(z) = \frac{\int\limits_{-\infty}^{\infty} \omega \cdot U(\omega, z) \mathrm{d}\,\omega}{\int\limits_{-\infty}^{\infty} U(\omega, z) \mathrm{d}\,\omega}$$
(4.54)

$$= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \omega \cdot U_0(\omega) e^{-\omega^2 a z} d\omega}{\int_{-\infty}^{\infty} U_0(\omega) e^{-\omega^2 a z} d\omega}.$$
(4.55)

An dieser Stelle kann man zeigen, dass ein frequenzunabhängiger Dämpfungsterm d(z) den spektralen Schwerpunkt nicht beeinflusst, da dieser durch Kürzen eliminiert werden kann:

$$\omega_{\rm s}(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \omega \cdot d(z) \cdot U_0(\omega) e^{-\omega^2 a z} d\omega}{\int_{-\infty}^{\infty} d(z) \cdot U_0(\omega) e^{-\omega^2 a z} d\omega}$$

$$= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \omega \cdot U_0(\omega) e^{-\omega^2 a z} d\omega}{\int_{-\infty}^{\infty} U_0(\omega) e^{-\omega^2 a z} d\omega}.$$
(4.56)
(4.57)

51

Die ortsabhängige Änderung von $\omega_{\rm s}(z)$ soll nun als Maß für die Absorption im Medium verwendet werden. Um diese zu bestimmen, muss die Ableitung des spektralen Schwerpunkts nach dem Ort $\partial_z \omega_{\rm s}(z)$ gebildet werden. Diese ergibt sich über die Quotientenregel zu:

$$\partial_{z}\omega_{s}(z) = \frac{a}{\left(\int_{-\infty}^{\infty} U_{0}(\omega)e^{-\omega^{2}az}d\omega\right)^{2}} \cdot \left(\int_{-\infty}^{\infty} \omega^{2}U_{0}(\omega)e^{-\omega^{2}az}d\omega \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \omega U_{0}(\omega)e^{-\omega^{2}az}d\omega - \int_{-\infty}^{\infty} \omega^{3}U_{0}(\omega)e^{-\omega^{2}az}d\omega \cdot \int_{-\infty}^{\infty} U_{0}(\omega)e^{-\omega^{2}az}d\omega\right).$$
(4.58)

Die Integrale entsprechen dabei jeweils den gewöhnlichen Momenten der spektralen Verteilung, so dass sich der Ausdruck kompakter notieren lässt:

$$\partial_z \omega_{\rm s}(z) = a \frac{m_2(z)m_1(z) - m_3(z)m_0(z)}{m_0^2(z)}.$$
(4.59)

Der Absorptionsparameter a kann dann aus der Änderung der Mittenfrequenz und den gewöhnlichen Momenten des Signalspektrums wie folgt bestimmt werden:

$$a = \partial_z(\omega_s(z)) \frac{m_0^2(z)}{m_2(z)m_1(z) - m_3(z)m_0(z)}.$$
(4.60)

Der Ansatz zur Bestimmung der akustischen Absorption über die Verschiebung des spektralen Schwerpunkts hat vor allem den Vorteil, dass frequenzunabhängige Absorptionsmechanismen das Ergebnis nicht beeinflussen. Da zur Berechnung der Mittenfrequenz wieder gewöhnliche Momente des Signalspektrums verwendet werden, wird auch der Einfluss der Empfangsübertragungsfunktion eliminiert (siehe Gleichungen 4.35 und 4.36).

4.3 Evaluation der Algorithmen zur Absorptionsbestimmung



Abbildung 4.2: Schema eines Messaufbaus mit zwei Reflektoren zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung.

4.3 Simulative Evaluation der Algorithmen zur Absorptionsbestimmung

In diesem Abschnitt soll die Leistungsfähigkeit der zuvor hergeleiteten Algorithmen zur Absorptionsbestimmung unter idealen Bedingungen anhand simulativ erzeugter Messsignale bewertet werden. Als Simulationsumgebung dient das in Anhang B beschriebene Werkzeug auf Basis finiter Differenzen im Zeitbereich [Cla19c]. Der Simulationsaufbau ist dabei angelehnt an die in Abbildung 4.2 gezeigte Anordnung zur Schallgeschwindigkeitsmessung nach [Dub14]. Um geometrische Einflüsse des Schallfelds auszuschließen, werden die Betrachtungen in diesem Abschnitt auf Basis einer eindimensionalen simulativen Repräsentation der Messanordnung durchgeführt, was einer Annahme ebener Wellenausbreitung gleichkommt. Der Schallwandler wird dabei zunächst nicht weiter modelliert; es wird direkt ein Schallwechseldruck eingeprägt. Weiterhin wird der Schallwandler als akustisch transparent angenommen. Diese Annahme ist insofern realitätsnah, als dass scheibenförmige Schallwandler, die auf beiden Seiten vom Zielmedium umgeben sind, für akustische Wellen mit der Resonanzfrequenz des Schallwandlers gerade eine $\lambda/2$ -Schicht darstellen. Die Reflektoren werden ebenfalls als ideal angenommen.

Abbildung 4.3 zeigt beispielhaft ein mit dem eindimensionalen Simu-



Abbildung 4.3: Simulativ erzeugtes Messsignal aus einer eindimensionalen Simulationsumgebung (Doppelreflektoranordnung, $c = 1500 \text{ m s}^{-1}$, $\rho = 1000 \text{ kg m}^{-3}$, $\mu = 5 \text{ mPa s}$).

lationsaufbau erzeugtes Messsignal. Als Sendesignal wird ein gaußförmig moduliertes Sinussignal (Gaußpuls) mit einer Mittenfrequenz von 8 MHz und eine relativen Bandbreite von 0,1 verwendet. Deutlich zu erkennen sind die einfach reflektierten Signale, welche bei etwa 15 µs und 30 µs aufgezeichnet werden. Da der Schallwandler als akustisch transparent angenommen wird, laufen die beiden Signale nach der Transmission durch den Schallwandler weiter in Richtung des jeweils anderen Reflektors (schematisch dargestellt in Abbildung 4.2). Dort werden sie reflektiert und treffen zur gleichen Zeit wieder am Schallwandler ein und überlagern sich konstruktiv. Dies erklärt die hohe Signalstärke bei 60 µs. Von diesem Zeitpunkt an wiederholt sich der Vorgang, da nun wieder simultan zwei Signale in Richtung der beiden Reflektoren ausgesandt werden. Die korrespondierenden Entfernungen, die die Signale zurückgelegt haben, sind jeweils 40 mm, 60 mm, 100 mm, 140 mm, 160 mm, 200 mm usw. Ähnliche Signale können am realen Messaufbau beobachtet werden (Abbildung 3.5). Für die weiteren Betrachtungen wird das vorliegende Gesamtsignal als eine Anzahl einzelner Signale betrachtet, die die entsprechende Entfernung zurückgelegt haben. Das erste Empfangssignal, welches nach etwa 15 µs beobachtet wird, wird

4.3 Evaluation der Algorithmen zur Absorptionsbestimmung

als $p(t, z_1 = 40 \text{ mm})$ bezeichnet, das zweite als $p(t, z_2 = 60 \text{ mm})$, usw.

Im Folgenden werden die zuvor vorgestellten Verfahren zur Bestimmung der akustischen Absorption auf die simulativ erzeugten Messsignale angewandt. Dabei sollen anwendungstechnische Aspekte der Algorithmen betrachtet werden, wie etwa die Wahl der Grenzen der Integrale zur Bestimmung der gewöhnlichen Momente der Amplitudenspektren und die Methoden zur Bestimmung der Ableitung der gewöhnlichen Momente bei Auswertung des spektralen Schwerpunkts.

4.3.1 Abnahme der akustischen Signalintensität

Bei der Anwendung der Methode zur Bestimmung der akustischen Absorption über eine beobachtete Abnahme in der Signalintensität müssen die für ebene Wellen in Abschnitt 4.2.1 gemachten Annahmen auf die simulativ erzeugten Empfangssignale übertragen werden. Intuitiv kann zum Beispiel das Maximum der Signalstärke der ersten beiden Signale $p(t, z_1)$ und $p(t, z_2)$ ausgewertet werden. Falls das Sendesignal schmalbandig gewählt werden kann, führt dieser Ansatz näherungsweise zu dem richtigen Ergebnis. Es ist jedoch auch ersichtlich, dass Störungen, wie etwa überlagertes Rauschen, bei der Auswertung des Maximums einen direkten Einfluss auf das Ergebnis haben. Weiterhin führt die durch Absorption hervorgerufene Dispersion dazu, dass sich die Form des akustischen Signals während der Transmission durch das Medium ändert.

Für eine robustere Auswertung kann alternativ das Maximum der Einhüllenden der Signale zur Bestimmung der Absorption verwendet werden. Die Einhüllende kann für vorliegende Messsignale zum Beispiel mit Hilfe des Betrags des analytischen Signals bestimmt werden [Bed63], vorausgesetzt Träger und Einhüllende sind spektral hinreichend getrennt.

Als weitere Alternative zur Steigerung der Robustheit kann das Verhältnis der Energien der Empfangssignale ausgewertet werden. So wird die Bildung eines Maximums vermieden, welches in realen Messanordnungen zum Beispiel durch Rauschen beeinflusst wird. Die Signalenergie lässt sich als Integral über das quadrierte Signal bestimmen [Opp97]:

$$e(z_n) = \int_{-\infty}^{\infty} p^2(t, z_n) \mathrm{d} t.$$
(4.61)

Es handelt sich hierbei nicht um die physikalische Energie, sondern um eine dazu proportionale Signalenergie, welche im Kontext von Signalverarbeitung eine häufig verwendete Größe ist. Die Gleichung zur Bestimmung

der Absorption aus der Signalenergie muss im Vergleich zu Gleichung 4.5 um den Faktor $\frac{1}{2}$ ergänzt werden, um das Quadrat in der Gleichung zur Bestimmung der Signalenergie zu kompensieren:

$$\alpha = \frac{1}{2(z_2 - z_1)} \ln\left(\frac{e(z_1)}{e(z_2)}\right).$$
(4.62)

Von den untersuchten klassischen, nicht-spektralen Ansätzen zeigt sich die Auswertung der Signalenergie am robustesten. Zur Bestimmung der thermoviskosen Verluste μ wird neben der Dichte und der Schallgeschwindigkeit noch die Kreisfrequenz ω benötigt. Hier wird die anregende Kreisfrequenz $(2\pi \cdot 8 \text{ MHz})$ eingesetzt und somit die spektrale Abhängigkeit vernachlässigt. Dennoch liefert dieser Ansatz für das Signal in Abbildung 4.3 thermoviskose Verluste von $\mu = 4,967 \text{ mPa s}$, also eine Abweichung von etwa 0,7 % von den in der Simulation angenommenen 5 mPa s. Diese kann jedoch auch auf numerische Dispersion sowie auf die in der Simulation getroffenen Annahmen (siehe Anhang B) zurückzuführen sein. Sind die Signale also hinreichend schmalbandig, zeigt sich der klassische Ansatz ohne Berücksichtigung spektraler Eigenschaften des Dämpfungsmechanismus als zielführend.

4.3.2 Auswertung des Absorptionsspektrums

Zur Bestimmung des Absorptionsspektrums werden die ersten beiden Empfangssignale (siehe Abbildung 4.3) in den Frequenzbereich transformiert und dann in Gleichung 4.25 eingesetzt. Zur Erhöhung der Frequenzauflösung werden die Zeitsignale auf eine Länge von 10^5 Abtastwerten mit Nullen erweitert. Die Ergebnisse sind für unterschiedlich große thermoviskose Verluste μ in Abbildung 4.4 dargestellt. Für $\mu \neq 0$ zeigt sich erwartungsgemäß ein mit der Frequenz steigender Verlauf der Absorption. Ein Vergleich mit dem erwarteten Ergebnis für $\mu = 5 \,\mathrm{mPa\,s}$ (gestrichelte Linie) zeigt, dass die ermittelten Absorptionsspektren den erwarteten Verlauf aufweisen. Es ist weiterhin ersichtlich, dass außerhalb des spektralen Bereichs des Sendesignals ($f \leq 6.2 \,\mathrm{MHz}$ und $f \gtrsim 9.8 \,\mathrm{MHz}$) kein plausibles Absorptionsspektrum bestimmt werden kann. Sollen also aus dem ermittelten Absorptionsspektrum die thermoviskosen Verluste μ berechnet werden, muss die Auswertung über eine Approximation des Verlaufs mit einer quadratischen Funktion auf einen plausiblen Frequenzbereich eingeschränkt werden. Im hier beschriebenen Beispiel wird der Bereich 7 MHz < f < 9 MHz ausgewertet, wobei eine rein quadratische Funktion

4.3 Evaluation der Algorithmen zur Absorptionsbestimmung



Abbildung 4.4: Absorptionsspektren bestimmt aus simulativ erzeugten Signalen (siehe Abbildung 4.3) für unterschiedlich große thermoviskose Verluste μ .

angesetzt wird. Das Verfahren liefert als Ergebnis für die thermoviskosen Verluste $\mu = 4,965 \,\mathrm{mPa}\,\mathrm{s}$, also eine Abweichung von $0.7\,\%$. Die einzig getroffene Näherung bei der Auswertung mit diesem Verfahren ist die gut haltbare Annahme, dass die Absorption für geringe Verluste eine quadratische Frequenzabhängigkeit zeigt [Buc05]. Demnach liegt die Vermutung nahe, dass die Abweichung auf numerische Effekte, zum Beispiel numerische Dispersion in der Simulation, zurückzuführen ist. Um die Methode gegenüber Dämpfungsmechanismen mit nicht-quadratischer Frequenzabhängigkeit robust zu machen, kann statt einer rein quadratischen Funktion auch ein beliebiges Polynom angesetzt werden. Dies führt jedoch dazu, dass die Schätzung des quadratisches Teils stärker vom erwarteten Wert abweicht. So kann zum Beispiel ein zusätzlicher konstanter Term a_0 für die Absorption angesetzt werden (siehe Gleichung 4.33). Minimierung der Abweichungsquadrate liefert für das gegebene Beispiel erwartungsgemäß einen sehr kleinen, wenn auch negativen Wert für $a_0 = -56.7 \cdot 10^{-3} \,\mathrm{m}^{-1}$. Durch den zusätzlichen Freiheitsgrad weicht der Schätzwert für μ mit 5,118 mPa s nun deutlich stärker ab (etwa 2,3%).

Das Verfahren zur Bestimmung der thermoviskosen Verluste über die

Auswertung der Absorptionsspektren liefert unter idealen Bedingungen die erwarteten Ergebnisse. Ansätze zur Steigerung der Robustheit führen jedoch schnell zu erhöhten Abweichungen. Gerade bezüglich der Robustheit gegenüber frequenzunabhängigen Verlustmechanismen zeigt der Ansatz über die Verschiebung der Mittenfrequenz unter idealen Bedingungen bessere Ergebnisse (siehe Abschnitt 4.3.4). Da ein ermitteltes Absorptionsspektrum jedoch direkt die spektrale Abhängigkeit des Dämpfungsmechanismus aufzeigt, kann es verwendet werden, um zum Beispiel das Auftreten von Strukturrelaxation auszumachen, wenn ein atypischer Verlauf für $\alpha(\omega)$ bzw. $\alpha(f)$ beobachtet wird.

4.3.3 Gewöhnliche Momente des Signalspektrums

In Abschnitt 4.2.4 wird ein Ansatz zur Bestimmung der akustischen Absorption durch Auswertung der gewöhnlichen Momente des Signalspektrums aufgezeigt. Im Fall eines einparametrigen Dämpfungsmodells genügen zwei Empfangssignale, welche auf Basis von Gleichung 4.52 ausgewertet werden können. Als Grenzen für die Integrale zur Bestimmung der gewöhnlichen Momente werden 7 MHz und 9 MHz gewählt. Vor der Berechnung des Betragsspektrums der Signale über die diskrete Fourier-Transformation wird das Signal auf eine Länge von 10^5 Abtastwerten mit Nullen erweitert, um die Frequenzauflösung zu steigern. Für das vorliegende Signal ergibt sich mit $\mu = 4,966$ mPa s eine ähnlich kleine Abweichung (etwa 0,7%) wie bei der Anwendung des klassischen Ansatzes (Abschnitt 4.3.1) und bei der Auswertung des Absorptionsspektrums (Abschnitt 4.3.2).

4.3.4 Verschiebung des spektralen Schwerpunkts

An dieser Stelle soll der in Abschnitt 4.2.5 hergeleitete Zusammenhang zwischen Absorption und der Verschiebung des spektralen Schwerpunkts anhand simulativ erzeugter Messsignale validiert werden. Der umzusetzende Zusammenhang zwischen dem Absorptionsparameter a und den Parametern der spektralen Verteilung des Signals lautet:

$$a = \partial_z(\omega_s(z)) \frac{m_0^2(z)}{m_2(z)m_1(z) - m_3(z)m_0(z)}.$$
(4.63)

Es müssen also die Ableitung des spektralen Schwerpunkts $\omega_{\rm s}(z)$ nach der zurückgelegten Strecke z sowie die zentralen Momente $m_0(z)$ bis $m_3(z)$ des Betragsspektrums des Signals aus den gemessenen Daten bestimmt

4.3 Evaluation der Algorithmen zur Absorptionsbestimmung



Abbildung 4.5: Spektraler Schwerpunkt der Empfangssignale nach zurückgelegter Entfernung z (siehe Abbildung 4.3) für unterschiedlich große thermoviskose Verluste μ .

werden. Untersucht werden soll zunächst nur der spektrale Schwerpunkt der in Abbildung 4.3 dargestellten Empfangssignale. Dazu werden die einzelnen Empfangssignale via Fourier-Transformation in den Frequenzbereich transformiert, um dann den jeweiligen Schwerpunkt zu bestimmen. Es wird zero-padding im Zeitbereich angewandt, um eine hinreichend große Frequenzauflösung zu erzielen. Abbildung 4.5 zeigt die Mittenfrequenz der einzelnen Empfangssignale, aufgetragen über die zurückgelegte Entfernung, für unterschiedlich stark absorbierende Medien. Der spektrale Schwerpunkt ist in der Grafik zur besseren Interpretierbarkeit nicht als Kreisfrequenz angegeben ($\omega_{\rm s} = 2\pi \cdot f_{\rm s}$). Es ergeben sich, abhängig von den thermoviskosen Verlusten μ , augenscheinlich lineare Zusammenhänge zwischen der zurückgelegten Entfernung z und dem spektralen Schwerpunkt der Signale. Demnach ist die örtliche Ableitung des spektralen Schwerpunkts $\partial_z(\omega_{\rm s}(z))$ in diesem Fall gerade eine Konstante, die Aufschluss über die Absorption gibt.

Sollen die thermoviskosen Verluste μ aus dem Messsignal bestimmt werden, so ergibt sich die folgende Problematik: Die örtliche Ableitung des spektralen Schwerpunkts $\partial_z(\omega_s(z))$ kann bei dieser Art der Auswertung nur

über Differenzenquotienten bestimmt werden¹. Die Differenzenquotienten ergeben sich dann jedoch zwischen den Abständen z, an denen der spektrale Schwerpunkt bestimmt wird. Der Ausdruck $m_0^2(z)/(m_2(z)m_1(z) - m_3(z)m_0(z))$ lässt sich jedoch nur für die Werte von z bestimmen, an denen zuvor der spektrale Schwerpunkt berechnet wurde. Es ergeben sich unterschiedliche Möglichkeiten, mit dieser Problematik umzugehen. Auswahlkriterien für ein geeignetes Verfahren sind vor allem die Anzahl der auswertbaren Empfangssignale.

So kann im Fall der Simulation bei einem näherungsweise linearen Abfall des spektralen Schwerpunkts und vielen aufgenommenen Signalen eine Ausgleichsgerade mit Hilfe der Methode der kleinsten Fehlerquadrate bestimmt werden. Deren Steigung dient als Näherung für die Ableitung des spektralen Schwerpunkts nach dem Ort. Der Ausdruck $m_0^2(z)/(m_2(z)m_1(z)-m_3(z)m_0(z))$ wird für alle Empfangssignale bestimmt, um dann einen Mittelwert zu bilden.

Alternativ kann der zentrale Differenzenquotient für $\partial_z(\omega_s(z))$ für alle nicht am Rand des Wertebereichs gelegenen Punkte mit Hilfe der benachbarten Werte bestimmt werden. Diese können dann direkt mit dem an der gleichen Stelle ausgewerteten Ausdruck $m_0^2(z)/(m_2(z)m_1(z) - m_3(z)m_0(z))$ verrechnet werden. Man erhält so für jeden Empfangspuls (den ersten und den letzten ausgenommen) einen Wert für *a* bzw. μ .

Sind nur zwei Empfangssignale verfügbar, bleibt nur die Möglichkeit den Differenzenquotienten zwischen den beiden zu bestimmenden spektralen Schwerpunkten zu bilden. Da der Zusammenhang zwischen Ort und Mittenfrequenz näherungsweise linear ist, ist die auf diese Art bestimmte Ableitung auch am Ort der Signale selbst gültig. Der Ausdruck $m_0^2(z)/(m_2(z)m_1(z) - m_3(z)m_0(z))$ kann für beide Empfangssignale berechnet werden und sollte sich für die beiden Signale nicht zu stark unterscheiden. Eine Mittelwertbildung liefert dann einen Wert für den Absorptionsparameter a bzw. für die thermoviskosen Verluste μ . Da diese Art der Auswertung der Anwendung im realen Messaufbau am nächsten kommt, wird sie zur Untersuchung der Simulationsdaten verwendet. Die oberen und unteren Grenzen der zur Bestimmung der gewöhnlichen Momente verwendeten Integrale werden auf 7 MHz und 9 MHz festgelegt. Für die Fouriertransformation werden die Signale auf eine Länge von 10⁵ Abtastwerte mit Nullen erweitert. Die Auswertung der Mittenfrequenz-

¹Im Differenzenquotienten kann die Differenz der Schwerpunkte der Spektren aus dem Schwerpunkt der Kreuzkorrelation beider Spektren bestimmt werden (siehe Anhang A.1.2).

4.4 Auswahl eines Verfahrens zur Absorptionsbestimmung

verschiebung der vorliegenden Simulationssignale resultiert in geschätzten thermoviskosen Verlusten von $\mu = 5,060 \,\mathrm{mPa}\,\mathrm{s}$, also in einer Abweichung von etwa 1,2 %. Während die zuvor betrachteten Verfahren zur Absorptionsbestimmung den vorgegebenen Wert unterschätzen, zeigt die Auswertung der Mittenfrequenz eine Abweichung nach oben. Da dieses Verfahren als einziges diese Eigenschaft zeigt, liegt die Vermutung nahe, dass für die beobachtete Abweichung ursächlich das Verfahren selbst ist und nicht etwa numerische Dispersion in der Simulation. Mögliche Ursachen können zum Beispiel numerische Probleme aufgrund der großen Gleitkommazahlen sein, welche bei der Berechnung der gewöhnlichen Momente höherer Ordnung auftreten. Weiterhin wird die Ableitung des spektralen Schwerpunkts nur approximativ bestimmt, so dass dadurch die beobachtete Abweichung ebenfalls erklärt werden kann. Dennoch kann die Auswertung des spektralen Schwerpunkts in einigen Fällen sinnvoll sein, da sie im Gegensatz zu anderen Verfahren nicht von frequenzunabhängigen Dämpfungseffekten beeinflusst wird.

4.4 Auswahl eines Verfahrens zur Absorptionsbestimmung

Im Folgenden soll festgelegt werden, welcher von den zuvor beschriebenen Ansätzen zur Absorptionsbestimmung für die weiteren Untersuchungen genutzt wird. Alle vorgestellten Verfahren liefern für simulativ erzeugte Signale unter idealen Bedingungen (Annahme ebener Wellenausbreitung) gute Schätzwerte für die thermoviskosen Verluste $\mu_{\rm mess}$. Es ist jedoch zu klären, inwiefern Einflüsse eines realen Messsystems, wie etwa Rauschen und temperaturbedingte Änderungen der Schallwandlereigenschaften, zum Beispiel eine Änderung der Resonanzfrequenz, die Ergebnisse beeinflussen. Zu diesem Zweck werden Messsignale ausgewertet, die mit dem unveränderten Messsystem zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung (Abbildung 3.4) aufgenommen werden. Es wird dafür Methanol in unterschiedlichen thermodynamischen Zuständen untersucht. Da der Quarz-Schallwandler eine Resonanzfrequenz von 8 MHz aufweist, werden die Spektren der beiden Echosignale symmetrisch um diese Mittenfrequenz ausgewertet. Gewöhnliche Momente und Mittenfrequenz werden im Bereich von 7 MHz bis 9 MHz bestimmt. Bei der Betrachtung des Absorptionsspektrum werden die Grenzen von 7,5 MHz bis 8,5 MHz gewählt, da sich schon bei der Auswertung von simulativ erzeugten Signalen gezeigt hat, dass das Absorptionsspek-

trum in Bereichen mit geringer Signalenergie einen oszillierenden Verlauf zeigt (Abbildung 4.4).

Erwartet wird bei dieser Untersuchung noch kein Messwert für die akustische Absorption bzw. die thermoviskosen Verluste, da die Signale noch durch die Schallausbreitung in der Messanordnung beeinflusst werden (siehe hierzu Abschnitt 5.1). Stattdessen soll gezeigt werden, ob sich das jeweilige Verfahren robust gegenüber den Störeinflüssen in einem realen Messsystem zeigt und Messungen in einem ähnlichen thermodynamischen Zustand ähnliche Ergebnisse liefern. Im Idealfall zeigen sich erste qualitative Hinweise auf eine Temperatur- bzw. Druckabhängigkeit der thermoviskosen Verluste μ .

Die Ergebnisse für die unterschiedlichen Verfahren zur Auswertung der Empfangssignale sind in Abbildung 4.6 gegenübergestellt. Es werden Messungen bei verschiedenen Temperaturen (221 K, 244 K, 300 K, 350 K und 400 K) bei variablem Druck bis 100 MPa ausgewertet. Weiterhin werden zur Evaluierung der Stabilität der verschiedenen Verfahren in jedem Zustand mehrere Messsignale aufgenommen. Der Ansatz zur Bestimmung der akustischen Absorption über die Auswertung der Signalintensität (Abbildung 4.6 a) zeigt klar die Temperatur- und Druckabhängigkeit der Messwerte auf. Lediglich die Messreihen bei 350 K und 400 K liefern bei geringen Drücken sehr ähnliche Ergebnisse. Grund hierfür kann jedoch auch die geringe Absorption in diesem Zustand im Vergleich zum Einfluss der Schallausbreitung in der Messanordnung sein. Qualitativ entspricht die beobachtete Temperatur- und Druckabhängigkeit der thermoviskosen Verluste den erwarteten Verlusten (vgl. Abbildung 3.2). Wiederholmessungen zeigen bei Auswertung der Signalintensität keine signifikante Streuung.

Bei Auswertung des Absorptionsspektrums (Abbildung 4.6 b) zeigt sich keine klar erkennbare Temperaturabhängigkeit. Lediglich für hohe Drücke zeigen sich tendenzielle größere thermoviskose Verluste. Die Streuung von Wiederholmessungen liegt im Bereich einiger Millipascalsekunden und ist damit deutlich auszumachen. Dieser Ansatz scheint demnach nicht robust genug für eine quantitative Auswertung der Signale. Ursächlich für die beobachtete Abweichung ist die Form der Amplitudenspektren der Empfangssignale. Während diese in der vorangegangenen Auswertung von simulativ erzeugten Signalen nahezu gaußförmig sind, weisen die Amplitudenspektren realer Messsignale durch Überlagerung von sonst vernachlässigbaren Störsignalen einen überlagerten oszillierenden Verlauf auf. Die Quotientenbildung (Gleichung 4.26) verstärkt diese Effekte, so dass auch durch die Approximation des Absorptionsspektrums mit einer quadratischen Funktion keine robusten, quantitativen Ergebnisse erzielt



Abbildung 4.6: Gemessene thermoviskose Verluste für Methanol bei unterschiedlichen Temperaturen (• 221 K, * 244 K, • 300 K,
• 350 K und • 400 K) bestimmt mit den zuvor vorgestellten Verfahren zur Auswertung der Empfangssignale einer Puls-Echo-Messung.

werden können.

Die Auswertung der gewöhnlichen Momente des Signalspektrums (Abbildung 4.6 c) liefert ähnliche Ergebnisse wie die Betrachtung der Signalintensität. Die Temperatur- und Druckabhängigkeit der thermoviskosen Verluste ist deutlich zu erkennen und die Streuung von Wiederholmessungen ist gering. Ursächlich für die Ähnlichkeit zum klassischen Ansatz ist der Umstand, dass die Auswertung der gewöhnlichen Momente des Signalspektrums eine Erweiterung des klassischen Ansatzes darstellt, mit dem auch breitbandige Signale ausgewertet werden können. Da die Signale im realen Messsystem aufgrund der hohen Güte des Quarz-Schallwandlers eine verhältnismäßig geringe Bandbreite haben, führen beide Ansätze zu sehr ähnlichen Ergebnissen. Die Messabweichung, die sich zeigt, wenn breitbandige Signale verwendet werden und dennoch nur die Signalintensität ausgewertet wird, wird in Anhang A.6 genauer beschrieben.

Wird die Verschiebung des spektralen Schwerpunkts als Maß für die akustische Absorption verwendet, zeigen sich die in Abbildung 4.6 d dargestellten Ergebnisse. Ähnlich wie bei der Auswertung des Absorptionsspektrums ist die Temperaturabhängigkeit der thermoviskosen Verluste nicht auszumachen. Auch Wiederholmessungen streuen in einem ähnlichen Maß. Die Verwandtschaft beider Verfahren (Annahme eines quadratischen Absorptionsmechanismus und Unempfindlichkeit gegenüber frequenzunabhängiger Signalbeeinflussung) führt dazu, dass teilweise ähnliche Ergebnisse wie bei der Auswertung des Absorptionsspektrums erzielt werden. Als mögliche Ursache für die starke Streuung der Messungen kann der geringe Messeffekt bezüglich der Verschiebung des spektralen Schwerpunkts angenommen werden: Bei der Untersuchung simulativ erzeugter Signale (Abbildung 4.5) beträgt die relative Frequenzverschiebung für thermoviskose Verluste in der Größenordnung, wie sie auch bei Methanol erwartet werden, deutlich weniger als 1%.

Basierend auf dieser Betrachtung wird nun ein Verfahren für die Bestimmung der akustischen Absorption ausgewählt. Die Auswertungen des Absorptionsspektrums und der Verschiebung des spektralen Schwerpunkts zeigen sich für die vorliegenden Fluide numerisch zu instabil. Die Ergebnisse bei Auswertung der Signalintensität und der gewöhnlichen Momente des Signalspektrums sind sehr ähnlich. Da die Auswertung der gewöhnlichen Momente unabhängig von der Bandbreite des akustischen Signals ist und nicht auf der Annahme einer diskreten Frequenz im akustischen Signal basiert, wird dieses Verfahren für die weiteren Auswertungen verwendet.

Fazit

Bedingt durch die Frequenzabhängigkeit des Absorptionsmechanismus von akustischen Wellen in Fluiden verändern sich die Eigenschaften eines akustischen Signals während der Transmission (Fragestellung I). So kann zum Beispiel gezeigt werden, dass sich der spektrale Schwerpunkt eines gegebenen Signals hin zu niedrigeren Frequenzen verschiebt. Basierend auf einer Betrachtung der Energiegeschwindigkeit wird geschlossen, dass die Laufzeit eines akustischen Signals in den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Flüssigkeiten in vernachlässigbarem Maße durch die Absorption beeinflusst wird (Fragestellung III). Zur messtechnischen Bestimmung der Absorption (Fragestellung II) stellt sich die Auswertung der gewöhnlichen Momente des Signals als am geeignetsten heraus. Neben der Anwendung auf die eigentlichen Messsignale kommt dieses Verfahren damit auch bei der im folgenden Kapitel beschriebenen simulativen Analyse der Messanordnung zum Einsatz.

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung

Während einige Störeinflüsse auf das Ergebnis einer akustischen Absorptionsmessung im Puls-Echo-Verfahren durch Maßnahmen der Signalverarbeitung eliminiert werden (Kapitel 4), muss zur Behandlung geometrischer Effekte des Schallfelds die physikalische Messanordnung analysiert werden. In diesem Kapitel soll daher zunächst untersucht werden, wie das Ergebnis der Absorptionsmessung durch die Schallfeldgeometrie beeinflusst wird. Ausgegangen wird dabei zunächst von der in Abschnitt 3.3 beschriebenen Anordnung zur Schallgeschwindigkeitsmessung, welche in unterschiedlichen Detailgraden simulativ abgebildet und untersucht wird. Darauf aufbauend werden mögliche Modifikationen und alternative Messanordnungen diskutiert und bezüglich ihrer Realisierbarkeit bewertet. Abschließend werden unterschiedliche Elemente der realisierten, überarbeiteten Messanordnung beschrieben.

5.1 Einfluss der Schallfeldgeometrie auf die Absorptionsmessung

Zur Untersuchung des Einflusses der geometrischen Parameter des Schallfelds (Beugungseffekte und unvollständige Reflexion bzw. teilweise Transmission), werden Feldsimulationen basierend auf finiten Differenzen im Zeitbereich (siehe Anhang B) mit unterschiedlichen Simulationsmodellen durchgeführt [Cla19c]. Zunächst wird dafür ein frei schwingender Schallwandler mit resultierend ideal symmetrischer Abstrahlcharakteristik in beide Richtungen untersucht. Im Sinne einer *worst-case*-Betrachtung wird ein an die Ausgangsform der Messanordnung (Abschnitt 3.3) angelehnter Aufbau mit schallharter Schallwandlerfassung simulativ untersucht, bei dem ein Teil des Schallwandlers einseitig akustisch abgeschattet wird. Beide

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung



Abbildung 5.1: Aufbau des stark vereinfachten Simulationsmodells und thermoviskose Verluste bestimmt aus simulativ erzeugten Messsignalen

Simulationsmodelle werden als axialsymmetrisch angenommen.

Der Fall des Simulationsmodells mit frei schwingendem Schallwandler ist in Abbildung 5.1 links dargestellt. Der Bilanzraum der Simulation hat, wie der Innenraum des physikalischen Aufbaus, einen Radius von 12 mm und eine Länge von 100 mm, ist mit einem Fluid mit variabel wählbaren Parametern gefüllt und schallhart berandet. Als Reflektoren sind zwei Regionen mit einem Radius von 6 mm vorhanden, die ein Material aufweisen, welches das akustische Verhalten von Edelstahl approximiert. Da die Simulationsumgebung nur Schall in fluiden Medien abbilden kann und die Verwendung alternativer Simulationsumgebungen etwa eine Größenordnung mehr Berechnungszeit bedeuten würde (siehe Anhang B.4 bzw. Abbildung B.3), wird für die Reflektoren ein Fluid mit einer Dichte von 8050 kg m^{-3} und einer Schallgeschwindigkeit von 2000 m s^{-1} angenommen. Da hier nur die Teiltransmission der akustischen Wellen in die Reflektoren betrachtet werden soll, nicht etwa die Ausbreitung dieser transmittierten Wellen, erscheint diese Näherung zugunsten einer deutlichen kürzeren Berechnungszeit angebracht. Weiterhin erfolgt der Schalleinfall an den Reflektoren nahezu senkrecht, so dass eventuell durch Wellenartenkonversion [Kra86] entstehende Transversalwellen im Festkörper nur in geringem

5.1 Einfluss der Schallfeldgeometrie auf die Absorptionsmessung

Maß angeregt würden. Die akustische Impedanz des Reflektormaterials liegt mit $16,1 \cdot 10^6$ kg s⁻¹ m⁻² unterhalb der von Edelstahl [Mar05], jedoch in der gleichen Größenordnung. Im Vergleich zum realen Messsystem ergibt sich im Simulationsmodell damit eine erhöhte Transmission von akustischen Wellen in das Reflektormaterial, wodurch die durch die nicht-perfekten Reflektoren verursachten Abweichungen tendenziell überschätzt werden. Der Schallwandler wird als vernachlässigbar dünn angenommen und hat einen Radius von ebenfalls 6 mm. Angelehnt an die Signale im realen Messsystem wird als Sendesignal ein gaußförmig moduliertes Sinussignal mit einer Mittenfrequenz von 8 MHz und einer relativen Bandbreite von 0,1 verwendet.

Um den Einfluss der Schallfeldgeometrie und damit der Messanordnung auf das Ergebnis einer Absorptionsmessung abzuschätzen, werden Simulationen für verschiedene Schallgeschwindigkeiten c, Dichten ρ_0 und thermoviskose Verluste μ des zu untersuchenden Fluids durchgeführt. Der Bereich, in dem diese Parameter variiert werden, entspricht den experimentell zu untersuchenden Fluiden. Aus den simulativ erzeugten Signalen werden, entsprechend den Ergebnissen aus Kapitel 4, die gemessenen thermoviskosen Verluste μ_{mess} durch Auswertung der gewöhnlichen Momente des Signalspektrums bestimmt (Abschnitt 4.2.4). Der Zusammenhang zwischen dem aus den Signalen ermittelten, quadratischen Absorptionsparameter a_{mess} und den thermoviskosen Verlusten μ_{mess} folgt dabei aus der Dispersionsbeziehung bzw. Gleichung 2.35 [Rud77]:

$$\mu_{\rm mess} = 2a_{\rm mess}\rho_0 c^3. \tag{5.1}$$

Die so ermittelten thermoviskosen Verluste sind abhängig von den Parametern des Fluids in Abbildung 5.1 aufgetragen. Die Darstellung der gemessenen thermoviskosen Verluste μ_{mess} (anstelle des gemessenen quadratischen Absorptionsparameters a_{mess} oder der gemessenen akustischen Absorption α_{mess} bei 8 MHz) wird hier bevorzugt, da die thermoviskosen Verluste μ für ein gegebenes Fluid keine Funktion der Dichte und der Schallgeschwindigkeit sind und sich in der Darstellung so im Idealfall parallele Ebenen ergeben sollten. Die Abweichung eines Messwertes von dieser Ebene ist in der Darstellung einfacher zu erkennen als die Abweichung von einer gekrümmten Fläche, die sich zum Beispiel für die idealisierte Messung eines quadratischen Absorptionsparameters a ergeben würde.

Erwartungsgemäß zeigt sich, dass die aus den Signalen ermittelten Werte für die thermoviskosen Verluste von den Parametern des Fluids in der Simulation abweichen. Die beobachteten Abweichungen vom erwarteten Wert

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung

zeigen sich sowohl abhängig von der Schallgeschwindigkeit, der primären Einflussgröße auf das Auftreten und die Ausprägung von Beugungseffekten, als auch von der Dichte, der Einflussgröße des Reflexionsfaktors. In der dargestellten Form lässt sich die Dichteabhängigkeit besonders bei kleinen Schallgeschwindigkeiten $c = 900 \,\mathrm{m \, s^{-1}}$ beobachten, auch wenn diese im Vergleich zum Einfluss der Schallgeschwindigkeit klein ist. Als Ursache für den Einfluss der Schallgeschwindigkeit auf das Ergebnis kann der Umstand genannt werden, dass mit steigender Schallgeschwindigkeit die Nahfeldlänge (Gleichung 2.45) des Schallwandlers kleiner wird. Dadurch wird der Öffnungswinkel des abgestrahlten Schallfelds größer [Ler09], wodurch das Schallfeld stärker aufgeweitet wird (Beugung) und sich die akustische Energie stärker im Raum verteilt. Die Dichteabhängigkeit bei konstanter Schallgeschwindigkeit kann über den Reflexionsfaktor [Ler09] an den akustischen Reflektoren erklärt werden. Für große Dichten nähert sich die akustische Impedanz des Fluids der der Reflektoren an. Daraus resultiert ein geringer werdender Reflexionsfaktor; das akustische Signal wird also stärker in das Reflektormaterial transmittiert. Weiterhin zeigen sich die beobachteten Abweichungen abhängig von den thermoviskosen Verlusten μ selbst. Diese lassen sich vor allem für $c = 900 \,\mathrm{m \, s^{-1}}$ und $\rho_0 = 800 \,\mathrm{kg \, m^{-3}}$ ausmachen. Während für diese Fluidparameter und $\mu = 0$ nur eine geringe Abweichung von μ_{mess} gegenüber μ beobachtet wird, steigt für größere μ die Abweichung von μ_{mess} . Eine mögliche Erklärung hierfür kann in der Tatsache gefunden werden, dass die thermoviskosen Verluste im Medium über die Dispersionsbeziehung (Gleichung 2.31) neben der Absorption α auch den Realteil der Wellenzahl k beeinflussen. Die Zusammenhänge der beobachteten Abweichungen zeigen sich dabei im untersuchten Parameterbereich stetig und monoton, obwohl sich die Reflektoren im Nahfeld des Schallwandlers befinden. Ursächlich für das monotone Verhalten kann das im Zeitbereich begrenzte Signal und die daraus resultierende endlich kleine Bandbreite sein (siehe Anhang A.3).

