



Doctoral Thesis

**Complex flow of linear and branched polymer melts in a cross-slot channel
Birefringence, particle tracking, data analysis, and rheological modeling**

Author(s):

Sadati, Monirosadat

Publication Date:

2012

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-007262408> →

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](#).

Diss. ETH No. 20261

**Complex Flow of Linear and Branched Polymer Melts in a
Cross-Slot Channel:
Birefringence, Particle Tracking, Data Analysis, and
Rheological Modeling**

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by

Monirosadat Sadati
Master of Science

Amirkabir University of Technology, Tehran, Iran

born 04.04.1977
citizen of Iran

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Hans Christian Öttinger, examiner
Prof. Dr. David C. Venerus, co-examiner
Prof. Dr. Paul Smith, co-examiner
Prof. Dr. Martin Kröger, co-examiner

Zürich, 2012

Abstract

In this thesis a home-built cross-slot channel is used as a 2D rheometer to investigate deformation and stress fields of two polyethylene melts possessing a linear and highly branched structure in a complex flow situation at $Wi = 19.5$ and $Wi = 24$, respectively. The stress field is captured non-invasively using point-wise and field-wise birefringence techniques and the 2D kinematics of the complex flow is acquired employing particle tracking velocimetry. The 2D flow is achieved by chemical surface modification and continuous lubrication of the front and back viewing windows. This offers a channel with small aspect ratio (0.5), which leads to enhanced temperature control and increased optical accuracy. The 2D flow is verified by measuring the two in-plane components of the flow velocity at several depths of the channel. Subsequently, from these necessarily noisy experimental velocimetry data, the underlying accurate full field kinematics is reconstructed by implementing a regularization based on the Tikhonov approach and a high order finite element approximation with Newtonian profile subtraction.

The proposed regularization method is established and validated first against synthetic noisy scattered velocity data for an Oldroyd-B model fluid in a two dimensional (2D) complex flow situation. Performances of diverse finite element continuity-regularization criteria combinations are tested against noise free data, while the optimum regularization parameter is determined using Generalized Cross Validation. Best performance is achieved for the velocity field and its gradients simultaneously by C^2 -continuous Hermite finite elements, and minimization of a norm of the velocity's third derivative. Within this approach the fluid incompressibility can be taken into account by either adding an extra term to penalize departures from incompressibility in the regularization procedure or by imposing it directly through a stream function formulation. For our data sets, implementing the stream function approach is seen more effective in recovering the velocity information in a 2D incompressible flow situ-

ation. Finally, to overcome a potential regularization bias where the velocity changes rapidly over small distances, regularization is performed on the departure of the velocity field from its Newtonian counterpart.

The performance of the regularization techniques on the experimental velocimetry data are then compared with a more trivial approach, in which the data are smoothed locally and the velocity gradient fields computed using finite differences. Results show that the regularization leads to significant noise reduction in flow kinematics. The proposed regularization method opens the way to test the reliability of constitutive equations based on experimental flow kinematics. In this work, the eXtended Pom–Pom (XPP) model is solved for both polymers using the regularized experimental flow kinematics through integration along streamlines. Furthermore, the non–linear parameters of the constitutive equation are optimized directly on the point–wise flow induced optical signals collected from the mixed flow. The experimental results show that the presence of long chain branches in the polymer structure modifies the flow kinematics and leads to the formation of W–cusps in the birefringence pattern near the outflow centerline. The appearance of W–cusps along the outflow symmetry line for the branched polymer can be understood based on the molecular process causing the transient extensional overshoot and consequently the flow field modification. Furthermore, comparison between the XPP predictions and experimental results elucidates that although the model is able to provide an overall good quantitative match, it fails to capture important details characteristic of the branched structure of the melt (W–cusps). In addition, the theoretical principal stress difference (PSD) calculated for the long chain branched polyethylene using the XPP model exhibits extra fringes close to the inflow channel walls, which are seen neither in the point–wise nor in the field–wise flow induced birefringence experimental patterns. This discrepancy is explored by comparing the steady state first normal stress difference (N_1) obtained from the experimental optical signals in the fully developed part of the flow and from step shear rate measurements. Results suggest that N_1 for the highly branched polyethylene is not attainable by common shear rheometry measurements and is systematically over–predicted by the constitutive model, although the steady state shear viscosity (η) is correctly estimated. For the linear melt, however, a very close match is achieved between optically and rheologically measured N_1 and η , their values agreeing well with XPP predictions.

Zusammenfassung

Diese Arbeit wertet die Tauglichkeit eines Kreuzschlitz-Kanal-Eigenbaus als zweidimensionales (2D)-Rheometer aus, um die Deformation und die Spannungsfelder zweier Polyethylen-Schmelzen, die lineare und stark verzweigte Strukturen enthalten, in einer komplexen Strömungssituation bei $Wi = 19.5$ and $Wi = 24$ zu untersuchen. Das Spannungsfeld wird nicht-invasiv mittels punkt- und feldweiser Doppelbrechungs-Techniken aufgenommen. Die 2D-Kinematik der komplexen Strömung wird durch die Verfolgung von Teilchen und anschließender Geschwindigkeitsbestimmung aufgelöst. Die 2D-Strömung wird durch chemische Oberflächen-Modifikation und kontinuierliche Schmierung der vorderen und hinteren Sichtfenster erreicht. Der Kanal weist ein kleines Seitenverhältnis von 0.5 auf, und erlaubt damit beides: eine vorzügliche Temperaturkontrolle und optische Genauigkeit. Der 2D-Charakter der Strömung wird hier durch die Messung der beiden lateralen Geschwindigkeits-Komponenten in verschiedenen Tiefen des Kanals überprüft. Auf der Basis der zwangsläufig rauschbehafteten experimentellen Geschwindigkeits-Daten wird anschliessend das zugrundeliegende volle und akkurate Kinematik-Feld rekonstruiert. Das geschieht durch Anwendung einer Regularisierung, die sich auf den Tikhonov-Zugang und eine Finite-Elemente-Näherung hoher Ordnung mit Newtonschem Profil-Abzug stützt.

