



## Doctoral Thesis

# High frequency rheometry on homogeneous and heterogeneous fluids

**Author(s):**

Romoscanu, Alexandre Ioan

**Publication Date:**

2004

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-004708210> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

# **High frequency rheometry on homogeneous and heterogeneous fluids**

A dissertation submitted to the  
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZURICH

for the degree of  
Doctor of Sciences

presented by

Alexandre Ioan Romoscanu  
Dipl. Werkstoff-Ingenieur ETH Zurich

born 19.01.1974

citizen of Carouge (GE)

accepted on recommendation of

Prof. Dr. M.B. Sayir, examiner  
Prof. Dr. J. Dual, co-examiner  
Dr. K. Häusler, co-examiner

## Abstract

The subject of the present thesis is the application of a high frequency rheometric technique to homogeneous and heterogeneous fluids. The technique makes use of an electromagnetically driven oscillating probe operating in resonant mode and inducing a shear flow in the fluid to be measured. The determination of the mechanical behaviour of the probe and fluid system relies entirely on the digital phase-locked loop measurement of the phase shift between the periodic driving force and the damped harmonic deflection of the probe. The fact that no deflection amplitude measurements are involved contributes to the simplicity of the set-up. In addition, the accuracy loss linked with an analogue measuring step is avoided.

In the first part of the work, the measurement method and the probes (which are implemented here in two distinct, translational and torsional geometries), are discussed from a theoretical point of view. Models allowing the interpretation of the probe primary data in terms of fluid complex viscosity and density are developed. In order to assess the rheometric ability of the device in the targeted viscosity range of  $10^{-3}$  to 1 Pas, the theoretically predicted and the measured mechanical behaviours of the probes are compared. Good agreement is found in the investigated experimental cases.

In the next part of the thesis, the rheometric method is applied to the measurement of Newtonian and viscoelastic homogeneous fluids (polymer melts and solutions) as well as to complex, heterogeneous fluids, with a particular focus on emulsions. The model emulsion systems investigated are designed in such a way that the reciprocal relaxation time of the dispersed phase droplets (which corresponds to the approximate frequency where droplet deformation based elasticity is expected to occur) is of the same order of magnitude as the operating frequency of the resonators. The rheological behaviour characterised by the high frequency probes is compared to theoretical values resulting from various homogenisation models. The results show that, provided that hydrodynamic and viscous forces prevail over Brownian and inertial forces for the deformation of the fluid droplets, the emulsion systems investigated in the present work behave to an appreciable extent in the manner predicted by the homogenisation models.

Finally, a selection of hard sphere suspensions with dispersed phase volume fractions in the 0.1-0.4 range is investigated. The results show that, depending on the suspension composition, morphological relaxation processes with a time scale of the same order of magnitude as the reciprocal frequency of the used probes do arise even in a largely non-colloidal system. Indeed, significant differences are found between the high frequency probe and the conventional rheometer measured rheological properties.

Based on the agreement between modelled and experimental behaviour, the easily adaptable geometry (torsional resonators are for instance well suitable for in-line measurements) as well as the ability to catch short relaxation times, this work shows that the high frequency probes are valid rheometric devices.

## Zusammenfassung

Das Thema der vorliegenden Arbeit ist die Anwendung einer Hochfrequenz-Messmethode zur Bestimmung der rheologischen Eigenschaften von homogenen und heterogenen Fluiden. Das Kernelement der Methode ist eine elektromagnetisch betriebene, resonierende Sonde, die in dem zu messenden Fluid eine Scherströmung erzeugt und somit gedämpft wird. Das mechanische Verhalten des Systems wird durch die Phasenverschiebung zwischen treibender Kraft und resultierender Auslenkung charakterisiert. Die Phasenverschiebung wird dabei mit Hilfe eines phase-locked loops digital gemessen. Die Tatsache, dass die Auslenkung der Sonde nicht benötigt wird, trägt zur Einfachheit des Systems bei und umgeht zugleich den damit verbundenen Genauigkeitsverlust.

Im ersten Teil der Arbeit werden die Messmethode sowie Sonden zweier verschiedener Geometrien beschrieben. Modelle, welche die Interpretation der Messdaten hinsichtlich der komplexen Viskosität und Dichte erlauben, werden entwickelt. Um die Zuverlässigkeit des Instrumentes in dem gewünschten Viskositätsbereich ( $10^{-3}$  bis 1 Pas) zu überprüfen, werden theoretische und gemessene Werte verglichen. Eine gute Übereinstimmung wird gefunden.

Im folgenden Teil der Arbeit wird die Methode auf homogene Newtonsche und viskoelastische Fluide (Polymerschmelzen und -lösungen) und anschließend auf heterogene Fluide angewandt. Dabei wird ein Schwerpunkt auf Emulsionen gelegt. Diese sind so gewählt, dass die reziproke Relaxationszeit der Tröpfchen und die Resonanzfrequenz der Sonde die gleiche Größenordnung haben. Das mit Hilfe der Hochfrequenzsonden ermittelte rheologische Verhalten wird mit theoretischen Werten aus verschiedenen Homogenisierungsmodellen verglichen. Die Ergebnisse zeigen, dass das Verhalten der untersuchten Emulsionen im Wesentlichen mit den Modellen übereinstimmt, solange hydrodynamische und viskose Kräfte gegenüber Brownschen und Trägheitskräften überwiegen.

Schließlich werden Suspensionen harter Kugeln mit Volumenanteilen zwischen 0.1 und 0.4 untersucht. Die Ergebnisse zeigen, dass abhängig von der Zusammensetzung der Suspension, Relaxationsprozesse mit Relaxationszeiten der gleichen Größenordnung wie die Sondenfrequenz auftreten können, selbst in nichtkolloidalen Systemen.

Diese Arbeit zeigt, dass die hier untersuchte Hochfrequenzmethode aufgrund der Übereinstimmung von theoretischen und gemessenen Daten, der Fähigkeit kurze Relaxationszeiten aufzuzeichnen und der Anpassbarkeit der Geometrien, als rheometrische Methode geeignet ist.