Um den Einfluss von asymmetrischen Abstrahlcharakteristiken zu untersuchen, wird die Fassung des Schallwandlers, angelehnt an die Ausgangsform der Messanordnung, in der Simulation berücksichtigt (Abbildung 5.2, links). Im Vergleich zum zuvor betrachteten Simulationsmodell wird ein Schallwandler mit einem größeren Radius (7,5 mm) verwendet. Durch die Fassung mit einem Innenradius von 6 mm wird der Schallwandler einseitig teilweise abgeschattet. In ihrer Form folgt die Fassung der des Aufbaus in seiner Ausgangsform (Abbildung 3.4). Nach der zylinderförmigen Öffnung mit einem Radius von 6 mm und einer Tiefe von 1 mm folgt ein konischer Teil mit einem Öffnungswinkel von 45° . Der Rest des Simulationsmodells





Abbildung 5.2: Aufbau des Simulationsmodells mit Schallwandlerfassung und thermoviskose Verluste bestimmt aus simulativ erzeugten Messsignalen

sowie der untersuchte Fluidparameterbereich entsprechen der vereinfachten Variante (Abbildung 5.1).

Die aus den simulativ erzeugten Signalen ermittelten thermoviskosen Verluste μ_{mess} sind in Abbildung 5.2 rechts abhängig von den für das Fluid angenommenen Parametern dargestellt. Auffällig ist zunächst, dass $\mu_{\rm mess}$ über weite Bereiche des untersuchten Parameterraums negativ ist. Dies äußert sich auch in den Zeitsignalen, bei denen das erste aufgenommene Signal schwächer ausgeprägt ist als das zweite, welches eine längere Strecke zurückgelegt hat. Dies ist gerade einer der Effekte, welche durch die Schallwandlerfassung hervorgerufen werden. Da diese den Schallwandler einseitig, in Richtung des 20 mm entfernten Reflektors, akustisch abschattet, ist die ausgesandte akustische Energie in diese Richtung geringer. Im Empfangsfall verstärkt sich dieser Effekt, da der äußere Bereich des Schallwandlers aus Richtung des 20 mm entfernten Reflektors durch akustische Wellen nicht erreicht werden kann. Entsprechend wird somit die Stärke des zuerst eintreffenden akustischen Signals reduziert, während die des zweiten Signals nahezu unverändert im Vergleich zum vereinfachten Aufbau (Abbildung 5.1) bleibt. Entsprechend liefert eine Berechnung der thermoviskosen Verluste über die gewöhnlichen Momente des Signalspektrums

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung

(Abschnitt 4.2.4) teilweise negative Ergebnisse. Gerade für $\mu = 0$ mPa s ist μ_{mess} stets negativ. Es ist jedoch auch ersichtlich, dass sich Effekte der Messanordnung und der Effekt der Absorption im Fluid in einer ähnlichen Weise wie beim vereinfachten Simulationsmodell überlagern. Für jedes Schallgeschwindigkeit-Dichte-Tupel liefert μ_{mess} für hohe thermoviskose Verluste μ den größten Wert. Umgekehrt sind die ermittelten thermoviskosen Verluste für $\mu = 0$ am geringsten. Auch wenn die durch die Versuchsanordnung hervorgerufenen Abweichungen zwischen ermittelten thermoviskosen Verlusten μ_{mess} und angenommenen thermoviskosen Verlusten im Fluid μ deutlich größer als beim vereinfachten Simulationsmodell sind, zeigen sich auch hier für den betrachteten Bereich stetige Zusammenhänge zwischen der Abweichung und den Fluidparametern.

5.2 Ansätze zur Behandlung systematischer Messabweichungen bei der Absorptionsmessung

Die in Abschnitt 5.1 beobachteten, aus der Schallausbreitung in der Messanordnung resultierenden Abweichungen zwischen ermittelten thermoviskosen Verlusten und dem erwarteten Ergebnis lässt sich als systematische Messabweichung beschreiben. Sie ist jedoch abhängig von den Parametern des Fluids. Im Folgenden sollen unterschiedliche Ansätze vorgestellt werden, wie die beobachteten Abweichungen reduziert und korrigiert werden können, um eine Messung der akustischen Absorption bzw. der thermoviskosen Verluste zu realisieren. Dabei werden sowohl rechnerische Ansätze als auch alternative Versuchsanordnungen diskutiert.

5.2.1 Geschlossene Zylinderanordnung

In Anlehnung an die verschiedenen aus der Literatur bekannten Ansätze zur Messung der akustischen Absorption mit einer geschlossenen Zylinderanordnung [Lit55; Joh68; All72] kann die Messanordnung modifiziert werden. Eine direkte Übernahme der Ansätze aus der Literatur ist aufgrund der Randbedingung, dass die Versuchsanordnung ohne bewegte Teile aufgebaut werden soll, nicht möglich. Stattdessen können zwei unterschiedlich lange Zylinder auf beiden Seiten des Schallwandlers angebracht werden. Um den Einsatz einer solchen Anordnung zu evaluieren, werden zunächst akustische Feldsimulationen durchgeführt. Das Simulationsmodell ist schematisch in

5.2 Ansätze zur Behandlung systematischer Messabweichungen



Abbildung 5.3: Simulationsmodell für die geschlossene Zylinderanordnung und thermoviskose Verluste bestimmt aus simulativ erzeugten Messsignalen für unterschiedliche Fluidparameter.

Abbildung 5.3 links dargestellt. Unter Bezugnahme auf die Abmessungen der Reflektoren in der ursprünglichen Anordnung werden Zylinder mit einem Radius von 6 mm gewählt. Die Berandung der Zylinder wird zunächst als ideal schallhart angenommen. Die schallwandlerabgewandten Grundflächen der Zylinder werden als nicht-perfekte akustische Reflektoren realisiert, die wie in Abschnitt 5.1 aus einem Material mit einer Edelstahl ähnlichen Impedanz aufgebaut sind. Die Parameter des Sendesignals bleiben unverändert (gaußförmig moduliertes Sinussignal mit Mittenfrequenz 8 MHz und relativer Bandbreite 0,1).

Die Auswertung der simulativ erzeugten Signale zeigt, dass die ermittelten thermoviskosen Verluste μ_{mess} sehr nah an den in der Simulation vorhandenen Verlusten μ liegen (Abbildung 5.3, rechts). Rechnerisch ergibt sich die Wurzel der mittleren quadratischen Abweichungen (RMSD) bei dieser Messanordnung zu etwa 62,7 µPa s. Damit liegen die beobachteten Abweichungen im selben Bereich wie bei der idealisierten, eindimensionalen Betrachtung (Abschnitt 4.3.3). Es kann also davon ausgegangen werden, dass eine Anordnung mit geschlossenen Zylindern direkt Messwerte für die akustische Absorption liefern kann, obwohl ein Teil der akustischen

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung

Energie in die Reflektoren transmittiert wird. Da diese Verluste jedoch multiplikativ sind, und an beiden Reflektoren der gleiche Transmissionsbzw. Reflexionsfaktor vorliegt [Ler09], werden diese durch den verwendeten Auswertealgorithmus (hier Auswertung der gewöhnlichen Momente des Signalspektrum, Abschnitt 4.2.4) eliminiert.

Die Umsetzung einer geschlossenen Zylinderanordnung in einem realen Messsystem bringt verschiedene Herausforderungen mit sich. So kann in einem realen Zylinder nicht davon ausgegangen werden, dass die Berandung ideal schallhart ist, also keine Energie in den Mantel transmittiert wird. Das Material der Berandung wird eine akustische Impedanz aufweisen, welche größer ist als die des zu untersuchenden Fluids. So findet auch bei flachen Einfallswinkeln keine Totalreflexion statt [Ler09]. Weiterhin stellt das Simulationsmodell der Zylinderanordnung einen geschlossenen Behälter dar, so dass ein Austausch des Fluids im zusammengesetzten Zustand nicht möglich ist. Ein möglicher Ansatz zur Lösung dieses Problems ist die Verwendung von offenen Zylindern unter Ausnutzung von Reflexion am offenen Ende. Dafür müssten allerdings Freifeldbedingungen an beiden offenen Enden geschaffen werden. Außerdem ist die Reflexion am offenen Ende für den vorliegenden Fall, bei dem die Zylinderabmessungen deutlich größer sind als die akustische Wellenlänge, sehr klein, so dass mit sehr geringen reflektierten Signalstärken gerechnet werden muss [Ler09]. Bezüglich der Anwendung bietet sich eine solche Anordnung also vor allem dann an, wenn die Wellenlänge groß, also zum Beispiel die Frequenz klein gewählt werden kann, und der Impedanzunterschied zwischen Mantelmaterial und Fluid groß ist. Dies ist zum Beispiel bei der Untersuchung von Fluiden im gasförmigen Zustand der Fall, die jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht betrachtet werden.

5.2.2 Symmetrische Abstrahlcharakteristik

Der Vergleich der Simulationsergebnisse des vereinfachten Modells (Abbildung 5.1) mit denen des Modells mit Schallwandlerfassung (Abbildung 5.2) legt nahe, dass die systematischen Abweichungen der Absorptionsmessung signifikant kleiner sind, wenn die Abstrahlcharakteristik des Schallwandlers in Richtung beider Reflektoren symmetrisch gestaltet werden kann. Für das reale Messsystem muss der Schallwandler dafür entweder an seiner Mantelfläche gehalten werden, oder alternativ auf beiden Seiten im gleichen Maße akustisch abgeschattet werden [Cla20a]. Der zweitgenannte Ansatz ist, zum Beispiel durch das Anbringen eines zusätzlichen Bauteils, einfacher zu realisieren und daher zu bevorzugen.

5.2.3 Erhöhung der Sendefrequenz

Für die folgende Betrachtung sei noch einmal auf die Simulationsergebnisse in Abschnitt 5.1 verwiesen. Sowohl die Auswertung der simulativ generierten Messsignale des vereinfachten Aufbaus (Abbildung 5.1) als auch des Aufbaus mit Schallwandlerfassung (Abbildung 5.2) zeigen, dass die beobachteten Abweichungen in den ermittelten thermoviskosen Verlusten μ_{mess} für kleine Schallgeschwindigkeiten c gegen null gehen. Die Schallgeschwindigkeit legt zusammen mit der Frequenz f mit dem bekannten Zusammenhang

$$\lambda = \frac{c}{f} \tag{5.2}$$

die Wellenlänge λ fest [Kra86; Ler09; Mös15], die maßgeblich für die geometrischen Parameter des Schallfelds ist (siehe Abschnitt 2.2). Die Simulationsergebnisse in Abschnitt 5.1 zeigen also auch, dass die Abweichungen in den ermittelten thermoviskosen Verlusten dann klein werden. wenn die Wellenlänge ebenfalls klein ist. Während nun die Schallgeschwindigkeit vom untersuchten Fluid und dessen thermodynamischem Zustand abhängig ist und somit kein freier Parameter in der Auslegung des Messsystems ist, kann alternativ die Sendefrequenz f erhöht werden. Da im Versuchsaufbau piezoelektrische Scheiben als Schallwandler verwendet werden, kann die Sendefrequenz zum Beispiel etwa verdreifacht werden, um den Schallwandler auf der ersten Harmonischen der Dickenresonanzfrequenz zu betreiben [Kra86]. Bei einer Frequenz von 24 MHz ergibt sich für eine Schallgeschwindigkeit von $1000 \,\mathrm{m\,s^{-1}}$ dann eine Wellenlänge von etwa 41,7 µm. Bei Annahme des Schallwandlers als Kolbenschwinger mit einem Radius von 6 mm ergibt sich bei harmonischer Anregung eine Nahfeldlänge (Gleichung 2.45) von 864 mm. Damit sind beide Reflektoren weit im Nahfeld der Anordnung. Zusammen mit dem Umstand, dass bei nicht-kontinuierlicher Anregung eines Kolbenschwingers die Signalamplitude nah am Schallwandler zunächst näherungsweise konstant bleibt (siehe Anhang A.3), kann so erklärt werden, warum die gemessene Abweichung vom erwarteten Ergebnis für kleine Wellenlängen geringer wird. Da die in Abschnitt 3.2.3 aufgeführten Messwerte ebenfalls mit Messsystemen ermittelt werden, die Ultraschall bei Frequenzen deutlich oberhalb von 10 MHz einsetzen, kann so erklärt werden, warum unterschiedliche Autoren (zum Beispiel [Awa77] und [Kor71c]) zu ähnlichen Ergebnissen kommen, ohne den Einfluss der Schallausbreitung in der Messanordnung zu berücksichtigen.

5.2.4 Bezugnahme auf Referenzdaten

Da der in Abschnitt 5.1 simulativ untersuchte Zusammenhang zwischen erwartetem Wert für die thermoviskosen Verluste μ und dem tatsächlichen Messwert $\mu_{\rm mess}$ stetigen Zusammenhängen folgt, scheint es prinzipiell möglich, eine Abbildungsfunktion $\mu = f(c, \rho_0, \mu_{\text{mess}})$ zu entwickeln, die den Zusammenhang mathematisch beschreibt. Die Simulationsmodelle können den realen Versuchsaufbau nicht umfänglich beschreiben, so dass die am Simulationsmodell beobachteten Zusammenhänge nicht direkt genutzt werden können, um die Abbildungsfunktion zu bestimmen. Es ist also nötig, dass am physikalischen Versuchsaufbau Messungen durchgeführt werden können, bei denen das Ergebnis im Vorhinein bekannt ist. Wie in Abschnitt 3.2.3 dargestellt, existieren einige Messdaten für die Volumenviskosität von verschiedenen Fluiden. Diese Fluide müssen in den thermodynamischen Zuständen vermessen werden, für die Referenzdaten existieren. Aus den dann beobachteten Abweichungen lässt sich $\mu = f(c, \rho_0, \mu_{\text{mess}})$ identifizieren. Dieser Ansatz hat den Nachteil, dass zunächst eine große Anzahl an Messungen durchgeführt werden muss. Weiterhin ist eine derartige Abbildungsvorschrift nur für einen bestimmten Bereich des durch Schallgeschwindigkeit c, Dichte ρ_0 und gemessene thermoviskose Verluste $\mu_{\rm mess}$ aufgespannten Raums gültig. So können also nur Fluide in Zuständen untersucht werden, bei denen die genannten Parameter denen der Referenzfluide ähneln. Andere Fluidparameter, insbesondere Druck und Temperatur, können jedoch durchaus von denen der Referenzmessungen abweichen. Zudem gilt die identifizierte Abbildungsvorschrift nur für die jeweilige Messanordnung. Werden größere Änderungen am Aufbau durchgeführt, müssen die Referenzmessungen erneut durchgeführt werden. Im Vergleich zu anderen vorgestellten Ansätzen zeigt die Bezugnahme auf Referenzdaten jedoch gute Erfolgsaussichten, da hier (abgesehen von der Zeit-Invarianz des Messsystems) keine weiteren vereinfachenden Annahmen getroffen werden müssen. Sie wird daher im Folgenden (Kapitel 6) als primärer Ansatz zur Korrektur der systematischen Messabweichungen gewählt. Es werden jedoch parallel auch Modifikationen an der Messanordnung vorgenommen, die das Ziel haben, die systematischen Messabweichungen zu reduzieren.

5.3 Modifikation der Messanordnung zur Verringerung der systematischen Messabweichungen

Basierend auf den vorangegangenen Betrachtungen sollen Modifikationen an der Messanordnung vorgenommen werden, die zum einen dazu dienen, die simulativ (Abschnitt 5.1) und experimentell (Abschnitt 6.2) beobachteten schallgeschwindigkeits- und dichteabhängigen systematischen Messabweichungen zu reduzieren. Zum anderen sollen gleichzeitig andere experimentell beobachtete Störeffekte unterdrückt werden. Dazu werden zum einen Änderungen in der Geometrie der Schallwandlerfassung vorgenommen. Zum anderen werden Diffusorstrukturen eingesetzt, die Störungen durch gerichtet reflektierte akustische Wellen an konstruktiven Elementen, wie etwa der Aufhängung der akustischen Reflektoren, minimieren sollen. Als Material für die überarbeiteten Bauteile wird, aufgrund der notwendigen Temperatur- und Formbeständigkeit, primär Edelstahl verwendet. Vom Einsatz von Kunststoffteilen wird weitestgehend abgesehen.

5.3.1 Diffusorstrukturen

Aufgrund der Forderung, dass sich das Fluid im Messsystem im thermodynamischen Gleichgewicht befinden muss, ist eine möglichst kleine Messanordnung vorteilhaft. Daher ist es im Allgemeinen nicht möglich, passive Konstruktionselemente so weit von den Schallwellenausbreitungswegen zu entfernen, dass sie diese nicht beeinträchtigen. Bedingt durch die hohen Anforderungen, die bezüglich der Temperatur und des Drucks an die Messanordnung gestellt werden, ist außerdem die Auswahl der Materialien, aus denen konstruktive Elemente hergestellt werden können, stark eingeschränkt. Zur Unterdrückung unerwünschter Echosignale innerhalb der Messanordnung können daher keine kommerziell verfügbaren akustischen Absorberplatten auf Polymerbasis (zum Beispiel Acoustic Polymers Ltd AptFlex F28 [Apt19]) verwendet werden. Das Wirkungsprinzip dieser Absorber basiert zudem auf einer Anpassung der akustischen Impedanz an das umgebende Medium (zum Beispiel Wasser). Da mit der Messanordnung jedoch Fluide mit variierender Schallgeschwindigkeit und Dichte untersucht werden sollen, ist die Impedanzanpassung nur in einigen wenigen Fällen näherungsweise gegeben. Als alternativer Ansatz zur Unterdrückung von Störsignalen werden Diffusorstrukturen für den Ultraschallbereich untersucht [Cla18b; Cla18a]. Die Strukturen werden aus Metall additiv gefertigt,

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung



Abbildung 5.4: Modell für den Probekörper für die Struktur mit Quaderanordnung mit stochastisch gleichverteilten Höhen (*Skyline*). Maximale Höhe eines Quaders beträgt 4 mm.

um einen Einsatz in einem großen Temperaturbereich zu ermöglichen. Ziel ist es dabei nicht, dass die akustische Welle in das Metall der Diffusorstrukturen transmittiert; der große Unterschied in der akustischen Impedanz an der Grenzfläche zwischen Fluid und Diffusormaterial führt zu einem ebenfalls großen Reflexionsfaktor. Stattdessen soll die akustische Energie der Störsignale durch diffuse Reflexion im Raum zerstreut werden. Voraussetzung für diese Funktionsweise ist, dass die Oberflächen im Bereich der Wellenlänge der zu reflektierenden Welle strukturiert werden. Je nach Fluid liegt diese im Bereich einiger Zehntelmillimeter, so dass sich hier die Fertigung mittels additiver Verfahren anbietet [Gib14]. Als Ausgangspunkt für die zu realisierenden Strukturen dienen hierbei aus der Raumakustik bekannte Konzepte [Sch79; Cox16]. Von den in [Cla18a] vorgestellten, strukturierten Oberflächen soll an dieser Stelle nur die *Skyline* genannte Struktur (Abbildung 5.4) näher beschrieben werden, da sie aufgrund ihrer Eigenschaften für den Einsatz in der Messanordnung am geeignetsten ist.

Für die Untersuchung der Eigenschaften der Strukturen werden zunächst Probekörper mit einer quadratischen Grundfläche mit einer Kantenlänge von 80 mm hergestellt. Für den Herstellungsprozess werden zunächst dreidimensionale Gittermodelle benötigt, die mit Hilfe von ComputergrafikSoftware [Ble19] erstellt werden. Die stochastischen Elemente der Probekörper werden über das Programmiersprachen-Interface der Software prozedural generiert. Die Probekörper werden aus Edelstahl durch selektives Laserschmelzen [Gib14] (SLS) gefertigt.

Zur Charakterisierung und Verifikation des diffusen Verhaltens der Strukturen werden die folgenden Untersuchungen in Wasser durchgeführt: Puls-Echo-Messungen mit senkrechtem Einfall sollen quantitativ zeigen, wie viel akustische Energie gerichtet reflektiert wird. Schlierenaufnahmen sollen qualitativ zeigen, wie die Abstrahlcharakteristik der diffus reflektierten akustischen Wellen ist. Für die Puls-Echo-Messungen werden mit einem kommerziell erhältlichen Schallwandler (Olympus Corporation C306-SU) gaußförmig modulierte Sinus-Signale mit unterschiedlichen Mittenfrequenzen senkrecht zur Probenoberfläche ausgesandt. Der Abstand von der aktiven Fläche des Schallwandlers zur Probenoberfläche beträgt 75 mm. Das reflektierte akustische Signal wird vom Schallwandler wieder aufgenommen und bezüglich der maximalen Signalstärke u_{max} und der Signalenergie e ausgewertet. Da die Sensitivität des Schallwandlers frequenzabhängig ist, werden die jeweiligen Werte für Signalstärke und -energie auf Referenzmessungen $(u_{\text{max,ref}} \text{ und } e_{\text{ref}})$ einer gerichtet reflektierenden Oberfläche (der ebenen Rückseite des Probekörpers) normiert:

$$u_{\text{max,rel}} = \frac{u_{\text{max}}}{u_{\text{max,ref}}} \quad \text{und} \quad e_{\text{rel}} = \frac{e}{e_{\text{ref}}}.$$
 (5.3)

Gewünscht ist hier, dass beide Größen über den gesamten Frequenzbereich möglichst klein sind. Eine geringe maximale Signalstärke $u_{\text{max,rel}}$ ist ein Indikator dafür, dass keine großen, im Zeitbereich konzentrierten Signale auftreten, während eine geringe Energie auf eine geringe gerichtete Reflexion ungeachtet einer Streuung im Zeitbereich hindeutet. Die Ergebnisse dieser Betrachtung für die *Skyline*-Struktur sind in Abbildung 5.5 dargestellt. Neben der Mittenfrequenz $f_{\rm m}$ des bei der Untersuchung verwendeten gaußförmig modulierten Sinussignals werden die Ergebnisse zusätzlich über die auf die Strukturgröße des Diffusors (1 mm) normierte, mittlere Wellenlänge λ des akustischen Signals im Fluid aufgetragen:

$$\lambda_{\rm rel} = \frac{\lambda}{1\,\rm mm} = \frac{c}{f_{\rm m} \cdot 1\,\rm mm}.\tag{5.4}$$

Als Schallgeschwindigkeit c im Wasser wird hier vereinfacht von $1500 \,\mathrm{m\,s^{-1}}$ ausgegangen. Die maximale Signalstärke $u_{\rm max}$ kann nahezu über den gesamten untersuchten Frequenz- bzw. Wellenlängenbereich im Vergleich zur

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung



Abbildung 5.5: Frequenz- bzw. Wellenlängenabhängigkeit des Reflexionsverhaltens der *Skyline*-Struktur bei senkrechtem Einfall.

gerichteten Reflexion durch den Einsatz der untersuchten Diffusorstruktur um mindestens eine Größenordnung gesenkt werden. Ausnahmen bilden hier die Messungen mit einer Mittenfrequenz um 1,5 MHz, bei denen eine höhere maximale Signalstärke auftritt. Tendenziell zeigt sich hin zu hohen Frequenzen und kurzen Wellenlängen eher ein abfallender Trend, was darauf hindeutet, dass diese Struktur auch zur diffusen Reflexion von deutlich kurzwelligeren akustischen Wellen, wie sie im Versuchsaufbau auftreten, verwendet werden kann. Die Struktur muss also für den Einsatz in der Messanordnung nicht so klein skaliert werden, dass die Strukturen nicht mehr im Laserschmelzverfahren fertigbar sind. Erwartungsgemäß kann die reflektierte Signalenergie e durch den Einsatz der Struktur vor allem im Frequenzbereich um 2 MHz um bis zu zwei Größenordnungen reduziert werden. Außerhalb dieses Bereichs ist die relative reflektierte Signalenergie größer, überschreitet aber den Wert $2 \cdot 10^{-2}$ nur im niederfrequenten Bereich, also wenn die Wellenlänge größer als die laterale Strukturierung des Diffusors ist. Vor allem im hochfrequenten Bereich bleibt die reflektierte
Energie trotz eines leichten Anstiegs gering, so dass sich diese Struktur auch bei energetischer Betrachtung für den Einsatz im Messsystem eignet.

Zur qualitativen Untersuchung der Reflexionseigenschaften der Struktur wird das Schallfeld mittels Schlierenaufnahmen [Ram35] visualisiert. Verwendet wird dazu der von Olfert et al. [Olf16] realisierte Aufbau, wobei als Ortsfilter eine Punktblende (optischer Hochpass) eingesetzt wird, um den Gleichanteil aus den Abbildungen zu entfernen. Die resultierenden Abbildungen entsprechen damit näherungsweise dem Betragsquadrat der durch die akustischen Wellen hervorgerufenen optischen Weglängenänderung. Allerdings muss dabei beachtet werden, dass Schallwellenpakete, deren Ausbreitungsrichtung nicht orthogonal zur optischen Achse ist, durch den integrierenden Charakter der Schlierentechnik nicht oder nur abgeschwächt abgebildet werden [Olf13; Olf14].

Die mittels Schlierentechnik beobachtete Interaktion eines akustischen Signals mit einer Mittenfrequenz von 2 MHz mit der Diffusorstruktur ist schrittweise in Abbildung 5.6 dargestellt. Die erste Abbildung $(t = 0 \,\mu s)$ zeigt das Wellenpaket vor dem Auftreffen auf die Struktur. Es zeigt sich, dass das vom Schallwandler (Olympus Corporation C306-SU) emittierte Schallwellenpaket beidseitig schwach ausgeprägte Nebenkeulen aufweist. So wird gleichzeitig gezeigt, dass die Struktur erwartungsgemäß [Cox16] auch diffus reflektiert, wenn der Einfallswinkel nicht senkrecht ist. Der zweite Zeitschritt $(t = 8 \,\mu s)$ in Abbildung 5.6 zeigt das Auftreffen des Wellenpakets auf die strukturierte Oberfläche. Im dritten Schritt ($t = 16 \,\mu s$) zeigt sich die Charakteristik des am Diffusor reflektierten Wellenpaketes. Während die Intensität des reflektierten akustischen Wellenpakets weiterhin in der Mitte am ausgeprägtesten ist, zeigen sich unregelmäßig reflektierte Wellenanteile mit Ausbreitungsrichtungen, die im spitzen Winkel zur Diffusorfläche stehen. Nachdem das nun diffuse Wellenpaket weiter propagiert (t =24 µs), zeigt sich im vierten Zeitschritt, dass das akustische Wellenpaket durch die geringe Tiefe der Struktur im Zeitbereich nicht nennenswert länger geworden ist. Zusammenfassend zeigen die Schlierenaufnahmen, dass akustische Wellen bei 2 MHz an der vorgestellten Struktur diffus reflektiert werden, wobei die Intensität der reflektierten akustischen Wellen, ähnlich dem Lambertschen Gesetz [Lam92], senkrecht zur Diffusorebene am größten ist und dann zu spitzeren Winkeln hin abnimmt. Während sich ebene Festkörperoberflächen für akustische Wellen analog eines optischen Spiegels verhalten, bewirkt die hier vorgestellte Strukturierung der Oberfläche ein Reflexionsverhalten ähnlich dem einer optisch matten, weißen Fläche.

Die Oberflächenstrukturierung zur diffusen Reflexion akustischer Wellen findet in der überarbeiteten Messanordnung auf der Fläche hinter den

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung



Abbildung 5.6: Schlierenaufnahmen des Reflexionsvorgangs einer akustischen Welle mit einer Mittenfrequenz von 2 MHz an der *Skyline*-Struktur.

akustischen Reflektoren Anwendung [Cla20a]. Zum einen werden so potenzielle Störsignale von den vormals glatten Flächen abgeschwächt und die Störung der mehrfach reflektierten, akustischen Signale reduziert, so dass diese für zukünftige Auswertungen zur Verfügung stehen. Zum anderen können die Reflektorelemente mit geringerem Platzbedarf aufgebaut werden. Das resultierende Bauteil ist in Abbildung 5.7 links schematisch dargestellt. Die maximale Höhe der Elemente des Diffusors wird basierend auf den am Probekörper gemachten Beobachtungen auf 3 mm festgelegt. Bis auf die eingesetzte Diffusorstruktur wird das Reflektorelement im Vergleich zum ursprünglichen Aufbau (Abschnitt 3.3) nicht weiter modifiziert. Allerdings werden beim überarbeiteten Aufbau zwei identische Reflektorelemente eingesetzt, während ursprünglich unterschiedliche Abstände



Abbildung 5.7: Schematische Darstellung des überarbeiteten Reflektorelements mit nachgelagerter Diffusorstruktur (links) und Modell für den Herstellungsprozess (rechts).

zwischen Reflektorfläche und rückseitiger Fläche gewählt wurden (siehe Abbildung 3.4). Das Reflektorelement wird als ein Bauteil additiv aus Edelstahl 1.4540 [Kaz19] durch selektives Laserschmelzen (SLS) gefertigt. Entsprechend wird ein dreidimensionales Modell benötigt, welches in Abbildung 5.7 rechts dargestellt ist. Zur Erhaltung der Kompatibilität mit dem vorhandenen Aufbau hat das Reflektorelement umlaufend sechs Löcher, durch die es mit den vorhandenen Elementen verschraubt werden kann. Der Kranz mit diesen sechs Löchern ist an zwei Stellen durchbrochen, um ein Ein- und Ausströmen des zu untersuchenden Fluids zu ermöglichen. Zentral befindet sich auf einem Stempel die kreisförmige Reflektorfläche. Wie in Abbildung 5.7 rechts angedeutet, zeigen mittels SLS-Prozess hergestellte Bauteile eine raue Oberfläche [Gib14]. Die Reflektorfläche selbst wird daher nach der additiven Fertigung noch einmal spanend nachbearbeitet, um die Rauheit zu reduzieren. Auf der rückseitigen Wand hinter der Reflektorfläche befindet sich die Diffusorstruktur, die in diesem Fall aufgrund der einfacheren Modellierung nicht aus Quaderelementen, sondern aus radial und azimutal angeordneten Prismen aufgebaut ist. Die lateralen Abmessungen eines einzelnen Prismas sind damit von der radialen Position abhängig und weisen eine maximale Kantenlänge von 0,81 mm auf.

5.3.2 Überarbeitung der Schallwandlerfassung

Im Folgenden wird beschrieben, wie die vorhandene Schallwandlerfassung (siehe Abschnitt 3.3) modifiziert werden kann. Die Maßnahmen haben zum einen das Ziel, parasitäre Körperschallsignale zu unterdrücken. Zum ande-

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung



Abbildung 5.8: Darstellung der ursprünglichen Schallwandlerfassung.

ren wird in Abschnitt 5.1 gezeigt, dass die zu erwartenden systematischen Messabweichungen geringer werden, wenn die Abstrahlcharakteristik des Schallwandlers in Richtung beider Reflektoren identisch, also symmetrisch ist [Cla20a].

Unterdrückung von Körperschallsignalen

Im vorhandenen Messsystem zeigt sich gerade bei der Untersuchung von Fluiden mit geringer Dichte in der Einhüllenden der Empfangssignale ein zweites Maximum. Eine Ursache hierfür kann Körperschallübertragung in der Schallwandlerfassung sein. Neben der Abstrahlung von akustischen Signalen in das Fluid wird Schall ebenfalls in das Material der Schallwandlerfassung übertragen. Der konische Teil der Fassung im ursprünglichen Aufbau (Abbildung 5.8) hat einen Öffnungswinkel β von 45°, so dass eingekoppelte Schallwellen von der Kontaktfläche des Schallwandlers ausgehend näherungsweise in Richtung der Außenwand der Fassung reflektiert werden. Die Außenwand reflektiert die Schallwellen wiederum zurück in Richtung der konusförmigen Innenfläche der Schallwandlerfassung, welche die Schallwellen zurück in Richtung der Auflagefläche des Schallwandlers reflektiert. Dies führt zu einer erneuten, ungewollten Anregung des Schallwandlers. Dieser Effekt ist gerade deshalb bei Fluiden mit geringer Dichte besonders ausgeprägt, da die Reflexionsfaktoren an den beteiligten Grenzflächen von den Unterschieden in der spezifischen akustischen Impedanz der Materialien abhängen. Da sich die spezifische akustische Impedanz aus dem Produkt von Schallgeschwindigkeit und Dichte bestimmt, ist der Impedanzunterschied zwischen dem Fluid und der aus Edelstahl gefertigten Schallwandlerfassung unter anderem dann gering, wenn die Dichte des Fluids gering ist.

Folgend wird untersucht, inwiefern eine Variation des Öffnungswinkels β zu einer Verringerung der Störsignaleinflüsse führen kann. Dazu werden



Abbildung 5.9: Simulationsergebnisse für Körperschallsignale in der konischen Schallwandlerfassung mit unterschiedlichen Öffnungswinkeln $\beta.$



Abbildung 5.10: Überarbeitete untere Schallwandlerfassung mit parabolischer Form.

Schallfeldsimulationen mit der Finite Elemente Methode (FEM) durchgeführt [Kal10]. Da die Schallwandlerfassung näherungsweise rotationssymmetrisch ist, kann auch das Simulationsmodell rotationssymmetrisch angenommen werden, um die notwendigen Rechenressourcen zu reduzieren. Das Modell beinhaltet nur die konische Schallwandlerfassung sowie die Außenwand der Messanordnung. Um die Einkopplung von Körperschall in die Schallwandlerfassung zu simulieren, wird das Linienelement, auf dem der Schallwandler bei rotationssymmetrischer Betrachtung aufliegt, mechanisch mit einem gaußförmig modulierten Sinussignal mit einer Mittenfrequenz von 8 MHz angeregt. Als Ausgangssignal wird die mittlere, senkrechte Auslenkung auf diesem Linienelement aufgezeichnet. Die Ergebnisse der Simulation für unterschiedliche Öffnungswinkel von 80° bis 30° sind in Abbildung 5.9 dargestellt. Für alle Öffnungswinkel ist zunächst das anregende gaußförmig modulierte Sinussignal bei $t \approx 2.5 \,\mu s$ erkennbar. Die dargestellten Signale sind jeweils auf das Maximum dieses Signals normiert. Für große Öffnungswinkel (zum Beispiel $\beta = 80^{\circ}$) hat die Schallwandlerfassung nur eine geringe mittlere Dicke unterhalb der Auflagefläche des Schallwandlers, so dass das Signal noch während der Anregung zurück reflektiert wird und so das anregende Signal anscheinend verlängert wird. Für alle Winkel zeigen sich zu unterschiedlichen Zeiten zurück-reflektierte Störsignale, die ein wiederholtes Anregen des Schallwandlers hervorrufen können. Die beobachteten Signale für $\beta = 40^{\circ}$ und $\beta = 50^{\circ}$ zeigen ein Störsignal bei etwa 8 µs, das sich mit den Beobachtungen im realen Messsystem $(\beta = 45^{\circ})$ deckt. Da die Ergebnisse für alle anderen Winkel β ebenfalls Störsignale enthalten, wird davon ausgegangen, dass eine konusförmige Fassung mit realisierbaren Öffnungswinkeln immer zu Störungen führen wird. Deshalb soll im Folgenden eine alternative Form der Schallwandlerfassung untersucht werden, wobei die konische Variante mit $\beta = 60^{\circ}$ als Ausgangspunkt dient, da sie den geringsten Störsignalanteil zeigt.

Es wird der Ansatz verfolgt, dass eine im radialen Schnittbild krummlinige Form der unteren Kante der Schallwandlerfassung die eingekoppelte akustische Energie besser im Material der Messanordnung streuen kann und damit zu geringeren Störsignalen führt. Weiterhin sollte die Grenzfläche konvex sein, um keine ungewollte Fokussierung der akustischen Wellen an einem bestimmten Punkt zu bewirken. Es bietet sich also zum Beispiel an, die Grenzfläche in der radialen Schnittebene in Form einer Parabel zu wählen (Abbildung 5.10). Räumlich betrachtet hat die untere Grenzfläche der Schallwandlerfassung dann eine paraboloide Form. Bei den zuvor durchgeführten Betrachtungen hat sich herausgestellt, dass ein Öffnungswinkel von 60° für eine konische Fassung die geringsten Störsignale liefert. Dieses Ergebnis wird als Ausgangspunkt für die Auslegung der paraboloiden Fassung genutzt, indem vorgegeben wird, dass die Steigung am inneren Rand der Fassung einem Öffnungswinkel von 60° entsprechen soll. Zusammen mit der Vorgabe, dass die Fassung weiterhin rotationssymmetrisch sein und einen flachen zylindrischen Teil mit einer Tiefe von 1 mm aufweisen soll, ist der Paraboloid in seiner Form eindeutig identifizierbar. Für die Verwendung in der Messanordnung ist es weiterhin wünschenswert, dass der Brennpunkt F des Paraboloiden [Bro99] unterhalb des Schallwandlers liegt, so dass vom Reflektor kommende Schallwellen nicht über die Wandung in Richtung des Schallwandlers reflektiert werden. Für den identifizierten Paraboloiden liegt der Brennpunkt gerade 3,9 mm unterhalb des Schallwandlers (siehe Abbildung 5.10), so dass auch diese Anforderung erfüllt ist.

Zur Verifikation der Störsignalunterdrückung wird auch die paraboloide Schallwandlerfassung analog zu den konischen Varianten simulativ untersucht. Während das resultierende Signal (Abbildung 5.11) neben dem Anregungssignal bei $t \approx 2,5 \,\mu$ s weiterhin einige erkennbare Störsignale zeigt, sind diese weniger ausgeprägt als bei dem vergleichbaren Signal der konischen Schallwandlerfassung für $\beta = 60^{\circ}$. Gerade das zuvor am deutlichsten sichtbare Signal bei $t \approx 12 \,\mu$ s ist erkennbar abgeschwächt.

Neben einer geänderten Geometrie der Schallwandlerfassung wird für die überarbeitete Variante auch ein anderes Herstellungsverfahren gewählt. Wie schon die Reflektorelemente (Abschnitt 5.3.1) wird auch die Schallwandlerfassung additiv im selektiven Laserschmelzverfahren (SLS) hergestellt. Neben zusätzlichen Freiheitsgraden in der Gestaltung kann mit Hilfe von Verfahren zur zerstörungsfreien Materialcharakterisierung [Web18] gezeigt werden, dass das Material von durch additive Herstellungsmethoden wie SLS gefertigten Bauteilen akustische Wellen stärker absorbiert als herkömmliches Vollmaterial [Cla17b; Jäg17]. Dadurch werden potenziell störende Körperschallsignale zusätzlich abgeschwächt.



Abbildung 5.11: Simulationsergebnisse für Körperschallsignale der Schallwandlerfassung mit paraboloider Form.

Symmetrische Schallwandlerfassung

Wie in Abschnitt 5.2.2 beschrieben, zeigen die Simulationsergebnisse in Abschnitt 5.1, dass die erwarteten systematischen Messabweichungen deutlich geringer sind, wenn die Abstrahlcharakteristik des Schallwandlers in Richtung beider Reflektoren symmetrisch ist. Gerade ein Vergleich mit der Simulation des (wie bei der ursprünglichen Schallwandlerfassung) in eine Richtung teilweise verdeckten Schallwandlers (Abbildung 5.2 gegenüber Abbildung 5.1) zeigt, dass die systematischen Messabweichungen deutlich größer sind als der eigentliche Messeffekt für die akustische Absorption. Es wird daher eine Schallwandlerfassung entworfen, die eine möglichst symmetrische Abstrahlcharakteristik in beide Richtungen aufweisen soll. Aufgrund der hohen Anforderungen an Temperatur- und Druckfestigkeit ist die Auswahl der verwendbaren Materialien und Verbindungstechniken eingeschränkt. Weiterhin soll die verwendete Verbindungstechnik auch chemisch beständig sind, um die Menge der analysierbaren Fluide möglichst nicht einzuschränken. Als Ausgangspunkt dient dabei die parabolische untere Seite der Fassung, welche in Abschnitt 5.3.2 beschrieben wird. Ziel ist es, den Schallwandler nun so zu fixieren, dass dieser von oben in identischer Weise abgeschattet wird.

Im hier verwendeten Ansatz zur Erzeugung eines symmetrischen Abstrahlverhaltens wird oberhalb des Schallwandlers ein Ringelement angebracht, das den Schallwandler in ähnlicher Form abschattet wie die Fläche, auf der der Schallwandler aufliegt (Abbildung 5.12) [Cla20a]. Dieses Ringelement soll an der schallwandlerabgewandten Seite den gleichen parabolischen Verlauf aufweisen und aus dem selben Material gefertigt werden wie die untere Hälfte der Schallwandlerfassung. Weiterhin soll das Ringelement nicht direkt auf der Schallwandleroberfläche aufliegen, um einer möglichen Beschädigung des Schallwandlers vorzubeugen. Der Spalt



Abbildung 5.12: Konzept der Schallwandlerfassung zur symmetrischen Abstrahlung in beide Richtungen.

zwischen Schallwandler und Ringelement wird dabei gerade so gewählt, dass der Abstand zwischen den paraboloiden Flächen und der jeweiligen Schallwandleroberfläche identisch ist. Das Ringelement soll zusätzlich zur elektrischen Kontaktierung der oberen Elektrode des Schallwandlers dienen. Es soll daher so fixiert werden, dass kein Kontakt zwischen dem Ringelement und der Außenwand der Messanordnung besteht.

