

Mätning av energi och sammansättning av gasblandningar med ultraljud

Slutrapport
2005

Johan E. Carlson
EISLAB
Inst. för Systemteknik
Luleå tekniska universitet
971 87 Luleå

Epost: Johan.Carlson@ltu.se

Sammanfattning

Denna rapport är en sammanställning av det arbete som utförts vid EISLAB, Luleå tekniska universitet inom ramen för *SGC kollektivforskningsprogram med STEM*. Projektet syftar till att utveckla en mätmetod baserad på ultraljud som (on-line) kan mäta energivärde och sammansättning av bio- och naturgas.

Forskningsprojektet vid EISLAB har pågått under ett antal år, bland annat med stöd från samverkansprojektet *Biogas i fordon*. I denna rapport är dock fokus på de resultat som uppnått under 2005 och för mer detaljerad beskrivning av tidigare resultat hänvisas till referenser i slutet på rapporten.

Under 2005 har mätningar utförts på kalibreringsgaser med koldioxid och metan (90 - 100 % metan). Metoder för att extrahera relevant information och koppla detta till gasernas sammansättning har utvecklats.

Under 2005 har projektet resulterat i följande vetenskapliga publikationer:

- Två arbeten presenterade vid internationella konferenser, varav en accepterad för publicering i ett specialnummer av tidskriften *Ultrasonics* och en i konferensens *proceedings*.
- Två artiklar accepterade i vetenskapliga tidskrifter.

Bakgrund

Biogas har pekats ut som ett alternativ till diesel och bensin och det finns en starkt uttalad vilja att öka andelen biogas som drivmedel inom transportsektorn. Det är därför av intresse för både leverantörer och producenter att kunna mäta energiinnehåll och sammansättning hos biogas. Detta för att få tillförlitlighet i slutprodukten.

Man beräknar också att användandet syntesgas (kolmonoxid och vätgas) kommer att öka. I syntesprocessens olika steg förekommer olika gasblandningar, och för att optimera processen och säkra kvaliteten i slutprodukten finns ett behov av att kunna mäta sammansättningen av dessa gasblandningar. Liknande problem finns även inom petrokemisk industri, vid framställandet av olika industrigaser. Olika gaser skickas mellan olika processer och idag saknas billiga och tillförlitliga metoder för kvalitetsmätning on-line av dessa.

Naturgas som importeras till Sverige kommer från flertalet olika källor i Europa, vilket medför att gasblandningens sammansättning kan variera över tiden. Detta påverkar gasens energivärde, och därmed också elproduktionen. En korrekt mätning av energivärdet därför viktig för korrekt debitering av levererad energi. För att undvika haverier i gasturbinerna är det önskvärt med en snabb och robust reglering av kraftproduktionsprocessen. I dagsläget saknas on-line-metoder som är snabba, pålitliga, enkla och billiga.

En generell ultraljudmetod skulle kunna användas för bio-, natur- och syntetgas, och skulle därför vara intressant både inom petro- och processindustrin och för producenter och leverantörer av gas för drivmedels- och elproduktion.

Ultraljud har även visats vara användbart för mätning av gas- och vätskeflöden. På lite längre sikt är det därför troligt att en ultraljudsmetod kan användas både för gasanalys och för gasflödesmätning.

Tidigare arbete¹⁻³ visar att ultraljud är en potentiell metod för att mäta energiinnehåll i bio- och naturgas. Metoden baseras på mätning av olinjära effekter i gasens ljudhastighet. Dessa effekter beror av trycket, temperaturen och ljudets frekvens. Arbetet visar att om dessa storheter kan mätas separat, erhåller vi de ekvationer som kan användas till att analysera blandningsförhållandet för upp till sex ingående gaskomponenter.

En doktorand har tidigare arbetat med att teoretiskt modellera hur olika gasers molekyllära sammansättning påverkar dess akustiska egenskaper^{2,3}. Detta för att kunna förutsäga och modellera de storheter som sedan mäts med ultraljud.