Die vorgeschlagene Regularisierungs-Methode führen wir ein und validieren sie zunächst gegen ein synthetisches, verrauschtes Geschwindigkeitsfeld für ein Oldroyd-B Modell-Fluid in einer 2D komplexen Strömungssituation. Durch Vergleich mit rauschfreien Daten bestimmen wir die Güte verschiedener Kombinationen von Finite-Elemente Stetigkeit-Regularisierungs-Kriterien, während der optimale Regularisierungs-Parameter mittels "Generalized Cross Validation" festgelegt ist. Das beste gemeinsame Ergebnis für das Geschwindkeits- und sein Gradientenfeld wird erzielt durch Verwendung von C^2 -kontinuierlichen Hermite'schen Finite Elemente, und die Minimierung einer Norm,

die auf der dritten Ableitung des Geschwindigkeitsfeldes basiert. Im Rahmen dieses Zugangs kann Inkompressibilität berücksichtigt werden, indem entweder ein Zusatzterm eingeführt wird, der Abweichungen von idealer Inkompressibilität in der Regularisierungs-Prozedur bestraft, oder indem sie durch Verwendung eines Strömungsfunktions-Formalismus erzwungen wird. Für unsere Datensätze zeigt sich der Strömungsfunktions-Formalismus erfolgreicher in der Rekonstruktion der Geschwindigkeits-Information für eine inkompressible 2D-Strömungssituation. Mit dem Ziel der Vermeidung einer potentiellen Regularisierungs-Verzerrung in Situationen, bei denen die Geschwindigkeit über kleine Distanzen sehr schnell variiert, wenden wir abschliessend das Regularisierungsverfahren auf die Abweichung des Geschwindigkeitsfeldes von seinem Newtonschen Gegenstücks an.

Die Güte des Regularisierungs-Verfahrens für die experimentellen Geschwindigkeits-Daten wird zudem mit einem eher trivialen Zugang verglichen, bei dem die Daten lokal geglättet und der Gradient des Geschwindigkeitsfeldes mittels Finite Differenzen ausgerechnet wird. Wie unsere Ergebnisse zeigen, führt die Regularisierung zu einer signifikanten Rausch-Unterdrückung in der Strömungs-Kinematik. Die vorgeschlagene Regularisierungsmethode öffnet den Weg, die Brauchbarkeit und Zuverlässigkeit konstitutiver Gleichungen auf der Basis experimenteller Strömungs-Kinematik zu testen. In dieser Arbeit lösen wir das erweiterte Pom-Pom (XPP)-Modell für beide Polymere unter Verwendung der regularisierten experimentellen Strömungs-Kinematik, indem entlang der Strömungslinien integriert wird. Die nichtlinearen Parameter dieser konstitutiven Gleichung optimieren wir, indem wir die in der gemischten Strömung punktweise erhaltenen, strömungs-induzierten optischen Signale direkt einfließen lassen. Die experimentellen Resultate zeigen, dass das Vorhandensein langarmiger Verzweigungen in der Polymerstruktur die Strömungs-Kinematik modifiziert, und dass es in den Doppelbrechungs-Mustern zur Bildung von W-förmigen Zacken in der Nähe der ausgehenden Strömungs-Mittellinie kommt. Das Auftreten dieser W-förmigen Zacken entlang der ausgehenden Symmetrie-Linie für verzweigte Polymere lässt sich verstehen auf der Basis des molekularen Prozesses, der den transienten Überschwinger im Dehnverhalten, und damit die Veränderung im Strömungsfeld, verursacht. Der Vergleich zwischen XPP-Vorhersagen und experimentellen Resultaten erhellt ausserdem die Tatsache, dass das Modell nicht in der Lage ist, wesentliche für die verzweigte Struktur der Schmelze charakteristische Merkmale (W-förmige Zacken) vorherzusagen. Es ist immerhin in der Lage, eine allgemeine quantitative Übereinstimmung herbeizuführen. Es ist bemerkenswert, dass die mithilfe

des XPP-Modells für das verzweigte Polymer berechneten theoretischen Normaldruckdifferenzen zusätzliche Streifen in der Nähe der einlaufenden Kanalwände aufweisen, welche weder in den punkt- noch in der feldweisen strömungsinduzierten Doppelbrechungs-Mustern zu sehen sind. Dieser Diskrepanz gehen wir auf den Grund, indem wir Werte für die stationäre erste Normalspannungsdifferenz (N_1) aus (i) experimentellen optischen Signalen im voll entwickelten Teil des Strömungsfeldes und (ii) Stufen-Scherraten-Messungen miteinander vergleichen. Die Ergebnisse legen nahe, dass N_1 für hochverzweigtes Polyethylen nicht mittels gewöhnlicher Scher-Rheometrie bestimmt werden kann, und das sie durch das konstitutive Modell systematisch überbestimmt wird, während die stationäre Scherviskosität (η) korrekt beschrieben wird. Für die lineare Schmelze ergibt sich jedoch eine sehr gute Übereinstimmung zwischen optisch und rheologisch gemessenen N_1 - und η -Werten, die auch mit den Vorhersagen des XPP-Modells im Einklang sind.