Für die Realisierung des zuvor beschriebenen Konzepts zur symmetrischen Schallabstrahlung wird zunächst betrachtet, wie der Schallwandler sowohl elektrisch kontaktiert als auch mechanisch fixiert werden kann. Um die Kontaktierung wieder lösbar zu realisieren und gleichzeitig keine zu großen Kräfte auf den Schallwandler wirken zu lassen, werden Federkontaktstifte eingesetzt. Da diese nach Möglichkeit senkrecht zum Schallwandler verbaut werden sollen, bietet es sich an, die Federkontaktstifte im Ringelement einzusetzen. Aufgrund der begrenzten Dimensionen des Ringelements wird eine möglichst kurze Bauform des Federkontaktstifts gewählt (FEIN-METALL GmbH F708 [Fei19]). Da diese Bauform mit einer Länge von 5,3 mm dennoch höher als das Ringelement am Einbauort des Federkontaktstifts ist, wird die Geometrie im paraboloiden Teil des Ringelements entsprechend erweitert (Abbildung 5.13). Die Elektrodenstruktur des bisher eingesetzten Quarz-Schallwandlers bedingt, dass zwei gegenüberliegende Federkontaktstifte eingesetzt werden. Um eine bessere mechanische Fixierung zu gewährleisten, werden zwei weitere Federkontaktstifte verbaut. Die obere Fläche der Fassungen für die Federkontaktstifte wird ebenfalls als Ausschnitt eines Paraboloiden geformt. Weiterhin weist das Ringelement (Abbildung 5.13) vier Löcher auf, durch die es mit dem unteren Teil der Schallwandlerfassung verschraubt wird. Um die elektrische Isolation gegenüber dem unteren Teil der Schallwandlerfassung sicherzustellen, werden Unterlegscheiben aus Polytetrafluorethylen (PTFE) eingesetzt und die

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung



Abbildung 5.13: Ringelement mit eingesetzten Federkontaktstiften zur Fixierung, Kontaktierung und Abschattung des Schallwandlers.

Löcher entsprechend groß gefertigt, so dass die eingesetzten Schrauben nicht in Kontakt zum Ringelement stehen.

Da das Ringelement nicht direkt auf dem Schallwandler aufliegt, entsteht zwischen beiden Bauteilen ein Bereich mit parallelen Oberflächen, der bei der Messung mit dem zu untersuchenden Fluid gefüllt ist. Hier können also abhängig von den Parametern des zu untersuchenden Fluids Reverberationen und Resonanzeffekte auftreten, die die Messung negativ beeinflussen können. Um diesen Effekten entgegenzuwirken, wird die Oberfläche des Ringelements, welche dem Schallwandler direkt gegenüber steht, analog zu den zuvor beschriebenen Diffusorstrukturen (Abschnitt 5.3.1), stochastisch strukturiert. Die Strukturtiefe wird hier auf maximal 0,4 mm begrenzt, da sonst der Abstand der parabolischen Fläche von der Schallwandlerebene vergrößert werden müsste und so die Symmetrie der Anordnung aufgebrochen würde. Die einzelnen Elemente der stochastischen Struktur werden auch hier als radial und azimutal angeordnete Prismen realisiert, wobei die laterale Strukturgröße etwa 1 mm beträgt (Abbildung 5.13).

Aufgrund der komplexen Geometrie und der Vorgabe, dass sich das Ringelement akustisch möglichst wie der untere Teil der Schallwandlerfassung verhalten soll, wird auch das Ringelement additiv aus Edelstahl 1.4540 [Kaz19] im SLS-Verfahren gefertigt.

Die realisierte Schallwandlerfassung zur symmetrischen Abstrahlung ist in Abbildung 5.14 als Schnitt dargestellt. Während sowohl die parabolische untere Hälfte der Fassung als auch das Ringelement additiv hergestellt werden, wird das das Ringelement umgebende Distanzstück mit einer Länge von 30 mm (in der Abbildung dunkler dargestellt) aufgrund der einfachen Geometrie spanend in einer Drehmaschine gefertigt bzw. aus der



Abbildung 5.14: Schnittdarstellung der Schallwandlerfassung zur symmetrischen Abstrahlung aus Richtung der parabolischen unteren Hälfte (oben) und des eingesetzten Ringelements (unten).



Abbildung 5.15: Vergleich des ersten Empfangssignals (Methanol bei etwa 300 K und 20 MPa) der ursprünglichen (a) und der überarbeiteten Messanordnung (b).

vorhandenen Messanordnung übernommen. Weiterhin wird die Geometrie in der parabolischen unteren Hälfte identisch zum Ringelement erweitert (wie in Abbildung 5.14 oben zu sehen), auch wenn hier keine Federkontaktstifte eingesetzt werden. Stattdessen wird der zusätzliche Raum im Bauteil genutzt, um die Schrauben zur Befestigung des Ringelements aufzunehmen. Entsprechend sind die Aufnahmen für die Federkontaktstifte bzw. die Schrauben um 45° um die akustische Achse gedreht angebracht. Nicht sichtbar ist ein Durchbruch im 30 mm Distanzstück, durch den das Ringelement elektrisch kontaktiert wird.

5.3.3 Evaluation der überarbeiteten Messanordnung

Durch das Anbringen des Ringelements werden oberhalb des Schallwandlers akustisch reflektierende Oberflächen geschaffen, die die Form der vom Schallwandler emittierten und aufgenommenen Signale durch Reverberationen stark beeinflussen können. Um dies zu verhindern, wird die Oberfläche stochastisch strukturiert (siehe Abbildung 5.13). Um den Erfolg dieser Maßnahme zu evaluieren, wird die Form des ersten Empfangssignals der ursprünglichen Messanordnung mit der überarbeiteten Variante verglichen (Abbildung 5.15), wobei als zu analysierendes Fluid Methanol in ähnlichen Zuständen verwendet wird. Den Idealfall stellt hier die Signal-

form der ursprünglichen Messanordnung dar (Abbildung 5.15 a), bei der der Schallwandler nahezu ungestört ausschwingt. Als anregendes Signal wird in beiden Fällen ein Rechteck-moduliertes Sinussignal mit einer Mittenfrequenz von 8 MHz und 8 Perioden angelegt. Die Schallwandler sind identisch aufgebaute Quarz-Einkristalle. Die Einhüllenden beider Signale sind zunächst sehr ähnlich, wobei Unterschiede primär an der fallenden Flanke auftreten. Beim Empfangssignal der ursprünglichen Messanordnung (Abbildung 5.15 a) zeigt sich hier eine Einschnürung, die auf eine Umkehrung der Phase des Signals um 180° hindeutet. Ursächlich für ein derartiges Verhalten kann ein zweites, überlagertes Signal sein, das zum Beispiel durch die in Abschnitt 5.3.2 untersuchte Körperschalleinkopplung in die Schallwandlerfassung entstehen kann. Das Empfangssignal der überarbeiteten Messanordnung (Abbildung 5.15 b) zeigt diese Einschnürung nicht, allerdings fällt die Einhüllende an der gleichen Stelle mit einer größeren Zeitkonstante ab. Dieses Verhalten kann durch nicht vollständig unterdrückte Reflexionen zwischen Schallwandler und Ringelement hervorgerufen werden, aber auch aus dem Ausschwingverhalten des Schallwandlers resultieren. Demnach lässt sich insgesamt schließen, dass die Modifikationen der Messanordnung, insbesondere das Ringelement, die Form des Signals im Zeitbereich nicht negativ beeinflussen.

Um die Eigenschaften der überarbeiteten Messanordnung weiter zu untersuchen und zu verifizieren, ob die zuvor beschriebenen konstruktiven Maßnahmen die systematischen Messabweichungen bei der Absorptionsmessung reduzieren können, werden Medien in Zuständen analysiert, in denen die Volumenviskosität bekannt ist. Beispielhaft sollen hier die Ergebnisse einer isothermen Messung von Methanol bei etwa 300 K betrachtet werden. Es sei darauf hingewiesen, dass die Evaluation der überarbeiteten Messanordnung aufgrund experimenteller Einschränkungen in einem anderen temperierbaren Druckbehälter durchgeführt wird. Dieser ist zum einen bezüglich der einstellbaren Temperatur eingeschränkt, da Wasser als Temperierflüssigkeit verwendet wird. Zum anderen zeigen die in diesem Druckbehälter aufgezeichneten Empfangssignale aufgrund einer vereinfachten elektrischen Abschirmung ein vergleichsweise hohes Rauschen und die thermische Isolation ist im Vergleich zum sonst verwendeten Druckbehälter [Dub14] deutlich einfacher ausgeführt.

Die Ergebnisse der Messungen der thermoviskosen Verluste μ_{mess} mit den beiden Messanordnungen sind in Abbildung 5.16 dargestellt. Weiterhin werden als ideale Ergebnisse die Referenzwerte basierend auf Literaturangaben (Abbildung 3.2) mit aufgeführt. Die Signale werden mit Hilfe der Methode der gewöhnlichen Momente (Abschnitt 4.2.4) zur Bestimmung

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung



Abbildung 5.16: Thermoviskose Verluste für Methanol bei $T \approx 300 \,\mathrm{K}$ gemessen mit der unveränderten und der überarbeiteten Messanordnung sowie Referenzdaten.

der thermoviskosen Verluste ausgewertet. Erwartet werden also demnach über den betrachteten Druckbereich sehr kleine, mit dem Druck bzw. der Dichte leicht ansteigende Werte für die thermoviskosen Verluste von etwa 2 mPa s. Die ursprüngliche Messanordnung liefert Messergebnisse, die von etwa 6 mPa s auf 13 mPa s, abhängig vom Druck, ansteigen. Die überarbeitete Messanordnung liefert Messwerte für die thermoviskosen Verluste, die unterhalb von 2 mPa s liegen und damit deutlich näher an den idealen Ergebnissen der Referenzdaten. Es zeigt sich jedoch auch, dass die Messergebnisse der überarbeiteten Messanordnung eine größere Streuung aufweisen als die Resultate der ursprünglichen Anordnung (besonders die Messwerte bei 50 MPa und 80 MPa). Ursächlich hierfür kann zum Beispiel das erhöhte elektrische Rauschen sein sowie der Umstand, dass der eigentliche Messeffekt, die Änderung des Spektrums der akustischen Signale, sehr klein ist.

Es ist jedoch auch ersichtlich, dass die systematischen Abweichungen $(\mu_{\text{mess}} - \mu_{\text{ref}})$ der überarbeiteten Messanordnung anscheinend eine geringe Dichteabhängigkeit zeigen. Da sich die Eigenschaften der Reflektorelemente nicht im großen Maße geändert haben, liegt die Vermutung nahe, dass die

in der überarbeiteten Messanordnung nun geringere Dichteabhängigkeit auf die veränderten Eigenschaften der Schallwandlerfassung zurückzuführen ist. Die Dichte beeinflusst primär Reflexions- und Transmissionseigenschaften akustischer Wellen an Grenzschichten [Ler09]. Daher kommt als Ursache für die erhöhte Dichteabhängigkeit der systematischen Messabweichungen im ursprünglichen Messsystem etwa eine Teiltransmission durch die konusförmige Schallwandlerfassung in Frage, die bei der überarbeiteten, parabolischen Fassung aufgrund der erhöhten Absorption in den additiv gefertigten Bauteilen weniger ausgeprägt ist. Die gemessenen thermoviskosen Verluste bei der überarbeiteten Messanordnung sind kleiner als die Referenzwerte. Dieses Verhalten wird auch bei den simulativen Untersuchungen der Anordnung mit Schallwandlerfassung (Abbildung 5.2) beobachtet und kann darauf hindeuten, dass das abgestrahlte akustische Signal bzw. die Sensitivität des Schallwandlers in Richtung des Reflektors mit 30 mm Abstand trotz Einsatz des Ringelements weiterhin größer ist als in die entgegengesetzte Richtung.

Fazit

Anhand simulativer Untersuchungen wird gezeigt, dass sich bei der Ermittlung der akustischen Absorption mit einer nicht-idealen Messanordnung Abweichungen zeigen (Fragestellung IV). Für alle untersuchten Anordnungen zeigen sich die Zusammenhänge zwischen der Abweichung der gemessenen Absorption von der im Fluid angenommenen Absorption als stetig abhängig von der Dichte und der Schallgeschwindigkeit des untersuchten Fluids (Fragestellung V), jedoch nahezu unabhängig von der Absorption im Fluid selbst. Durch Modifikation der realen Messanordnung, insbesondere in dem Bestreben, das akustische Verhalten des Schallwandlers in beide Richtungen symmetrisch zu gestalten, können die beobachteten Abweichungen im Vergleich zur ursprünglichen Messanordnung deutlich reduziert werden (Fragestellung VI).

Die durch die Schallausbreitung im Messsystem hervorgerufenen systematischen Messabweichungen sollen im Folgenden durch den in Abschnitt 6.2 vorgestellten Ansatz zunächst identifiziert und dann korrigiert werden. Entsprechend ist eine möglichst geringe Abhängigkeit der systematischen Abweichungen von den Parametern des Fluids, wie etwa der Dichte, wünschenswert. Die Beobachtungen in Abbildung 5.16 lassen also darauf schließen, dass eine Korrektur der systematischen Messabweichungen bei der überarbeiteten Messanordnung vereinfacht und robuster durchzuführen ist.

5 Analyse und Weiterentwicklung der Messanordnung

Das Vorgehen zum Aufstellen einer Korrekturvorschrift wird im folgenden Kapitel näher beschrieben.

In diesem Kapitel wird beschrieben, wie systematische Messabweichungen, hervorgerufen durch die Schallausbreitung in der Messanordnung, durch Bezugnahme auf Referenzdaten korrigiert werden können, um schließlich die akustische Absorption und die Volumenviskosität zu ermitteln. Schwerpunktmäßig wird dabei auf die Durchführung der Referenzierung eingegangen, um eine Übertragbarkeit auf andere Messanordnungen zu ermöglichen, die unter Umständen, wie etwa die ursprüngliche Messanordnung zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung, nicht primär zum Zweck der Absorptionsmessung ausgelegt sind. Für dieses Vorgehen muss stets vorausgesetzt werden, dass in den untersuchten Fluiden klassische Absorption nach den in Abschnitt 2.1.3 beschriebenen Zusammenhängen vorherrscht. Es muss also ausgeschlossen werden, dass innere Freiheitsgrade der Moleküle angeregt werden (Strukturrelaxation) und dass signifikante nichtlineare Effekte auftreten. Die Zeitkonstanten der Strukturrelaxation sind für die untersuchten Fluide hinreichend klein (im Bereich einiger Picosekunden [Kor71b; Seh95]), so dass im Frequenzbereich der Messung kein Einfluss zu erwarten ist. Auch die Autoren der in Abschnitt 3.2.3 aufgeführten Experimentaldaten beobachten keine Effekte von Strukturrelaxation, obwohl die eingesetzten Messfrequenzen höher als im hier beschriebenen Messverfahren sind. Eine Auswertung des Absorptionsspektrums nach der in Abschnitt 4.3.2 beschriebenen Methode liefert ebenfalls keine Hinweise auf Strukturrelaxation. Zur Abschätzung nichtlinearer Effekte folgt zunächst eine Betrachtung basierend auf der Auswertung der akustischen Reynolds-Zahl.

6.1 Abschätzung nichtlinearer Effekte

Wie in Abschnitt 2.1.2 beschrieben, stellt die lineare Form der Wellenausbreitung nur eine Näherung der eigentlichen physikalischen Phänomene dar. Im Kontext der Herleitung der Wellengleichung wird nach dem Ansatz von Rudenko argumentiert, dass die Wechselgrößen gerade so klein sein müssen, dass deren Quadrat vernachlässigbar klein wird [Rud77]. Wie klein diese Größen im physikalischen Messsystem tatsächlich sein müssen, um eine lineare Schallausbreitung zu gewährleisten, bzw. ob die entstehenden Wechselgrößen klein genug sind, soll in diesem Abschnitt untersucht werden. Grundlage für diese Betrachtung bildet die akustische Reynolds-Zahl $N_{\rm Re}$, die die Einflüsse linearer Absorption mit denen nichtlinearer Effekte ins Verhältnis setzt [Rud77].

$$N_{\rm Re} = \frac{vc\rho_0}{\mu\omega}.\tag{6.1}$$

Neben der Schallgeschwindigkeit c, der Dichte ρ_0 und den thermoviskosen Verlusten μ des Fluids sowie der Kreisfrequenz der akustischen Welle ω geht hier auch die Amplitude der Wechselschnelle v ein. Für $N_{\text{Re}} \gg 1$ zeigt die Wellenausbreitung prädominant nichtlineare Eigenschaften, während für $N_{\text{Re}} \ll 1$ die lineare Absorption das Verhalten der akustischen Welle bestimmt [Rud77]. Für die Anwendungen bedeutet das, dass die Schallausbreitung tendenziell linearer wird, wenn die linearen, thermoviskosen Verluste μ hoch sind. Daraus ergibt sich eine untere Grenze für μ , die für die Bedingung $N_{\text{Re}} \ll 1$ nicht unterschritten werden darf:

$$\mu \gg \frac{vc\rho_0}{\omega} = \frac{vZ}{\omega}.$$
(6.2)

In Gleichung 6.1 und Gleichung 6.2 kann das Produkt aus Schallgeschwindigkeit c und Dichte ρ_0 auch durch die spezifische akustische Impedanz $Z = c\rho_0$ des Ausbreitungsmediums ersetzt werden.

Während die Größen c und ρ_0 für die untersuchten Fluide gegeben und bekannt sind, für ω die Mittenfrequenz der gesendeten Signale eingesetzt wird und μ nach unten abgeschätzt werden kann, lässt sich die Amplitude der Wechselschnelle nicht trivial bestimmen. In einem typischen akustischen Messsystem kann davon ausgegangen werden, dass die maximale Schallschnelle an der aktiven Fläche des verwendeten Schallwandlers auftritt. Entsprechend kann die Amplitude der Wechselschnelle v näherungsweise als die Wechselschnelle der aktiven Fläche des Schallwandlers angenommen werden. Diese lässt sich zwar zum Beispiel durch Laser-Vibrometrie bestimmen, jedoch muss die Fläche während der Messung mit dem Zielmedium belastet sein. Weiterhin muss das Zielmedium hierfür optisch transparent und die aktive Fläche zugänglich sein. Als alternativer Ansatz wird an dieser Stelle ein Verfahren vorgestellt, in dem der verwendete Schallwandler auf Basis einer Messung der elektrischen Impedanz durch ein Mason-Modell [Mas35] abgebildet wird. Dieses ermöglicht dann eine Abschätzung der Schallschnelle für ein gegebenes elektrisches Sendesignal [Cla20b].

Bei dem Mason-Modell handelt es sich um eine vereinfachte Beschreibung für einen piezoelektrischen Schallwandler, welche auf Basis einer eindimensionalen Betrachtung hergeleitet wird. Es resultiert eine Modellierung des Schallwandlers als Dreitor mit einem elektrischen Tor (mit Spannung uund Strom i) und zwei mechanischen Toren (mit Kraft F_i und Schnelle v_i), die die beiden Oberflächen des Schallwandlers repräsentieren. Dieses Dreitor wird mathematisch durch eine 3×3 -Matrix beschrieben:

$$\begin{bmatrix} F_1 \\ F_2 \\ u \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Z_{\rm m} \coth\left({\rm j}d\cdot\omega/c\right) & Z_{\rm m} \operatorname{csch}\left({\rm j}d\cdot\omega/c\right) & h_{33}/({\rm j}\omega) \\ Z_{\rm m} \operatorname{csch}\left({\rm j}d\cdot\omega/c\right) & Z_{\rm m} \coth\left({\rm j}d\cdot\omega/c\right) & h_{33}/({\rm j}\omega) \\ h_{33}/({\rm j}\omega) & h_{33}/({\rm j}\omega) & 1/({\rm j}\omega C_0) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} v_1 \\ v_2 \\ i \end{bmatrix}$$
(6.3)

mit den Parametern

$$Z_{\rm m} = Z_{\rm piezo} A \tag{6.4}$$

$$h_{33} = c_V \frac{k_{33}^2 \rho_0}{\varepsilon_{33}} \tag{6.5}$$

$$C_0 = \frac{\varepsilon_{33}A}{d}.\tag{6.6}$$

Die mechanische Impedanz des Schallwandlers $Z_{\rm m}$ wird durch die spezifische akustische Impedanz des Schallwandlermaterials $Z_{\rm piezo}$ und die Fläche des Schallwandlers A bestimmt. Als weitere Parameter des Materials des Schallwandlers gehen die Schallgeschwindigkeit c, die Dichte ρ_0 , der elektromechanische Kopplungsfaktor k_{33} und die Permittivität ε_{33} in Dickenrichtung ein. Zur Bestimmung der statischen Kapazität C_0 wird außerdem die Dicke des Schallwandlers d herangezogen [Mas35; Ler09].

Für die in dieser Arbeit behandelte Anordnung kann davon ausgegangen werden, dass der Schallwandler auf beiden Seiten mit dem zu untersuchenden Medium in Kontakt ist. Entsprechend werden die beiden mechanischen Tore des Modells durch die mechanische Impedanz $Z_{m,i}$ des Zielfluids



Abbildung 6.1: Dreitor-Modell für einen piezoelektrischen Schallwandler mit Belastung der mechanischen Tore durch die mechanische Impedanz des Zielfluids.

abgeschlossen (Abbildung 6.1):

$$F_i = -v_i Z_{\mathrm{m},i} = -v_i Z A. \tag{6.7}$$

Durch diese Nebenbedingung kann nun ein analytischer Ausdruck für die elektrische Impedanz $Z_{\rm el,m} = u/i$ aus Gleichung 6.3 bestimmt werden. Dieser ermöglicht einen Vergleich mit der gemessenen Impedanz $Z_{\rm el,mess}$ eines realen Schallwandlers und somit eine Identifikation des Modells im inversen Verfahren.

Der Radius des Schallwandlers ist mit 7,5 mm bereits vorgegeben. Die Materialparameter von kristallinem Quarz sind hinlänglich bekannt [Hey08], so dass für die Schallgeschwindigkeit in Dickenrichtung 5750 m s⁻¹ angenommen werden kann. Weiterhin kann die Dichte ρ_0 des Materials gravimetrisch ermittelt werden. Das Ergebnis dieser Messung entspricht den Literaturangaben von 5739 kg m⁻³ im Rahmen der Unsicherheit des Messverfahrens. Im inversen Verfahren identifiziert werden müssen also nur noch die Dicke des Schallwandlers d, der piezoelektrische Kopplungsfaktor k_{33} und die Permittivität ε_{33} . Als Kostenfunktion wird dafür die Differenz der Beträge der frequenzabhängigen Impedanz von modellierter und gemessener Impedanz verglichen [Fel19; Fel20]. Zur Steigerung der Robustheit werden die Kosten mit einer Arkustangens-Funktion gewichtet, die dann im Verfahren der kleinen Abweichungsquadrate minimiert werden:

$$J(c, k_{33}, \varepsilon_{33}) = \sum_{\omega} \left(\arctan\left(Z_{\text{el}, \text{mess}, \omega} - Z_{\text{el}, \text{m}, \omega}(d, k_{33}, \varepsilon_{33}) \right) \right)^2.$$
(6.8)

Die Kosten J werden mit Hilfe des Trust Region Reflective-Algorithmus [Bra99] minimiert. Das Optimierungsverfahren liefert die Werte $d = 0.358 \text{ mm}, k_{33} = 0.09 \text{ und } \varepsilon_{33} = 1.86 \cdot 10^{-11} \text{ A s V}^{-1} \text{ m}^{-1}$ und eine gute



Abbildung 6.2: Betrag der elektrischen Impedanz des realen Schallwandlers sowie des identifizierten Mason-Modells.

Übereinstimmung zwischen Messung und Modell (Abbildung 6.2). Größere Abweichungen zeigen sich primär im Bereich der Resonanz- und Antiresonanzfrequenz. Da es sich bei kristallinem Quarz um ein Material mit hoher Güte handelt, entsprechen stark ausgeprägte Resonanzstellen den Erwartungen. Ein Grund für die verbleibenden Abweichungen kann eine nicht-ideale Messung der elektrischen Impedanz bei hohen bzw. niedrigen Betragsimpedanzen sein.

Basierend auf dem identifizierten Mason-Modell für den Schallwandler kann nun das elektromechanische Verhalten des Schallwandler mathematisch beschrieben werden. So kann zum Beispiel der Frequenzgang des Schallwandlers für eine Spannung als Eingangssignal und die Schnelle als Ausgangssignal bestimmt werden:

$$\frac{v_i}{u} = \left(\frac{ZA}{C_0 h_{33}} - \frac{Z_{\rm m}}{C_0 h_{33}} \left(\coth\left(j\omega \cdot d/c\right) + \operatorname{csch}\left(j\omega \cdot d/c\right)\right) - \frac{2h_{33}}{j\omega}\right)^{-1}.$$
 (6.9)

Dieser Ausdruck kann verwendet werden, um für eine gegebene, an dem Schallwandler anliegende Spannung im Frequenzbereich die resultierende Schnelle der aktiven Flächen zu bestimmen. Da das Messsystem für



Abbildung 6.3: Minimale thermoviskose Verluste μ für lineare Schallausbreitung in Abhängigkeit der spezifischen akustischen Impedanz des Mediums.

eine Vielzahl an Medien mit unterschiedlichen spezifischen akustischen Impedanzen Z eingesetzt werden soll, wird die resultierende Schnelle v der Schallwandleroberfläche für einen Betrieb bei 8 MHz mit einer Spannung u = 12 V in Abhängigkeit von Z bestimmt. Einsetzen in Gleichung 6.2 liefert dann einen minimalen Wert für die thermoviskosen Verluste μ . Oberhalb dieses Werts kann die Schallausbreitung als linear angenommen werden. Wie Abbildung 6.3 zeigt, entspricht dieser Wert für den betrachteten Bereich der spezifischen akustischen Impedanz des Zielmediums Z in guter Näherung einer Konstanten. Wird ein anderes Schallwandlermaterial, zum Beispiel Blei-Zirkonat-Titanat (PZT), eingesetzt, zeigt der Grenzwert eine deutliche Abhängigkeit von Z [Cla20b].

Um zu zeigen, dass im Messsystem lineare Schallausbreitung vorliegt, werden die Materialparameter einiger in dieser Arbeit untersuchter Fluide in Abbildung 6.3 ebenfalls dargestellt. Die Werte werden bei 293 K und 100 kPa ermittelt [Lem13], wobei die Volumenviskosität den in Abschnitt 6.2.1 beschriebenen Modellen entnommen wird. Für die weiteren Untersuchungen wird für die Fluide in jedem Zustand überprüft, ob die in Abbildung 6.3 dargestellte untere Grenze für die thermoviskosen Verluste nicht unterschritten wird. Es kann davon ausgegangen werden, dass sich die dargestellten Fluidparameter durch Temperatur- und Druckänderung nicht im Bereich mehrerer Größenordnungen ändern. Die thermoviskosen Verluste in den untersuchten Fluiden erfüllen also die durch Gleichung 6.2 gegebene Bedingung und sind dabei mehr als eine Größenordnung größer als für die Annahme linearer Schallausbreitung notwendig wäre.

6.2 Referenzdatenbasierte Messung

Wie in Abschnitt 5.2.4 beschrieben, können die durch die Schallausbreitung in der Messanordnung hervorgerufenen systematischen Messabweichungen durch einen Vergleich mit Referenzmessungen korrigiert werden. Dazu muss eine Abbildungsvorschrift bestimmt werden, welche den Zusammenhang zwischen gemessenen thermoviskosen Verlusten $\mu_{\rm mess}$ und den thermoviskosen Verlusten im Fluid μ beschreibt. Die Simulationsergebnisse in Abschnitt 5.1 zeigen, dass zusätzliche Parameter des Fluids (Dichte ρ_0 und Schallgeschwindigkeit c) als Parameter in diese Abbildungsvorschrift eingehen müssen. Die Berücksichtigung weiterer Parameter des Fluids, die das akustische Verhalten nur indirekt beeinflussen, wie etwa der Temperatur, wird im Rahmen einer studentischen Arbeit [Hül19] untersucht, führt aber auf keine Verbesserung der Abbildungsvorschrift. Entsprechend kann davon ausgegangen werden, dass das akustische Verhalten des Fluids im Messsystem auf die Parameter Dichte ρ_0 , Schallgeschwindigkeit c und Verluste μ abstrahiert werden kann [Cla19a]. Im Folgenden wird darauf basierend eine Vorschrift zur Referenzierung für unterschiedliche Messreihen beschrieben. Dabei wird zunächst auch die Realisierung des Messverfahrens mit der unveränderten Messanordnung (Abschnitt 3.3) untersucht, da dieser Aufbau als etabliertes Messsystem für die Schallgeschwindigkeit gilt, von dem Varianten an unterschiedlichen Standorten existieren [Kor85; Ben05; Mei06; Dub14; Weg15; Hab18; Jav19]. Wenn gezeigt werden kann, dass auch mit der unveränderten Messanordnung eine Bestimmung der akustischen Absorption bzw. der thermoviskosen Verluste möglich ist, ließe sich das Messverfahren auch an anderen Standorten, ohne Modifikation des eigentlichen Messsystems, realisieren. Vorausgesetzt wird allerdings, dass die akustischen Eigenschaften der Messanordnung selbst zeitinvariant sind. Dies ist zum Beispiel nicht mehr der Fall, wenn die Messanordnung reinigungsbedingt zerlegt werden muss. Entsprechend muss die Referenzierung des Messsystems nach einer Reinigung erneut durchgeführt werden, da sich die Eigenschaften der Messanordnung (hier Status bzw. Messrei-

he A und B genannt) geändert haben. Der Fokus in diesem Abschnitt liegt dabei primär auf der Methodik, wie anhand gegebener Referenzmessungen zuverlässig eine physikalisch sinnvolle Referenzierungsvorschrift und die resultierende Messunsicherheit für eine vorliegende Messanordnung ermittelt werden können. Ein Grund für dieses Vorgehen ist auch, dass die Anzahl der verfügbaren Referenzdaten (siehe Abschnitt 3.2.3) begrenzt ist, aber in Zukunft, zum Beispiel durch synthetische Daten aus Molekulardynamik-Simulationen [Cha20b] (siehe Abschnitt 6.4), erweitert werden kann.

6.2.1 Interpolation der Referenzdaten für die Volumenviskosität

In einem realen Messsystem kann nicht davon ausgegangen werden, dass ein thermodynamischer Zustand, für den Referenzdaten für die Volumenviskosität vorliegen, exakt eingestellt werden kann. Daher werden, ausgehend von den gesammelten Literaturdaten (Abschnitt 3.2.3) für die Fluide Wasser, Methanol, Toluol und n-Hexan, Modelle für die Volumenviskosität entwickelt. Diese Modelle haben nicht den Anspruch, für große Bereiche des thermodynamischen Zustandsraums gültig zu sein, sondern nur in unmittelbarer Nähe der durch die Literaturdaten gebildeten Stützstellen. Als mathematischer Ansatz wird dabei ein deutlich vereinfachter Zusammenhang gewählt, der auch zur Modellierung der Scherviskosität Verwendung findet [Hub09]:

$$\mu_{\rm v} = \mu_{\rm v,0} \cdot \exp\left(\rho_{\rm norm} \sum_{i} \sum_{j} a_{ij} \left(\frac{1}{T_{\rm norm}} - 1\right)^{i} (\rho_{\rm norm} - 1)^{j}\right).$$
(6.10)

In diesem Ausdruck werden Temperatur T_0 und Dichte ρ_0 auf die Temperatur $T_{\rm krit}$ und die Dichte $\rho_{\rm krit}$ im kritischen Punkt des jeweiligen Fluids normiert [Hub09]:

$$T_{\rm norm} = \frac{T_0}{T_{\rm krit}}$$
 und $\rho_{\rm norm} = \frac{\rho_0}{\rho_{\rm krit}}.$ (6.11)

Mit Hilfe des Levenberg-Marquardt-Algorithmus [Lev44; Mar63] werden für das jeweilige Fluid die Parameter $\mu_{v,0}$ und a_{ij} von Gleichung 6.10 identifiziert. Messdatensätze auf Basis von Brillouin-Streuung (Abschnitt 3.2.2) werden aufgrund der erwarteten geringeren systematischen Abweichungen bei der Identifikation des Modells mit einem Faktor 4 stärker ge-

	$\mu_{\mathrm{v},0}$	a_{00}	a_{01}	a_{10}	a_{11}	a_{20}
Wasser	3,166	-0,7465	0,3929	-0,7307	-0,3534	1,141
Methanol	$1,936 \cdot 10^{-1}$	-0,3753	-0,00431	0,7139	$0,\!1978$	0,329
n-Hexan	$7,213 \cdot 10^{-3}$	1,965	-0,02165	0	0	0
Toluol	$1,213 \cdot 10^{-1}$	$0,\!9805$	$0,\!609$	-0,5114	-0,443	$0,\!6009$
Einheit	${ m mPas}$	1	1	1	1	1

Tabelle 6.1: Parameter der Modelle für die Volumenviskosität (Gleichung 6.10) im Bereich der Referenzmessungen.

wichtet. Die von Null verschiedenen Parameter a_{ij} werden so gewählt, dass die Temperatur- und Dichteabhängigkeit in den Referenzdaten (Abschnitt 3.2.3) von dem Modell gut abgebildet werden kann. Die Wurzel der mittleren quadratischen Abweichungen (RMSD) der identifizierten Modellgleichungen von den Referenzdaten beträgt 1,05 mPa s für Wasser, 0,115 mPa s für Methanol, 0,087 mPa s für n-Hexan und 0,133 mPa s für Toluol. Die verhältnismäßig große Abweichung für Wasser liegt in dem Umstand begründet, dass die Datenbasis mehr Streuung aufweist (siehe Abbildung 3.1).

Die Parameter der resultierenden Modelle für die Volumenviskosität im Bereich der Referenzmessungen sind in Tabelle 6.1 zusammengefasst. Alle nicht aufgeführten Parameter a_{ij} werden gleich Null gesetzt. Außerdem werden alle temperaturabhängigen Terme für n-Hexan zu Null gesetzt, da nur ein Referenzdatensatz bei konstanter Temperatur existiert (siehe Abbildung 3.3 a). Es sei darauf hingewiesen, dass die identifizierten Parameter keine direkte physikalische Repräsentanz haben und nur zur Interpolation der vorhandenen Referenzdaten dienen.

6.2.2 Messung mit der unveränderten Messanordnung

Wie zu Beginn von Abschnitt 6.2 beschrieben, soll zunächst gezeigt werden, wie das Messverfahren mit der unveränderten Messanordnung realisiert werden kann.

Aufstellung einer fluidunabhängigen Referenzierungsvorschrift

Ziel des Ansatzes zur Bestimmung der akustischen Absorption und der Volumenviskosität über die Verwendung von Referenzdaten ist die Untersuchung von Fluiden, für die bisher keine Messdaten für die genannten Größen vorliegen. Es wird, wie in Kapitel 4 abschließend festgelegt, die Aus-

wertung der gewöhnlichen Momente zur Verarbeitung der Empfangssignale ausgewählt. So werden etwaige Einflüsse, die zum Beispiel ein temperaturabhängiger Frequenzgang des Schallwandlers auf das Messergebnis haben kann, bereits eliminiert.

Als Grundlage für die Aufstellung eines mathematischen Ausdrucks für die Korrektur der systematischen Messabweichungen werden die Simulationsergebnisse in Abschnitt 5.1 näher betrachtet. Insbesondere in Abbildung 5.1 zeigt sich, dass sich für die in der Simulation vorgegebenen thermoviskosen Verluste μ nahezu parallele Flächen im durch Schallgeschwindigkeit c, Dichte ρ und gemessene Verluste μ_{mess} aufgespannten Raum ergeben. Der Abstand dieser Flächen in Richtung μ_{mess} entspricht dabei etwa dem Unterschied in den in der Simulation angenommenen thermoviskosen Verlusten μ . Es liegt daher die Annahme nahe, dass sich die gemessenen Verluste μ_{mess} als eine additive Überlagerung aus den thermoviskosen Verlusten im Fluid und einem dichte- und schallgeschwindigkeitsabhängigen Term beschreiben lassen. Zur Bestimmung der thermoviskosen Verluste im Fluid kann also von den gemessenen Verlusten μ_{mess} ein schallgeschwindigkeits- und dichteabhängiger Term $f(c, \rho_0)$ subtrahiert werden:

$$\mu = \mu_{\text{mess}} - f(c, \rho_0). \tag{6.12}$$

Wie schon in Abschnitt 5.1 beschrieben, zeigen sich leichte Abweichungen von dieser Annahme; der Abstand der Flächen ist bei genauerer Betrachtung etwas größer als der Unterschied der thermoviskosen Verluste μ im Fluid. Zur Berücksichtigung dieser Beobachtung lässt sich ein Korrekturfaktor b_{μ} einführen:

$$\mu = b_{\mu}\mu_{\text{mess}} - f(c, \rho_0). \tag{6.13}$$

Dieser Faktor ist vom Aufbau abhängig. Für physikalisch sinnvolle Referenzierungsvorschriften zeigen die Simulationen, dass b_{μ} möglichst groß, jedoch kleiner als 1, sein muss. Für den schallgeschwindigkeits- und dichteabhängigen Term $f(c, \rho_0)$ wird zunächst ein allgemeiner polynomialer Ausdruck $P(c, \rho_0)$ angenommen:

$$\mu = b_{\mu}\mu_{\text{mess}} - P(c, \rho_0). \tag{6.14}$$

Der Ansatz der rechnerischen Korrektur der systematischen Messabweichungen setzt voraus, dass das Messsystem zwischen allen Messungen für unterschiedliche Fluide als zeitinvariant angenommen werden kann. Die Voraussetzung, dass jeweils hochreine Fluide untersucht werden sollen, bedingt jedoch, dass die Messanordnung in regelmäßigen Abständen

Tabelle 6.2:	Ubersicht über die zur Identifikation der Korrekturfunktion
	für die systematischen Messabweichungen verwendeten Stütz-
	stellen.

	Anzahl Stützstellen	Status der Messanordnung
Wasser	34	А
Methanol	13	А
Methanol	12	В
n-Hexan	11	В
Toluol	10	В

zur Reinigung zerlegt werden muss. Entsprechend muss daraufhin die Referenzierungsvorschrift neu aufgestellt werden; es müssen also erneut Referenzmessungen durchgeführt werden. Es ist also wünschenswert, dass die Referenzierungsvorschrift anhand einer kleinen Anzahl von Messungen identifiziert werden kann. Entsprechend soll die Anzahl N_{b_i} der Koeffizienten von $P(c, \rho_0)$ möglichst gering sein. Im Folgenden wird das Vorgehen beschrieben, mit dem gleichzeitig festgelegt wird, welche polynomiale Abhängigkeit von der Schallgeschwindigkeit c und der Dichte ρ_0 angenommen werden soll, und wie groß die Koeffizienten jeweils sind.

Voraussetzung für dieses Vorgehen ist, dass Messungen an Fluiden, für die Referenzdaten vorliegen, durchgeführt werden, wobei der thermodynamische Zustand der Fluide im Idealfall dem der Referenzmessungen entspricht. In diesen Zuständen sind dann die erwarteten thermoviskosen Verluste μ aus Scherviskosität, Volumenviskosität, den spezifischen Wärmekapazitäten sowie der Wärmeleitfähigkeit zu bestimmen (Gleichung 2.24). Während die Volumenviskosität den in Abschnitt 6.2.1 ermittelten Modellen entnommen wird, werden die anderen Fluidkenngrößen den in der Referenzdatenbank REFPROP [Lem13] hinterlegten Zustandsgleichungen entnommen. Dazu werden für die Fluide Wasser, Methanol, Toluol und n-Hexan Messungen durchgeführt, bei denen die Fluide nahezu identische thermodynamische Zustände wie die Referenzmessungen haben. Dabei werden explizit auch Messungen mit ausgewertet, die im Zustandsraum zwischen zwei Referenzmessungen liegen. Eine Übersicht der Anzahl der vorliegenden Stützpunkte pro Fluid ist in Tabelle 6.2 gegeben, wobei die Messanordnung für die Messreihe A (Wasser und Methanol) reinigungsbedingt in einem anderen Status vorliegt, als für die Messreihe B (Methanol, Toluol und n-Hexan).