Andra resultat⁴⁻⁶ visar hur man kan kombinera ultraljudmätningar med metoder för multivariat dataanalys, för att på så sätt komma åt gasblandningens sammansättning.

Syfte

På lång sikt är målet med projektet att ta fram en ultraljudsmetod som, on-line, kan:

- Mäta energivärde för en gasblandning och energiflöde för gasflöden.
- Detektera förekomsten av föroreningar i gasen.
- Bestämma koncentrationen av de olika komponenterna i gasblandningen.

Under 2005 var målet att utveckla analysmetoder för att ur uppmätta ultraljudspulser kunna extrahera den relevanta information som förutspåts i tidigare teoretiska studier, dvs. frekvensberoende ljudhastighet och dämpning. Ett annat delmål för 2005 var att genomföra inledande mätningar på blandningar som liknar upparbetad biogas.

Tidigare arbete har fokuserat på grundläggande forskning kring fysiken för vågubredning i gaser, samt inledande experimentella studier. Se framförallt doktorsavhandlingen av Martinsson²

Genomförande

Genomförda delmål

Förutom att sammanställa de teoretiska resultaten i en doktorsavhandling har inledande experiment genomförts enligt projektplanen i ansökan. Utöver detta har en vidareutveckling av den laborativa miljön inletts. Nya mätinstrument har införskaffats och förbättrad programvara har utvecklats.

Då ultraljudsmätning i gaser utsätts för mycket störningar i form av mätbrus, behövs nya metoder för att estimerar ljudhastighet och dämpning. Att utveckla sådana var ett av delmålen för 2005. Resultaten redovisas i nästa avsnitt.

Ett annat delmål var att utföra mätningar på gasblandningar som liknar upparbetad biogas, dvs. med hög metanhalt (>90%) och resten koldioxid. Detta har genomförts och resultaten presenteras nedan.

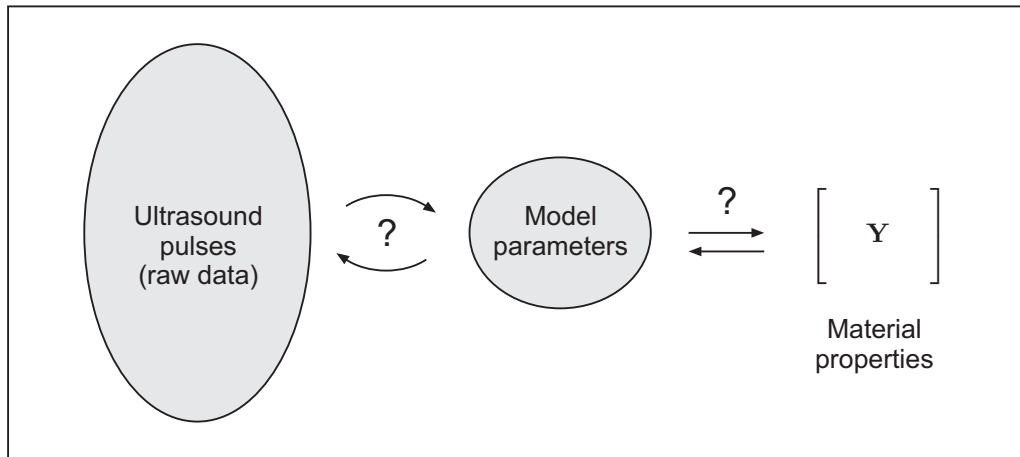
Resultat

För verksamhetsåret 2005 var målet att göra inledande mätningar på relevanta gasblandningar och med hjälp av de signalbehandlingsmetoder som utvecklats visa vilken noggrannhet som kan förväntas. Mätningar har genomförts på kalibreringsgaser med blandningar av metan och koldioxid. Dessa gaser beställdes från Air Liquide och har en analysnoggrannhet på 1% av CO₂-halten.

