

Dissertation ETH number 17331

# **Ultrasonic In-Line Characterization of Suspensions**

A dissertation submitted to

ETH Zurich

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

**Beat H. Birkhofer**

Dipl.-Ing. ETH Zurich

born January 14, 1977

citizen of Liestal (BL) and Neuhausen am Rheinfall (SH)

accepted on the recommendation of

Prof. Dr.-Ing. Erich J. Windhab, examiner

Prof. Yasushi Takeda, co-examiner

Dr. Shaik A. K. Jeelani, co-examiner

2007

# Abstract

The simultaneous in-line measurement of ultrasonic Doppler based velocity profiles (UVP) and pressure drop (PD) over a pipe section during the laminar flow of Newtonian or non-Newtonian fluids enables determination of rheological properties such as shear stress, shear rate and hence shear rate dependent viscosity. This involves the application of an appropriate rheological model such as power law or the direct determination of the shear rate from the velocity gradient. The method can, in principle, be used for particulate or fiber suspensions or droplet emulsions or colloidal solutions. The concentration of dispersed phase can be determined from the measured sound velocity.

Although the UVP-PD technique for in-line rheometry was investigated for the first time over a decade ago, there exists little literature on the systematic investigation of the effect of various parameters of model suspensions (e.g. particle size distribution and concentration) on the in-line rheology and comparison with those results obtained using off-line rheometers. In addition, the verification of the applicability of this in-line method is essential for industry as the suspensions encountered are not only opaque but could also be highly attenuating due to high particulate concentrations. Consequently, the present work investigates model and industrial suspensions.

The rheology of model suspensions of polyamide particles of two size distributions (mean diameters of 11  $\mu\text{m}$  and 90  $\mu\text{m}$ ) and different concentrations (up to 25% by volume) in rapeseed oil was investigated during the steady state fully developed flow through a pipe using the in-line UVP-PD method. The results were compared with those measured with an off-line stress controlled rheometer. The shear rate dependent viscosities obtained with velocity gradient method agreed reasonably well with those measured using off-line rheometer. This implies that this method is less influenced by the convolution of velocity profile with the sample volume as the most affected pipe wall region is not considered. The suspensions were shear thinning as indicated by the decrease in the viscosity with the shear rate for both the size distributions. The viscosity increased with increase in concentration of particles but decreased with increase in diameter of particles. The velocity of sound was found to increase with particle concentration and to decrease with particle size.

The temporal variation in rheological properties and velocity of sound of cocoa butter crystal suspension due to a step change in process parameters of shear crystallizer was continuously monitored using the UVP-PD technique. The suspension was found to be shear thinning and the viscosity increased with the concentration of crystals. The latter (determined by nuclear magnetic resonance, NMR) resulted in higher velocity of sound.

The method of spectral analysis of the baseband signal for the computation of the velocity profiles was adopted to acquire quantitative quality information such as signal amplitude and signal to noise ratio. This enabled the detection of most of the sources of errors associated with the inconsistencies in the velocity profiles. The method was integrated as part of the software interfacing the UVP device and hardware acquiring the data of pressure difference, velocity of sound and temperature. It also allows for the rheometric calculations using different approaches and a versatile data visualization.

The experimental investigations of reference rotating cylinder containing dilute aqueous suspensions of reflector particles enabled the determination of the accuracy of measurement of flow velocities using UVP. The minimum concentration of ultrasound tracer reflectors necessary for measurement of the actual velocity profile was obtained using electrolysis to generate gas bubbles in open channel flow.

Investigations showed that it was possible to measure the velocity profiles of milk chocolate suspension, which is highly concentrated, flowing through a pipe. However, further refinements of the measurement equipment would improve the quality of the velocity profiles.

The present work on model suspensions reveals that the spatial distribution of the shear rate dependant viscosity in the pipe flow is influenced by the local particle size, shape and concentration, which are governed by local physical mechanisms such as particle migration, creaming or sedimentation, Brownian collisions and aggregation. In addition, the local rheology of cocoa butter crystal suspensions produced under applied shear depend on the kinetics of isothermal or non-isothermal crystallization, the morphology of crystals and their network. Consequently, the application of the in-line UVP-PD technique in combination with simultaneous tomography of velocity of sound and possibly spectroscopy, would enable determination of the local rheology depending on the corresponding microstructure.

# Kurzfassung

Die Doppler Ultraschall basierte Inline-Messung von Geschwindigkeitsprofilen (Ultrasonic Velocity Profiles, UVP) und die gleichzeitige Erfassung der Druckdifferenz (Pressure Difference, PD) über einem Rohrabschnitt in einem laminar fließenden newtonschen oder nicht-newtonschen System ermöglicht die Bestimmung rheologischer Eigenschaften wie zum Beispiel Schubspannung oder Schergeschwindigkeit und der davon abhängigen Viskosität. Das Verfahren beinhaltet die Verwendung eines entsprechenden rheologischen Modells wie beispielsweise Power Law oder die direkte Bestimmung der Schergeschwindigkeit aus dem gemessenen Geschwindigkeitsgradienten. Die Methode kann prinzipiell in partikulären oder faserigen Suspensionen, Emulsionen und kolloidalen Lösungen verwendet werden. Die Konzentration der dispersen Phase kann über die gemessene Schallgeschwindigkeit bestimmt werden.