Das Vorgehen zur Identifikation der Vorschrift zur Korrektur der systematischen Messabweichungen soll nun zunächst an der Messanordnung



Abbildung 6.4: Identifizierter Wert des Koeffizienten b_{μ} über die RMSD E_{μ} unterschiedlicher Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ mit unterschiedlichen Anzahlen an Koeffizienten N_{b_i} .

im Status A, also mit Wasser und Methanol als Referenzmedien, erläutert werden. Es wird zunächst vorgegeben, dass $P(c, \rho_0)$ nicht mehr als fünf von Null verschiedene Koeffizienten haben soll, und dass der maximale Grad des Polynoms drei sein soll. Entsprechend ergeben sich mit b_{μ} zusammen bis zu sechs zu identifizierende Koeffizienten. Der aktuelle Stand der Rechentechnik ermöglicht es, für jede mögliche Permutation mit bis zu fünf von Null verschiedenen Koeffizienten in $P(c, \rho_0)$ die Identifikation von b_{μ} und b_i mit der Methode der kleinsten Abweichungsquadrate durchzuführen. Als Maß dafür, wie gut die jeweilige Variante von $P(c, \rho_0)$ das Verhalten der Messanordnung beschreibt, wird zum einen die Wurzel der mittleren quadratischen Abweichungen (RMSD) E_{μ} zu den Referenzdaten herangezogen. Zum anderen wird der für die jeweilige Variante des Polynoms identifizierte Wert von b_{μ} betrachtet. Wie zuvor beschrieben, muss dieser Koeffizient für eine physikalisch sinnvolle Referenzierungsvorschrift möglichst groß, aber kleiner als 1 sein. Um die Auswahl einer Variante des Polynoms zu ermöglichen, wird die RMSD E_{μ} des identifizierten Polynoms gegenüber dem identifizierten Wert für b_{μ} aufgetragen. Es wird dann eine Variante

ausgewählt, für die E_{μ} klein ist und b_{μ} groß ist. Abbildung 6.4 zeigt die resultierende Verteilung für die Messanordnung im Status A bzw. für die Referenzierung mit Wasser und Methanol.

Deutlich ersichtlich ist zunächst, dass E_{μ} erwartungsgemäß tendenziell kleiner wird, wenn die Anzahl ${\cal N}_{b_i}$ der Koeffizienten im angesetzten Polynom steigt. Mit $N_{b_i} = 5$ kann so je nach Ansatz eine sehr kleine RMSD erzielt werden, jedoch ist bei diesen Ansätzen der Wert des Koeffizienten b_{μ} ebenfalls klein. Entsprechend scheinen diese Ansätze nicht nur physikalisch unplausibel, sie würden für die Realisierung einer Messung auch bedeuten, dass das Ergebnis der korrigierten Messung nahezu unabhängig von den eigentlich gemessenen Verlusten μ_{mess} ist. Es tritt also für diese Ansätze Überanpassung (engl.: *overfitting*) auf. Weiterhin zeigen sich Ansätze, für die b_{μ} ebenfalls klein, die RMSD jedoch groß ist. Hierbei tritt Unteranpassung (engl.: *underfitting*) auf, die vor allem auf die zu geringe Anzahl an Koeffizienten bzw. auf inadäquate Vorfaktoren zurückzuführen ist. Zwischen diesen Bereichen, bei $E_{\mu} \approx 0.2 \,\mathrm{mPa}\,\mathrm{s}$, treten die Ansätze auf, für die b_{μ} große und damit physikalisch sinnvolle Werte zeigt. Im Idealfall würden sich Varianten von $P(c, \rho_0)$ zeigen, für die b_{μ} nahezu 1 und die RMSD E_{μ} nahezu 0 ist.

Eine vergrößerte Darstellung (Abbildung 6.5) zeigt mögliche Kandidaten für die Referenzierungsvorschrift. Wie sich herausstellt, liefern bereits Ansätze mit vier Koeffizienten (fünf inklusive b_{μ}) geeignete, physikalisch sinnvolle Ansätze. Es zeigt sich, dass Ansätze, die sowohl einen großen Koeffizienten b_{μ} aufweisen, als auch hinreichend kleine mittlere quadratische Abweichungen liefern, stets die Vorfaktoren $c\rho_0^2$ und $c\rho_0$ sowie c enthalten. $c\rho_0$ entspricht dabei gerade der spezifischen akustischen Impedanz des Fluids, welche maßgeblich für die Ausprägung von Reflexionsund Transmissionseffekten an Grenzflächen zu anderen Medien ist [Ler09]. Weiterhin tritt die Schallgeschwindigkeit c in linearer Form in allen Ausdrücken auf, welche über die Wellenlänge implizit das Auftreten von Beugungseffekten bzw. die Abstrahlcharakteristik des Schallwandlers bestimmt (Abschnitt 2.2). Die näher betrachteten Ansätze mit vier Koeffizienten unterscheiden sich in dem verbleibenden Vorfaktor, der entweder 1 ist (a), die Dichte ρ_0 (c), oder die Schallgeschwindigkeit in quadratischer Form c^2 (d). Ansatz b weist ähnliche Eigenschaften auf wie Ansatz d, wird jedoch in Anbetracht der Tatsache, dass er einen zusätzlichen Koeffizienten benötigt, ohne nennenswerte Verbesserungen zu erzielen, nicht weiter betrachtet. Aus den Simulationsergebnissen in Abschnitt 5.1 lässt sich schließen, dass die zu korrigierenden Abweichungen zwischen gemessenen Verlusten $\mu_{\rm mess}$ und thermoviskosen Verlusten im Fluid μ eine starke,



Abbildung 6.5: Vergrößerte Ansicht der Darstellung des identifizierten Werts des Koeffizienten b_{μ} über die RMSD E_{μ} unterschiedlicher Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ mit der expliziten Realisierung von vier Kandidaten für $P(c, \rho_0)$. Farblegende wie in Abbildung 6.4.

nicht-lineare Schallgeschwindigkeitsabhängigkeit zeigen. Entsprechend wird von den in Abbildung 6.5 näher untersuchten Ansätzen die Variante d gewählt, da hier die Schallgeschwindigkeit quadratisch eingeht. Weiterhin konvergiert Ansatz d für kleine Schallgeschwindigkeiten gegen Null, was gerade auch den in Abschnitt 5.1 gemachten Beobachtungen bei der Auswertung von synthetischen Signalen entspricht. Die vollständige Vorschrift zur Bestimmung der thermoviskosen Verluste im Fluid lautet damit:

$$\mu = b_{\mu}\mu_{\text{mess}} - (b_1 \cdot c\rho_0^2 + b_2 \cdot c\rho_0 + b_3 \cdot c^2 + b_4 \cdot c). \tag{6.15}$$

Die identifizierten Werte der Koeffizienten b_i für die Messanordnung im Status A sind in Tabelle 6.3 aufgeführt.

Da es sich bei der Referenzierungsvorschrift um eine Abbildung auf einen dreidimensionalen Raum handelt, gestaltet sich eine anschauliche Darstellung des Verlaufs anspruchsvoll. Es wird hier eine Darstellung analog zu den Abbildungen 5.1 und 5.2 gewählt, indem der erwartete Messwert

Tabelle 6.3: Werte der Koeffizienten der Referenzierungsvorschrift (Gleichung 6.15) sowie deren Einheiten für die Messanordnung im Status A.

b_{μ}	b_1	b_2	b_3	b_4
$0,\!5504$	$2,7240 \cdot 10^{-11}$	$-7,\!1802\cdot 10^{-8}$	$7,\!8700\cdot 10^{-9}$	$3,\!2170\cdot 10^{-5}$
1	${ m Pas^2m^6kg^{-2}m^{-1}}$	${ m Pas^2m^3kg^{-1}m^{-1}}$	${ m Pas^3m^{-2}}$	$\mathrm{Pa}\mathrm{s}^2\mathrm{m}^{-1}$



Abbildung 6.6: Darstellung der identifizierten Vorschrift zur Korrektur der systematischen Messabweichungen (Status A) in Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit und der Dichte.

für die thermoviskosen Verluste μ_{mess} bei vorgegebenen Fluidparametern c, ρ_0 und μ aufgetragen wird. Dies ermöglicht einen direkten Vergleich mit den Ergebnissen der simulativen Voruntersuchungen, bedingt aber, dass Gleichung 6.15 zunächst nach $\mu_{\rm mess}$ umgestellt wird. Die identifizierten systematischen Messabweichungen des Systems in Status A zeigen bezüglich ihrer Schallgeschwindigkeitsabhängigkeit mehr Ähnlichkeit mit dem Simulationsmodell ohne Schallwandlerfassung (Abbildung 5.1), da große Schallgeschwindigkeiten zu einer positiven Abweichung führen. Dies spricht dafür, dass der Einfluss der teilweisen Abschattung des Schallwandlers durch die Schallwandlerfassung nicht so groß ist, wie die Ergebnisse der Simulationen in Abbildung 5.2 vermuten lassen. Ursächlich für diese Diskrepanz kann der Umstand sein, dass in der Simulation von einem Kolbenschwinger-ähnlichen Verhalten (siehe Abschnitt 2.2) ausgegangen wird. Beim realen Schallwandler wird die Auslenkung der Oberfläche tendenziell zum Rand hin geringer sein [Guo89], wodurch die Abschattung durch die Schallwandlerfassung einen geringeren Einfluss hat. Der verbleibende Einfluss der Schallwandlerfassung wird nur bei hohen Dichten und geringen Schallgeschwindigkeiten sichtbar: Hier zeigen sich, insbesondere für $\mu = 0$ mPas, ähnlich zur Simulation mit Schallwandlerfassung, negative gemessene thermoviskose Verluste. Auffällig im Vergleich zu den Substitutionsergebnissen ist die verhältnismäßig große Dichteabhängigkeit der gemessenen thermoviskosen Verluste. Ursächlich hierfür können weitere in der Simulation nicht berücksichtigte Effekte sein. In Frage kommen hier zum Beispiel eine veränderte Beugung der akustischen Wellen durch Teiltransmission in die Schallwandlerfassung oder die in der Simulation zu Gunsten einer verkürzten Ausführungszeit (siehe Anhang B) vernachlässigte Ausbreitung von Transversalwellen in den konstruktiven Elementen der Messanordnung. Weiterhin unberücksichtigt bleiben in der Simulation die Effekte von nicht-ideal parallel ausgerichteten Reflektoren sowie eventuell vorhandene Unebenheiten in den Reflektoroberflächen. Trotz dieser Vereinfachungen liegt die identifizierte Referenzierungsvorschrift bezüglich ihrer Eigenschaften zwischen den simulativ betrachteten Extremfällen und entspricht somit gerade dem erwarteten Verlauf.

Für die Messanordnung in Status B werden Methanol, Toluol und n-Hexan als Referenzmedien verwendet (siehe Tabelle 6.2). Das analoge Vorgehen, also die Auswahl eines Ansatzes für die Referenzierungsvorschrift, bei der b_{μ} möglichst groß ist und gleichzeitig die RMSD sowie die Anzahl der Koeffizienten hinreichend klein, liefert für diesen Status ebenfalls einen Tabelle 6.4: Werte der Koeffizienten der Referenzierungsvorschrift (Gleichung 6.16) sowie deren Einheiten für die Messanordnung in Status B.

b_{μ}	b_1	b_2	b_3	b_4
0,8804	$6,2618\cdot 10^{-11}$	$2,\!6460\cdot 10^{-11}$	$-1,020\cdot 10^{-7}$	$3,\!8335\cdot 10^{-5}$
1	${ m Pasm^9kg^{-3}}$	${ m Pas^2m^6kg^{-2}m^{-1}}$	${ m Pas^2m^3kg^{-1}m^{-1}}$	$\mathrm{Pa}\mathrm{s}^{2}\mathrm{m}^{-1}$

Zusammenhang mit vier weiteren Koeffizienten:

$$\mu = b_{\mu}\mu_{\text{mess}} - (b_1 \cdot \rho_0^3 + b_2 \cdot c^2 \rho_0 + b_3 \cdot c \rho_0 + b_4 \cdot c), \qquad (6.16)$$

wobei für diesen Ausdruck die RMSD E_{μ} mit 0,338 mPa s, möglicherweise aufgrund der ohnehin größeren thermoviskosen Verluste zweier Referenzmedien, größer ausfällt. Diese ließe sich zwar verringern, jedoch nur auf Kosten einer Verringerung von b_{μ} , also durch Überanpassung. Im Vergleich zur Referenzierungsvorschrift für die Messanordnung in Status A tritt hier anstelle der quadrierten Schallgeschwindigkeit die dritte Potenz der Dichte auf. Als mögliche Ursache für dieses Verhalten sei der Umstand genannt, dass die Referenzierung hier mit drei Fluiden durchgeführt wird, die sich in ihren Parametern stärker unterscheiden. Tabelle 6.4 enthält die identifizierten Werte für die Koeffizienten b_i .

Messbereich der referenzdatenbasierten Absorptionsmessung

Werden die mit der Referenzierungsvorschrift für die Messanordnung in Status A (Gleichung 6.15) ermittelten Werte für die thermoviskosen Verluste mit den Referenzwerten verglichen, zeigt sich für die beiden Referenzfluide Methanol und Wasser für die jeweiligen Zustände eine gute Übereinstimmung (Abbildung 6.7). Als Referenzmessungen herangezogen werden dabei eine isotherme Messreihe bei etwa 300 K für Methanol sowie eine isobare (Atmosphärendruck) und eine isotherme (ebenfalls 300 K) Messreihe für Wasser. Abbildung 6.7 zeigt weiterhin drei isotherme (220 K, 244 K und 350 K) Messreihen für Methanol, für die keine Referenzdaten vorliegen. Diese Messwerte werden ebenfalls mit der Referenzierungsvorschrift (Gleichung 6.15) ermittelt. Diese ist jedoch nicht beliebig anwendbar. Vielmehr werden durch die Parameter der für die Referenzmessungen eingesetzten Fluide Bedingungen an den Messbereich bezüglich der Schallgeschwindigkeit c und der Dichte ρ_0 gestellt. Es ist ersichtlich, dass die identifizierte Referenzierungsvorschrift ihre Gültigkeit verliert, wenn Schallgeschwindig-



Abbildung 6.7: Ermittelte thermoviskose Verluste für Wasser ([△]) und Methanol ([○]) und im Vergleich mit den Referenzdaten.

keit und Dichte eines potenziellen, bisher nicht untersuchten Fluids zu stark von den Parametern der Referenzfluide abweichen. Um den nutzbaren Messbereich genauer zu beschreiben, kann eine konvexe Hülle [Bar96] um die für die Identifikation der Referenzierungsvorschrift verwendeten Punkte in der Schallgeschwindigkeit-Dichte-Ebene bestimmt werden. In der Darstellung (Abbildung 6.8) zeigt sich die Form dieser konvexen Hülle im Bezug auf weitere vorhandene Messungen an den Referenzfluiden sowie an den bisher noch nicht betrachteten Fluiden 1-Propanol und 2-Propanol. Es zeigt sich zunächst, dass gerade die Messungen an Methanol bei 220 K und 244 K eine höhere Dichte als in den Referenzzuständen (300 K) aufweisen und damit klar innerhalb der konvexen Hülle der Referenzmessungen liegen. Weiterhin innerhalb dieser Hülle liegen einige Messungen an 1-Propanol. Da die Dichte des jeweiligen Fluids bei einigen weiteren Messungen an Methanol sowie an 2-Propanol nur leicht unterhalb des Messbereichs liegt und davon ausgegangen werden kann, dass sich die systematische Messabweichung nicht sprunghaft ändert (Abschnitt 5.1), wird ein Toleranzbereich im direkten Umfeld der berechneten konvexen Hülle angesetzt (maximal 2% relative Abweichung von Schallgeschwindigkeit oder Dichte) und der verfügbare Messbereich somit erweitert. Messdatensätze, die in diesem



Abbildung 6.8: Darstellung des durch die Referenzdaten gegebenen Messbereichs für die Messanordnung in Status A im Schallgeschwindigkeit-Dichte-Raum. Auswertbare (●) und nicht auswertbare (○) Messdatensätze basierend auf dem Messbereich und dem Toleranzbereich (2 % relative Abweichung).

Toleranzbereich liegen, sind in Abbildung 6.8 entsprechend hervorgehoben (innerhalb: \bullet , außerhalb: \circ). Die zuvor beschriebenen zusätzlich ermittelten Messdaten für Methanol (Abbildung 6.7) liegen in diesem Bereich.

Für die Messanordnung in Status B kann die Betrachtung zum Messbereich analog durchgeführt werden. Wie Abbildung 6.9 zeigt, wird die äußere Grenze des Messbereichs durch Messungen der drei Referenzfluide (Methanol, Toluol und n-Hexan) festgelegt. Innerhalb dieses Bereichs liegen neben den Referenzmessungen zwei weitere, isotherme Messreihen an Methanol (273 K und 333 K) sowie eine weitere für Toluol (348 K). Außerdem fällt eine ebenfalls isotherme Messreihe (300 K) für das bisher nicht untersuchte n-Octan in den Messbereich. Auch in Status B wird davon ausgegangen, dass sich die systematische Messabweichung nicht sprunghaft ändert und so Messungen, die leicht außerhalb des Messbereichs in der Schallgeschwindigkeit-Dichte-Ebene liegen, trotzdem ausgewertet werden können.

Die Darstellungen der untersuchten thermodynamischen Zustände der



Abbildung 6.9: Darstellung des durch die Referenzdaten gegebenen Messbereichs für die Messanordnung in Status B im Schallgeschwindigkeit-Dichte-Raum. Auswertbare (•) und nicht auswertbare (•) Messdatensätze basierend auf dem Messbereich und dem Toleranzbereich (2 % relative Abweichung).

verschiedenen Fluide in der Schallgeschwindigkeits-Dichte-Ebene verdeutlichen noch einmal, dass sich trotz unterschiedlicher eingestellter Drücke und Temperaturen teilweise sehr ähnliche akustische Eigenschaften zeigen. Dieser Umstand ist gerade die Grundlage dafür, dass weitere Fluide in bisher nicht untersuchten Zuständen durch Bezugnahme auf vorhandene Messergebnisse analysiert werden können.

Ergebnisse

Für 1-Propanol und 2-Propanol liegen Messungen auf jeweils zwei Isothermen im durch die identifizierte Referenzierungsvorschrift (Gleichung 6.15) bestimmten Messbereich. Die Ergebnisse der Ermittlung der thermoviskosen Verluste μ aus den über die Methode der gewöhnlichen Momente bestimmten gemessenen Verlusten μ_{mess} sind in Abbildung 6.10 dargestellt. Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Messung an Methanol ebenfalls mit verzeichnet. Von den untersuchten Alkoholen zeigt 2-Propanol, unabhängig


Abbildung 6.10: Ermittelte thermoviskose Verluste von Methanol (•), 1-Propanol (•) und 2-Propanol (•) bei zwei Isothermen und variablem Druck sowie Vergleichsdaten (×) für 1-Propanol [Car55].

vom thermodynamischen Zustand, die höchsten thermoviskosen Verluste. Trotz ähnlicher chemischer Eigenschaften liegen die beobachteten thermoviskosen Verluste von 1-Propanol deutlich unter denen von 2-Propanol, jedoch erwartungsgemäß [Car55] auch deutlich über denen von Methanol. Entsprechend den Erwartungen (Abschnitt 3.2.3) sinken die thermoviskosen Verluste bei den untersuchten Alkoholen mit steigender Temperatur und steigen mit steigendem Druck an. Zur Verifikation der Ergebnisse wird eine von Carnevale et al. [Car55] publizierte Messreihe für die akustische Absorption in 1-Propanol herangezogen, die nicht für die Identifikation der Referenzierungsvorschrift verwendet wird. Abbildung 6.10 b zeigt, dass die von Carnevale et al. ermittelten Werte im Vergleich mit den hier bestimmten Ergebnissen nach oben abweichen. Ein möglicher Grund hierfür können die dissipativen Effekte der Wärmeleitfähigkeit des Fluids sein, die von Carnevale et al. nicht berücksichtigt und so der Volumenviskosität zugeschlagen werden. Weiterhin wird zur Ermittlung der Vergleichsdaten das von Litovitz et al. [Lit55] vorgestellte Messverfahren mit variabler Reflektordistanz verwendet. Die systematischen Abweichungen sollten bei der von Litovitz et al. eingesetzten Messfrequenz von 15 MHz und der geschlossen Zylinderanordnung zwar gering sein, korrigiert werden sie jedoch nicht. Eine Überschätzung der thermoviskosen Verluste durch Carnevale et al. ist damit wahrscheinlich. Auf eine Berechnung der Volumenviskosität von

6 Bestimmung der akustischen Absorption und der Volumenviskosität



Abbildung 6.11: Druckabhängige Volumenviskosität von n-Hexan (*) und n-Octan (*) bei $T \approx 300 \,\text{K}$ sowie Vergleichsdaten (*) für n-Hexan [All70].

1-Propanol und 2-Propanol aus den ermittelten thermoviskosen Verlusten wird an dieser Stelle verzichtet, da zwar Messwerte für die Scherviskosität dieser Alkohole publiziert wurden (unter anderem in [Car55]), jedoch bisher keine etablierte Zustandsgleichung für die Scherviskosität existiert [Bel14; Lem13].

Die identifizierte Referenzierungsvorschrift für die Messanordnung in Status B erlaubt die Bestimmung der thermoviskosen Verluste von n-Octan. Wie Abbildung 6.9 zeigt, liegt n-Octan in den untersuchten Zuständen bezüglich seiner Schallgeschwindigkeit und Dichte im durch die Referenzierung vorgegebenen Messbereich und ist dem Referenzmedium n-Hexan ähnlich. Weiterhin existieren für n-Octan etablierte Zustandsgleichungen für die Wärmeleitfähigkeit [Hub05a] und die Scherviskosität [Hub05b], so dass bei der Auswertung der Messdaten auch die Volumenviskosität bestimmt werden kann. Abbildung 6.11 zeigt die Ergebnisse für die Volumenviskosität von n-Hexan und n-Octan sowie einen Vergleich der ermittelten Werte für n-Hexan mit Literaturdaten [All70]. Für n-Hexan zeigen Literatur und Messdaten gute Übereinstimmung, lediglich der Messwert bei minimalem Druck (etwa 100 kPa) weicht um etwa 0,44 mPa s nach oben ab. In diesem

Tabelle 6.5: Übersicht über die zur Identifikation der Korrekturfunktion für die systematischen Messabweichungen der überarbeiteten Messanordnung verwendeten Stützstellen.

	Anzahl Stützstellen
Methanol	15
n-Hexan	11

Zustand sind die Verluste in n-Hexan allerdings sehr gering, so dass die Abweichungen noch in den Rahmen der Messunsicherheit (siehe Anhang C) fallen. Die Ergebnisse für die Volumenviskosität von n-Octan ähneln in ihrem Verlauf denen von n-Hexan, sind jedoch für niedrigere Drücke deutlich größer. Die tendenziell größere Volumenviskosität von n-Octan gegenüber n-Hexan ist plausibel, da auf Basis der bisher publizierten Messergebnisse die Annahme getroffen werden kann, dass die Volumenviskosität mit der Größe des Moleküls des jeweiligen Fluids ansteigt [Car55]. Gleichzeitig scheint der druckabhängige Anstieg der Volumenviskosität von n-Octan erst bei höheren Drücken einzusetzen als beim n-Hexan. Dass n-Octan dadurch bei hohen Drücken eine geringere Volumenviskosität aufweist als n-Hexan scheint zunächst unplausibel und ist ebenfalls auf die hohe relative Messunsicherheit aufgrund der geringen Verluste zurückzuführen.

6.2.3 Messung mit der überarbeiteten Messanordnung

Das Verfahren zur referenzdatenbasierten Bestimmung der thermoviskosen Verluste soll im Folgenden, analog zum vorherigen Abschnitt, auf die in Kapitel 5 beschriebene überarbeitete Messanordnung angewandt werden. Wie schon zuvor erwähnt werden die Messungen in einem vereinfachten Aufbau zur Temperatur- und Druckeinstellung durchgeführt, der ein erhöhtes Rauschen in den elektrischen Signalen aufweist. Eine entsprechend erhöhte statistische Schwankung der Messwerte, insbesondere bei geringen Messwerten für die thermoviskosen Verluste, ist also zu erwarten.

Als Referenzmedien zur Parametrisierung und Identifikation der Referenzierungsvorschrift werden Methanol und n-Hexan verwendet. Eine Übersicht über die verwendeten Stützpunkte ist in Tabelle 6.5 gegeben, wobei für beide Fluide eine isotherme Messreihe bei etwa 303 K, entsprechend der Literaturdatenlage (siehe Abschnitt 3.2.3), aufgenommen wird. Für Methanol werden zusätzliche Messungen bei Atmosphärendruck und unterschiedlichen Temperaturen hinzugezogen.

Zur Auswahl einer Referenzierungsvorschrift wird erneut das in Ab-

Tabelle 6.6: Werte der Koeffizienten der Referenzierungsvorschrift (Gleichung 6.18) sowie deren Einheiten für die überarbeitete Messanordnung.

b_{μ}	b_1	b_2
0,9472	$-4,5429 \cdot 10^{-9}$	$2,8507 \cdot 10^{-6}$
1	${ m Pasm^6kg^{-2}}$	${ m Pasm^3kg^{-1}}$

schnitt 6.2.2 beschriebene Verfahren durchgeführt, in dem die Koeffizienten des Polynoms $P(c, \rho_0)$ sowie b_{μ} für unterschiedliche Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ mit der Methode der kleinsten Abweichungsquadrate bestimmt werden:

$$\mu = b_{\mu}\mu_{\text{mess}} - P(c, \rho_0). \tag{6.17}$$

Der identifizierte Wert von b_{μ} wird über die RMSD E_{μ} der jeweiligen Realisierung aufgetragen (Abbildung 6.12), wobei ein Wert von b_{μ} möglichst nah an 1, abgeleitet von den simulativen Voruntersuchungen (Abschnitt 5.1), für einen physikalisch sinnvollen Ansatz spricht. Weiterhin sind Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ zu bevorzugen, bei denen E_{μ} klein ist. Generell zeigen die Ansätze für die Referenzierungsvorschrift für die überarbeitete Messanordnung größere Werte für b_{μ} , so dass diese in Abbildung 6.12 nur für $b_{\mu} > 0.5$ dargestellt werden. Auch hier sind wieder Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ zu beobachten, die auf eine Überanpassung der Messdaten hindeuten (unterhalb von $E_{\mu} \approx 0.28 \,\mathrm{mPa}\,\mathrm{s}$ und $b_{\mu} \approx 0.8$). Weiterhin liegen bei dieser Betrachtung für die überarbeitete Messanordnung auch Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ im relevanten Bereich, die nur einen Koeffizienten $(N_{b_i} = 1)$ aufweisen, auch wenn viele dieser Ansätze den Referenzdatensatz unteranpassen $(E_{\mu} > 0.3 \,\mathrm{mPa\,s})$. Besonders bemerkenswert ist jedoch, dass das zum vorherigen Abschnitt analoge Vorgehen nun einige Kandidaten für die Referenzierungsvorschrift liefert, bei denen b_{μ} mit etwa 0,95 sehr nah an 1 ist. Darüber hinaus sind unter diesen Kandidaten auch Ansätze, bei denen $P(c, \rho_0)$ lediglich zwei Koeffizienten $(N_{b_i} = 2)$ hat. Damit wird die Vermutung bestätigt, dass die Korrektur der systematischen Abweichungen durch die Überarbeitung der Messanordnung, basierend auf den beobachteten geringen Abweichungen (Abbildung 5.16), deutlich vereinfacht wird.

Von den Ansätzen für die Referenzierungsvorschrift wird der Ansatz mit zwei Koeffizienten ausgewählt, bei dem b_{μ} am größten ist:

$$\mu = b_{\mu}\mu_{\text{mess}} - (b_1 \cdot \rho_0^2 + b_2 \cdot \rho_0).$$
(6.18)



Abbildung 6.12: Identifizierter Wert des Koeffizienten b_{μ} über die RMSD E_{μ} unterschiedlicher Realisierungen von $P(c, \rho_0)$ mit unterschiedlichen Anzahlen an Koeffizienten N_{b_i} für die überarbeitete Messanordnung.

Die RMSD dieser Referenzierungsvorschrift beträgt $E_{\mu} = 0,287 \,\mathrm{mPa}\,\mathrm{s}$. Die identifizierten Werte für die Koeffizierten sind in Tabelle 6.6 aufgeführt.

Im Vergleich zu den zuvor aufgestellten Referenzierungsvorschriften weist Gleichung 6.18 keine Abhängigkeit mehr von der Schallgeschwindigkeit auf. Genaueren Aufschluss über die Wirkungsweise gibt wieder eine Darstellung analog zu den Simulationsergebnissen in Abschnitt 5.1: Der erwartete Messwert μ_{mess} wird in Abhängigkeit der Fluidparameter c, ρ_0 und μ aufgetragen. Abbildung 6.13 zeigt, dass die auftretenden Abweichungen zum einen, verglichen mit der ursprünglichen Messanordnung, sehr gering sind. Zum anderen ist die Dichteabhängigkeit, obwohl Gleichung 6.18 einen quadratischen Ausdruck enthält, ebenfalls gering. Dies erklärt auch, dass bei der Auswertung der Daten in Abbildung 6.12 mehrere Ansätze mit zwei Koeffizienten zu finden sind, die ähnliche Ergebnisse liefern. So ist ersichtlich, dass der Verlauf der angedeuteten Ebenen in Abbildung 6.13 auch durch einen linear dichteabhängigen Ausdruck beschrieben werden könnte.

Neben den beobachteten geringeren systematischen Abweichungen kann



Abbildung 6.13: Darstellung der identifizierten Vorschrift zur Korrektur der systematischen Messabweichungen (überarbeitete Messanordnung) in Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit und der Dichte.

ein Grund für die deutlich einfachere Referenzierungsvorschrift auch der im Vergleich zu den beiden Zuständen der ursprünglichen Messanordnung kleinere Messbereich bezüglich der Dichte und der Schallgeschwindigkeit sein. Analog zur vorangegangenen Betrachtung kann der Messbereich wieder als konvexe Hülle um die Referenzmessungen dargestellt werden (Abbildung 6.14). Dieser ist aufgrund des vereinfachten Druckbehälters durch den resultierend kleineren Temperatur- und Druckbereich auch bei der Untersuchung eines einzelnen Fluids eingeschränkt. Weiterhin werden hier, im Vergleich zur Messung mit der ursprünglichen Messanordnung in Status B, nur zwei und nicht drei Fluide für die Referenzierung verwendet. Ein Vergleich mit der Darstellung des Messbereichs für die ursprüngliche Messanordnung in Status B (Abbildung 6.9) zeigt, dass der Messbereich für die überarbeitete Messanordnung jedoch nur unwesentlich kleiner ist. Vor allem Messungen an Fluiden mit höheren Dichten sind mit der hier durch-



Abbildung 6.14: Darstellung des durch die Referenzdaten gegebenen Messbereichs für die überarbeitete Messanordnung im Schallgeschwindigkeit-Dichte-Raum. Auswertbare (●) und nicht auswertbare (○) Messdatensätze basierend auf dem Messbereich und dem Toleranzbereich (2% relative Abweichung).

geführten Referenzierung direkt nicht möglich. Der Messbereich könnte jedoch durch die Hinzunahme von Wasser als Referenzmedium für diesen Bereich, falls nötig, erweitert werden. Für die Analyse von Fluiden aus der homologen Reihe der n-Alkane, die hier als Plausibilitätskontrolle durchgeführt wird, genügt jedoch die Referenzierung auf Methanol und n-Hexan. Wie Abbildung 6.14 zeigt, liegen die Schallgeschwindigkeit und die Dichte der bisher bezüglich der Volumenviskosität nicht untersuchten Fluide n-Octan und n-Decan für eine Vielzahl der eingestellten thermodynamischen Zustände im durch die Referenzmessungen aufgespannten Messbereich.

Für die vom Messbereich eingeschlossenen Datensätze können nun die gemessenen thermoviskosen Verluste ermittelt und die systematischen Messabweichungen korrigiert werden. Die so ermittelten thermoviskosen Verluste für die untersuchten n-Alkane bei etwa 303 K sind in Abbildung 6.15 dargestellt. Es zeigt sich erneut eine eher geringe Druckabhängigkeit der

6 Bestimmung der akustischen Absorption und der Volumenviskosität



Abbildung 6.15: Mit der überarbeiteten Messanordnung ermittelte thermoviskose Verluste von n-Hexan, n-Octan und n-Decan bei etwa 303 K.

ermittelten Werte. Erst ab etwa 5 MPa zeigt sich bei den drei untersuchten n-Alkanen ein leichter Anstieg. Bemerkenswert ist jedoch, dass der beobachtete Verlauf in den thermoviskosen Verlusten bei den drei Fluiden nahezu identisch ist. Dieser Umstand ist teilweise der halblogarithmischen Darstellung zuzuschreiben. Die beobachteten Verläufe (qualitative Ähnlichkeit bei quantitativ anderen Werten) entsprechen jedoch den Erwartungen einer Messung an Fluiden einer homologen Reihe. Weiterhin zeigen Fluide mit größeren Molekülen erwartungsgemäß höhere Verluste, wobei der Zusammenhang zwischen Molekülkettenlänge und thermoviskosen Verlusten, basierend auf den hier gezeigten Ergebnissen, nicht linear zu sein scheint.

Da für die untersuchten n-Alkane Zustandsgleichungen für die Scherviskosität und die Wärmeleitfähigkeit vorliegen, kann nun die Volumenviskosität ermittelt werden. Beispielhaft werden hier die Ergebnisse basierend auf den thermoviskosen Verlusten bei 303 K (Abbildung 6.15) und variablem Druck herangezogen. Die Ergebnisse für die Volumenviskosität sind in Abbildung 6.16 dargestellt. Die Verläufe sind dabei qualitativ denen der thermoviskosen Verluste ähnlich, mit einem geringen Anstieg der Volumenviskosität bei hohen Drücken. Ein Vergleich der Ergebnisse mit den



Abbildung 6.16: Mit der überarbeiteten Messanordnung bestimmte druckabhängige Volumenviskosität von verschiedenen n-Alkanen bei etwa 303 K sowie Vergleichsdaten (×) für n-Hexan [All70].

Referenzdaten für n-Hexan aus der Literatur [All70] zeigt eine gute Übereinstimmung. Besonders verglichen mit den Ergebnissen der ursprünglichen Messanordnung (Abbildung 6.11) entsprechen die hier ermittelten Ergebnisse eher den erwarteten Werten, auch wenn der Druckbereich hier, bedingt durch den vereinfachten Experimentalaufbau, kleiner ist. Bemerkenswert ist weiterhin, dass die Bestimmung der Volumenviskosität von n-Octan und n-Decan hier sehr ähnliche Werte liefert. Ursächlich hierfür ist ein Unterschied in der Scherviskosität der beiden Fluide, der etwa dem Unterschied in den thermoviskosen Verlusten entspricht. Dass die Volumenviskosität von n-Octan und n-Decan identisch ist, scheint unwahrscheinlich. Viel eher wird für n-Decan eine höhere Volumenviskosität erwartet. Die Ergebnisse deuten somit darauf hin, dass der Unterschied in den Volumenviskositäten der beiden n-Alkane relativ gering ist. Ein alternativer Grund für die sehr ähnlichen Werte für die Volumenviskosität können eventuelle Abweichungen in den Zustandsgleichungen [Hub05b] für die Scherviskosität der beiden Fluide sein. Weiterhin können die Ergebnisse auch im Rahmen der Messunsicherheit schwanken, die im folgenden Abschnitt betrachtet werden

soll.

Grundsätzlich entsprechen die ermittelten Werte für die Volumenviskosität den Erwartungen und sind in ihrer Druck- und Temperaturabhängigkeit für alle durchgeführten Messungen konsistent: Eine Erhöhung des Drucks führt für alle hier untersuchten Fluide stets zu einer erhöhten Volumenviskosität, während der Einfluss der Temperatur invers ist. Diese Abhängigkeiten sind damit den in Abschnitt 3.2.3 aufgeführten bisher veröffentlichten Datensätzen entsprechend. Es zeigt sich außerdem, dass die Volumenviskosität, gerade bei der Betrachtung der akustischen Absorption, einen teilweise um ein Vielfaches größeren Einfluss hat als die Scherviskosität und die Wärmeleitfähigkeit (siehe Anhang C) und somit für eine realitätsnahe Beschreibung des Fluidverhaltens nicht vernachlässigt werden kann.

6.3 Abschätzung der Messunsicherheiten

Die Unsicherheiten der in dieser Arbeit bestimmten Messgrößen setzen sich aus einer Vielzahl an Einflüssen zusammen. Neben den Einflüssen der direkt an der Messung beteiligten Messgeräte, wie etwa des Oszilloskops und der Druck- und Temperaturmessgeräte, müssen auch die Beiträge der verwendeten Referenzdaten sowie der Zustandsgleichungen für die untersuchten Fluide berücksichtigt werden. Als primäres Mittel wird dafür die Monte-Carlo-Methode eingesetzt [Cox03].

6.3.1 Abschätzung der Unsicherheit der gemessenen Absorption

Während die Unsicherheiten anderer direkter Messgrößen, wie die des Drucks und der Temperatur, durch die Unsicherheitsangaben für die jeweiligen Messgeräte bekannt sind, muss die Unsicherheit des aus den Messsignalen bestimmten Absorptionsparameters *a* zunächst abgeschätzt werden. Dazu müssen zum Beispiel die Unsicherheitsbeiträge des zur Erfassung der Signale verwendeten Oszilloskops (*TiePie* Handyscope HS5) durch den Algorithmus zur Bestimmung des Absorptionsparameters *a* über die Auswertung der gewöhnlichen Momente der Signalspektren (Abschnitt 4.2.4) propagiert werden. Eine Betrachtung der Unsicherheiten auf Basis der Propagation der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen nach [GUM08] stellt sich in diesem Kontext sehr aufwändig dar, da Unsicherheiten im Zeitbereich zunächst in den Frequenzbereich übertragen werden müssten. Stattdessen kommt hier die Monte-Carlo-Methode zum Einsatz.

6.3 Abschätzung der Messunsicherheiten



Abbildung 6.17: Ergebnis der Monte-Carlo-Simulation zur Bestimmung der Unsicherheit des gemessenen Absorptionsparameters für unterschiedlich große thermoviskose Verluste μ ($\blacksquare 0$ mPa s, $\blacksquare 5$ mPa s und $\blacksquare 10$ mPa s).

Um die Einflüsse einer unsicherheitsbehafteten Signalakquisition auf die Ergebnisse dieses Auswertealgorithmus abzuschätzen, werden idealisierte, simulativ erzeugte Signale betrachtet, die nachträglich mit den Unsicherheiten der Signalerfassung beaufschlagt werden. Das Simulationsmodell gleicht der Anordnung in Abschnitt 4.3, wobei Signale für ein Fluid mit thermoviskosen Verlusten von 0 mPas, 5 mPas und 10 mPas untersucht werden. Um den Einfluss der unsicheren Zeitbasis des Oszilloskops zu untersuchen, wird der Zeitvektor der simulativ erzeugten Signale zufällig neu skaliert. Die Skalierungsänderung wird dabei entsprechend den Herstellerangaben [Tie19] aus einer Gleichverteilung von $\pm 1 \cdot 10^{-6}$ der eingesetzten Abtastfrequenz von 200 MHz gezogen. Dem zugrunde liegt die Annahme, dass die Zeitbasis des Oszilloskops zwar unsicher ist, sich aber nicht während der Aufnahme eines Signals ändert. Andere Unsicherheitsbeiträge des Oszilloskops selbst, wie etwa eine zeitinvariante Null-Punkt- oder Verstärkungsunsicherheit, haben aufgrund der Art der Signalauswertung keinen Einfluss auf die gemessene Absorption. Bei der Aufnahme realer Signale mit der überarbeiteten Messanordnung zeigt sich weiterhin überlagertes Rauschen, das in der Monte-Carlo-Betrachtung durch additives, normalverteiltes Rauschen mit einer Standardabweichung von 0.5% der

٦л

Tabelle 6.7:	Ergebnis	der	Monte-O	Carlo-S	imulation	zur	Bestimmung	der
	Unsicherh	neit o	les geme	ssenen	Absorptio	onspa	arameters a .	

Thermoviskose Verluste μ in mPas	0	5	10
Idealer Absorptionsparameter a in $10^{-17} s^2 m^{-1}$	0	74,07	148,1
Stichprobenmittelwert von a in $10^{-17} s^2 m^{-1}$	-0,004	$73,\!56$	147,1
Stichprobenstandardabweichung von a in 10^{-17} s ² m ⁻¹	$1,\!47$	$1,\!61$	1,78

maximalen Signalstärke modelliert wird.

Für thermoviskose Verluste im Fluid von 0 mPas, 5 mPas und 10 mPas werden jeweils 50 000 Signale mit den oben beschriebenen Unsicherheitsbeiträgen beaufschlagt und bezüglich des Absorptionsparameters a ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.17 als Histogramme dargestellt. Die dargestellten absoluten Häufigkeiten zeigen sich für die jeweils vorgegebenen Verluste näherungsweise gaußförmig. Entsprechend können die jeweiligen Verteilungen durch den Stichprobenmittelwert und die Stichprobenvarianz beschrieben werden. Die mit der Monte-Carlo-Methode ermittelten Werte für diese Kenngrößen sind in Tabelle 6.7 zusammengefasst. Es zeigt sich, dass die Mittelwerte für den Absorptionsparameter nah an den idealen Werten liegen, jedoch eine geringe systematische Abweichung nach unten aufweisen, die mit den Verlusten im Fluid ansteigt. Diese systematische Abweichung kann durch die durch das Rauschen eingebrachte, zusätzliche Energie im Spektrum der Signale erklärt werden: Das Rauschen fügt den beiden ausgewerteten Echosignalen im gleichen Maße Energie hinzu; dadurch wird das Verhältnis der Signalstärken zueinander kleiner, welches zu einem kleineren geschätzten Absorptionsparameter führt. Eine derartige systematische Abweichung kann jedoch, vorausgesetzt der Energieeintrag durch das Rauschen bleibt im statistischen Mittel konstant, durch die zuvor beschriebenen Schritte zur Referenzierung der Messanordnung (Abschnitt 6.2) mit korrigiert werden.