Resultat av mätningar på gaser med hög metanhalt

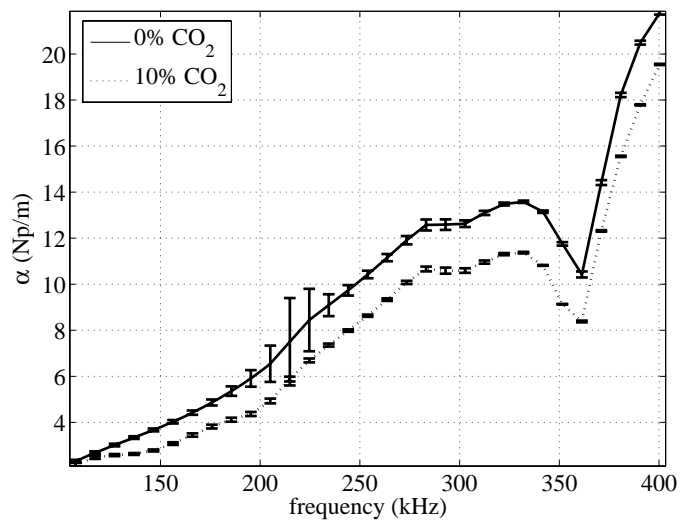
Som nämnts ovan var ett av målen för 2005 att demonstrera vilken noggrannhet man kan uppnå med metoden om man i förstäläget koncentrerar sig på gasblandningar som liknar upparbetad biogas, dvs. med hög metanhalt (>90%) och resten koldioxid. Dessa mätningar har utförts, för olika tryck och olika sammansättning av gasblandningarna. Nedan ges exempel på resultaten för 8,0 bars tryck ($\pm 0,01$ bar). Sammanställning av resultat för övriga tryck (från 1-7 bar) pågår. Vid samtliga mätningar var temperaturen $20,4 \text{ }^\circ\text{C} \pm 0,2 \text{ }^\circ\text{C}$.

Den metodik som använts kan tillämpas på ett stort antal mättekniska problem och sammanfattas enklast med Figur 1 nedan.

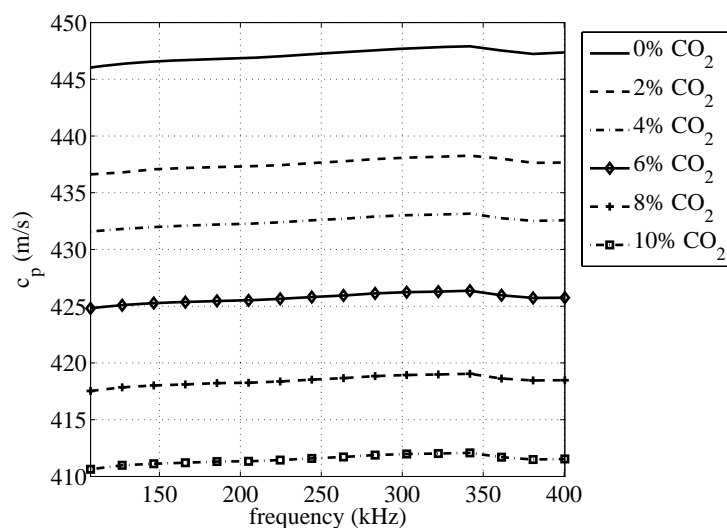


Figur 1: Från rådata (i detta fall ultraljudspulser) bestäms ett mindre antal parametrar som innehåller all relevant information om signalen. Dessa parametrar används sedan som indata till en metod för att skatta de egenskaper som är av intresse, i detta fall gasblandningarnas sammansättning.

I detta projekt har den parametriska modellen bestått i metoder för att ur ultraljudspulserna skatta ljudhastighet och dämpning för de olika gasblandningarna, som funktion av de frekvenser som ingår i ultraljudspulserna. Figurerna 2 och 3 visar exempel på hur ljudhastighet och dämpning varierar med koldioxidhalten i blandningar av koldioxid och metan.