Auch wenn die erste Publikation zu UVP-PD Messungen schon über zehn Jahre zurück liegt, gibt es nur eine beschränkte Auswahl an Literatur zu systematischen Untersuchungen des Einflusses von verschiedenen Parametern von Modellsuspensionen (beispielsweise Partikelgrößenverteilung und Konzentration) auf die inline gemessene Rheologie und Vergleiche mit den offline, mittels Rheometer, gemessenen Eigenschaften. Gleichzeitig ist die Überprüfung der Anwendbarkeit der UVP-PD Methode für die industrielle Anwendung wichtig, weil die dort zu verarbeitenden Suspensionen oft opak sind und aufgrund der hohen Partikelkonzentration den Ultraschall stark abdämpfen. Daher wurden in der vorliegenden Arbeit sowohl Modellsuspensionen als auch für die Lebensmittelindustrie relevante Systeme untersucht.

Für die Geschwindigkeitsprofil-Messungen in einer voll entwickelten, stationären Rohrströmung wurden aus Polyamid-Partikeln und Rapsöl bestehende Modellsuspensionen verwendet. Dabei wurden zwei verschiedene Partikelgrößenverteilungen (um 11 und 90  $\mu\text{m}$  Durchmesser) sowie Partikelkonzentrationen bis zu 25 % verwendet. Die Inline-Messungen wurden mit denjenigen von einem offline Rheometer (spannungsgesteuert) verglichen. Die mit der Gradienten-Methode erhaltene Viskosität als Funktion der Schergeschwindigkeit wies dabei eine relativ gute Übereinstimmungen mit den offline gemessenen Werten auf. Das impliziert, dass diese Methode weniger von der Faltung von Geschwindigkeitsprofil und Probe-Volumen betroffen ist, weil die am meisten verzerrte Region in der Nähe der Rohrwand

nicht für die rheologischen Berechnungen berücksichtigt wird. Für beide Größenverteilungen waren die Suspensionen strukturviskos. Die Viskosität nahm mit zunehmender Partikel-Konzentration zu, aber mit zunehmender Partikel-Grösse wiederum ab.

In einem Scherkristallisationsprozess für Kakaobutter wurde die zeitabhängige Variation der rheologischen Eigenschaften und der Schallgeschwindigkeit als Folge der Änderung von Prozessparametern mit Ultraschall überwacht. Die Kristall-Suspension erwies sich dabei als strukturviskos, die Viskosität stieg mit der Kristallkonzentration. Letzteres resultierte auch in einer Erhöhung der Schallgeschwindigkeit.

Die Spektralanalyse des Basisband Signals für die Berechnung der Geschwindigkeitsprofile diente gleichzeitig dazu die Signalqualität über Störabstand und Signalstärke zu quantifizieren. Die Verfügbarkeit der Spektren ermöglichte die einfache Erkennung der meisten Ursachen für Störungen im Fliessprofil. Die spektrale Signalverarbeitung war integraler Bestandteil der während der Arbeit entwickelten Software die für die Datenerfassung vom UVP sowie von der Hardware für Druckdifferenz, Temperatur und Schallgeschwindigkeit verwendet wurde. Diese Software beinhaltet auch die rheologischen Berechnungen unter der Verwendung verschiedener Ansätze und eine vielseitige Datenvisualisierung.

Ein mit einer niedrig konzentrierten Suspension gefüllter rotierender Zylinder wurde für die experimentelle Bestimmung der Präzision der UVP Messung verwendet. Die minimale Konzentration an Ultraschall-Reflektoren die für eine korrekte Fliessgeschwindigkeitsmessung notwendig ist, wurde in einem offenen Kanal mit Hilfe von durch Elektrolyse erzeugten Gasblasen untersucht.

Weitere Untersuchungen zeigten, dass es selbst in hochkonzentrierten Suspensionen wie Milkschokolade möglich ist, Geschwindigkeitsprofile der Rohrströmung zu messen. Allerdings sind weitere Verbesserungen an der Messeinrichtung nötig, um die Qualität der Fliessprofile zu verbessern.

Die vorliegende Arbeit über die Modellsuspensionen zeigt, dass die räumliche Verteilung der scherratenabhängigen Viskosität in der Rohrströmung von der örtlichen Verteilung von Partikelgrösse, -form und -konzentration abhängt, welche wiederum über lokale physikalische Mechanismen wie beispielsweise Partikel-Migration, Aufrahmen, Sedimentation, brownische Kollisionen und Aggregation bestimmt werden. Die lokale Rheologie von unter Scherung produzierter Kakaobutter Kristallsuspension hängt von der Kinetik der isothermalen oder anisothermischen Kristallisation, der Morphologie der Kristalle und deren Netzwerk ab. Folglich würde die Kombination von UVP-PD mit einer Tomographie der Schallgeschwindigkeit und eventuell Spektroskopie eine lokale Bestimmung der Rheologie in Abhängigkeit der entsprechenden Mikrostruktur ermöglichen.