Die eigentliche statistische Unsicherheit der Ermittlung des Absorptionsparameters a wird durch die ermittelte Stichprobenstandardabweichung beschrieben. Diese zeigt ebenfalls eine leichte Abhängigkeit von den Verlusten im Fluid. Da die thermoviskosen Verluste bei einer realen Messung a priori nicht bekannt sind, sich jedoch für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Fluide im Bereich von 10 mPas befinden, wird die ermittelte Stichprobenstandardabweichung für den Absorptionsparameter a auf $2 \cdot 10^{-17} \,\mathrm{s}^2 \,\mathrm{m}^{-1}$ leicht erweitert und als Standardunsicherheit u_a für a angenommen.



Abbildung 6.18: Schematische Darstellung der Zusammensetzung der Messunsicherheit der ermittelten thermoviskosen Verluste.

6.3.2 Unsicherheit der ermittelten thermoviskosen Verluste

Nach der Abschätzung der Unsicherheit des Absorptionsparameters u_a kann diese nun durch die nachgestellten Berechnungsschritte propagiert werden. Das Vorgehen ist in Abbildung 6.18 schematisch dargestellt. Sowohl die Bestimmung der gemessenen thermoviskosen Verluste μ_{mess} , als auch die Korrektur von $\mu_{\rm mess}$ zur Bestimmung der thermoviskosen Verluste μ im Fluid, erfordern Kenntnis der Schallgeschwindigkeit c und der Dichte ρ_0 des Fluids. Diese Größen werden mit Hilfe der Zustandsgleichung (EOS, von engl. *equation of state*) des jeweiligen Fluids aus dem gemessenen statischen Druck p_0 und der gemessenen absoluten Temperatur T_0 ermittelt. Entsprechend werden die Unsicherheitsbeiträge der Dichte und der Schallgeschwindigkeit $(u_{\rho_0} \text{ und } u_c)$ bestimmt durch die Unsicherheiten der Temperatur- und Druckmessung $(u_{T_0} \text{ und } u_{p_0})$ sowie durch die Unsicherheit der Zustandsgleichung $u_{\rm EOS}$ selbst. Da die zur klassischen Unsicherheitsanalyse [GUM08] notwendigen Sensitivitäten, zum Beispiel der aus der Zustandsgleichung bestimmten Schallgeschwindigkeit auf eine Änderung der Temperatur, erst bestimmt werden müssten (etwa durch den Einsatz finiter Differenzen), erscheint die Monte-Carlo-Methode ebenfalls

Fluid	Schallgeschw.	Dichte	Quelle
Wasser	0,5%	0,5%	[Wag02]
Methanol	1 %	1%	[Pia13]
1-Propanol	$_{0,2\%}$	1%	[Gao20a]
2-Propanol	$_{0,2\%}$	1%	[Gao 20b]
n-Hexan	2%	0,5%	[Spa03]
n-Octan	2%	0,5%	[Spa03]
n-Decan	2%	0,5%	[Lem 06]
Toluol	2%	0,5%	[Lem 06]

Tabelle 6.8: Relative Unsicherheiten der aus den Zustandsgleichungen ermittelten Größen für die untersuchten Fluide.

als zielführend.

Die Standardunsicherheiten der Temperatur- und Druckmessgeräte werden mit $u_{T_0} = 29 \text{ mK}$ und $u_{p_0} = 207 \text{ kPa}$ vorangegangenen Betrachtungen im Rahmen des Einsatzes des Messsystems zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung entnommen [Dub14]. Die relativen Unsicherheitsbeiträge der eingesetzten Zustandsgleichungen sind abhängig vom jeweils untersuchten Fluid und liegen für Schallgeschwindigkeit und Dichte jeweils im Bereich einiger Prozent (Tabelle 6.8). Sie werden analog einer Typ-B Unsicherheit [GUM08] als gleichverteilt angenommen.

Die unsicherheitsbehafteten Größen Schallgeschwindigkeit und Dichte können nun verwendet werden, um die Unsicherheit der gemessenen thermoviskosen Verluste μ_{mess} zu ermitteln. Im nächsten Schritt werden die Beiträge der zuvor ermittelten Vorschrift zur Korrektur der systematischen Messabweichungen (Abschnitt 6.2.2) berücksichtigt. Neben Schallgeschwindigkeit und Dichte gehen hier die Unsicherheit der identifizieren Korrekturvorschrift u_{korr} sowie die Unsicherheiten der Referenzdaten u_{ref} ein. Als Abschätzung der Standardunsicherheiten von Vorschriften zur Korrektur systematischer Messabweichungen bzw. für die Unsicherheiten referenzdatenbasierter Messverfahren kann folgender Ansatz gewählt werden [DAk10; Cla19a]:

$$u_{\text{korr}}^2 = \frac{1}{N - N_{b_i}} \sum_n \left(\mu_{\text{ref},n} - \mu(\mu_{\text{mess},n}, \rho_{0,n}, c_n) \right)^2, \tag{6.19}$$

wobei N hier die Anzahl der Stützstellen ist und N_{b_i} weiterhin die Anzahl der Koeffizienten der Korrekturvorschrift. Der Ausdruck $N - N_{b_i}$ wird auch die Anzahl der Freiheitsgrade genannt [DAk10]. $\mu_{\text{ref},n}$ sind die thermoviskosen Verluste, die als Referenz herangezogen werden. Für $N_{b_i} = 0$ entspricht

Gleichung 6.19 gerade der mittleren quadratischen Abweichung. Für die ursprüngliche Messanordnung im Status A nimmt $u_{\rm korr}$ einen Wert von 0,171 mPa s an. In Status B steigt der Wert auf 0,690 mPa s, wobei hier auch Fluide mit deutlich höheren thermoviskosen Verlusten als Referenzund Messmedien betrachtet werden.

Zur Abschätzung der Unsicherheiten der Referenzmessdaten $u_{\rm ref}$ kann lediglich auf Angaben zur Wiederholabweichung zurückgegriffen werden, die in einigen der in Abschnitt 3.2.3 genannten Publikationen (zum Beispiel [All70; All72; Awa77; Xu03]) gemacht werden. Die angegebenen relativen Werte für die Wiederholabweichung liegen hier, bis auf eine Ausnahme (Allegra et al. mit 10% bis 15%[All70]), unterhalb von 5% des Messwertes. Als Abschätzung des Einflusses der unsicherheitsbehafteten Referenzdaten wird $u_{\rm ref}$ gleichverteilt mit 5 % des ermittelten Werts für die thermoviskosen Verluste angenommen und dem Ergebnis der vorherigen Betrachtung additiv überlagert. Hier inkludiert sind auch die Unsicherheiten der Scherviskosität, der Wärmeleitfähigkeit und der Wärmekapazitäten (Abschnitt 3.1) der Referenzmessungen. Auch wenn einige Quellen eine höhere Wiederholabweichung angeben, stellt eine relative Unsicherheit von 5% eine pessimistische Abschätzung dar, da zur Referenznahme ein auf Basis von mehreren Messwerten identifizierter Ausdruck verwendet wird (siehe Abschnitt 6.2.1). Dadurch ist, bei statistischer Schwankung der Messwerte, die Unsicherheit des identifizierten Ausdrucks geringer als die der Messwerte selbst.

Da nun alle relevanten Unsicherheitsbeiträge quantifiziert sind, können mit Hilfe der Monte-Carlo-Methode die Unsicherheiten der ermittelten Werte für die thermoviskosen Verluste bestimmt werden. Dazu werden aus den zugrundeliegenden Verteilungsfunktionen für die einzelnen Unsicherheitsbeiträge zufällig Werte gezogen und durch die verwendeten Gleichungen propagiert [Cox03]. Dies ermöglicht nun die Bestimmung der Unsicherheiten der zuvor ermittelten Werte für die thermoviskosen Verluste. Beispielhaft werden hier die Unsicherheiten der zuvor betrachteten Messergebnisse für Alkohole bei etwa 300 K betrachtet (Abbildung 6.19). Für diese auch in Abbildung 6.10 dargestellten Werte zeigt sich zunächst, dass die Unsicherheit eines Messwerts mit der Messgröße selbst zunimmt. So zeigen die Ergebnisse für Methanol, welches im Vergleich kleine thermoviskose Verluste aufweist, auch die geringste absolute Unsicherheit. Relativ gesehen betragen die Unsicherheiten der Messungen an Methanol zustandsunabhängig jedoch etwa 14%, an 1-Propanol etwa 11% und an 2-Propanol etwa 7%. Dieser Zusammenhang entspricht den Erwartungen, da der Messeffekt selbst gegenüber den Störgrößen größer wird, wenn die thermoviskosen

6 Bestimmung der akustischen Absorption und der Volumenviskosität



Abbildung 6.19: Unsicherheit der Messung der thermoviskosen Verluste verschiedener Alkohole bei etwa 300 K (• Methanol, * 1-Propanol und • 2-Propanol; vgl. Abbildung 6.10 b).

Verluste im Fluid ansteigen. Über den Zustand zeigen sich bei dieser Betrachtung keine nennenswerten Abhängigkeiten der Messunsicherheit, so dass die genannten, relativen Unsicherheiten als Abschätzung der Unsicherheit für die Messung der thermoviskosen Verluste der betrachteten Fluide herangezogen werden können.

6.3.3 Unsicherheit der ermittelten Volumenviskosität

Zur Bestimmung der Unsicherheit der ermittelten Volumenviskosität kann das zuvor beschriebene Verfahren um den Zusammenhang zwischen den ermittelten thermoviskosen Verlusten μ und der Volumenviskosität μ_{v} erweitert werden:

$$\mu_{\rm v} = \mu - \frac{4}{3}\mu_{\rm s} - \frac{c_{\rm p} - c_{\rm v}}{c_{\rm p} \cdot c_{\rm v}}\nu.$$
(6.20)

Entsprechend werden die Unsicherheiten der zur Ermittlung der Scherviskosität μ_s , der Wärmeleitfähigkeit ν und der spezifischen Wärmekapazitäten c_p und c_v eingesetzten Modell- und Zustandsgleichungen benötigt. Die Unsicherheitsangaben zu diesen Gleichungen sind in Abschnitt 3.1 angege-

Fluid	T_0	p_0	μ	$\mu_{ m v}$	u_{μ}	$u_{\mu_{\mathbf{v}}}$	
	Κ	MPa	mPas	mPas	mPas	mPas	
Wasser	300,0	30,081	3,42	2,29	0,224	0,225	
Wasser	300,0	$74,\!897$	$3,\!79$	$2,\!64$	0,238	0,239	
Methanol	244,3	9,712	$4,\!36$	2,37	0,300	0,305	
Methanol	300,0	$124,\!558$	$2,\!37$	$1,\!18$	0,301	0,303	
Toluol	303,2	$123,\!487$	14,02	$12,\!45$	0,975	0,975	
Toluol	348,1	$25,\!271$	$7,\!56$	7,00	0,743	0,743	

Tabelle 6.9: Beispielhafte Unsicherheiten der thermoviskosen Verluste und der Volumenviskosität für unterschiedliche Fluide.

ben. Auch hier wird wieder eine *worst-case* Betrachtung durchgeführt und die maximal angegebene Unsicherheit angenommen. Weiterhin werden die Unsicherheiten der jeweiligen Fluidkenngrößen durch die unsicherheitsbehaftete Temperatur- und Druckmessung, welche als Eingangsgrößen für die Zustandsgleichungen verwendet werden, beeinflusst.

Nach Durchführung des Monte-Carlo-Verfahrens stellt sich jedoch heraus. dass die Unsicherheitsbeiträge der Scherviskosität, der Wärmeleitfähigkeit und der spezifischen isobaren und isochoren Wärmekapazitäten das Ergebnis in der Regel nur in geringem Maß beeinflussen. Beispielhaft sind die Ergebnisse für die Messunsicherheiten der thermoviskosen Verluste μ und der Volumenviskosität $\mu_{\rm v}$ von unterschiedlichen Fluiden in einigen Zuständen in Tabelle 6.9 aufgeführt. Wie sich zeigt, unterscheiden sich die beiden ermittelten Unsicherheiten nur im Bereich unterhalb eines Prozents. Entsprechend kann als Abschätzung für die absolute Messunsicherheit der Volumenviskosität die absolute Unsicherheit der thermoviskosen Verluste herangezogen werden. Da der Messwert der Volumenviskosität stets kleiner sein muss als die thermoviskosen Verluste, bedeutet dies jedoch auch, dass die relative Messunsicherheit der Volumenviskosität entsprechend größer ist, als die der thermoviskosen Verluste. In der Zusammenfassung der Messergebnisse (Anhang C) wird die Unsicherheit der Volumenviskosität, sofern verfügbar, für jede Messung mit angegeben. Hier treten vereinzelt Messdatensätze auf, bei denen die Unsicherheit der Volumenviskosität kleiner ist als die der thermoviskosen Verluste. Dies liegt darin begründet, dass die aus den Messungen ermittelten thermoviskosen Verluste und die Scherviskosität über ihre Zustandsabhängigkeit korreliert sind. In der Monte-Carlo-Methode wird diese Korrelation implizit berücksichtigt und kann entsprechend dazu führen, dass sich die statistischen Schwankungen von thermoviskosen Verlusten und Scherviskosität teilweise kompensieren

6 Bestimmung der akustischen Absorption und der Volumenviskosität



Abbildung 6.20: Unsicherheit der Messung der Volumenviskosität verschiedener n-Alkane bei etwa 303 K (vgl. Abbildung 6.16).

und so eine geringere Unsicherheit für die Volumenviskosität liefern.

In der grafischen Darstellung der Unsicherheiten der ermittelten Werte für die Volumenviskosität (Abbildung 6.20) wird deutlich, dass die Unsicherheitsbeiträge, gerade bei geringen ermittelten Volumenviskositäten, relativ groß sind. Beim Vergleich der drei unterschiedlich referenzierten Messdatensätze zeigt sich tendenziell für die ursprünglichen Anordnung in Status A die geringste Unsicherheit. Bei der überarbeiteten Messanordnung sind die ermittelten Unsicherheiten für die thermoviskosen Verluste und die Volumenviskosität etwas größer und schließlich für die ursprüngliche Anordnung in Status B tendenziell am größten (vgl. Anhang C). Dies lässt den Schluss zu, dass für die Unsicherheit der Messung die RMSD der Referenzierungsvorschrift E_{μ} maßgeblich ist. Soll also für zukünftige Messungen die Unsicherheit reduziert werden, so muss eine Möglichkeit gefunden werden, Referenzierungsvorschriften mit geringerer Abweichung aufzustellen. Ein erster Schritt kann hier die Reduzierung statistischer Schwankungen in den Messungen sein, indem zum Beispiel das Rauschen durch eine überarbeitete elektrische Signalführung reduziert wird.

Da in die Unsicherheitsbetrachtung neben den drei Messgrößen (Druck p_0 , Temperatur T_0 und gemessener Absorptionsparameter a) auch die Zu-

6.4 Vergleich mit Ergebnissen der Molekulardynamik-Simulation

standsgleichung des untersuchten Fluids eingeht, fällt es schwer, weitere generelle Aussagen zur Messunsicherheit des Verfahrens zu treffen. Aus diesem Grund wird auf eine Betrachtung der Messunsicherheit des Verfahrens selbst verzichtet, um stattdessen die Unsicherheiten für die einzelnen, ermittelten Messergebnisse aufzuführen (siehe Anhang C).

6.4 Vergleich mit Ergebnissen der Molekulardynamik-Simulation

Neben der messtechnischen Bestimmung ist es weiterhin möglich, die Volumenviskosität auf Basis von Molekulardynamik-Simulationen [Rut17] zu bestimmen. Das von Chatwell et al. [Cha20b] zur Bestimmung einer Zustandsgleichung für die Volumenviskosität von Edelgasen eingesetzte Verfahren kann auch für die Untersuchung von anderen Fluiden, wie etwa Methanol, angewandt werden. Abbildung 6.21 zeigt beispielhaft die synthetisch erzeugten Werte für die Volumenviskosität von Methanol bei etwa 220 K und variierender Dichte. Analog zu den Unsicherheiten realer Messungen liefert auch die Bestimmung der Volumenviskosität durch Molekulardynamik-Simulation kein diskretes Ergebnis sondern eine Distribution [Cha20a].

Um die Ergebnisse des referenzdatenbasierten Messverfahrens zu validieren, wird hier explizit die isotherme Messreihe bei etwa 220 K betrachtet. Für diese Zustände liegen in der Literatur bisher keine Messdaten für die Volumenviskosität vor und die Messungen werden entsprechend nicht für die Referenzierung verwendet. Die beiden in Abbildung 6.21 gegenübergestellten Datensätze werden somit also durch zwei von Grund auf unterschiedliche Verfahren erzeugt. Dennoch zeigen beide Datensätze, vor allem unter Berücksichtigung der Schwankung der jeweiligen Mittelwerte sowie der angegebenen Unsicherheitsintervalle, eine gute Übereinstimmung. Die Messwerte liegen dabei stets unterhalb der Simulationsergebnisse. Der leicht negative Trend der Messwerte für die Volumenviskosität bezüglich der Dichte zeigt sich in den Simulationsdaten nicht bzw. weniger deutlich und ist auch im Vergleich zu den bisher betrachteten Messreihen (zum Beispiel Abbildung 6.10) eher unplausibel. Unter Berücksichtigung der Unsicherheitsintervalle kann man eher davon ausgehen, dass die Volumenviskosität keine stark ausgeprägte Dichteabhängigkeit bei dieser Temperatur zeigt. Die Simulationsergebnisse zeigen weiterhin eine Erhöhung der Volumenviskosität bei 861 kg m^{-3} , die in schwächerer Form auch in der Messung



Abbildung 6.21: Vergleich von Messdaten für die Volumenviskosität von Methanol bei 220 K und mittels Molekulardynamik-Simulation ermittelten synthetischen Daten [Cha20a].

beobachtet werden kann. Derartige Effekte (im Zustandsraum lokal leicht erhöhte Volumenviskosität) konnten bisher in dieser Form nicht beobachtet werden. Es ist also wahrscheinlich, dass es sich hierbei um statistische Abweichungen handelt. Aufgrund der geringen Anzahl an Messdaten für die Volumenviskosität lässt sich hier jedoch keine definitive Aussage treffen.

Systematische Abweichungen treten auch bei den Resultaten von Molekulardynamik-Simulationen auf, sind jedoch anderen Ursprungs und damit anders geartet als die systematischen Abweichungen des Messverfahrens [Sch17]. Daher wird im Einsatz von Molekulardynamik-Simulationen eine geeignete Methode zur Erzeugung von Referenzdaten für zukünftige Bestrebungen zur Messung der akustischen Absorption und der Volumenviskosität gesehen.

Fazit

Die zuvor beobachteten systematischen Messabweichungen bei der Absorptionsmessung im realen Messsystem können durch Bezugnahme auf

6.4 Vergleich mit Ergebnissen der Molekulardynamik-Simulation

Referenzdaten korrigiert werden (Fragestellung VII). Dafür muss ein polynomialer Ausdruck in Schallgeschwindigkeit und Dichte des untersuchten Fluids parametrisiert und identifiziert werden. Bedingt durch diese Referenzierung ist der verfügbare Messbereich der Anordnung bezüglich der Schallgeschwindigkeit und der Dichte eingeschränkt (Fragestellung VIII). Für Fluide, deren Eigenschaften in diesem Messbereich liegen, können die thermoviskosen Verluste ermittelt werden, welche maßgeblich für die akustische Absorption sind. Liegen weiterhin Daten für die Scherviskosität und die Wärmeleitfähigkeit für das Fluid vor, kann aus den thermoviskosen Verlusten die Volumenviskosität bestimmt werden. Die Messunsicherheiten der ermittelten thermoviskosen Verluste und der Volumenviskosität werden primär bestimmt durch die mittlere Abweichung der Korrekturvorschrift für die systematischen Messabweichungen. Relativ betrachtet liegen die Messunsicherheiten für die untersuchten Fluide im einstelligen bis unteren zweistelligen Prozentbereich (Fragestellung IX).

7 Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird ein Messverfahren zur Ermittlung der Volumenviskosität basierend auf einer Messung der akustischen Absorption beschrieben. Den experimentellen Ausgangspunkt bildet dabei eine etablierte Messanordnung für die Bestimmung der Schallgeschwindigkeit von Fluiden, wobei die Kernproblematik die Trennung der akustischen Absorption im Fluid von anderen signalbeeinflussenden Effekten ist.

Aufbauend auf eine Diskussion der mathematischen Beschreibung der Schallausbreitung in Fluiden wird dargelegt, wie ein akustisches Signal durch den Absorptionsmechanismus beeinflusst wird. Aus der bekannten quadratischen Frequenzabhängigkeit dieses Mechanismus resultiert, dass die spektralen Anteile im Signal unterschiedlich stark absorbiert werden (Dispersion) und die zu messende Größe damit der Parameter eines quadratischen Absorptionsmodells sein muss. Über eine Betrachtung der Energiegeschwindigkeit kann gezeigt werden, dass die Signallaufzeit für die untersuchten Fluide nicht signifikant durch die Absorption beeinflusst wird und somit keinen praktikablen Ansatz für die Realisierung eines Messverfahrens darstellt. Dennoch handelt es sich hierbei, vor allem im Kontext von Schallgeschwindigkeitsmessungen, um eine wichtige Erkenntnis, da nun abgeschätzt werden kann, inwiefern die Absorption einen Einfluss auf eine gemessene Laufzeit hat. Basierend auf der Beeinflussung des Spektrums des akustischen Signals werden Ansätze entwickelt, wie aus diesen Einflüssen ein quadratisch frequenzabhängiger Absorptionsparameter ermittelt werden kann. Varianten von bekannten spektralen Verfahren, wie etwa einer Verschiebung des spektralen Schwerpunkts, zeigen sich aufgrund der geringen Absorption in den untersuchten Fluiden zu instabil, während der klassische Ansatz über die Abnahme der akustischen Signalintensität aufgrund der unberücksichtigten Frequenzabhängigkeit des Absorptionsmechanismus zu systematischen Abweichungen führt. Deutlich bessere

7 Zusammenfassung und Ausblick

Eigenschaften zeigt hier ein Ansatz über die Auswertung der gewöhnlichen Momente des Signalspektrums, der für alle weiteren Betrachtungen eingesetzt wird.

Während anhand simulativ generierter Signale gezeigt werden kann, dass sich die Absorption im Fall ebener Wellenausbreitung aus den Signalen ermitteln lässt, treten im realen Messsystem aufgrund von örtlich begrenzten Quellen und Reflektoren Beugungseffekte auf, die eine Verteilung der akustischen Energie im Raum und somit eine zusätzliche Signalbeeinflussung bedingen. Weiterhin können die akustischen Reflektoren nicht als ideal angenommen werden, vielmehr sind ihre Reflexionsfaktoren zusätzlich abhängig von den Parametern des untersuchten Fluids. Um den Einfluss dieser Effekte auf die gemessene Absorption abzuschätzen, werden Simulationsmodelle der Messanordnung mit unterschiedlicher Komplexität erstellt. Diese Modelle ermöglichen eine Analyse der gemessene Absorption in Abhängigkeit der Fluidparameter (Schallgeschwindigkeit und Dichte). Gerade bei der Betrachtung der gemessenen thermoviskosen Verluste (der Summe aus Volumenviskosität, Scherviskosität und Verlusten durch Wärmeleitung), welche aus dem ermittelten quadratisch frequenzabhängigen Absorptionsparameter bestimmt werden können, zeigt sich, dass die Abweichungen von den Verlusten im Fluid selbst einem über den Parameterraum hinreichend stetigen Zusammenhang folgen. Können diese Abweichungen für das reale Messsystem parametrisiert und identifiziert werden, so lassen sie sich rechnerisch korrigieren. Weiterhin können von den beobachteten Abweichungen der gemessenen thermoviskosen Verluste in den Simulationsmodellen Maßnahmen zur Entwicklung einer überarbeiteten Messanordnung abgeleitet werden. Umgesetzt wird davon primär die Realisierung einer Schallwandlerfassung mit symmetrischen Abstrahleigenschaften durch den Einsatz stochastisch strukturierter, additiv gefertigter Bauteile. Ein Vergleich der überarbeiteten Messanordnung mit der unveränderten Variante zeigt deutlich reduzierte systematische Messabweichungen.

Da ausgeschlossen werden kann, dass signifikante nichtlineare akustische Effekte während der Messung auftreten, wird ein Verfahren zur Korrektur der systematischen Messabweichungen basierend auf Referenzmessungen an Fluiden in Zuständen, deren Volumenviskosität bekannt ist, vorgestellt. Zur gleichzeitigen Parametrisierung und Identifikation der Korrekturvorschrift wird dabei aus den zuvor durchgeführten simulativen Studien eine quantitative Bedingung an die Korrekturvorschrift formuliert, die hilft, physikalisch sinnvolle Ansätze auszumachen und gleichzeitig Über- und Unteranpassung an die Referenzdaten zu vermeiden. Dieses Verfahren wird an der unveränderten Messanordnung zur Schallgeschwindigkeitsbestimmung sowie an der zuvor beschriebenen überarbeiteten Messanordnung angewandt und liefert Messwerte für die thermoviskosen Verluste in Wasser, verschiedenen Alkoholen und Alkanen. Aus diesen Ergebnissen kann dann die Volumenviskosität unter Verwendung etablierter Zustandsgleichungen für die Scherviskosität und die Wärmeleitfähigkeit bestimmt werden. Die Messunsicherheiten der ermittelten Werte für die thermoviskosen Verluste und die Volumenviskosität werden mit Hilfe der Monte-Carlo-Methode abgeschätzt. Ein abschließender Vergleich mit synthetisch mittels Molekulardynamik-Simulation ermittelten Werten für die Volumenviskosität zeigt eine gute Übereinstimmung.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden damit insgesamt acht unterschiedliche Fluide bezüglich ihrer thermoviskosen Verluste und ihrer Volumenviskosität charakterisiert, wobei für drei dieser Fluide bisher keine Messdaten vorlagen. Die in Anhang C aufgeführten Messdaten stellen damit eine umfangreiche Sammlung an Messdaten für diese Fluidkenngrößen dar, die als Ausgangspunkt für theoretische Analysen und die Aufstellung von Zustandsgleichungen für die Volumenviskosität dienen können. Alle Messwerte für die Volumenviskosität zeigen sich dabei als mit steigender Temperatur sinkend und mit steigendem Druck steigend. Weiterhin zeigen nahezu alle durchgeführten Messungen eine Volumenviskosität, die um ein Vielfaches größer ist als die Kombination aus Scherviskosität und Verlusten durch Wärmeleitfähigkeit. Entsprechend stellt sich die häufig getroffene Annahme, dass die Volumenviskosität, gerade bei der Betrachtung akustischer Problemstellungen, vernachlässigbar klein ist, als nicht haltbar heraus.

Ausblick

Die Realisierung des hier vorgestellten Messverfahrens ist in der aktuellen Form abhängig von Referenzdaten von Fluiden, deren Parameter denen von neu zu analysierenden Fluiden ähneln. Die geringe Auswahl an Referenzdaten schränkt damit zum einen den verfügbaren Messbereich bezüglich Schallgeschwindigkeit und Dichte ein. Zum anderen muss angenommen werden, dass die Referenzdaten selbst nur statistische, mittelwertfreie Abweichungen zeigen. Unsicherheiten in den Referenzmesswerten übertragen sich zudem auf die Unsicherheit des hier vorgestellten referenzdatenbasierten Messverfahrens. Eine Möglichkeit, den Messbereich zu erweitern, bestünde zum Beispiel darin, weitere Referenzmessungen an bisher nicht betrachteten Fluiden durchzuführen. Werden weiterhin nur flüssige Medien untersucht, kämen hier etwa Messungen an Xenon in Frage, welches im

7 Zusammenfassung und Ausblick

flüssigen Zustand eine höhere Dichte und gleichzeitig eine deutlich geringe Schallgeschwindigkeit aufweist als die bisherigen Referenzmedien. Für Xenon liegen dabei sowohl Referenzmessungen (zum Beispiel [Bah75]) als auch die von Chatwell et al. [Cha20b] aufgestellte Zustandsgleichung für die Volumenviskosität vor. Weiterhin können Chatwell et al. auch zeigen, dass sich die Volumenviskosität synthetisch mit Hilfe von Molekulardynamik-Simulationen bestimmen lässt. Derartige Ergebnisse sind nicht von den gleichen systematischen Abweichungen, die im realen Messsystem auftreten, überlagert. Außerdem kann der (virtuelle) thermodynamische Zustand für die Simulation so gewählt werden, dass der Gültigkeitsbereich der Referenzierungsvorschrift, und damit der Messbereich, gezielt erweitert wird. Diese Umstände machen die Molekulardynamik-Simulation zu einem guten Werkzeug zur Generierung von Referenzdaten für zukünftige Messungen.

Weiterhin zeigen die ermittelten Messergebnisse relativ hohe Unsicherheiten. Ursächlich hierfür sind primär relativ hohe statistische Schwankungen der gemessenen thermoviskosen Verluste. Dadurch bleiben die mittleren quadratischen Abweichungen der Referenzierungsvorschrift ebenfalls relativ hoch, was sich schließlich auf die ermittelten Unsicherheiten der Messwerte für die thermoviskosen Verluste und die Volumenviskosität niederschlägt. Um die Schwankungen der gemessenen thermoviskosen Verluste zu reduzieren, können zunächst Maßnahmen zur Reduzierung des Rauschens ergriffen werden. Hier wäre der Einsatz einer vollständig koaxialen Realisierung der Signalleitung sinnvoll, die aktuell, primär bei der Durchführung in den Druckbehälter, nicht gegeben ist. Weiterhin kann der Messeffekt selbst vergrößert werden, indem ein Schallwandler mit höherer Resonanzfrequenz und Bandbreite eingesetzt wird. Der Messeffekt wird dabei aufgrund der quadratischen Frequenzabhängigkeit des Absorptionsmechanismus überproportional größer. Hierbei muss beachtet werden, dass bei einer Wahl einer zu hohen Frequenz eventuell sehr stark absorbierende Fluide nicht mehr analysiert werden können, da die Signale zu stark geschwächt werden. Angestrebt für zukünftige Untersuchungen wird hier der Einsatz von piezokeramischen Schallwandlern mit einer Resonanzfrequenz von etwa 11 MHz.

Während in dieser Arbeit nur Medien im flüssigen Zustand untersucht werden, soll zukünftig auch die Volumenviskosität von Gasen und überkritischen Fluiden ermittelt werden. Für die Untersuchung von stark verdichteten Gasen wurden schon erste Maßnahmen, wie etwa zur Unterdrückung von Körperschallsignalen durch eine überarbeitete Schallwandlerfassung (Abschnitt 5.3.2), getroffen. Die Einkopplung von Ultraschall im bisher verwendeten Frequenzbereich in Gase mit geringer Dichte gestaltet sich jedoch aufgrund des hohen Unterschieds der akustischen Impedanzen als anspruchsvoll, so dass hierfür voraussichtlich eine neue Messanordnung entworfen werden muss. Das vorgestellte Verfahren zur Referenzierung sowie die Algorithmen zur Signalanalyse können jedoch analog angewandt werden. Als Referenzmedien bieten sich hier Edelgase an [Bah75; Cha20b]. Generell kann das Verfahren auch auf anders geartete Messanordnungen übertragen werden, vorausgesetzt, es stehen mindestens zwei akustische Signale zur Verfügung, die unterschiedliche Entfernungen im zu untersuchenden Fluid zurückgelegt haben. Der Ansatz zur Absorptionsbestimmung über die Betrachtung der gewöhnlichen Momente kann so zum Beispiel in prozesstechnischen ultraschallbasierten Messsystemen eingesetzt werden, um eine qualitative Aussage über die Absorption im Fluid zu gewinnen. Nach Durchführung des vorgestellten Referenzierungsprozesses können gerade bei stärker absorbierenden Medien so auch quantitative Aussagen über die Absorption ermittelt werden. Dies ist insbesondere in Anwendungen von Bedeutung, in denen etwa chemisch sehr ähnliche Fluide differenziert werden müssen. Ein Beispiel hierfür sind 1-Propanol und 2-Propanol, die im Rahmen der Ergebnisse dieser Arbeit signifikante Unterschiede in den thermoviskosen Verlusten zeigen.

Die Literaturangaben sind alphabetisch nach dem Nachnamen des ersten Autors und anschließend nach dem Erscheinungsjahr sortiert.

- [All70] J. R. Allegra, S. A. Hawley und G. Holton. "Pressure Dependence of the Ultrasonic Absorption in Toluene and Hexane". In: *The Journal of the Acoustical Society of America* 47.1B (Jan. 1970), S. 144–150. DOI: 10.1121/1.1911446.
- [All72] J. R. Allegra und S. A. Hawley. "Attenuation of Sound in Suspensions and Emulsions: Theory and Experiments". In: *The Journal of the Acoustical Society of America* 51.5B (1972), S. 1545–1564. DOI: 10.1121/1.1912999.
- [Apt19] AptFlex F28. Acoustics Polymers Ltd. 2019.
- [Ass12] M. J. Assael, S. K. Mylona, M. L. Huber und R. A. Perkins. "Reference Correlation of the Thermal Conductivity of Toluene from the Triple Point to 1000 K and up to 1000 MPa". In: *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 41.2 (Juni 2012), S. 023101-1–023101-12. DOI: 10.1063/1.3700155.
- [Ass13] M. J. Assael, S. K. Mylona, C. A. Tsiglifisi, M. L. Huber und R. A. Perkins. "Reference Correlation of the Thermal Conductivity of n-Hexane from the Triple Point to 600 K and up to 500 MPa". In: Journal of Physical and Chemical Reference Data 42.1 (März 2013), S. 013106. DOI: 10.1063/1.4793335.
- [Aul90] B. A. Auld. Acoustic fields and waves in solids. 2. Aufl. Malabar und Fla: Krieger Publ, 1990. ISBN: 978-0-89874-782-9.
- [Avg15] S. Avgeri, M. J. Assael, M. L. Huber und R. A. Perkins. "Reference Correlation of the Viscosity of Toluene from the Triple Point to 675 K and up to 500 MPa". In: *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 44.3 (Sep. 2015), S. 033101. DOI: 10.1063/1.4926955.

- [Awa77] O. Awasthi. "Temperature dependence of ultrasonic attenuation in associated liquids". In: *Physics Letters A* 61.2 (Apr. 1977), S. 122–124. DOI: 10.1016/0375-9601(77)90857-x.
- [Bae16] H. Baehr und S. Kabelac. Thermodynamik: Grundlagen und technische Anwendungen. Springer Berlin Heidelberg, 2016. ISBN: 978-3-662-49567-4.
- [Bah14] F. Bahmani und M. Cramer. "Suppression of shock-induced separation in fluids having large bulk viscosities". In: *Journal* of Fluid Mechanics 756 (2014), R2. DOI: 10.1017/jfm.2014.494.
- [Bah75] B. Baharudin, D. Jackson, P. Schoen und J. Rouch. "Bulk viscosity of liquid argon, krypton and xenon". In: *Physics Letters A* 51.7 (Apr. 1975), S. 409–411. DOI: 10.1016/0375-9601(75)90750-1.
- [Bar96] C. B. Barber, D. P. Dobkin und H. Huhdanpaa. "The Quickhull algorithm for convex hulls". In: ACM Transactions on Mathematical Software 22.4 (1996), S. 469–483. DOI: 10.1145/235815. 235821.
- [Bed63] E. Bedrosian. "A product theorem for Hilbert transforms". In: *Proceedings of the IEEE* 51.5 (Mai 1963), S. 868–869. DOI: 10.1109/PROC.1963.2308.
- [Bel14] I. H. Bell, J. Wronski, S. Quoilin und V. Lemort. "Pure and Pseudo-pure Fluid Thermophysical Property Evaluation and the Open-Source Thermophysical Property Library CoolProp". In: Industrial & Engineering Chemistry Research 53.6 (2014), S. 2498–2508. DOI: 10.1021/ie4033999.
- [Ben05] G. Benedetto, R. M. Gavioso, P. A. G. Albo, S. Lago, D. M. Ripa und R. Spagnolo. "Speed of Sound in Pure Water at Temperatures between 274 and 394 K and at Pressures up to 90 MPa". In: *International Journal of Thermophysics* 26.6 (Nov. 2005), S. 1667–1680. DOI: 10.1007/s10765-005-8587-2.
- [Ber90] H. O. Berktay und M. J. Lancaster. "An analytical expression for the near field of a circular piston radiator". In: *Journal of Sound and Vibration* 137.2 (1990), S. 319–325. ISSN: 0022460X. DOI: 10.1016/0022-460X(90)90795-2.

- [Bet98] H. A. Bethe. "On the Theory of Shock Waves for an Arbitrary Equation of State". In: *Classic Papers in Shock Compression Science*. Hrsg. von J. N. Johnson und R. Chéret. Springer, New York, 1998, S. 421–495. ISBN: 978-1-4612-2218-7. DOI: 10.1007/978-1-4612-2218-7_11.
- [Ble19] Blender Online Community. Blender a 3D modelling and rendering package. Stichting Blender Foundation, Amsterdam, 2019. URL: http://www.blender.org.
- [Bor43] H. Born. "Zur Frage der Absorptionsmessung im Ultraschallgebiet". In: Zeitschrift der Physik 120.5–6 (1943), S. 383–396.
 ISSN: 0044-3328. DOI: 10.1007/BF01325851.
- [Bra99] M. A. Branch, T. F. Coleman und Y. Li. "A Subspace, Interior, and Conjugate Gradient Method for Large-Scale Bound-Constrained Minimization Problems". In: SIAM Journal on Scientific Computing 21.1 (Jan. 1999), S. 1–23. DOI: 10.1137/ s1064827595289108.
- [Bro99] I. Bronstein, K. Semendjajew, G. Musiol und H. Mühlig. Taschenbuch der Mathematik. 4. Aufl. Verlag Harri Deutsch, 1999. ISBN: 978-3-8171-2014-7.
- [Buc05] M. J. Buckingham. "Causality, Stokes' wave equation, and acoustic pulse propagation in a viscous fluid". In: *Physical Review E* 72.2 (Aug. 2005). DOI: 10.1103/PhysRevE.72.026610.
- [Bur74] J. Burgers. The Nonlinear Diffusion Equation: Asymptotic Solutions and Statistical Problems. Lecture series. Springer Netherlands, 1974. ISBN: 978-90-277-0494-8.
- [Car06] J. A. Carlson, A. Jaffe und A. Wiles. The millennium prize problems. The Clay Mathematics Institute, 2006. ISBN: 978-0-8218-3679-8.
- [Car55] E. H. Carnevale und T. A. Litovitz. "Pressure Dependence of Sound Propagation in the Primary Alcohols". In: *The Journal* of the Acoustical Society of America 27.3 (Mai 1955), S. 547– 550. DOI: 10.1121/1.1907959.
- [Cha20a] R. S. Chatwell. Private Korrespondenz. 11. Juni 2020.
- [Cha20b] R. S. Chatwell und J. Vrabec. "Bulk viscosity of liquid noble gases". In: *The Journal of Chemical Physics* 152.9 (März 2020), S. 094503. DOI: 10.1063/1.5142364.