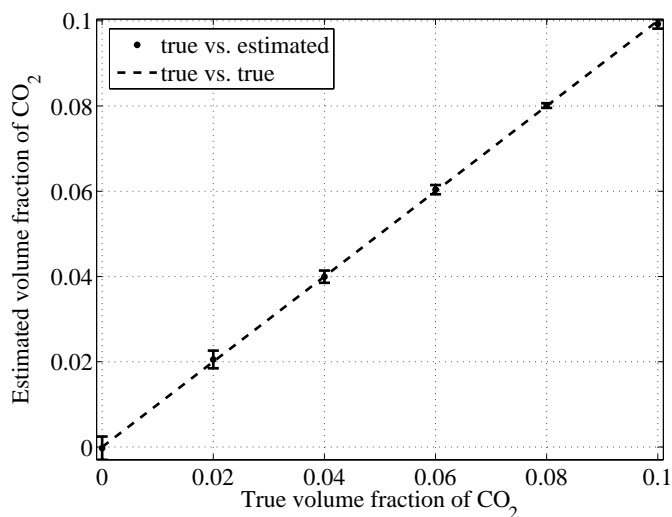


Figur 2: Dämpning som funktion av frekvens, för två olika koldioxidkoncentrationer. I figuren visas även 95% kofidensintervall för skattningarna.



Figur 3: Ljudhastighet som funktion av frekvens, för sex olika koldioxidkoncentrationer.

De spektrala egenskaperna från Figurerna 2 och 3 tjänade sedan som indata till en multivariat statistisk metod (PLS) för att ur dessa skatta gasblandningarnas koldioxidhalt. Figur 4 visar resultatet, för koldioxidhalter mellan noll och tio procent.



Figur 4: Uppmätt koldioxidhalt plottad mot den sanna, given från kalibreringsgaser med 1% analysnoggrannhet. I figuren har även 95% konfidensintervall markerats, som visar att noggrannheten i metoden väl lever upp till de krav som ställs.

Slutsatsen av denna inledande experimentella studie är att metoden har stor potential att uppnå den noggrannhet som krävs för att den ska vara praktiskt användbar.

Akademiska resultat

I föregående stycke gavs en sammanfattning av de resultat som projektet lett fram till. Detaljer kring dessa redovisas i de publikationer som listas ovan. Tidigare resultat finns publicerade i artiklarna redovisade i referenslistan i slutet på denna rapport. Som komplement till denna rapport tillkommer Jesper Martinssons licentiatavhandling som

kommer att presenteras den 18 april 2006. I denna kommer förutom en detaljerad genomgång av de metoder som använts, ett flertal vetenskapliga artiklarna att finnas med i sin helhet.

Under 2005 har projektet resulterat följande vetenskapliga publikationer:

- J. E. Carlson and R. Carlson, "Prediction of Molar Fractions in Two-Component Gas Mixtures Using Pulse-Echo Ultrasound and PLS Regression", *IEEE Trans. on Ultrason., Ferroelec., and Freq. Contr.* Mars 2006.
- J. Martinsson and J. E. Carlson, "Parametric Estimation of Ultrasonic Phase Velocity and Attenuation in Dispersive Media", in Proc. of World Congress on Ultrasonics, merged with Ultrasonics International, (Beijing, China), Aug. 28 - Sept. 1, 2005. In press.
- J. Martinsson and J. E. Carlson, "Parametric Modeling of Wave Propagation in Gas Mixtures - A System Identification Approach", in Proc. of IEEE Int. Ultrason. Symp. (Rotterdam, The Netherlands), Sept. 18-21, 2005. In press.
- J. Martinsson, J. E. Carlson, and J. Niemi, "Model-Based Phase Velocity and Attenuation Estimation in Wideband Ultrasonic Measurement Systems", *IEEE Trans. on Ultrason., Ferroelec., and Freq. Contr.*, Submitted, March 2006.
- J. E. Carlson, J. Martinsson, and M. Lundberg, "Ultrasonic Measurement of Methane Content in Upgraded Biogas", *Meas. Sci Tech.*, Submitted, March 2006.