- [Chi15] A. Chikitkin, B. Rogov, G. Tirsky und S. Utyuzhnikov. "Effect of bulk viscosity in supersonic flow past spacecraft". In: *Applied Numerical Mathematics* 93 (2015), S. 47–60. DOI: 10.1016/j. apnum.2014.01.004.
- [Cla16] L. Claes, T. Meyer, F. Bause, J. Rautenberg und B. Henning. "Determination of the material properties of polymers using laser-generated broadband ultrasound". In: Journal of Sensors and Sensor Systems 5.1 (2016), S. 187–196. ISSN: 2194-878X. DOI: 10.5194/jsss-5-187-2016.
- [Cla17a] L. Claes, R. S. Chatwell, J. Vrabec und B. Henning. "A Spectral Approach to Acoustic Absorption Measurement". In: *PRO-CEEDINGS – AMA Conferences 2017*. Hrsg. von AMA Service GmbH. 2017, S. 304–309. ISBN: 978-3-9816876-4-4. DOI: 10.5162/sensor2017/C1.2.
- [Cla17b] L. Claes, A. Jäger, S. Johannesmann, M. Webersen, M. Kupnik und B. Henning. "Acoustic Material Characterization of Additively Manufactured Components". In: *PROCEEDINGS – AMA Conferences 2017.* Hrsg. von AMA Service GmbH. 2017, S. 605– 610. ISBN: 978-3-9816876-4-4. DOI: 10.5162/sensor2017/P2.9.
- [Cla18a] L. Claes, H. Zeipert, P. Koppa, T. Tröster und B. Henning. Additiv gefertigte, akustische Diffusor-Strukturen für Ultraschallanwendungen. Workshop "Messtechnische Anwendungen von Ultraschall". Drübeck, 19. Juni 2018.
- [Cla18b] L. Claes, H. Zeipert, P. Koppa, T. Tröster und B. Henning. "Additively manufactured acoustic diffuser structures for ultrasonic measurement applications". In: *Proceedings of Meetings* on Acoustics. Bd. 32. ASA, 2018, S. 030004. DOI: 10.1121/2. 0000688.
- [Cla19a] L. Claes, L. M. Hülskämper, E. Baumhögger, N. Feldmann, R. S. Chatwell, J. Vrabec und B. Henning. "Acoustic absorption measurement for the determination of the volume viscosity of pure fluids". In: tm - Technisches Messen 86.s1 (2019), S. 2–6. ISSN: 0171-8096. DOI: 10.1515/teme-2019-0038.
- [Cla19b] L. Claes, S. Johannesmann, E. Baumhögger und B. Henning. "Quantification of frequency-dependent absorption phenomena". In: *Proceedings of Meetings on Acoustics*. Bd. 38. ASA, 2019, S. 055002. DOI: 10.1121/2.0001043.

- [Cla19c] L. Claes und M. Webersen. pyfds 0.1.2 modular field simulation tool. github.com/emtpb/pyfds/releases/0.1.2. Apr. 2019. DOI: 10.5281/zenodo.2649827.
- [Cla20a] L. Claes, E. Baumhögger, T. Rüther, J. Gierse, T. Tröster und B. Henning. "Reduction of systematic measurement deviation in acoustic absorption measurement systems". In: *Fortschritte der Akustik - DAGA 2020*. Hrsg. von Deutsche Gesellschaft für Akustik e.V. 2020, S. 1077–1080.
- [Cla20b] L. Claes, C. Steidl, T. Hetkämper und B. Henning. Estimation of acoustic wave non-linearity in ultrasonic measurement systems. 2020. arXiv: 2001.05708 [physics.flu-dyn].
- [Cla20c] L. Claes und M. Webersen. pyfds 0.1.3 modular field simulation tool. github.com/emtpb/pyfds/releases/0.1.3. März 2020. DOI: 10.5281/zenodo.3706625.
- [Cox03] M. Cox, P. Harris und B. R.-L. Siebert. "Evaluation of Measurement Uncertainty Based on the Propagation of Distributions Using Monte Carlo Simulation". In: *Measurement Techniques* 46.9 (Sep. 2003), S. 824–833. DOI: 10.1023/b:mete.0000008439. 82231.ad.
- [Cox16] T. Cox. Acoustic Absorbers and Diffusers, Third Edition: Theory, Design and Application. 3. Aufl. Boca Raton: CRC Press, 2016. ISBN: 978-1-4987-4099-9.
- [DAk10] DAkkS. *Bestimmung von Thermometerkennlinien*. Techn. Ber. Deutsche Akkreditierungsstelle GmbH, 2010.
- [DEG06] Deutsche Gesellschaft für Akustik e.V., Hrsg. *DEGA-Empfehlung 101 Akustische Wellen und Felder.* 20. März 2006.
- [DIN 99] DIN 51562-1. Viskosimetrie Messung der kinematischen Viskosität mit dem Ubbelohde-Viskosimeter - Teil 1: Bauform und Durchführung der Messung. Deutsches Institut für Normung e.V., 1999.
- [Dub14] F. H. Dubberke, D. B. Rasche, E. Baumhögger und J. Vrabec. "Apparatus for the measurement of the speed of sound of ammonia up to high temperatures and pressures". In: *Review of Scientific Instruments* 85.8 (2014), S. 084901. DOI: 10.1063/1.4891795.

- [Dub15] F. H. Dubberke, E. Baumhögger und J. Vrabec. "Burst design and signal processing for the speed of sound measurement of fluids with the pulse-echo technique". In: *Review of Scientific In*struments 86.5 (Mai 2015), S. 054903. DOI: 10.1063/1.4921478.
- [Ema92] G. Emanuel. "Effect of bulk viscosity on a hypersonic boundary layer". In: *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics* 4.3 (1992), S. 491–495. DOI: 10.1063/1.858322.
- [Fei19] Datenblatt Batteriekontakt F708. FEINMETALL GmbH. 2019.
- [Fel19] N. Feldmann, B. Jurgelucks, L. Claes, V. Schulze, B. Henning und A. Walther. "An inverse approach to the characterisation of material parameters of piezoelectric discs with triple-ringelectrodes". In: tm - Technisches Messen 86.2 (2019), S. 59–65. ISSN: 0171-8096. DOI: 10.1515/teme-2018-0066.
- [Fel20] N. Feldmann, V. Schulze, L. Claes, B. Jurgelucks, A. Walther und B. Henning. "Inverse piezoelectric material parameter characterization using a single disc-shaped specimen". In: tm -Technisches Messen 87.s1 (2020), S. 50–55. DOI: 10.1515/teme-2020-0012.
- [Fin83] M. Fink, F. Hottier und J. F. Cardoso. "Ultrasonic Signal Processing for in Vivo Attenuation Measurement: Short Time Fourier Analysis". In: *Ultrasonic Imaging* 5.2 (1983), S. 117– 135. ISSN: 0161-7346. DOI: 10.1177/016173468300500202.
- [Fle69] P. A. Fleury und J. P. Boon. "Brillouin Scattering in Simple Liquids: Argon and Neon". In: *Physical Review* 186.1 (Okt. 1969), S. 244–254. DOI: 10.1103/PhysRev.186.244.
- [Fox46] F. E. Fox und G. D. Rock. "Compressional Viscosity and Sound Absorption in Water at Different Temperatures". In: *Phys. Rev.* 70 (1-2 Juli 1946), S. 68–73. DOI: 10.1103/PhysRev.70.68.
- [Gao20a] K. Gao, J. Wu und E. W. Lemmon. Zustandsgleichung für 1-Propanol (unveröffentlicht). 2020.
- [Gao20b] K. Gao, J. Wu und E. W. Lemmon. Zustandsgleichung für 2-Propanol (unveröffentlicht). 2020.
- [Gib14] I. Gibson, D. Rosen und B. Stucker. Additive Manufacturing Technologies: 3D Printing, Rapid Prototyping, and Direct Digital Manufacturing. Springer New York, 2014. ISBN: 978-1-4419-1119-3.

- [Gil53] D. Gilbarg und D. Paolucci. "The structure of shock waves in the continuum theory of fluids". In: Journal of Rational Mechanics and Analysis 2 (1953), S. 617–642. DOI: 10.1512/ iumj.1953.2.52031.
- [Gro62] S. R. de Groot und P. Mazur. Non-Equilibrium Thermodynamics. Dover Books on Physics. Newburyport: Dover Publications, 1984. ISBN: 978-0-486-64741-8.
- [Gro74] J. de Groot, J. Kestin und H. Sookiazian. "Instrument to measure the thermal conductivity of gases". In: *Physica* 75.3 (Aug. 1974), S. 454–482. DOI: 10.1016/0031-8914(74)90341-3.
- [Gu14a] Z. Y. Gu und W. Ubachs. "A systematic study of Rayleigh-Brillouin scattering in air, N₂, and O₂ gases". In: *The Journal* of *Chemical Physics* 141.10 (Sep. 2014), S. 104320. DOI: 10. 1063/1.4895130.
- [Gu14b] Z. Y. Gu, W. Ubachs und W. van de Water. "Rayleigh-Brillouin scattering of carbon dioxide". In: *Optics Letters* 39.11 (Mai 2014), S. 3301. DOI: 10.1364/ol.39.003301.
- [GUM08] Joint Committee for Guides in Metrology. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. 2008.
- [Guo89] Guo, Ningqun. "The vibration characteristics of piezoelectric discs". Ph.D. thesis. Imperial College of Science, Technology und Medicine, London, 1989.
- [Hab18] M. Habrioux, D. Nasri und J. L. Daridon. "Measurement of speed of sound, density compressibility and viscosity in liquid methyl laurate and ethyl laurate up to 200 MPa by using acoustic wave sensors". In: *The Journal of Chemical Thermodyna*mics 120 (Mai 2018), S. 1–12. DOI: 10.1016/j.jct.2017.12.020.
- [Hal48] L. Hall. "The Origin of Ultrasonic Absorption in Water". In: *Physical Review* 73.7 (Apr. 1948), S. 775–781. DOI: 10.1103/ PhysRev.73.775.
- [Haw67] S. A. Hawley. "Ultrasonic Absorption in Aqueous Suspensions of Small Elastic Particles". Ph.D. thesis. Illinois: University of Illinois at Urbana-Champaign, 1967. DOI: 10.1016/0301-5629(88)90096-8.

- [Haw70] S. A. Hawley, J. R. Allegra und G. Holton. "Ultrasonic-Absorption and Sound-Speed Data for Nine Liquids at High Pressures". In: *The Journal of the Acoustical Society of America* 47.1B (Jan. 1970), S. 137–143. DOI: 10.1121/1.1911444.
- [Hay79] M. Hayes und M. Musgrave. "On energy flux and group velocity". In: *Wave Motion* 1.1 (1979), S. 75–82. ISSN: 0165-2125.
 DOI: 10.1016/0165-2125(79)90027-1.
- [Het16] T. Hetkämper. "Eine flexible Sende- und Empfangsschaltung für das Puls-Echo-Verfahren". Bachelorarbeit. Universität Paderborn, Fachgebiet Elektrische Messtechnik, Juli 2016.
- [Hey08] W. Heywang, K. Lubitz und W. Wersing. Piezoelectricity: Evolution and Future of a Technology. Springer Series in Materials Science. Springer Berlin Heidelberg, 2008. ISBN: 978-3-540-68680-4.
- [Hol11] M. Holmes, N. Parker und M. Povey. "Temperature dependence of bulk viscosity in water using acoustic spectroscopy". In: *Journal of Physics: Conference Series* 269.1 (2011), S. 012011.
 DOI: 10.1088/1742-6596/269/1/012011.
- [Hub05a] M. Huber und R. Perkins. "Thermal conductivity correlations for minor constituent fluids in natural gas: n-octane, n-nonane and n-decane". In: *Fluid Phase Equilibria* 227.1 (Jan. 2005), S. 47–55. DOI: 10.1016/j.fluid.2004.10.031.
- [Hub05b] M. L. Huber, A. Laesecke und H. W. Xiang. "Viscosity correlations for minor constituent fluids in natural gas: n-octane, n-nonane and n-decane". In: *Fluid Phase Equilibria* 228-229 (Feb. 2005), S. 401–408. DOI: 10.1016/j.fluid.2005.03.008.
- [Hub09] M. L. Huber, R. A. Perkins, A. Laesecke, D. G. Friend, J. V. Sengers, M. J. Assael, I. N. Metaxa, E. Vogel, R. Mareš und K. Miyagawa. "New international formulation for the viscosity of H₂O". In: Journal of Physical and Chemical Reference Data 38.2 (2009), S. 101–125. DOI: 10.1063/1.3088050.
- [Hub12] M. L. Huber, R. A. Perkins, D. G. Friend, J. V. Sengers, M. J. Assael, I. N. Metaxa, K. Miyagawa, R. Hellmann und E. Vogel. "New International Formulation for the Thermal Conductivity of H₂O". In: *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 41.3 (Sep. 2012), S. 033102. DOI: 10.1063/1.4738955.
- [Hül19] L. M. Hülskämper. "Unsicherheitsanalyse referenzdatenbasierter Messverfahren am Beispiel akustischer Absorptionsmessung". Masterarbeit. Universität Paderborn, Fachgebiet Elektrische Messtechnik, Nov. 2019.
- [Huy90] C. Huygens. Traite de la lumiere: Où sont expliquées les causes de ce qui luy arrive dans la reflexion, & dans la refraction. Et particulierement dans l'etrange refraction du cristal d'Islande. Chez Pierre vander Aa, 1690.
- [Jäg17] A. Jäger, S. Johannesmann, L. Claes, M. Webersen, B. Henning und M. Kupnik. "Evaluating the Influence of 3D-Printing Parameters on Acoustic Material Properties". In: 2017 IEEE IUS Proceedings. 2017.
- [Jav19] M. A. Javed, E. Baumhögger und J. Vrabec. "Thermodynamic Speed of Sound Data for Liquid and Supercritical Alcohols". In: Journal of Chemical & Engineering Data 64.3 (Feb. 2019), S. 1035–1044. DOI: 10.1021/acs.jced.8b00938.
- [Joh68] W. H. Johnson Jr. und G. Holton. "Analysis of Ultrasonic Absorption Measurements in Liquids at High Pressure". In: *Review of Scientific Instruments* 39.9 (1968), S. 1247–1253. DOI: 10.1063/1.1683643.
- [Kal10] M. Kaltenbacher. "Advanced simulation tool for the design of sensors and actuators". In: *Procedia Engineering* 5 (2010). Eurosensor XXIV Conference, S. 597–600. ISSN: 1877-7058. DOI: 10.1016/j.proeng.2010.09.180.
- [Kaz19] N. V. Kazantseva, A. G. Merkushev, D. A. Shishkin, I. V. Ezhov, D. I. Davidov, M. B. Rigmant, P. B. Terent'ev und L. Y. Egorova. "Magnetic Properties and Structure of Products from 1.4540 Stainless Steel Manufactured by 3D Printing". In: *Physics of Metals and Metallography* 120.13 (Dez. 2019), S. 1270–1275. DOI: 10.1134/s0031918x19130118.
- [Kir68] G. Kirchhoff. "Ueber den Einflufs der Wärmeleitung in einem Gase auf die Schallbewegung". In: Annalen der Physik und Chemie 210.6 (1868), S. 177–193. DOI: 10.1002/andp.18682100602.
- [Kor71a] S. K. Kor, O. N. Awasthi, G. Rai und S. C. Deorani. "Structural Absorption of Ultrasonic Waves in Methanol". In: *Physical Review A* 3.1 (Jan. 1971), S. 390–393. DOI: 10.1103/PhysRevA. 3.390.

- [Kor71b] S. K. Kor und S. C. Deorani. "Correlation Between Acoustic and Dielectric Relaxation Times in Liquids". In: *Phys. Rev. Lett.* 27 (5 Aug. 1971), S. 242–244. DOI: 10.1103/PhysRevLett.27.242.
- [Kor71c] S. K. Kor, S. C. Deorani und B. K. Singh. "Origin of Ultrasonic Absorption in Methanol". In: *Physical Review A* 3.5 (Mai 1971), S. 1780–1783. DOI: 10.1103/PhysRevA.3.1780.
- [Kor71d] S. K. Kor, S. C. Deorani, B. K. Singh, R. Prasad und U. S. Tandon. "Ultrasonic Study of Structural Relaxation in Ethanol". In: *Physical Review A* 4.3 (Sep. 1971), S. 1299–1302. DOI: 10. 1103/PhysRevA.4.1299.
- [Kor71e] S. K. Kor, B. K. Singh und R. Prasad. "Hall's theory of structural absorption in ethanol". In: *Physics Letters A* 35.2 (Mai 1971), S. 99–100. DOI: 10.1016/0375-9601(71)90566-4.
- [Kor85] P. J. Kortbeek, M. J. P. Muringer, N. J. Trappeniers und S. N. Biswas. "Apparatus for sound velocity measurements in gases up to 10 kbar: Experimental data for argon". In: *Review of Scientific Instruments* 56.6 (Juni 1985), S. 1269–1273. DOI: 10.1063/1.1137990.
- [Kra86] J. Krautkrämer, H. Krautkrämer, W. Grabendörfer, R. Frielinghaus, W. Kaule, L. Niklas, U. Opara, E. Primbsch, U. Schlengermann, H. Seiger et al. Werkstoffprüfung mit Ultraschall. Springer Berlin Heidelberg, 1986. ISBN: 978-3-662-10910-6.
- [Kuc79] R. Kuc und M. Schwartz. "Estimating the Acoustic Attenuation Coefficient Slope for Liver from Reflected Ultrasound Signals". In: *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics* 26.5 (1979), S. 353–361. DOI: 10.1109/T-SU.1979.31116.
- [Lam92] J. Lambert und E. Anding. Lamberts Photometrie: Photometria, sive De mensura et gradibus luminus, colorum et umbrae (1760).
 W. Engelmann, 1892.
- [Lan17] H. P. Langtangen und S. Linge. Finite Difference Computing with PDEs: A Modern Software Approach. Springer International Publishing, 2017. ISBN: 978-3-319-55456-3. DOI: 10.1007/978-3-319-55456-3.
- [Lan60] L. D. Landau. Electrodynamics of Continuous Media. Bd. 8. Pergamon Press Ltd., 1960.

- [Lan91] L. D. Landau und E. M. Lifšic. *Hydrodynamik*. Hrsg. von A. Kühnel und W. Weller. Lehrbuch der theoretischen Physik. Akademie Verlag GmbH, 1991. ISBN: 978-3-05-500070-6.
- [Lem06] E. W. Lemmon und R. Span. "Short Fundamental Equations of State for 20 Industrial Fluids". In: Journal of Chemical & Engineering Data 51.3 (Mai 2006), S. 785–850. DOI: 10.1021/ je050186n.
- [Lem13] E. W. Lemmon, M. L. Huber und M. O. McLinden. "REFPROP 9.1". In: *NIST Standard Reference Database* 23 (2013).
- [Ler09] R. Lerch, G. Sessler und D. Wolf. Technische Akustik: Grundlagen und Anwendungen. Springer, 2009. ISBN: 978-3-540-23430-2.
 DOI: 10.1007/978-3-540-49833-9.
- [Lev44] K. Levenberg. "A method for the solution of certain non-linear problems in least squares". In: *Quarterly of applied mathematics* 2.2 (1944), S. 164–168. DOI: 10.1090/qam/10666.
- [Lit55] T. A. Litovitz und E. H. Carnevale. "Effect of Pressure on Sound Propagation in Water". In: Journal of Applied Physics 26.7 (1955), S. 816–820. DOI: 10.1063/1.1722101.
- [Ma14] Y. Ma, H. Li, Z. Gu, W. Ubachs, Y. Yu, J. Huang, B. Zhou, Y. Wang und K. Liang. "Analysis of Rayleigh-Brillouin spectral profiles and Brillouin shifts in nitrogen gas and air". In: *Optics Express* 22.2 (Jan. 2014), S. 2092. DOI: 10.1364/oe.22.002092.
- [Mai87] F. Mainardi. "Energy velocity for hyperbolic dispersive waves".
 In: Wave Motion 9.3 (1987), S. 201–208. ISSN: 01652125. DOI: 10.1016/0165-2125(87)90010-2.
- [Mar05] W. Martienssen und H. Warlimont. Springer handbook of condensed matter and materials data. Heidelberg und New York: Springer, 2005. ISBN: 978-3-540-30437-1.
- [Mar63] D. W. Marquardt. "An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters". In: Journal of the society for Industrial and Applied Mathematics 11.2 (1963), S. 431–441. DOI: 10.1137/ 0111030.
- [Mas35] W. P. Mason. "An Electromechanical Representation of a Piezoelectric Crystal Used as a Transducer". In: Bell System Technical Journal 14.4 (Okt. 1935), S. 718–723. DOI: 10.1002/j.1538-7305.1935.tb00713.x.

- [Mat18] Wolfram Research, Inc. *Mathematica, Version 11.3*. Champaign, IL, 2018.
- [Mei06] K. Meier und S. Kabelac. "Speed of sound instrument for fluids with pressures up to 100 MPa". In: *Review of Scientific Instruments* 77.12 (Dez. 2006), S. 123903. DOI: 10.1063/1. 2400019.
- [Mey79] E. Meyer und E.-G. Neumann. Physikalische und Technische Akustik: Eine Einführung mit zahlreichen Versuchsbeschreibungen. Friedrich Vieweg & Sohn, 1979. ISBN: 978-3-528-28255-4.
- [Mic13] E. K. Michailidou, M. J. Assael, M. L. Huber und R. A. Perkins. "Reference Correlation of the Viscosity of n-Hexane from the Triple Point to 600 K and up to 100 MPa". In: Journal of Physical and Chemical Reference Data 42.3 (Sep. 2013), S. 033104. DOI: 10.1063/1.4818980.
- [Mon68] C. J. Montrose, V. A. Solovyev und T. A. Litovitz. "Brillouin Scattering and Relaxation in Liquids". In: The Journal of the Acoustical Society of America 43.1 (Jan. 1968), S. 117–130. DOI: 10.1121/1.1910741.
- [Mor36] A. de Morgan. *The Differential and Integral Calculus*. Library of useful knowledge. Baldwin und Cradock, 1836.
- [Mös15] M. Möser. *Technische Akustik*. VDI-Buch. Springer Berlin Heidelberg, 2015. ISBN: 978-3-662-47703-8.
- [Mou66] R. D. Mountain. "Thermal relaxation and Brillouin scattering in liquids". In: JOURNAL OF RESEARCH of the National Bureau of Standards — A. Physics and Chemistry 70.3 (1966), S. 207–220. DOI: 10.6028/jres.070A.017.
- [Olf13] S. Olfert, L. Claes und B. Henning. "Influence of angular radiated ultrasound waves on the Schlieren tomogram". In: Proceedings of the International Conference on Acoustics. Berlin: DEGA, 2013, S. 477–480.
- [Olf14] S. Olfert, L. Claes und B. Henning. "Rekonstruktion der räumlichen Schallwechseldruckverteilung unter Berücksichtigung der Orthogonalität optischer und akustischer Achsen beim Schlierenverfahren". In: Fortschritte der Akustik - DAGA 2014. Hrsg. von Deutsche Gesellschaft für Akustik e.V. 2014, S. 541–542.

- [Olf16] S. Olfert und B. Henning. "Erweiterung des Raman-Nath-Modells zur Analyse von Schlierenabbildungen". In: tm - Technisches Messen 83.4 (2016), S. 219–224. DOI: 10.1515/teme-2015-0116.
- [Opp97] A. Oppenheim, A. Willsky und S. Nawab. *Signals and Systems*. Prentice Hall signal processing series. Prentice Hall, 1997. ISBN: 978-0-13-809731-8.
- [Pel46] J. R. Pellam und J. K. Galt. "Ultrasonic Propagation in Liquids:
 I. Application of Pulse Technique to Velocity and Absorption Measurements at 15 Megacycles". In: *The Journal of Chemical Physics* 14.10 (1946), S. 608–614. DOI: 10.1063/1.1724072.
- [Pia13] L. Piazza und R. Span. "An equation of state for methanol including the association term of SAFT". In: *Fluid Phase Equilibria* 349 (Juli 2013), S. 12–24. DOI: 10.1016/j.fluid.2013.03.024.
- [Pin47] J. M. M. Pinkerton. "A Pulse Method for the Measurement of Ultrasonic Absorption in Liquids: Results for Water". In: *Nature* 160 (Juli 1947), S. 128–129. DOI: 10.1038/160128b0.
- [Pin49] J. M. M. Pinkerton. "The absorption of ultrasonic waves in liquids and its relation to molecular constitution". In: Proceedings of the Physical Society. Section B 62.2 (1949), S. 129–141. DOI: 10.1088/0370-1301/62/2/307.
- [Poz09] C. Pozrikidis. Fluid Dynamics: Theory, Computation, and Numerical Simulation. Springer US, 2009. ISBN: 978-0-387-95871-2.
- [Qua97] Y. Quan und J. M. Harris. "Seismic attenuation tomography using the frequency shift method". In: *GEOPHYSICS* 62.3 (1997), S. 895–905. DOI: 10.1190/1.1444197.
- [Ram35] C. V. Raman und N. S. Nagendra Nath. "The diffraction of light by high frequency sound waves: Part I." In: *Proceedings* of the Indian Academy of Sciences - Section A 2.4 (Okt. 1935), S. 406–412. ISSN: 0973-7685. DOI: 10.1007/BF03035840.
- [Ric22] L. Richardson. Weather Prediction by Numerical Process. Cambridge, The University press, 1922.
- [Röm09] H. Römer. *Theoretical Optics: An Introduction*. Wiley, 2009. ISBN: 978-3-527-40776-7.

- [Rou76] J. Rouch, C. C. Lai und S. H. Chen. "Brillouin scattering studies of normal and supercooled water". In: *The Journal* of *Chemical Physics* 65.10 (Nov. 1976), S. 4016–4021. DOI: 10.1063/1.432853.
- [Rud77] O. V. Rudenko, S. I. Solujan und R. T. Beyer. *Theoretical foundations of nonlinear acoustics*. Studies in Soviet science. New York: Consultants Bureau, 1977. ISBN: 978-1-4899-4796-3.
- [Rut17] G. Rutkai et al. "ms2: A molecular simulation tool for thermodynamic properties, release 3.0". In: Computer Physics Communications 221 (Dez. 2017), S. 343–351. DOI: 10.1016/j.cpc. 2017.07.025.
- [Sch02] F. Schwabl. *Quantenmechanik (QM I)*. Springer-Lehrbuch. Springer, 2002. ISBN: 978-3-662-09629-1.
- [Sch17] M. Schappals et al. "Round Robin Study: Molecular Simulation of Thermodynamic Properties from Models with Internal Degrees of Freedom". In: *Journal of Chemical Theory and Computation* 13.9 (2017), S. 4270–4280. DOI: 10.1021/acs.jctc.7b00489.
- [Sch20] S. Schmidt. Private Korrespondenz. 28. Jan. 2020.
- [Sch79] M. R. Schroeder. "Binaural dissimilarity and optimum ceilings for concert halls: More lateral sound diffusion". In: *The Journal* of the Acoustical Society of America 65.4 (1979), S. 958–963. ISSN: 0001-4966. DOI: 10.1121/1.382601.
- [Seh95] C. M. Sehgal. "Non-linear ultrasonics to determine molecular properties of pure liquids". In: *Ultrasonics* 33.2 (Jan. 1995), S. 155–161. DOI: 10.1016/0041-624x(94)00014-g.
- [Sin82] G. P. Singh und J. L. Rose. "A Simple Model for Computing Ultrasonic Beam Behavior of Broad-band Transducers". In: *Materials Evaluation* 40 (1982), S. 880–885.
- [Smi48] M. C. Smith und R. T. Beyer. "Ultrasonic Absorption in Water in the Temperature Range 0 °C–80 °C". In: The Journal of the Acoustical Society of America 20.5 (1948), S. 608–610. DOI: 10.1121/1.1906415.
- [Smi99] A. J. Smits. A Physical Introduction to Fluid Mechanics. Wiley, 1999. ISBN: 978-0-471-25349-5.

- [Spa03] R. Span und W. Wagner. "Equations of State for Technical Applications. II. Results for Nonpolar Fluids". In: International Journal of Thermophysics 24.1 (2003), S. 41–109. DOI: 10.1023/ a:1022310214958.
- [Šut84] V. A. Šutilov und P. Hauptmann. *Physik des Ultraschalls: Grundlagen.* Springer Vienna, 1984. ISBN: 978-3-7091-8751-7.
- [Sut93] S. P. Sutera und R. Skalak. "The history of Poiseuille's law". In: Annual Review of Fluid Mechanics 25.1 (1993), S. 1–20. DOI: 10.1146/annurev.fl.25.010193.000245.
- [Sut96] R. L. Sutherland. *Handbook of nonlinear optics*. Marcel Dekker, Inc., 1996. ISBN: 978-0-8247-4243-0.
- [Syk13] E. A. Sykioti, M. J. Assael, M. L. Huber und R. A. Perkins. "Reference Correlation of the Thermal Conductivity of Methanol from the Triple Point to 660 K and up to 245 MPa". In: *Journal* of Physical and Chemical Reference Data 42.4 (Dez. 2013), S. 043101. DOI: 10.1063/1.4829449.
- [Tie19] Handyscope HS5 specifications. TiePie engineering. 2019.
- [Vir20] P. Virtanen et al. "SciPy 1.0: Fundamental Algorithms for Scientific Computing in Python". In: *Nature Methods* 17 (2020), S. 261–272. DOI: 10.1038/s41592-019-0686-2.
- [Vis07] D. Viswanath, T. Ghosh, D. Prasad, N. Dutt und K. Rani. Viscosity of Liquids: Theory, Estimation, Experiment, and Data. Springer Netherlands, 2007. ISBN: 978-1-4020-5481-5.
- [Vra19] J. Vrabec und R. S. Chatwell. Private Korrespondenz. 11. März 2019.
- [Wag02] W. Wagner und A. Pruß. "The IAPWS Formulation 1995 for the Thermodynamic Properties of Ordinary Water Substance for General and Scientific Use". In: Journal of Physical and Chemical Reference Data 31.2 (Juni 2002), S. 387–535. DOI: 10.1063/1.1461829.
- [Wal11] S. van der Walt, S. C. Colbert und G. Varoquaux. "The NumPy Array: A Structure for Efficient Numerical Computation". In: *Computing in Science & Engineering* 13.2 (März 2011), S. 22– 30. DOI: 10.1109/mcse.2011.37.

- [Web18] M. Webersen, S. Johannesmann, J. Düchting, L. Claes und B. Henning. "Guided ultrasonic waves for determining effective orthotropic material parameters of continuous-fiber reinforced thermoplastic plates". In: Ultrasonics 84 (2018), S. 53–62. DOI: 10.1016/j.ultras.2017.10.005.
- [Weg15] R. Wegge, M. Richter und R. Span. "Speed of Sound Measurements in Ethanol and Benzene over the Temperature Range from 253,2 to 353,2 K at Pressures up to 30 MPa". In: Journal of Chemical & Engineering Data 60.5 (März 2015), S. 1345– 1353. DOI: 10.1021/je501065g.
- [Wey49] H. Weyl. "Shock waves in arbitrary fluids". In: Communications on Pure and Applied Mathematics 2.2-3 (1949), S. 103–122. DOI: 10.1002/cpa.3160020201.
- [Xia06] H. W. Xiang, A. Laesecke und M. L. Huber. "A new reference correlation for the viscosity of methanol". In: Journal of physical and chemical reference data 35.4 (2006), S. 1597–1620. DOI: 10.1063/1.2360605.
- [Xu03] J. Xu, X. Ren, W. Gong, R. Dai und D. Liu. "Measurement of the bulk viscosity of liquid by Brillouin scattering". In: Applied Optics 42.33 (Nov. 2003), S. 6704–6709. DOI: 10.1364/AO.42. 006704.
- [Yee66] K. Yee. "Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media". In: *IEEE Transactions on Antennas and Propagation* 14.3 (Mai 1966), S. 302–307. DOI: 10.1109/tap.1966.1138693.
- [Zie13] O. Zienkiewicz, R. Taylor und J. Zhu. The Finite Element Method: Its Basis and Fundamentals. Butterworth-Heinemann, 2013. ISBN: 978-1-85617-633-0.

A Ergänzende Betrachtungen

A.1 Umformungen mathematischer Ausdrücke

In diesem Abschnitt sind einige im Rahmen der Arbeit verwendete, mathematische Umformungen aufgeführt.

A.1.1 Kosinus und Sinus des halben Arkustangens

Die Ausdrücke $\cos\left(\frac{1}{2}\arctan x\right)$ und $\sin\left(\frac{1}{2}\arctan x\right)$ treten vor allem dann auf, wenn die Wurzel einer komplexen Zahl in Real- und Imaginärteil zerlegt werden muss (siehe zum Beispiel Abschnitt 2.1.3). Über den Halbwinkelsatz [Bro99] lassen sich zunächst die folgenden Zusammenhänge herstellen:

$$\cos\left(\frac{1}{2}\arctan x\right) = \sqrt{\frac{1+\cos\arctan x}{2}}$$
 und (A.1)

$$\sin\left(\frac{1}{2}\arctan x\right) = \sqrt{\frac{1 - \cos \arctan x}{2}}.$$
 (A.2)

Der Term $\cos(\arctan x)$ kann ohne trigonometrische Funktionen wie folgt dargestellt werden [Mat18]:

$$\cos\left(\arctan x\right) = \frac{1}{\sqrt{x^2 + 1}}.\tag{A.3}$$

Durch Einsetzen und Vereinfachen ergeben sich dann folgende Zusammenhänge:

$$\cos\left(\frac{1}{2}\arctan x\right) = \sqrt{\frac{\sqrt{x^2 + 1} + 1}{2\sqrt{x^2 + 1}}} \quad \text{und} \tag{A.4}$$

$$\sin\left(\frac{1}{2}\arctan x\right) = \sqrt{\frac{\sqrt{x^2 + 1} - 1}{2\sqrt{x^2 + 1}}}.$$
 (A.5)

161

A.1.2 Schwerpunkt der Kreuzkorrelationsfunktion

Ziel ist es, zu zeigen, wie der Schwerpunkt der Kreuzkorrelationsfunktion zweier Signale mit den Schwerpunkten der ursprünglichen Signale zusammenhängt. Gegeben sei die Kreuzkorrelationsfunktion $\Phi_{xy}(\tau)$ der reellen Signale x(t) und y(t):

$$\Phi_{xy}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} x(t) \cdot y(t+\tau) \mathrm{d} t.$$
 (A.6)

Der Schwerpunkt bezüglich der Verschiebung τ ist über das nullte und erste gewöhnliche Moment definiert:

$$\tau_{\mathbf{s}\Phi_{xy}} = \frac{m_1(\Phi_{xy})}{m_0(\Phi_{xy})} \tag{A.7}$$

$$= \frac{\int\limits_{-\infty}^{\infty} \tau \int\limits_{-\infty}^{\infty} x(t) \cdot y(t+\tau) \mathrm{d} t \mathrm{d} \tau}{\int\limits_{-\infty}^{\infty} \int\limits_{-\infty}^{\infty} x(t) \cdot y(t+\tau) \mathrm{d} t \mathrm{d} \tau}.$$
(A.8)

Tauschen der inneren und äußeren Integrale in Zähler und Nenner führt auf folgenden Ausdruck:

$$\tau_{\mathbf{s}\Phi_{xy}} = \frac{\int\limits_{-\infty}^{\infty} x(t) \int\limits_{-\infty}^{\infty} \tau \cdot y(t+\tau) \mathrm{d}\,\tau \mathrm{d}\,t}{\int\limits_{-\infty}^{\infty} x(t) \int\limits_{-\infty}^{\infty} y(t+\tau) \mathrm{d}\,\tau \mathrm{d}\,t}.$$
(A.9)

Nun sollen zunächst die jeweils inneren Integrale betrachtet werden. Für den Ausdruck im Zähler $(\int_{-\infty}^{\infty} \tau \cdot y(t+\tau) d\tau)$ wird zunächst eine Nebenbetrachtung durchgeführt: Folgende Gleichung entspricht gerade dem um -t verschobenen Schwerpunkt τ_{sy} des Signals y bezüglich τ :

$$\frac{\int\limits_{-\infty}^{\infty} \tau \cdot y(t+\tau) \mathrm{d}\,\tau}{\int\limits_{-\infty}^{\infty} y(t+\tau) \mathrm{d}\,\tau} = \tau_{\mathrm{s}y} - t. \tag{A.10}$$

Auf das im Nenner stehende Integral hat die Verschiebung um -t keine Auswirkung. Demnach entspricht der Nenner gerade dem nullten Moment $m_0(y)$ des Signals y. Äquivalenzumformung führt dann auf folgenden

A.1 Umformungen mathematischer Ausdrücke

Zusammenhang:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \tau \cdot y(t+\tau) \mathrm{d}\,\tau = (\tau_{\mathrm{s}y} - t)m_0(y). \tag{A.11}$$

Drückt man den Schwerpunkt des Signals y nun über die Momente aus, zeigt sich, dass sich das Integral im Zähler von Gleichung A.9 durch folgenden Ausdruck ersetzen lässt:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \tau \cdot y(t+\tau) \mathrm{d}\,\tau = \left(\frac{m_1(y)}{m_0(y)} - t\right) m_0(y) = m_1(y) - t \cdot m_0(y). \quad (A.12)$$

Das innere Integral im Zähler von Gleichung A.9 entspricht gerade dem nullten gewöhnlichen Moment von y; auch hier hat die Verschiebung keine Auswirkung auf das Integral. Der Ausdruck für den Schwerpunkt der Kreuzkorrelationsfunktion nimmt also die folgende Form an:

$$\tau_{s\Phi_{xy}} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x(t)(m_1(y) - t \cdot m_0(y)) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} x(t) \cdot m_0(y) dt}$$
(A.13)
$$= \frac{m_1(y) \int_{-\infty}^{\infty} x(t) dt - m_0(y) \int_{-\infty}^{\infty} tx(t) dt}{m_0(y) \int_{-\infty}^{\infty} x(t) dt}.$$
(A.14)

Die verbleibenden Integrale entsprechen den gewöhnlichen Momenten (m_{0x}) bzw. m_{1x}) des Signals x. Demnach ergibt sich:

$$\tau_{\mathbf{s}\Phi_{xy}} = \frac{m_1(y)m_0(x) - m_1(x)m_0(y)}{m_0(x)m_0(y)} \tag{A.15}$$

$$= \frac{m_1(y)}{m_0(y)} - \frac{m_1(x)}{m_0(x)}$$
(A.16)

$$=t_{sy}-t_{sx}.$$
 (A.17)

Der Schwerpunkt der Kreuzkorrelationsfunktion zweier Signale entspricht demnach der Differenz der Schwerpunkte der Signale selbst.

A.2 Skalares Potenzial für verlustbehaftete akustische Wellen

Für verschiedene Betrachtungen ist es sinnvoll, ein skalares Potenzial ϕ für die Schallschnelle anzusetzen. Dieses kann wie folgt gewählt werden [Ler09]:

$$\vec{v} = -\text{grad}\,\phi.\tag{A.18}$$

Es zeigt sich, dass der Zusammenhang zwischen Wechseldruck p und akustischem Skalarpotenzial ϕ aufgrund der Verluste nicht einer einfachen skalierten Zeitableitung entspricht (siehe zum Beispiel [Ler09]), sondern nach Gleichung 2.10 folgende Form annimmt:

$$p = \rho_0 \partial_t \phi - \left(\frac{4}{3}\mu_s + \mu_v\right) \Delta \phi.$$
 (A.19)

Einsetzen in die Wellengleichung 2.26 liefert die Wellengleichung für das Skalarpotenzial:

$$\partial_{tt}\phi = c^2 \Delta \phi + \frac{\mu}{\rho_0} \Delta \partial_t \phi. \tag{A.20}$$

Ein Vorteil des Potenzials ϕ ist, dass aus diesem sowohl Wechseldruckals auch Schnellefeld bestimmt werden können. Dies ist vor allem dann sinnvoll, wenn beide Felder für bestimmte Betrachtungen bekannt sein müssen. Alternativ wäre hier eine Bestimmung des Wechseldruckfelds aus einem gegebenen Schnellefeld (oder umgekehrt) möglich. Anhand der zuvor gezeigten Gleichungen (zum Beispiel Gleichung 2.10) wird deutlich, dass dafür jedoch zumindest ein Ableitungsoperator invertiert werden müsste.

A.3 Einfluss der Signalbandbreite auf die Nahfeldeigenschaften

Bei der Beschreibung eines Schallwandlers durch das Kolbenschwingermodell (siehe Abschnitt 2.2) handelt es sich um eine Betrachtung im Frequenzbereich. Daraus resultiert, dass die ermittelten Zusammenhänge für das Feld auf der akustischen Achse und für das Fernfeld nur für monofrequente Anregung, also für den eingeschwungenen Zustand, gelten. Im Folgenden wird ein numerischer Ansatz vorgestellt, mit dem die Eigenschaften des Nahfelds auch bei nicht-monofrequenter Anregung abgeschätzt werden können.

A.3 Einfluss der Signalbandbreite auf die Nahfeldeigenschaften

Ausgangspunkt ist dabei ein im Frequenzbereich diskretisiertes Spektrum $p''_{0\omega_i}$ des Schallwechseldrucks an der Schallwandleroberfläche. Dieses lässt sich zum Beispiel durch Fourier-Transformation aus einem anregenden Signal ermitteln. Für jede spektrale Komponente (abhängig von ω_i) lässt sich das Feld auf der akustischen Achse analog zu Gleichung 2.44 wie folgt beschreiben:

$$p_{\omega_i} = \frac{j2\pi p_{0\omega_i}^{\prime\prime} c}{\omega_i} \left(e^{j\frac{\omega_i}{c}r} - e^{j\frac{\omega_i}{c}\sqrt{r^2 + R^2}} \right), \qquad (A.21)$$

wobei hier im Vergleich zu Gleichung 2.44 noch der bekannte Zusammenhang $k = \frac{\omega}{c}$ zwischen Kreiswellenzahl k, Kreisfrequenz ω und Schallgeschwindigkeit c eingesetzt wird. Das Superpositionsprinzip ermöglicht nun eine Überlagerung dieser spektralen Komponenten zur Ermittlung des resultierenden Schallwechseldrucks auf der akustischen Achse für nichtmonofrequente Anregung. Unberücksichtigt bleibt bei dieser Betrachtung dabei, zu welchem Zeitpunkt die jeweiligen spektralen Anteile des akustischen Signals eintreffen. Das Ergebnis ist analog der über den Zeitbereich integral empfangenen Energie am ausgewerteten Punkt auf der akustischen Achse. Da es sich bei den spektralen Anteilen des Schallwechseldrucks p_{ω_i} um komplexe Ausdrücke handelt, werden entsprechend die Betragsquadrate aufsummiert:

$$p = \left(\sum_{i} |p_{\omega_i}|^2\right)^{\frac{1}{2}} \tag{A.22}$$

$$= \left(\sum_{i} \left| \frac{\mathrm{j}2\pi p_{0\omega_{i}}'^{c}}{\omega_{i}} \left(\mathrm{e}^{\mathrm{j}\frac{\omega_{i}}{c}r} - \mathrm{e}^{\mathrm{j}\frac{\omega_{i}}{c}\sqrt{r^{2}+R^{2}}} \right) \right|^{2} \right)^{\frac{1}{2}}.$$
 (A.23)

Die umschließende Wurzel dient hier dazu, ein mit einem Schallwechseldruck qualitativ vergleichbares Ergebnis zu liefern.