Av de fyra sistnämnda publikationerna behandlar de tre första hur ljudhastighet och dämpning på effektivast möjliga sätt ska estimeras ur uppmätta ultraljudsdata. Den sista artikeln visar hur Dessa egenskaper sedan kan användas i kombination med multivariata statistiska modeller för att med god noggrannhet bestämma en gasblandnings sammansättning.

Framtida arbete

Resultaten från visar att ultraljudsmetoden har stor potential att kunna mäta sammansättning (och därmed energivärde) i upparbetad biogas, med mycket god noggrannhet. De resultat som redovisas i denna rapport gäller för konstant tryck (c:a 8 bar) och konstant temperatur (c:a 20 °C). Mätningar för andra tryck och temperaturer har gjorts eller planeras, och resultatet av detta kommer att presenteras under den närmaste tiden.

Ett av skälen till att använda en metod baserad på ultraljud är att liknande teknik även kan användas för att mäta volymflödet av gaser. En kombination av dessa metoder skulle således innebära att man med en och samma teknologi kan konstruera mätare som mäter energiflödet snarare än volymflödet. Detta borde vara av stort intresse för såväl producenter, leverantörer och kunder av energigas, inte minst fordonsgaser.

En av de saker som hittills saknas i projektet är mätningar i skarp miljö, dvs. att utvärdera hur metoden fungerar i processliknande situationer och inte bara i vår laborativa miljö. Detta arbete är kräver en hel del resurser, men bör icke desto mindre påbörjas inom en snar framtid.

Projektet har hittills fokuserat på analys av fordonsgas, men ingenting i tekniken begränsar tillämpningarna till dessa gasblandningar. En naturlig fortsättning på projektet skulle därför vara att på motsvarande sätt undersöka prestandan i metoden för andra energigas, som t.ex. syntesgas och naturgas.

Slutsatser

Resultaten av årets arbete visar att metoden har mycket goda möjligheter att uppnå de långsiktiga målen. Det teoretiska arbetet visar hur olika gaser påverkar utbredning av ultraljud och de experimentella resultaten visar att det går att extrahera värdefull information ur uppmätta pulser. Denna information kan sedan kopplas till de gasblandningarnas sammansättning med hjälp av multivariata statistiska metoder. Experiment har genomförts för varierande gastryck och temperatur och resultaten visar att man med god noggrannhet kan mäta metan- eller koldioxidinnehållet i en upparbetad biogas med den föreslagna metoden.

Referenser

1. J. Delsing and I. Blom, "On-Line Measurements of Energy Content of Bio Gas and Natural Gas Mixtures," Tech. Rep. ISSN: 0282-3772, Lund Institute of Technology, 1995.
2. P.-E. Martinsson, "Characterization of energy gases by ultrasound - Theory and experiments", Ph.D. Thesis, Sept 2004.
3. P.-E. Martinsson and J. Delsing, "Ultrasonic Measurements of Molecular Relaxation in Ethane and Carbon Monoxide," in Proc. IEEE Int. Ultrason. Symp., (Munich, Germany), pp. 494–499, IEEE, October 8–11 2002.
4. P.-E. Martinsson and J. E. Carlson, "Investigating the Feasibility of Using Principal Component Analysis for Ultrasonic Classification of Gas Mixtures," in Proc. IEEE Int. Ultrason. Symp., (Honolulu, Hawaii, USA), pp. P1K–6, IEEE, Oct. 5–8 2003.
5. J. E. Carlson and P.-E. Martinsson, "Ultrasonic Measurement of Molar Fractions in Gas Mixtures by Orthogonal Signal Correction", in Proc. of IEEE Int. Ultrason. Symp. (Montreal, Canada), August 24-27, 2004.
6. J. E. Carlson and P.-E. Martinsson, "Ultrasonic Volume Fraction Measurement in Two-Component Gas Mixtures Using Orthogonal Signal Correction and Principal Component Analysis", *J. Acoust. Soc. Am.* Vol. 117 No. 5, pp. 2961-2968, 2005.