Setzt man als anregendes Signal ein gaußförmig moduliertes Sinussignal (bzw. ein gaußförmiges Spektrum) mit unterschiedlichen relativen Bandbreiten $b_{\rm rel}$ an, ergeben sich aus Gleichung A.23 die in Abbildung A.1 dargestellten Verläufe für den (integral erfassten) Schallwechseldruck auf der akustischen Achse. Erwartungsgemäß konvergiert der Ausdruck für kleine relative Bandbreiten gegen den monofrequenten Ausdruck aus der Kolbenschwingerbetrachtung. Weiterhin wird deutlich, dass die im monofrequenten Fall auftretenden Oszillationen mit steigender Bandbreite geringer werden. Besonders bemerkenswert ist dabei, dass, abhängig von der Bandbreite, in unmittelbarer Nähe der akustischen Quelle ein Bereich auftritt, in dem der Schallwechseldruck zunächst konstant bleibt. Außerdem

A Ergänzende Betrachtungen



Abbildung A.1: Schallwechseldruckamplitude auf der akustischen Achse eines Kolbenschwingers bei unterschiedlichen relativen Signalbandbreiten $b_{\rm rel}$.

verschiebt sich das letzte Schallwechseldruckmaximum (vgl. Nahfeldlänge, Abbildung 2.3) für große Bandbreiten in Richtung Schallwandler. Die Verläufe ähneln dabei den in [Sin82] veröffentlichten Ergebnissen, wobei Singh et al. zur Berechnung auf eine aufwändigere Finite Elemente Modellierung zurückgreifen.

Im Kontext der Betrachtung systematischer Messabweichungen bei der akustischen Absorptionsmessung lässt sich also folgern, dass ein möglichst breitbandiger Betrieb des Schallwandlers zu geringeren und stetigeren Abweichungen durch die Schallfeldeigenschaften führen kann. Weiterhin kann sich eine Erhöhung der Mittenfrequenz des gesendeten Signals (bei sonst gleichbleibenden Parametern des Schallwandlers) positiv auswirken, da so die Nahfeldlänge (siehe Gleichung 2.45) und somit der Bereich nah am Schallwandler, in dem der Schallwechseldruck konstant bleibt, ebenfalls größer wird.

A.4 Eigenschaften gewöhnlicher Momente des Spektrums akustischer Signale

Für eine bessere Approximation der Ableitung gewöhnlicher Momente des Spektrums eines akustischen Signals ist es hilfreich, den Verlauf der Momente über die zurückgelegte Entfernung z näher zu untersuchen. Ausgegangen wird von einem vom Schallwandler emittierten Spektrum $U_0(\omega)$, welches durch frequenzabhängige Verlustmechanismen im Medium beeinflusst wird:

$$U(\omega, z) = U_0(\omega) e^{-a\omega^2 z}.$$
 (A.24)

Die gewöhnlichen Momente dieses Spektrums sind dann wie folgt definiert:

$$m_i(U(\omega, z)) = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^i \cdot U_0(\omega) e^{-\omega^2 a z} d\omega.$$
 (A.25)

Prinzipiell müssen nun Betrachtungen für beliebige Ausgangsspektren $U_0(\omega)$ und beliebige Ordnungen *i* gemacht werden. Untersuchungen, die keinerlei Annahmen über die Form von $U_0(\omega)$ treffen, führen jedoch nach aktuellem Stand zu keinen sinnvollen Aussagen. Daher sollen an dieser Stelle beispielhaft einige Grenzfälle betrachtet werden.

A.4.1 Gaußförmiges Ausgangsspektrum

Zunächst sollen die gewöhnlichen Momente eines gaußförmigen Spektrums untersucht werden:

$$U_0(\omega) = \hat{U} e^{-\left(\frac{\omega - \omega_{\rm m}}{b}\right)^2}.$$
 (A.26)

Die Parameter b und $\omega_{\rm m}$ sind hier die Mittenfrequenz und die Bandbreite. Da zur Bestimmung der gewöhnlichen Momente (Einsetzen von Gleichung A.26 in Gleichung A.25) zwei gaußförmige Funktionen in ω miteinander multipliziert werden, wird der Ausdruck im Integral wieder gaußförmig. Da das Integral über den gesamten Frequenzbereich berechnet wird, kann davon ausgegangen werden, dass mit Hilfe der Fehlerfunktion eine analytische Lösung möglich ist. Das zur Bestimmung der gewöhnlichen

A Ergänzende Betrachtungen

Momente auszuwertende Integral nimmt die folgende Form an:

$$m_{i}(U(\omega, z)) = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^{i} \hat{U} e^{-\left(\frac{\omega-\omega_{m}}{b}\right)^{2}} e^{-\omega^{2}az} d\omega$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \omega^{i} \hat{U} e^{-\left(\left(\frac{1}{b^{2}} + az\right)\omega^{2} - \frac{2\omega_{m}}{b}\omega + \frac{\omega_{m}^{2}}{b^{2}}\right)} d\omega.$$
(A.27)
(A.28)

Der Ausdruck kann nun quadratisch ergänzt werden, so dass er sich in einen gaußförmigen und in einen von ω unabhängigen Teil zerlegen lässt:

$$m_{i}(U(\omega, z)) = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^{i} \hat{U} \exp\left(-\left(\left(\frac{1}{b^{2}} + az\right)\omega^{2} - \frac{2\omega_{m}}{b}\omega + \frac{\omega_{m}^{2}}{b^{2} + ab^{4}z}\right)\right)$$
$$\exp\left(-\frac{\omega_{m}^{2}}{b^{2}} + \frac{\omega_{m}^{2}}{b^{2} + ab^{4}z}\right) d\omega \qquad (A.29)$$
$$= \int_{-\infty}^{\infty} \omega^{i} \hat{U} \exp\left(-\left(\omega\sqrt{\frac{1}{b^{2}} + az} - \frac{\omega_{m}}{\sqrt{b^{2} + ab^{4}z}}\right)^{2}\right)$$
$$\exp\left(-\frac{\omega_{m}^{2}}{b^{2}} + \frac{\omega_{m}^{2}}{b^{2} + ab^{4}z}\right) d\omega. \qquad (A.30)$$

Weiteres Umformen führt zu:

$$m_i(U(\omega, z)) = \hat{U}\exp\left(-\frac{\omega_{\rm m}^2 a}{1+ab^2 z}z\right) \int_{-\infty}^{\infty} \omega^i \exp\left(-\left(\frac{\omega - \frac{\omega_{\rm m}}{1+ab^2 z}}{\frac{b}{\sqrt{1+ab^2 z}}}\right)^2\right) \mathrm{d}\,\omega.$$
(A.31)

An dieser Stelle zeigt sich, dass für $ab^2z\ll 1$ folgende Näherung angesetzt werden kann:

$$m_i(U(\omega, z)) \approx \hat{U} \exp\left(-\omega_{\rm m}^2 a z\right) \int_{-\infty}^{\infty} \omega^i \exp\left(-\left(\frac{\omega - \omega_{\rm m}}{b}\right)^2\right) d\omega.$$
 (A.32)

Das verbleibende Integral entspricht nun, multipliziert mit \hat{U} , dem *i*-ten gewöhnlichen Moment des Ausgangsspektrums und ist eine Konstante in z. Es wird daher zunächst davon abgesehen, das Integral zu lösen, da sich, selbst unter Verwendung der Fehlerfunktion, kein geschlossener Ausdruck für beliebige, ganzzahlige, positive *i* aufstellen lässt [Mat18]. Der

Ausdruck vor dem Integral zeigt die verbleibende Abhängigkeit von z. Es ist demnach ersichtlich, dass die gewöhnlichen Momente eines akustisches Signals mit gaußförmigem Spektrum in verlustbehafteten Fluiden über den Ort näherungsweise exponentiell abklingen:

$$m_i(U(\omega, z)) \propto a \mathrm{e}^{-bz}.$$
 (A.33)

Voraussetzung hierfür ist, dass die Bandbreite *b*, der frequenzunabhängige Absorptionsparameter *a* und die zurückgelegte Entfernung *z* klein sind. Als kritisch zu betrachten ist hier vor allem die Bandbreite *b*, die quadratisch eingeht und für die in dieser Arbeit betrachteten Systeme typischerweise im Bereich mehrerer hundert Kilohertz liegt. Da jedoch davon ausgegangen werden kann, dass *a* für die untersuchten Fluide im Bereich $1 \cdot 10^{-17} \text{ s}^2 \text{m}^{-1}$ bis $1 \cdot 10^{-14} \text{ s}^2 \text{m}^{-1}$ liegt, sind die getroffenen Näherungen trotzdem anwendbar. Explizit ergeben sich für die gewöhnlichen Momente nullter bis dritter Ordnung für die gegebenen Annahmen die folgenden Lösungen:

$$m_0(U(\omega, z)) = \hat{U}\sqrt{\pi}b \mathrm{e}^{-\omega_{\mathrm{m}}az}$$
(A.34)

$$m_1(U(\omega, z)) = \hat{U}\sqrt{\pi}b\omega_{\rm m}e^{-\omega_{\rm m}az}$$
(A.35)

$$m_2(U(\omega, z)) = \hat{U}\sqrt{\pi} \frac{b}{2} (b^2 + 2\omega_{\rm m}^2) e^{-\omega_{\rm m} az}$$
(A.36)

$$m_3(U(\omega, z)) = \hat{U}\sqrt{\pi} \frac{b}{2} \omega_{\rm m} (3b^2 + 2\omega_{\rm m}^2) e^{-\omega_{\rm m} az}.$$
 (A.37)

Demnach unterscheiden sich die Momente erwartungsgemäß nicht in ihrem exponentiellen Abklingverhalten, sondern nur um eine Konstante.

A.4.2 Rechteckiges Ausgangsspektrum

Es wird angenommen, dass das Spektrum des Signals rechteckig ist, also eine Gleichverteilung aufweist:

$$U_0(\omega) = \begin{cases} \hat{U} & \text{wenn} & \omega_{\rm m} - \frac{b}{2} < \omega < \omega_{\rm m} + \frac{b}{2} \\ 0 & \text{sonst.} \end{cases}$$
(A.38)

A Ergänzende Betrachtungen

Demnach lässt sich das Integral zur Bestimmung der gewöhnlichen Momente des Spektrums wie folgt vereinfachen:

$$m_i(U(\omega, z)) = \int_{\omega_m - \frac{b}{2}}^{\omega_m + \frac{b}{2}} \omega^i \hat{U} e^{-\omega^2 a z} d\omega.$$
(A.39)

Es soll zunächst nur das Moment nullter Ordnung untersucht werden, da auch hier kein geschlossener Ausdruck für das Integral bei beliebigen *i* gefunden werden kann. Wird nun angenommen, dass *b* klein gegenüber $\omega_{\rm m}$ ist, und somit der Verlauf des Integranden in ω zwischen den Grenzen des Integrals näherungsweise als linear angenommen werden kann, lässt sich $m_0(U(\omega, z))$ mit Hilfe der Trapezregel approximieren:

$$m_0(U(\omega, z)) \approx \hat{U}\frac{b}{2} \left(e^{-(\omega_m + \frac{b}{2})^2 a z} + e^{-(\omega_m - \frac{b}{2})^2 a z} \right).$$
 (A.40)

Der Ausdruck lässt sich wie folgt vereinfachen:

$$m_0(U(\omega,z)) \approx \hat{U}\frac{b}{2} \left(e^{-(\omega_{\rm m}^2 + \frac{b^2}{4})az} \left(e^{-\omega_{\rm m}baz} + e^{\omega_{\rm m}baz} \right) \right).$$
(A.41)

Unter der Annahme, dass $\omega_{\rm m}baz$ nahezu Null ist, was vor allem durch die sehr kleinen Werte von *a* gegeben ist, kann die hintere Klammer durch den Faktor 2 ersetzt werden. Dies ist auch dann noch der Fall, wenn $\omega_{\rm m}baz$ nur als so klein angenommen wird, dass der Verlauf zwischen $\omega_{\rm m}baz$ und $-\omega_{\rm m}baz$ als linear betrachtet werden kann. Es ergibt sich also für Signale mit einem rechteckigen Spektrum der folgende Ausdruck für das gewöhnliche Moment nullter Ordnung:

$$m_0(U(\omega, z)) \approx \hat{U}b\left(e^{-(\omega_m^2 + \frac{b^2}{4})az}\right).$$
 (A.42)

Es zeigt sich also auch hier, dass dieses Moment exponentiell in z abklingt.

A.5 Identifikation von mehrparametrigen Absorptionsmodellen

An dieser Stelle soll ein Verfahren zur Bestimmung von Absorptionsmechanismen mit mehreren Parametern a_n beschrieben werden. Gleichung 4.42 beschreibt einen Zusammenhang, der für alle Abstände z von der akusti-

A.5 Identifikation von mehrparametrigen Absorptionsmodellen

schen Quelle gilt. Wird also das Signal an den Stellen $z_0..z_K$ aufgenommen, die gewöhnlichen Momente des Signalspektrums und eine Möglichkeit zur Bestimmung der Ableitung des Moments $\partial_z m_i(U(\omega, z))$ gefunden, so ergeben sich K Gleichungen mit den Unbekannten a_n . Als weiterer Freiheitsgrad muss noch ausgewählt werden, für das Moment welcher Ordnung die Ableitung gebildet wird. Es bietet sich hier an, das Moment nullter Ordnung zu wählen, da durch die unnötige Multiplikation mit einer eventuell unsicheren Kreisfrequenz ω zusätzliche Unsicherheiten eingebracht würden. Ist die Anzahl der Stellen K, an denen das Signal aufgenommen wird, größer oder gleich der Anzahl der Parameter des Absorptionsmodells a_n , so ergibt sich ein lösbares Gleichungssystem mit a_n als Unbekannten. Für ein bespielhaftes Absorptionsmodell mit im Frequenzbereich konstanten, linearen und quadratischen Anteilen a_0, a_1 und a_2 und einer Messanordnung, welche an den Orten z_0 bis z_3 ein Signal empfängt, ergibt sich das untenstehende Gleichungssystem. Für die gewöhnlichen Momente des Signalspektrums wird dabei die Kurzschreibweise $m_i(U(\omega, z)) = m_i(z)$ verwendet:

$$-\begin{pmatrix} \partial_z m_0(z_0)\\ \partial_z m_0(z_1)\\ \partial_z m_0(z_2)\\ \partial_z m_0(z_3) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_0(z_0) & m_1(z_0) & m_2(z_0)\\ m_0(z_1) & m_1(z_1) & m_2(z_1)\\ m_0(z_2) & m_1(z_2) & m_2(z_2)\\ m_0(z_3) & m_1(z_3) & m_2(z_3) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_0\\ a_1\\ a_2 \end{pmatrix}.$$
(A.43)

Die Lösung dieses Gleichungssystems liefert dann die Absorptionsparameter a_0 bis a_2 [Cla19b]. Die Überbestimmtheit des Gleichungssystems kann ausgenutzt werden, um den Algorithmus robuster zu machen, benötigt jedoch in der Umsetzung in einem realen Messsystem entsprechend viele Messstellen. Dieser Ansatz kann also zum Beispiel gewählt werden, wenn das Messverfahren ohnehin eine ortsaufgelöste Messung beinhaltet (siehe zum Beispiel [Cla16]). Die zur Auswertung notwendige Ableitung des Moments nullter Ordnung kann dann durch zentrale Differenzenquotienten approximiert werden. Im Kontext dieser Arbeit kann der Ansatz gewählt werden, dass geometrische Effekte des Schallfelds über zusätzliche Dämpfungsparameter modelliert werden. Die Bestimmung der Ableitung des Moments nullter Ordnung zeigt sich jedoch problematischer, da sie auf Basis einer geringeren Anzahl an Messstellen durchgeführt werden müsste.

A.6 Einfluss der Bandbreite bei Auswertung der Signalintensität

Wie in Abschnitt 4.2.1 erwähnt und in Abschnitt 4.3.1 näher beschrieben, führt der klassische Ansatz der Bestimmung der akustischen Absorption aus der Signalstärke |p| an zwei unterschiedlichen Orten z auf einen Schätzwert für die Absorption α :

$$\alpha = \frac{1}{z_2 - z_1} \ln\left(\frac{|p(z_1)|}{|p(z_2)|}\right).$$
(A.44)

Die Frequenzabhängigkeit des betrachteten Absorptionsmechanismus wird bei diesem Vorgehen nicht berücksichtigt. Soll also nun zum Beispiel zur Bestimmung der thermoviskosen Verluste der Parameter a eines quadratisch frequenzabhängigen Absorptionsmodells bestimmt werden, kann das Ergebnis für α durch das Quadrat der Kreisfrequenz, bei der die Messung durchgeführt wird, geteilt werden:

$$a = \frac{\alpha}{\omega^2}.\tag{A.45}$$

Hier wird jedoch implizit die Annahme getroffen, dass das akustische Signal monofrequent ist. In einem realen Messsystem, das nach dem Puls-Echo-Verfahren aufgebaut ist, kann diese Annahme per Definition nicht gehalten werden. Um dennoch eine Auswertung zu ermöglichen, kann zum Beispiel die Mittenfrequenz der Signale eingesetzt werden. Dass diese Annahme zu Abweichungen führt, soll an dieser Stelle durch Schallfeldsimulationen gezeigt werden.

Das in Abschnitt 4.3 zur Evaluation der Ansätze zur Absorptionsbestimmung verwendete eindimensionale Simulationsmodell der Messanordnung wird an dieser Stelle erneut eingesetzt. Neben den thermoviskosen Verlusten μ , welche in dieser Betrachtung kleinschrittig von 1 mPa s auf 100 mPa s erhöht werden, wird in den unterschiedlichen Simulationsdurchläufen auch die relative Bandbreite $b_{\rm rel}$ des Sendesignals variiert. Die resultierenden simulativ erzeugten Signale werden, wie in Abschnitt 4.3.1 beschrieben, bezüglich der Signalenergie zur Bestimmung der akustischen Absorption ausgewertet. Aus der Absorption werden dann unter Verwendung der Mittenfrequenz der akustischen Signale die thermoviskosen Verluste $\mu_{\rm mess}$ errechnet und mit den zuvor in der Simulation angenommenen Verlusten μ verglichen. In Abbildung A.2 ist die ermittelte absolute Abweichung ($\mu_{\rm d} = \mu_{\rm mess} - \mu$) der aus den Signalen ermittelten thermoviskosen Verluste



Abbildung A.2: Absolute Messabweichung bei Auswertung der Signalintensität zur Absorptionsbestimmung hervorgerufen durch eine endlich große Signalbandbreite $b_{\rm rel}$.

gegenüber den im Fluid angenommenen Verlusten für unterschiedliche relative Sendesignalbandbreiten $b_{\rm rel}$ dargestellt. Erwartungsgemäß führt eine große Signalbandbreite auch zu einer großen Abweichung bei der Schätzung der thermoviskosen Verluste. Weiterhin wird der Effekt deutlicher, wenn die Verluste im Fluid größer sind. Es ist jedoch auch ersichtlich, dass die Abweichungen bei geringen Verlusten klein sind; somit werden die Beobachtungen aus Abschnitt 4.3.1 bestätigt. Dennoch kann diese geringe Abweichung in den Messungen vermieden werden, wenn die in Abschnitt 4.2 beschrieben Ansätze zur Bestimmung der akustischen Absorption unter Berücksichtigung der dispersiven Eigenschaften des Absorptionsmechanismus verwendet werden.

B Simulation von Schallfeldern

Zur Auslegung des Messaufbaus sowie zur Evaluierung von Auswertealgorithmen ist eine geeignete Simulationsumgebung für die Schallausbreitung in verlustbehafteten Fluiden notwendig. Gerade, wenn im Bezug auf die Absorption gemachte Annahmen (siehe Abschnitt 4.2) anhand idealisierter Simulationsmodelle überprüft werden sollen, sind Simulationsprogramme, bei denen das genaue Vorgehen bei der Berechnung nicht eingesehen werden kann, ungeeignet. Aus diesem Grund wird eine Simulationsumgebung implementiert und an dieser Stelle die grundlegenden Schritte zur Realisierung beschrieben. Genutzt wird die Methode der finiten Differenzen im Zeitbereich (FDTD). Das von Yee [Yee66] zunächst zur Beschreibung elektromagnetischer Wellenausbreitung vorgestellte Verfahren ist ein gängiges Werkzeug für die Simulation unterschiedlicher Feldverteilungen [Lan17].

B.1 Diskretisierung der Grundgleichungen

Zur Realisierung müssen zunächst die Grundgleichung des Schallfelds in eine orts- und zeitdiskrete Form überführt werden. Dies sind die in Abschnitt 2.1.2 beschriebenen konstituierenden Gleichungen für das Schallwechseldruck- und das Schallschnellefeld:

$$\rho \partial_t \vec{v} = -\text{grad}\, p + \mu \nabla^2 \vec{v} \tag{B.1}$$

sowie

$$\partial_t p = -\rho c^2 \operatorname{div} \vec{v},\tag{B.2}$$

wobei die thermoviskosen Verluste wieder in μ zusammengefasst werden. Zur Überführung in die diskretisierte Form werden alle Ableitungsoperatoren durch finite Differenzen angenähert. Der Übersicht halber wird hier zunächst davon ausgegangen, dass die Diskretisierung äquidistant mit den Inkrementen t_{Δ} , x_{Δ} usw. erfolgt.



Abbildung B.1: Schematische Darstellung der versetzten Zeit- und Raumgitter zur Schallfeldsimulation mit der Methode der finiten Differenzen (FDTD).

B.1.1 Eindimensionale Simulation

Bei der simulativen Betrachtung von mehreren interagierenden Feldern mit der FDTD-Methode ist es üblich, örtlich um einen halben Diskretisierungsschritt versetzte Gitter zu verwenden [Lan17]. Dies beruht auf der Natur des Differenzenquotienten, welcher stets die Lösung für die Steigung zwischen zwei Gitterpunkten liefert. So liefert zum Beispiel der eindimensionale Divergenzoperator angewandt auf die diskrete Schallschnelle v[i]an den Stellen i und i + 1 quasi einen Wert für den Diskretisierungsschritt $i + \frac{1}{2}$. Es bietet sich daher an, die Simulationsgitter jeweils um einen halben Schritt zu verschieben, da stets ein Feld aus der Ableitung des anderen berechnet wird (siehe Abbildung B.1). In der Simulation werden weiterhin die beiden konstituierenden Gleichungen abwechselnd ausgewertet. Deshalb werden auch im Zeitbereich halbe Inkremente eingeführt, so dass eine Gleichung aus einem Feld jeweils den $n + \frac{1}{2}$ Wert für das andere Feld bestimmt. Werden alle Ableitungen durch den zentralen Differenzenquotienten angenähert, so nimmt die zeit- und ortsdiskrete Variante der konstituierenden Gleichungen für den eindimensionalen Fall die folgende Form an:

$$\rho \frac{v[i, n+\frac{1}{2}] - v[i, n-\frac{1}{2}]}{t_{\Delta}} = -\frac{p[i+\frac{1}{2}, n] - p[i-\frac{1}{2}, n]}{x_{\Delta}} + \mu \frac{v[i-1, n] - 2v[i, n] + v[i+1, n]}{(x_{\Delta})^2}$$
(B.3)

und

$$\frac{p[i, n+\frac{1}{2}] - p[i, n-\frac{1}{2}]}{t_{\Delta}} = -\rho c^2 \frac{v[i+\frac{1}{2}, n] - v[i-\frac{1}{2}, n]}{x_{\Delta}},$$
 (B.4)

wobei die Diskretisierung wie folgt vorgenommen wird:

$$x = i \cdot x_{\Delta} \tag{B.5}$$

$$t = n \cdot t_{\Delta}.\tag{B.6}$$

Das typische Vorgehen bei der Herleitung der sogenannten Update-Gleichungen für das FDTD-Verfahren wäre nun das Auflösen der Gleichungen zur Berechnung des nächsten Zeit-Halbschritts $v[i, n + \frac{1}{2}]$ bzw. $p[i, n + \frac{1}{2}]$. Dies ist hier nicht einfach möglich, da Gleichung B.3 sowohl von $v[i, n + \frac{1}{2}]$ und $v[i, n - \frac{1}{2}]$ als auch von v[i, n] abhängt. Berechnet werden in dieser Notation aber nur die beiden erstgenannten Werte. Für eine Näherungslösung wird hier eine kleine Änderung der zweiten Ableitung der Feldgrößen angenommen. Für eine stabile Simulation muss dies ohnehin für die erste Ableitung gegeben sein. Es wird also folgende Annahme getroffen:

$$\frac{v[i-1,n] - 2v[i,n] + v[i+1,n]}{(x_{\Delta})^2} \overset{t_{\Delta} \text{ klein}}{\approx} \frac{v[i-1,n-\frac{1}{2}] - 2v[i,n-\frac{1}{2}] + v[i+1,n-\frac{1}{2}]}{(x_{\Delta})^2}.$$
 (B.7)

Mit dieser Näherung sind die Gleichungen, die zur Bestimmung der Felder für den jeweils nächsten Zeithalbschritt $n + \frac{1}{2}$ für jeden Punkt *i* ausgewertet werden müssen, die Folgenden:

$$v[i, n + \frac{1}{2}] = v[i, n - \frac{1}{2}] - \frac{t_{\Delta}}{\rho x_{\Delta}} \left(p[i + \frac{1}{2}, n] - p[i - \frac{1}{2}, n] \right) + \frac{\mu t_{\Delta}}{\rho (x_{\Delta})^2} \left(v[i - 1, n - \frac{1}{2}] - 2v[i, n - \frac{1}{2}] + v[i + 1, n - \frac{1}{2}] \right)$$
(B.8)

B Simulation von Schallfeldern

und

$$p[i, n + \frac{1}{2}] = p[i, n - \frac{1}{2}] - \rho c^2 \frac{t_\Delta}{x_\Delta} \left(v[i + \frac{1}{2}, n] - v[i - \frac{1}{2}, n] \right).$$
(B.9)

Dies sind die Update-Gleichungen, welche für eine Feldsimulation abwechselnd ausgewertet werden müssen.

Um die Notation der zuvor hergeleiteten Update-Gleichungen übersichtlicher zu gestalten und effizient implementierbar zu machen, kann eine Matrixschreibweise eingeführt werden. Da sukzessiv die Zeitschritte berechnet werden, können die Feldgrößen für einen Zeitschritt als Spaltenvektor aufgefasst werden:

$$\boldsymbol{v}[n] = \begin{pmatrix} v[1,n] \\ v[2,n] \\ v[3,n] \\ \vdots \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \boldsymbol{p}[n] = \begin{pmatrix} p[1,n] \\ p[2,n] \\ p[3,n] \\ \vdots \end{pmatrix}, \quad (B.10)$$

wobei hier ganzzahlige Werte für i verwendet werden. Die Punkte, an denen v[i, n] definiert ist, liegen jedoch um einen halben örtlichen Quantisierungsschritt versetzt, wie zu Anfang motiviert. Nun lassen sich die Update-Gleichungen B.8 und B.9 wie folgt notieren:

$$\boldsymbol{v}[n+\frac{1}{2}] = \boldsymbol{v}[n-\frac{1}{2}] - \boldsymbol{A}_{vp}\boldsymbol{p}[n] - \boldsymbol{A}_{v}\boldsymbol{v}[n-\frac{1}{2}]$$
(B.11)

und

$$\boldsymbol{p}[n+\frac{1}{2}] = \boldsymbol{p}[n-\frac{1}{2}] - \boldsymbol{A}_{pv}\boldsymbol{v}[n]. \tag{B.12}$$

Die Matrizen A_{vp} , A_{pv} und A_v nehmen dann eine Diagonalform an. Beispielhaft sei das hier für A_{vp} für den Fall gezeigt, dass v[1,n] zwischen p[1,n] und p[2,n] liegt, das Gitter für die Schallschnelle also demnach um einen halben Quantisierungsschritt in positiver Richtung gegenüber dem Schallwechseldruck verschoben ist. Der Übersicht halber wird hier das Verhältnis von zeitlichen und räumlichen Quantisierungsschritten abkürzend geschrieben $(q_{tx} = \frac{t_{\Delta}}{x_{\Delta}})$.

$$\boldsymbol{A}_{vp} = \begin{pmatrix} -\rho q_{tx} & \rho q_{tx} & & & \\ & -\rho q_{tx} & \rho q_{tx} & & 0 \\ & & & -\rho q_{tx} & \rho q_{tx} \\ & 0 & & -\rho q_{tx} & \rho q_{tx} \\ & & & \ddots & \ddots \end{pmatrix}.$$
(B.13)

Es ist ersichtlich, dass die Größe der Diagonalmatrizen A_{vp} , A_{pv} und A_v jeweils quadratisch mit der Anzahl der Punkte im Simulationsmodell anwächst. Trotzdem sind stets nur einige wenige Diagonalen besetzt. Für die Realisierung der Simulationsumgebung bietet sich daher die Verwendung von dünn besetzten Matrizen (engl.: *sparse matrix*) an. Ein entsprechender Datentyp ist in den meisten Programmier- und Skriptsprachen verfügbar.

Prinzipiell wäre es möglich, den Faktor ρq_{tx} auszuklammern. Wird der Faktor jedoch in der Matrix behalten, so ist es möglich, für unterschiedliche Abschnitte des Rechengebiets unterschiedliche Dichten ρ anzusetzen. Für eine realistische Modellierung von Versuchsaufbauten ist dies notwendig. Ähnliches gilt für die Schallgeschwindigkeit c, welche in A_{pv} eingeht, sowie für die thermoviskosen Verluste μ in A_v .

B.1.2 Mehrdimensionale Simulation

Soll die Simulation für mehrdimensionale Felder erweitert werden, so erhöht sich die Anzahl der zu berechnenden Feldgrößen um jeweils eine pro Dimension. Weiterhin hängen die Feldgrößen nur von der y-Koordinate ab, welche als $y = j \cdot y_{\Delta}$ diskretisiert wird. Da es sich bei dem Schallwechseldruckfeld p[i, j, n] um ein skalares Feld handelt, kommt hier keine weitere Komponente hinzu. Die Schallschnelle ist jedoch vektoriell. Im Fall eines zweidimensionalen kartesischen Schallfelds müssen also nun die Komponenten $v_x[i, j, n]$ und $v_y[i, j, n]$ berechnet werden. Demnach ergeben sich für den zweidimensionalen Fall die drei Update-Gleichungen:

$$\begin{aligned} v_x[i,j,n+\frac{1}{2}] &= v_x[i,j,n-\frac{1}{2}] - \frac{t_\Delta}{\rho x_\Delta} \left(p[i+\frac{1}{2},j,n] - p[i-\frac{1}{2},j,n] \right) \\ &+ \frac{\mu}{\rho} \left(\frac{t_\Delta}{(x_\Delta)^2} \left(v_x[i-1,j,n-\frac{1}{2}] - 2v_x[i,j,n-\frac{1}{2}] + v_x[i+1,j,n-\frac{1}{2}] \right) \\ &+ \frac{t_\Delta}{(y_\Delta)^2} \left(v_x[i,j-1,n-\frac{1}{2}] - 2v_x[i,j,n-\frac{1}{2}] + v_x[i,j+1,n-\frac{1}{2}] \right) \right), \end{aligned}$$
(B.14)

B Simulation von Schallfeldern

$$v_{y}[i, j, n + \frac{1}{2}] = v_{y}[i, j, n - \frac{1}{2}] - \frac{t_{\Delta}}{\rho y_{\Delta}} \left(p[i, j + \frac{1}{2}, n] - p[i, j - \frac{1}{2}, n] \right) + \frac{\mu}{\rho} \left(\frac{t_{\Delta}}{(x_{\Delta})^{2}} \left(v_{y}[i - 1, j, n - \frac{1}{2}] - 2v_{y}[i, j, n - \frac{1}{2}] + v_{y}[i + 1, j, n - \frac{1}{2}] \right) + \frac{t_{\Delta}}{(y_{\Delta})^{2}} \left(v_{y}[i, j - 1, n - \frac{1}{2}] - 2v_{y}[i, j, n - \frac{1}{2}] + v_{y}[i, j + 1, n - \frac{1}{2}] \right) \right)$$
(B.15)

und

$$p[i, j, n + \frac{1}{2}] = p[i, j, n - \frac{1}{2}] - \rho c^2 \left(\frac{t_\Delta}{x_\Delta} \left(v_x[i + \frac{1}{2}, j, n] - v_x[i - \frac{1}{2}, j, n] \right) + \frac{t_\Delta}{y_\Delta} \left(v_y[i, j + \frac{1}{2}, n] - v_y[i, j - \frac{1}{2}, n] \right) \right).$$
(B.16)

Auch im zweidimensionalen Fall können die Gleichungen in eine Matrixschreibweise überführt werden. Hier muss jedoch zunächst eine Umordnung der diskreten Werte mit x- und y-Abhängigkeit stattfinden. Am Beispiel des Schallwechseldrucks nimmt der Vektor p die folgende Form an, wobei I der maximale Wert des Index in x-Richtung ist:

$$\boldsymbol{p}[n] = \begin{pmatrix} p[1,1,n] & p[2,1,n] & \dots & p[I,1,n] & p[1,2,n] & p[2,2,n] & \dots \end{pmatrix}^{\mathrm{T}}.$$
(B.17)

Die Update-Gleichungen nehmen dann in Matrixschreibweise die folgende Form an:

$$v_{x}[n+\frac{1}{2}] = v_{x}[n-\frac{1}{2}] - A_{v_{x}p}p[n] - A_{v_{x}}v_{x}[n-\frac{1}{2}],$$
 (B.18)

$$\boldsymbol{v}_{\boldsymbol{y}}[n+\frac{1}{2}] = \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{y}}[n-\frac{1}{2}] - \boldsymbol{A}_{v_y p} \boldsymbol{p}[n] - \boldsymbol{A}_{v_y} \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{y}}[n-\frac{1}{2}]$$
(B.19)

und

$$\boldsymbol{p}[n+\frac{1}{2}] = \boldsymbol{p}[n-\frac{1}{2}] - \boldsymbol{A}_{pv_x} \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{x}}[n] - \boldsymbol{A}_{pv_y} \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{y}}[n].$$
(B.20)

In den Diagonalmatrizen A_{\dots} sind nun, aufgrund der Umordnung der Vektoren für Schallwechseldruck und Schallschnelle, auch Diagonalen höherer Ordnung besetzt. Ein Beispiel ist hier A_{v_x} , welche die diskrete Form des Laplace-Operators realisiert. Sie hat die folgende Form:

$$\boldsymbol{A}_{vx} = \frac{\mu}{\rho} \cdot \begin{pmatrix} -q_{tx^2y^2} & q_{tx^2} & \dots & q_{ty^2} & & 0\\ q_{tx^2} & -q_{tx^2y^2} & q_{tx^2} & & q_{ty^2} & & \\ & q_{tx^2} & -q_{tx^2y^2} & q_{tx^2} & & q_{ty^2} & \\ \vdots & & q_{tx^2} & -q_{tx^2y^2} & q_{tx^2} & & \ddots \\ q_{ty^2} & & & q_{tx^2} & -q_{tx^2y^2} & q_{tx^2} & & \\ & & q_{ty^2} & & & q_{tx^2} & -q_{tx^2y^2} & \ddots \\ & & & & q_{ty^2} & & & q_{tx^2} & \cdots \\ 0 & & & \ddots & & & \ddots \end{pmatrix},$$
(B 21)

 mit

$$q_{tx^2y^2} = 2\left(\frac{t_\Delta}{\left(x_\Delta\right)^2} + \frac{t_\Delta}{\left(y_\Delta\right)^2}\right) \tag{B.22}$$

$$q_{tx^2} = \frac{t_\Delta}{\left(x_\Delta\right)^2} \tag{B.23}$$

$$q_{ty^2} = \frac{t_\Delta}{\left(x_\Delta\right)^2},\tag{B.24}$$

wobei der Ausdruck μ/ρ hier nur der Übersicht halber ausgeklammert ist. In der Realisierung werden die Materialparameter (μ , ρ und c) für jeden Knoten definiert, um Simulationsmodelle mit unterschiedlichen Materialien betrachten zu können. Dementsprechend werden die entsprechenden Größen in den Diagonalmatrizen geführt.

Häufig werden in der Akustik Anordnungen als rotationssymmetrisch angenommen. Es ist daher sinnvoll, den zuvor betrachteten kartesischen zweidimensionalen Simulationsfall in einen rotationssymmetrischen zu überführen. Hierfür werden dann Zylinderkoordinaten verwendet, wobei die Ableitungen der azimutalen Komponente für eine Rotationssymmetrie verschwinden müssen. Die beiden Raumrichtungen x und y können dann als r- und z-Richtung des Schallfelds uminterpretiert werden. Da die Differentialoperatoren div, grad und ∇^2 für Zylinderkoordinaten anders definiert sind, müssen die abweichenden Definitionen für den diskreten Fall formuliert werden. Nach der Überführung in die Matrixschreibweise kann die Berechnung dann analog zum zweidimensionalen kartesischen Fall erfolgen.

B.2 Randbedingungen

Neben unterschiedlichen Materialien, welche durch das Einsetzen in die Matrizen A_{vp} , A_{pv} und A_v realisiert werden können, erfordert eine Simulationsumgebung Randbedingungen. Für die Simulationsumgebung sollen hier zwei verschiedene Randbedingungen betrachtet werden: Schallharte und schallweiche Reflexion. Beide stellen quasi Extremfälle bei Materialübergängen dar. Schallharte Reflexion liegt vor, wenn eine akustische Welle auf eine Grenzschicht mit sehr viel größerer akustischer Impedanz ($Z = \rho c$) als der des Ursprungsmediums trifft. Analog tritt schallweiche Reflexion dann auf, wenn die akustische Impedanz der Grenzschicht sehr viel geringer ist als die des Ursprungsmediums [Ler09].

Für die Schallfelder (Wechseldruck und Schnelle) gelten für beide Randbedingungen die folgenden Annahmen: Bei schallharter Reflexion gibt es im Zielmedium keine mechanische Auslenkung, die Schallschnelle an der Grenzfläche ist demnach Null, während der Schallwechseldruck maximal wird. Für schallweiche Reflexion gilt gerade der umgekehrte Fall; der Schallwechseldruck ist Null und die Schallschnelle wird an der Grenzfläche maximal.

Für die Einarbeitung von Randbedingungen in die Simulationsumgebung bieten sich zwei Vorgehensweisen an. Zum einen können die Matrizen A_{vp} , A_{pv} und A_v so modifiziert werden, dass sich die jeweilige Feldgröße bei der Evaluierung der Update-Gleichungen an den betroffenen Knoten zu Null ergibt. Zum anderen kann die jeweilige Feldgröße nach der Berechnung durch die Update-Gleichungen zu Null gesetzt werden. Beide Methoden bewirken letztlich das Gleiche, wobei die zweite mehr Flexibilität im Bezug auf die Implementierung weiterer Randbedingungen bietet. So wird also nach der Evaluierung der Update-Gleichung für die Schallschnelle B.8 die Schallschnelle an den Knoten zu Null gesetzt, an denen eine schallharte Reflexion stattfinden soll. Nach der Evaluierung der Update-Gleichung für den Schallwechseldruck B.9 wird der Schallwechseldruck an den Knoten zu Null gesetzt, an denen eine schallweiche Reflexion stattfinden soll. Bei der Realisierung zeitabhängiger Randbedingungen, wie etwa beim Anlegen von Signalen, wird analog verfahren.

B.3 Realisierung

Das beschriebene Verfahren zur Feldsimulation durch finite Differenzen im Zeitbereich ist im Rahmen des Pakets pyfds in Python realisiert und als

B.3 Realisierung



Abbildung B.2: Ausschnitt aus dem Klassendiagramm des Pakets pyfds zur Feldsimulation mit der FDTD Methode.

quelloffene Software veröffentlicht [Cla19c; Cla20c]. Dabei werden für die Berechnungsschritte primär die Numerikbibliothek numpy [Wal11] sowie die sparse-matrix-Datentypen aus der Bibliothek für wissenschaftliches Rechnen SciPy [Vir20] verwendet. Das Paket ist objektorientiert und modular aufgebaut, so dass weitere Feldprobleme einfach implementiert werden können. Ein Ausschnitt des Klassendiagramms (Abbildung B.2) zeigt, wie die Modularität umgesetzt ist. Die abstrakte Basisklasse *Field* enthält, neben einigen Grundfunktionen zum Zuweisen von Materialparametern für Gitterpunkte, die abstrakten Methoden assemble_matrices und sim_step. assemble_matrices soll von den abgeleiteten Klassen implementiert werden Matrizen $A_{...}$ als Attribute der abgeleiteten Klasse erstellen. sim_step

B Simulation von Schallfeldern

soll ebenfalls von den abgeleiteten Klassen implementiert werden und die Berechnung eines einzelnen Simulations-Zeitschritts durchführen. Die Methode *simulate* dient zur Durchführung der eigentlichen Simulation und führt zunächst die Methode *assemble_matrices* aus, gefolgt von der durch das Argument *num_steps* spezifizierten Anzahl Aufrufe der Funktion *sim_steps*.

Von *Field* werden zunächst weitere abstrakte Klassen abgeleitet, die die geometrischen Parameter, insbesondere die Dimensionalität der zu simulierenden Feldanordnung, festlegen. Hier sind beispielhaft die Klassen *Field1D* und *Field2D* dargestellt, die über Instanzen (x bzw. x und y) der im Diagramm nicht dargestellte Klasse Dimension die Größe der zu simulierenden Feldanordnung festlegen. Weiterhin werden die Methoden d_x, d_x2, d_y, usw. bereit gestellt, welche zur Erzeugung von dünn besetzten Matrizen dienen, die jeweils eine bestimmte Ortsableitung repräsentieren: d_x für die erste Ableitung in x-Richtung, d_y^2 für die zweite Ableitung in y-Richtung usw. Je nach gewünschter Dimensionalität für die Feldsimulation werden die Klassen Field1D und Field2D nun ein weiteres Mal abgeleitet, um den jeweiligen Anwendungsfall zu implementieren. Die einzelnen Komponenten des zu simulierenden Felds werden durch die im Diagramm nicht dargestellte Klasse *FieldComponent* repräsentiert. In Instanzen dieser Klasse werden neben den aktuellen Werten der jeweiligen Feldkomponente auch Randbedingungen gespeichert. Weiterhin wird für die jeweilige Feldkomponente festgelegt, für welche Knoten der zeitliche Verlauf des Felds für die spätere Auswertung aufgezeichnet werden soll. Die Klasse für zweidimensionale Akustiksimulation Acoustic2D hat beispielsweise als Attribute die Feldkomponenten pressure für den Wechseldruck und *velocity_x* und *velocity_y* für die Schnelle in x- und y-Richtung. Außerdem werden hier nun die Methoden assemble matrices und sim step in konkreter Form implementiert. assemble matrices erzeugt die dünn besetzten Matrizen A_{\dots} unter Zuhilfenahme der durch die Elternklasse bereitgestellten Methoden d_x , usw. und speichert sie in den Attributen a p vx, a p vy, usw. ab. Die konkrete Form von sim step verwendet diese dann, um aus den in den Feldkomponenten gespeicherten Werten den jeweils nächsten Schritt zu berechnen. Die dreidimensionale axialsymmetrische Form der Simulationsklasse Acoustic3DAxi unterscheidet sich dabei von der zweidimensionalen Variante nur in der Besetzung und der Werte der dünn besetzten Matrizen. Zum Durchführen der Simulation wird dann unabhängig von der jeweiligen Feldproblematik die in der Basisklasse implementierte Methode *simulate* aufgerufen.

B.4 Performance

Neben der Anforderung einer transparenten und physikalisch realitätsnahen Implementierung des Absorptionsmechanismus werden auch hohe Ansprüche an die Performance der Simulationsumgebung gestellt. In den simulativ analysierten akustischen Versuchsanordnungen ist die Wellenlänge relativ zur Ausdehnung der akustisch aktiven Elemente klein. Daraus resultiert für eine Simulation eine hohe örtliche Auflösung im Simulationsmodell. Um die Leistungsfähigkeit der FDTD-Implementierung einzuschätzen und mit alternativen Simulationsverfahren zu vergleichen, werden Simulationen eines schallhart berandeten akustischen Wellenleiters mit unterschiedlichen örtlichen Auflösungen durchgeführt. Der Wellenleiter ist zylinderförmig, hat einen Radius von 1 mm und eine Länge von 100 mm. Es wird ein Wellenleitermedium mit wasserähnlichen Parametern gewählt (Schallgeschwindigkeit $c = 1500 \,\mathrm{m \, s^{-1}}$, Dichte $\rho_0 = 1000 \,\mathrm{kg \, m^{-3}}$). Weiterhin wird keine Absorption angenommen. Die Performance von *pyfds* wird durch Absorption nicht negativ beeinflusst, da keine weiteren, von Null verschiedenen Elemente in den Simulationsmatrizen entstehen. Angeregt wird der Wellenleiter durch ein gaußförmig moduliertes Sinussignal mit einer Mittenfrequenz von 2 MHz und einer relativen Bandbreite von 0,1. Es werden 3000 zeitliche Quantisierungsschritte mit $t_{\Delta} = 10 \,\mathrm{ns}$ berechnet. Um Simulationen mit unterschiedlichen Anzahlen an Knoten durchzuführen, wird die örtliche Auflösung x_{Δ} bzw. y_{Δ} zwischen 20 µm und 80 µm variiert. Erwartungsgemäß zeigt sich (auch bei linearer Darstellung) ein näherungsweise linearer Zusammenhang zwischen der Anzahl der Elemente und der Rechenzeit (Abbildung B.3), wobei 3000 Zeitschritte bei einer Knotenanzahl von etwa $256 \cdot 10^3$ etwa eine Minute Rechenzeit benötigen¹.

Zum Vergleich wird die gleiche Anordnung in der Finite Elemente Simulationsumgebung CFS++ [Kal10] aufgebaut. Die leicht abweichende Knotenanzahl für die verschiedenen Realisierungen des Modells resultiert aus der Netzberechnung, wobei die dazu notwendige Zeit bei der Berechnungszeit nicht inkludiert wird. Es wird ein reguläres Netz verwendet. Im Vergleich zeigt sich, dass die Finite Elemente Implementierung etwa eine Größenordnung mehr Berechnungszeit benötigt (Abbildung B.3). Ursächlich hierfür ist die Tatsache, dass die Berechnung eines Zeitschritts mit der Finite Elemente Methode das Lösen eines Gleichungssystems bedingt [Zie13], während bei der Verwendung finiter Differenzen lediglich eine Matrix-Vektor-Multiplikation durchgeführt wird [Lan17; Yee66]. Ein

 $^{^1 \}text{Verwendete Hardware: } Intel \ensuremath{\mathbb{R}}$ Core $^{\ensuremath{\mathbb{T}}\xspace}$ i7–7700K, 32 GB Arbeitsspeicher.

B Simulation von Schallfeldern



Abbildung B.3: Laufzeitvergleich der Simulation eines akustischen Wellenleiters mit pyfds und CFS++.

Nachteil der Verwendung von FDTD, wie sie in *pyfds* implementiert sind, gegenüber der FEM besteht darin, dass durch die Verwendung regulärer Gitter keine komplexen Geometrien realisiert werden können und immer das gesamte, rechteckige Rechengebiet vernetzt werden muss. Da die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten akustischen Anordnungen jedoch geometrisch vergleichsweise einfach sind, werden die Feldsimulationen mit finiten Differenzen im Zeitbereich durchgeführt und profitieren damit von der um eine Größenordnung kürzeren Laufzeit.

C Tabellarische Übersicht der Messergebnisse

Im Folgenden werden die Messergebnisse für die thermoviskosen Verluste μ und für die Volumenviskosität μ_v sowie deren Unsicherheiten $(u_{\mu} \text{ und } u_{\mu_v})$ in tabellarischer Form in Abhängigkeit des thermodynamischen Zustands des Fluids aufgeführt. Der Zustand wird dabei bestimmt durch die gemessene, absolute Temperatur T_0 und den statischen Druck p_0 . Die ebenfalls angegebene Dichte ρ_0 sowie die Schallgeschwindigkeit c werden aus den Zustandsgleichungen für das jeweilige Fluid [Lem13] ermittelt. Weiterhin wird angegeben, mit welcher Messanordnung (Sys.) die Daten erfasst wurden, wobei A bzw. B für die ursprüngliche Messanordnung in Status A bzw. B stehen (vgl. Tabelle 6.2) und N für die überarbeitete Messanordnung. Für 1-Propanol und 2-Propanol werden keine Ergebnisse für die Volumenviskosität aufgeführt, da aktuell keine etablierten Zustandsgleichungen für die Wärmeleitfähigkeit und die Scherviskosität dieser Fluide vorliegen [Bel14; Lem13].

T_0 K	p_0 MPa	$ ho_0 \ { m kgm^{-3}}$	$c m s^{-1}$	μ mPa s	$\mu_{ m v}$ mPa s	u_{μ} mPa s	$u_{\mu_{v}}$ mPas	Sys.
300,0	30,081	1009,6	1551,7	3,42	2,29	0,224	0,225	А
300,0	30,102	$1009,\!6$	1551,7	$3,\!41$	$2,\!27$	0,226	0,227	Α
300,0	60,103	$1021,\!9$	1601,7	$3,\!37$	$2,\!23$	0,230	0,230	А
300,0	67,708	1024,9	$1614,\!4$	$3,\!18$	$2,\!04$	0,232	0,232	А
300,0	$70,\!146$	$1025,\!9$	1618, 4	$3,\!42$	$2,\!27$	0,234	0,234	А
300,0	$74,\!897$	1027,7	$1626,\!3$	$3,\!79$	$2,\!64$	0,238	0,239	А
300,0	$81,\!856$	1030,4	$1637,\!9$	$3,\!51$	$2,\!36$	0,236	0,237	А
350,1	30,252	986,7	1612,4	$1,\!62$	$1,\!10$	0,214	0,214	А

C.1 Wasser

T_0 Sys. c μ $\mu_{\rm v}$ u_{μ} $u_{\mu_{\mathbf{v}}}$ p_0 ρ_0 ${\rm kg}\,{\rm m}^{-3}$ ${\rm m\,s^{-1}}$ Κ MPa mPasmPas $mPa\,s$ mPas 220,40,100 860,2 6,01 2,740,326 0,337А 1382,3220,41,839 861,3 1390,26,102,800,3300,344А 220,6 5,015863,11403,6 6,132,770,3310,346А 865,9 220,89,876 1423,66,162,730,3370,351А 866,2 2,73221,010,454 1425,56,170,338 0,353А 220,520,095 872,3 1466,16,29 2,60 0,3400,359А 220,440,356 883,4 1539,56,482,330,3560,372А 0,400 220,3 60,890 893,7 1605,96,80 2,160,376А 244,20,125837,1 1289,0 4,202,320,4870,450А 244,3 837,6 2,350,2840,7611292,34,24 0,289А 244,31,200 837,9 1294,54,172,28 0,2890,292 А 244,3 1,980 838,4 1298,44,152,250,2820,288 А 244,3 5,110840,7 1314,12,470,2870,292 4,40А 244,3843,9 0,3009,712 1336,14,362,370,305А 2,22244,2 20,046 850,8 1382,64,330,296 0,302А 244,340,452 863.1 1462,74,562,23 0,320 0,326 А 1,94 244.360,187 873,8 1531,24,51 0,320 0,326А 299,90,963 785,5 1100,0 1,771,050,2380,239А 299,92,240 786,8 1108,31,700,970,233 0,234А 299,8 2,600 787,2 1111,0 1,06 0,2350,236 1,80А 299,95,128789,5 1126,51,740,990,2410,242А 300,09,896 793,9 1154,90,930,2410,242 $1,\!69$ А 803,5 300,021,093 1215,11,640,830,2440,245А 300,040,780 818,2 1305,51,660,770,2560,257А 299,958,877 830,2 1377,32,08 1,130,2740,275А 299,980,229 842,8 2,311,280,2870,2881452,7 А 299,998,460 852,5 1511,12,291,200,292 0,293 А 300,0124,558 865,3 1587,8 1,18 0,3010,303 2,37А 349,982,312 808,9 1358,30,790,22 0,262 0,263 А 0,89 0,290,273349,9100,204 819,8 1419,90,273А 349,9 125,278 833,6 1498,31,010,370,2840,284А 272,7811,0 1191,1 2,25 $1,\!14$ 0,4301,098 0,429В 272,7811,7 1195,7 1,14 1,8632,260,4360,437В 272,74,049 813,5 1208,12,341,210,4380,440В 272,79,056 817,6 1235,32,401,240,4250,426В 272,724,515 829,1 1310,42,40 $1,\!14$ 0,4310,433В В 272,748,800 844,8 1409,7 2,68 1,270,4330,435

C.2 Methanol
T_0 K	p_0 MPa	ρ_0 kg m ⁻³	c m s ⁻¹	μ mPa s	$\mu_{\rm v}$	u_{μ} mPa s	$u_{\mu_{v}}$ mPa s	Sys.
π	MII a	Kg III	111.5	IIII a s	IIII a s	IIII a s	IIII a S	
272,7	$73,\!350$	858,7	1495,7	$2,\!46$	$0,\!91$	$0,\!449$	$0,\!451$	В
272,7	$97,\!507$	871,0	1571,0	2,02	$0,\!33$	$0,\!437$	$0,\!440$	В
$_{303,1}$	$0,\!870$	782,5	1089,4	$1,\!67$	$0,\!98$	$0,\!421$	$0,\!421$	В
303,1	1,951	$783,\!5$	1096,5	1,72	1,02	$0,\!424$	$0,\!425$	В
303,1	4,518	786,1	1113,0	$1,\!82$	$1,\!11$	$0,\!423$	$0,\!423$	В
303,1	9,087	790,4	1140,9	$1,\!96$	$1,\!24$	$0,\!423$	$0,\!423$	В
$_{303,1}$	$22,\!665$	802,1	$1214,\!3$	$2,\!23$	$1,\!45$	$0,\!429$	$0,\!429$	В
303,1	$30,\!532$	808,3	$1252,\!2$	$2,\!26$	$1,\!44$	$0,\!421$	$0,\!422$	В
$_{303,1}$	$51,\!975$	$823,\!4$	$1343,\!4$	2,72	$1,\!83$	$0,\!426$	$0,\!427$	В
$_{303,2}$	$72,\!598$	$836,\!1$	$1419,\!4$	$1,\!93$	$0,\!97$	$0,\!420$	$0,\!421$	В
$_{303,2}$	$98,\!513$	850,4	$1504,\!4$	$1,\!54$	$0,\!49$	$0,\!422$	$0,\!424$	В
$_{303,1}$	$125,\!317$	$863,\! 6$	$1583,\! 6$	$1,\!66$	$0,\!53$	$0,\!429$	$0,\!430$	В
333,2	9,537	$763,\! 6$	$1057,\! 6$	$1,\!21$	0,71	$0,\!413$	$0,\!413$	В
333,2	$24,\!494$	778,3	$1145,\! 6$	1,71	$1,\!16$	$0,\!412$	$0,\!412$	В
$333,\!2$	49,536	798,7	1264,4	$1,\!94$	$1,\!34$	$0,\!414$	$0,\!415$	В
333,2	$75,\!270$	816,3	1365,2	$1,\!84$	$1,\!17$	$0,\!412$	$0,\!413$	В
333,2	98,528	830,1	1444,7	1,70	$0,\!99$	$0,\!420$	$0,\!421$	В
333,2	$124,\!318$	$843,\!8$	1524,0	$1,\!37$	$0,\!60$	$0,\!407$	$0,\!408$	В
$278,\!3$	0,109	804,9	1166,0	$2,\!15$	$1,\!14$	0,396	0,344	Ν
278,3	0,228	805,0	1166,7	1,88	$0,\!87$	$0,\!355$	0,326	Ν
278,3	0,560	805,3	1168,7	$1,\!98$	$0,\!97$	0,318	0,319	Ν
278,3	1,091	$805,\!8$	1171,9	$2,\!13$	$1,\!12$	0,317	0,318	Ν
278,3	$2,\!179$	806,7	1178,4	$2,\!19$	$1,\!17$	0,318	0,320	Ν
278,3	4,917	809,1	1194,3	2,09	1,05	0,317	0,318	Ν
278,3	9,964	$813,\!3$	1222,0	$2,\!49$	$1,\!42$	0,321	0,323	Ν
293,3	0,115	790,9	1116,0	$1,\!69$	0,89	$0,\!436$	0,354	Ν
$293,\!3$	0,280	791,1	1117,0	$1,\!62$	0,83	$0,\!353$	0,324	Ν
293,3	0,563	791.4	1118,9	1,85	1,05	0,318	0,316	Ν
293,3	1,135	791,9	1122,5	1,78	0,98	0,311	0,311	Ν
293,3	2,016	792,7	1128,1	1,58	0,78	0,314	0,315	Ν
293,3	$5,\!153$	795.7	1147,4	2,09	$1,\!27$	0,314	0,315	Ν
293,3	10,154	800,1	1176,4	1,77	0,93	0,314	0,315	Ν
303,2	0,113	$781,\!6$	1083.8	$1,\!66$	0,97	0,486	0,384	Ν
303.2	0,121	781.6	1083.9	1,70	1,01	0,498	0,394	Ν
303.2	0,248	781.7	1084.7	1,66	0.97	0,400	0.346	Ν
303.2	0,694	782.2	1087.7	1,66	0.97	0.315	0.314	Ν
303.2	1,056	782.5	1090.2	1,54	0.84	0.312	0.312	Ν
303.2	2.075	783.5	1096.9	1.66	0.96	0.309	0.309	Ν
303.2	5.021	786.4	1115.8	1.54	0.82	0.310	0.311	N
303,2	10,058	791,1	1146,1	1,68	0,95	0,314	0,314	Ν

T_0 K	p_0 MPa	$\substack{\rho_0\\\mathrm{kg}\mathrm{m}^{-3}}$	$c m s^{-1}$	μ mPa s	$\mu_{ m v}$ mPa s	u_{μ} mPa s	$u_{\mu_{v}}$ mPa s	Sys.
323,2	0,114	$762,\! 6$	$1021,\!5$	$1,\!49$	$0,\!96$	0,601	$0,\!457$	Ν
323,2	0,217	762,7	1022,3	$1,\!50$	$0,\!97$	0,518	$0,\!413$	Ν
323,2	0,512	763,0	1024,4	$1,\!54$	$1,\!00$	0,341	0,325	Ν
323,2	1,100	763,7	1028,7	$1,\!48$	$0,\!95$	0,312	0,312	Ν
323,2	$2,\!259$	765,0	1037,1	$1,\!47$	$0,\!93$	0,313	0,313	Ν
323,2	$5,\!174$	768,2	1057,2	$1,\!64$	$1,\!09$	0,311	0,312	Ν
323,2	$10,\!541$	773,7	$1091,\!9$	$1,\!59$	1,03	0,314	0,315	Ν

 ${\cal C}$ Tabellarische Übersicht der Messergebnisse

C.3 1-Propanol

T_0	p_0	ρ_0	c m s ⁻¹	μ mPa s	$\mu_{\rm v}$	u_{μ}	$u_{\mu_{\mathbf{v}}}$	Sys.
Γ	IVII a	ĸg III	III S	nn as	IIII a s	nn as	nn as	
249,9	9,323	843,1	$1417,\!3$	$11,\!67$		0,725		А
$249,\!9$	$20,\!903$	$849,\!8$	$1467,\!9$	$12,\!51$		0,761		А
$249,\!9$	$39,\!564$	$859,\!5$	$1541,\!0$	$14,\!13$		0,822		Α
300,0	$0,\!138$	798,4	1201,7	$3,\!82$		0,762		Α
300,0	$1,\!174$	$799,\!3$	1208,0	$3,\!83$		$0,\!432$		А
300,0	2,560	800,4	1216,3	$3,\!86$		$0,\!437$		А
300,0	5,042	802,3	1230,8	$3,\!91$		$0,\!446$		А
300,0	9,515	805,7	1256,1	$3,\!92$		$0,\!440$		А
300,0	$19,\!848$	813,1	1310,3	$4,\!21$		$0,\!469$		А
300,0	39,521	825,7	1401,1	$4,\!60$		0,506		А
300,0	49,960	831,7	$1444,\!2$	$4,\!67$		0,517		Α

C.4 2-Propanol

T_0	p_0	$ ho_0$	c	μ	$\mu_{ m v}$	u_{μ}	$u_{\mu_{\mathbf{v}}}$	Sys.
Κ	MPa	${ m kg}{ m m}^{-3}$	${ m ms^{-1}}$	${ m mPas}$	mPas	mPas	mPas	
249,8	$0,\!159$	819,7	1315,5	$13,\!88$		0,787		А
249,9	0,992	820,3	$1319,\!9$	$13,\!62$		0,766		А
249,9	2,039	821,0	$1325,\!4$	$14,\!22$		0,802		Α
249,8	4,937	$822,\!9$	1340,7	$14,\!30$		0,813		А
249,8	9,128	825,7	1361,9	$15,\!00$		0,846		А
249,9	$10,\!803$	826,7	1370,1	$15,\!29$		0,856		А
249,9	19,905	$832,\!3$	$1412,\!8$	$16,\!44$		0,913		А
249,9	41,767	844,3	$1503,\!9$	19,78		1,072		А
249,9	$59,\!235$	$853,\!0$	1567,9	$22,\!08$		1,160		А

T_0 K	p_0 MPa	$ ho_0 \ { m kgm^{-3}}$	$c m s^{-1}$	μ mPas	$\mu_{\rm v}$ mPa s	u_{μ} mPa s	$u_{\mu_{v}}$ mPa s	Sys.
299,8	0,865	780,3	1139,8	7,24		0,516		А
$299,\!8$	2,097	781,4	1148,1	$7,\!33$		0,523		Α
$299,\!8$	$5,\!133$	784,0	1168,1	$7,\!56$		0,529		Α
$299,\!8$	$9,\!677$	787,8	1196,7	$7,\!80$		0,556		А
$299,\!8$	$20,\!194$	796,0	1257,1	8,17		0,583		А
$299,\!8$	$39,\!488$	809,2	1353,2	9,03		$0,\!625$		Α
$299,\!8$	60,935	821,9	1444,3	9,75		$0,\!673$		Α

C.5 n-Hexan

T_0 K	p_0 MPa	$ ho_0 \ { m kgm^{-3}}$	$c m s^{-1}$	μ mPas	$\mu_{ m v}$ mPas	u_{μ} mPa s	$u_{\mu_{v}}$ mPas	Sys.
303,3	0,982	651,1	1041,7	1,57	1,18	0,423	0,423	В
303,3	2,204	$652,\!5$	$1051,\!8$	$1,\!66$	1,26	$0,\!422$	$0,\!422$	В
303,3	$5,\!337$	656,1	1076, 9	1,76	$1,\!34$	$0,\!426$	$0,\!426$	В
303,3	9,420	660,4	$1107,\!8$	$1,\!89$	$1,\!44$	$0,\!419$	$0,\!419$	В
303,3	$24,\!254$	$674,\!4$	1208,2	$2,\!31$	1,79	$0,\!420$	$0,\!420$	В
303,3	38,367	685,7	1290,8	$2,\!61$	$2,\!00$	$0,\!429$	$0,\!429$	В
303,3	50,916	$694,\! 6$	$1356,\!9$	3,11	$2,\!43$	$0,\!431$	$0,\!431$	В
303,3	75,748	709,8	1473, 1	$3,\!54$	2,71	$0,\!444$	$0,\!444$	В
$303,\!3$	$98,\!926$	722,0	$1568,\!8$	$3,\!82$	$2,\!85$	$0,\!450$	$0,\!450$	В
$303,\!3$	$125,\!981$	$734,\!5$	1669,5	$4,\!69$	$3,\!54$	$0,\!479$	$0,\!479$	В
278,3	0,099	$672,\!8$	$1142,\!4$	$2,\!61$	$2,\!10$	$0,\!482$	$0,\!435$	Ν
278,3	0,209	$672,\!9$	$1143,\!3$	$2,\!62$	$2,\!11$	$0,\!425$	$0,\!394$	Ν
278,3	0,549	$673,\!3$	$1145,\!8$	2,70	$2,\!18$	0,333	0,332	Ν
278,3	$1,\!153$	$673,\!9$	1150,2	$2,\!63$	$2,\!12$	0,328	0,328	Ν
278,3	2,065	$674,\!8$	$1156,\!9$	$2,\!66$	$2,\!14$	0,329	0,329	Ν
278,3	$5,\!135$	677,7	1178,7	2,74	$2,\!19$	0,331	0,331	Ν
278,3	9,873	$681,\!9$	1210,9	$2,\!89$	$2,\!31$	$0,\!336$	$0,\!336$	Ν
278,3	$19,\!686$	690,1	1272,7	$3,\!33$	$2,\!68$	$0,\!344$	$0,\!344$	Ν
$293,\!3$	$0,\!105$	659,3	1077,3	$2,\!17$	1,74	$0,\!531$	$0,\!468$	Ν
293,3	0,232	659,4	1078,3	$2,\!13$	$1,\!69$	$0,\!441$	$0,\!402$	Ν
293,3	0,513	659,7	1080,5	$2,\!11$	$1,\!68$	$0,\!330$	0,326	Ν
$293,\!3$	0,841	660,1	1083,1	$2,\!19$	1,75	0,322	0,322	Ν
$293,\!3$	2,011	$661,\!4$	$1092,\!3$	$2,\!17$	1,72	0,321	0,321	Ν
$293,\!3$	5,267	$664,\!8$	1117,2	$2,\!18$	1,71	0,322	0,322	Ν
$293,\!3$	$10,\!487$	$670,\! 0$	$1154,\!8$	$2,\!25$	1,75	0,324	0,324	Ν
293,3	21,019	679,4	1224,2	$2,\!54$	$1,\!98$	0,329	0,329	Ν

T_0	p_0	$ ho_0$	c	μ	$\mu_{ m v}$	u_{μ}	$u_{\mu_{\mathbf{v}}}$	Sys.
Κ	MPa	${\rm kg}{\rm m}^{-3}$	${ m ms^{-1}}$	mPas	${\rm mPas}$	mPas	mPas	
303,2	0,109	650,1	1034,5	$1,\!91$	$1,\!52$	0,562	$0,\!489$	Ν
303,2	0,261	650,3	$1035,\!8$	$1,\!99$	$1,\!60$	$0,\!452$	$0,\!411$	Ν
303,2	0,536	$650,\! 6$	1038,1	$1,\!97$	$1,\!58$	0,335	$0,\!330$	Ν
303,2	1,098	651,3	$1042,\!8$	2,01	$1,\!61$	0,318	0,318	Ν
303,2	2,053	652,4	1050,7	2,02	$1,\!62$	0,318	0,318	Ν
303,2	5,009	$655,\!8$	1074,4	1,97	1,55	0,316	0,316	Ν
303,2	9,850	660,9	1111,1	2,06	$1,\!61$	0,320	0,320	Ν
303,2	20,016	670,7	1181,3	$2,\!24$	1,74	0,322	0,322	Ν
323,2	9,899	644,0	$1035,\!5$	$1,\!81$	1,44	0,318	0,318	Ν
323,2	20,063	655,1	1111,2	$1,\!94$	1,52	0,319	0,318	Ν

 ${\cal C}$ Tabellarische Übersicht der Messergebnisse

C.6 n-Octan

T_0 K	p_0 MPa	$ ho_0 \ { m kgm^{-3}}$	$c m ms^{-1}$	μ mPa s	$\mu_{ m v}$ mPa s	u_{μ} mPa s	$u_{\mu_{v}}$ mPa s	Sys.
300.0	0.218	696.9	1140.1	2.71	2.03	0.539	0.527	В
300,0	1,149	697.8	1146.8	2,72	2,04	0,454	0.455	В
300,0	2,770	699.3	1158.2	2,81	2,11	0,446	0.446	В
300,0	2,787	699.3	1158.3	2,76	2.06	0.447	0.447	В
300,0	2,941	699,5	1159,4	2,82	$2,\!12$	0,442	0,443	В
300,0	4,973	701.3	1173,3	2,88	2,16	0,445	0,445	В
300,0	9,689	705,4	1204,3	$2,\!98$	$2,\!23$	$0,\!451$	$0,\!451$	В
300,0	20,316	713,8	1268,9	$3,\!27$	$2,\!44$	$0,\!456$	$0,\!456$	В
300,0	$39,\!667$	727,2	1372,8	$3,\!52$	$2,\!53$	$0,\!458$	$0,\!459$	В
300,0	$59,\!690$	739,1	1466,9	$3,\!83$	$2,\!66$	0,463	0,465	В
299,9	80,675	750,1	1555,4	4,05	$2,\!68$	0,467	0,469	В
278,3	0,111	714,2	1226,3	3,70	2,81	0,361	0,357	Ν
278,3	0,223	714,3	1227,0	3,72	$2,\!82$	0,362	0,357	Ν
278,3	0,532	$714,\! 6$	1229,0	$3,\!69$	2,79	0,349	$0,\!350$	Ν
278,3	1,039	715,0	$1232,\!3$	$3,\!80$	$2,\!90$	$0,\!351$	0,352	Ν
278,3	2,166	715,9	1239,5	$3,\!74$	$2,\!83$	0,349	$0,\!350$	Ν
278,3	5,024	718,2	1257,5	$3,\!84$	2,90	0,352	0,353	Ν
278,3	10,234	722,1	1289,0	4,10	$3,\!10$	0,360	0,361	Ν
$278,\!3$	$20,\!142$	729,1	1345,0	$4,\!58$	$3,\!48$	$0,\!370$	$0,\!371$	Ν
293,2	0,870	702,9	$1171,\!3$	$2,\!95$	2,21	0,332	0,332	Ν
$293,\!3$	0,105	702,2	1166,0	$3,\!00$	$2,\!27$	0,366	$0,\!353$	Ν
$293,\!3$	0,187	$702,\!3$	1166, 5	$3,\!06$	$2,\!32$	$0,\!370$	$0,\!357$	Ν
$293,\!3$	0,471	702,5	1168,5	$3,\!00$	$2,\!27$	0,333	0,333	Ν

T_0	p_0	ρ_0	c	μ	$\mu_{\rm v}$	u_{μ}	$u_{\mu_{\mathbf{v}}}$	Sys.
N	MPa	kg m °	ms -	mPas	mPas	mPas	mPas	
$293,\!3$	2,104	704,0	1179,7	$2,\!99$	$2,\!24$	0,336	0,336	Ν
$293,\!3$	4,847	706,4	1198,0	$3,\!06$	$2,\!29$	0,335	0,336	Ν
$293,\!3$	10,245	710,9	$1232,\!6$	$3,\!41$	$2,\!60$	0,343	0,344	Ν
$293,\!3$	21,063	719,2	$1296,\! 6$	3,75	$2,\!84$	0,352	0,352	Ν
303,2	0,105	694,2	1126,7	2,76	$2,\!11$	0,402	0,374	Ν
303,2	0,211	694,3	1127,4	2,78	$2,\!12$	0,367	0,354	Ν
303,2	$0,\!540$	$694,\! 6$	1129,8	2,72	2,06	0,332	0,332	Ν
303,2	1,003	695,0	1133,2	2,78	$2,\!12$	0,333	0,334	Ν
303,2	2,054	696,0	1140,7	2,74	2,07	0,333	0,334	Ν
303,2	5,072	698, 8	1161,7	$2,\!81$	$2,\!12$	0,328	0,329	Ν
303,2	10,021	703,2	$1194,\! 6$	$2,\!96$	$2,\!24$	0,331	0,332	Ν
303,2	$20,\!640$	711,8	1259,7	$3,\!34$	$2,\!54$	0,345	0,345	Ν
323,2	0,106	677,9	1049,9	$2,\!30$	1,77	0,447	0,403	Ν
323,2	0,218	678,1	1050,8	$2,\!27$	1,74	0,391	0,364	Ν
323,2	0,491	678,4	1052,9	2,32	1,79	0,330	0,328	Ν
323,2	1,031	679,0	1057,2	$2,\!28$	1,75	0,323	0,323	Ν
323,2	1,993	680,0	1064,7	$2,\!31$	1,77	0,325	0,326	Ν
$323,\!2$	$5,\!324$	$683,\!5$	1089,9	$2,\!42$	$1,\!87$	0,325	0,325	Ν
$323,\!2$	$10,\!240$	688,4	1125,1	$2,\!51$	1,92	0,327	0,327	Ν
$323,\!2$	20,701	$697,\!8$	1193,7	$2,\!68$	2,03	0,329	0,329	Ν
$349,\!9$	10,214	668,1	1034,4	$2,\!11$	$1,\!66$	0,320	0,321	Ν
349,9	20,299	$678,\! 6$	1107,0	$2,\!29$	1,78	0,323	0,324	Ν

C.7 n-Decan

T_0	p_0 MDa	ρ_0	c	μ	$\mu_{\rm v}$	u_{μ}	$u_{\mu_{\mathbf{v}}}$	Sys.
	мга	ĸg m	ms	mras	mras	mras	mras	
$278,\!3$	$0,\!104$	742,0	$1314,\!8$	4,76	$3,\!19$	$0,\!376$	0,377	Ν
278,3	0,205	742,0	1315,4	4,75	$3,\!18$	0,372	0,373	Ν
278,3	0,513	742,3	1317,2	4,72	$3,\!15$	0,370	0,370	Ν
278,3	1,073	742,7	$1320,\! 6$	$4,\!84$	$3,\!25$	0,375	0,376	Ν
278,3	2,041	743,4	1326,4	$4,\!86$	$3,\!26$	0,376	0,376	Ν
278,3	4,931	745,4	$1343,\!3$	$5,\!10$	$3,\!44$	0,382	0,382	Ν
278,3	10,020	748,8	1372,2	$5,\!28$	$3,\!52$	0,386	0,387	Ν
278,3	19,958	755,1	$1425,\!4$	$5,\!94$	$3,\!98$	0,409	0,410	Ν
293,2	$0,\!105$	730,3	1253,1	3,71	$2,\!48$	0,360	0,355	Ν
293,2	0,252	730,5	1254,0	3,74	$2,\!50$	0,353	$0,\!351$	Ν
293,2	$0,\!494$	$730,\! 6$	$1255,\!6$	3,71	$2,\!48$	$0,\!350$	0,349	Ν

C Tabellarische	Übersicht	der Messergebnisse	

T_0 K	p_0 MPa	$ ho_0 \ { m kgm^{-3}}$	$\begin{array}{c} c\\ \mathrm{ms^{-1}} \end{array}$	μ mPas	$\mu_{ m v}$ mPa s	u_{μ} mPa s	$u_{\mu_{v}}$ mPas	Sys
293,2	1,003	731,0	1258,8	3,77	2,52	0,349	0,349	Ν
293,2	2,045	$731,\!9$	1265,4	3,76	$2,\!50$	$0,\!353$	$0,\!354$	Ν
293,2	5,167	734,2	1284,7	$3,\!91$	$2,\!60$	$0,\!351$	$0,\!351$	Ν
293,2	10,076	$737,\!8$	$1313,\!9$	$4,\!20$	$2,\!82$	$0,\!357$	$0,\!357$	Ν
293,2	$20,\!517$	744,9	$1372,\!2$	$4,\!61$	$3,\!07$	0,369	0,369	Ν
303,2	0,106	$722,\! 6$	1213,2	$3,\!13$	2,06	$0,\!347$	0,344	Ν
303,2	0,223	722,7	1214,0	$3,\!13$	2,06	$0,\!340$	0,336	Ν
303,2	$0,\!485$	722,9	1215,7	$3,\!15$	$2,\!08$	0,338	0,338	Ν
303,2	1,035	723,4	1219,4	$3,\!15$	$2,\!08$	0,337	0,337	Ν
303,2	$2,\!195$	724,3	$1226,\!9$	$3,\!21$	$2,\!12$	0,337	0,337	Ν
303,2	4,813	726,4	1243,7	$3,\!29$	$2,\!17$	$0,\!341$	$0,\!341$	Ν
303,2	10,184	$730,\!6$	1276,9	$3,\!46$	$2,\!27$	0,345	$0,\!346$	Ν
303,2	$20,\!175$	737,7	$1334,\!4$	$3,\!86$	$2,\!53$	$0,\!356$	$0,\!356$	Ν
323,2	0,101	707,1	1136,3	$2,\!55$	1,72	$0,\!351$	0,338	Ν
323,2	0,229	707,2	1137,2	$2,\!57$	1,75	0,339	0,334	Ν
323,2	0,516	707,5	1139,3	$2,\!57$	1,74	0,326	0,326	Ν
323,2	0,986	707,9	$1142,\! 6$	$2,\!52$	$1,\!69$	0,326	0,326	Ν
323,2	1,966	708,8	$1149,\! 6$	$2,\!61$	1,77	0,326	0,326	Ν
323,2	5,214	711,8	1172,0	$2,\!65$	1,77	0,325	0,325	Ν
323,2	$9,\!985$	$715,\!9$	$1203,\!5$	2,70	1,77	$0,\!331$	$0,\!331$	Ν
323,2	20,233	724,0	1266,3	$2,\!96$	$1,\!93$	0,333	$0,\!334$	Ν
350,0	0,109	686,0	1037,7	$1,\!91$	$1,\!29$	0,366	0,342	Ν
350,0	0,213	686,2	1038,5	$1,\!94$	$1,\!32$	$0,\!341$	0,329	Ν
350,0	$0,\!478$	686, 4	$1040,\!6$	$1,\!92$	$1,\!30$	0,322	$0,\!321$	Ν
350,0	$1,\!053$	687,1	1045,2	2,01	$1,\!38$	0,319	0,319	Ν
350,0	2,100	688,2	$1053,\!5$	$1,\!96$	$1,\!33$	0,318	0,318	Ν
350,0	4,968	$691,\!3$	$1075,\! 6$	$2,\!00$	$1,\!35$	0,315	0,315	Ν
350,0	9,937	696, 3	$1111,\!9$	$2,\!18$	$1,\!49$	0,321	$0,\!321$	Ν
350,0	20,031	$705,\!5$	1179,2	$2,\!28$	$1,\!51$	$0,\!324$	$0,\!324$	Ν
$361,\!1$	2,062	$679,\!5$	$1014,\!4$	1,70	$1,\!14$	$0,\!314$	$0,\!314$	Ν
$361,\!1$	4,791	$682,\! 6$	$1036,\!4$	1,75	$1,\!16$	$0,\!316$	$0,\!316$	Ν
$361,\!1$	9,758	$688,\!0$	$1074,\!3$	$1,\!86$	$1,\!24$	$0,\!317$	$0,\!317$	Ν
361.1	20,009	697,9	1145,2	2,11	$1,\!42$	0,322	0,322	Ν

T_0	p_0	ρ_0	<i>C</i> 1	μ	$\mu_{\rm v}$	u_{μ}	$u_{\mu_{v}}$	Sys.
K	MPa	kgm^{-3}	${\rm ms^{-1}}$	mPas	mPas	mPas	mPas	
303,2	1,228	858,4	$1287,\!3$	$7,\!99$	$7,\!26$	0,770	0,770	В
$_{303,2}$	2,291	859,3	$1292,\!9$	8,11	$7,\!38$	0,779	0,779	В
303,2	4,925	$861,\!4$	1306,5	8,44	$7,\!69$	0,790	0,790	В
303,2	9,396	864,8	1329,0	8,69	$7,\!92$	0,780	0,781	В
$_{303,2}$	$25,\!313$	876, 1	1403, 1	$9,\!10$	8,23	$0,\!801$	$0,\!801$	В
$_{303,2}$	49,300	$891,\! 0$	$1501,\! 6$	$10,\!09$	$9,\!08$	$0,\!821$	$0,\!821$	В
$_{303,2}$	$71,\!494$	903,1	1582,1	$11,\!18$	10,02	$0,\!876$	$0,\!876$	В
$_{303,2}$	98,221	$916,\! 0$	$1669,\!8$	$12,\!10$	10,74	$0,\!907$	$0,\!907$	В
$_{303,2}$	$123,\!487$	927,0	$1745,\!3$	$14,\!02$	$12,\!45$	$0,\!975$	$0,\!975$	В
348,1	$4,\!693$	$819,\! 6$	$1127,\!5$	$6,\!15$	$5,\!67$	$0,\!688$	$0,\!688$	В
348,1	$9,\!601$	$824,\! 6$	1157,2	$6,\!51$	$6,\!00$	$0,\!689$	$0,\!688$	В
348,1	$25,\!271$	838,7	$1242,\!5$	$7,\!56$	$7,\!00$	0,743	0,743	В
348,1	$52,\!693$	859,2	$1368,\!3$	8,90	8,24	0,778	0,778	В
348,1	$69,\!658$	$870,\!1$	1436,0	$9,\!65$	8,91	$0,\!812$	$0,\!812$	В
348,1	$98,\!253$	886,3	1538, 1	$10,\!39$	$9,\!55$	$0,\!827$	$0,\!827$	В
348,1	$124,\!973$	899,5	$1623,\!4$	10,72	9,76	$0,\!844$	$0,\!844$	В