

石墨烯纳米制冷剂核态池沸腾换热的实验研究

王一峰, 彭浩, 陈亚琴

(上海海事大学 航运仿真技术教育部工程研究中心, 上海 201306)

摘要:为分析单层石墨烯纳米片对核态池沸腾换热的影响机理,对基液为 R141b、分散相为单层石墨烯纳米片的纳米制冷剂的核态池沸腾换热特征进行了测定,采用 Hot Disk 热物性分析仪和铂金板法分别测定了石墨烯纳米制冷剂的导热率和表面张力,采用接触角测量仪和扫描电子显微镜(SEM)观测了沸腾后加热表面的润湿性和形貌特征。实验中,单层石墨烯纳米片的质量百分含量(ω)为 0.02%~0.50%,实验压力为一个标准大气压,热流密度为 20~200 kW/m²。实验结果表明:单层石墨烯纳米片的加入,使制冷剂 R141b 的核态池沸腾换热得到强化;当 $\omega = 0.2\%$ 时,换热系数提高比例出现峰值,为 57.7%。伴随 ω 的增加,石墨烯纳米制冷剂的导热率增大、表面张力减小,沸腾表面润湿性增强且微腔数先增后减,综合作用的结果导致存在一个最佳的单层石墨烯纳米片浓度(即 $\omega = 0.2\%$)使换热系数最高。

关键词:石墨烯;核态池沸腾;制冷剂;润湿性;表面形貌

中图分类号:TB69;TK124

文献标识码:A

DOI:10.16146/j.cnki.rndlgc.2020.02.023

[引用本文格式]王一峰,彭浩,陈亚琴.石墨烯纳米制冷剂核态池沸腾换热的实验研究[J].热能动力工程,2020,35(2):168-173. WANG Yi-feng, PENG Hao, CHEN Ya-qin. Experimental study on nucleate pool boiling heat transfer characteristics of graphene nanorefrigerant[J]. Journal of Engineering for Thermal Energy and Power, 2020, 35(2):168-173.

Experimental Study on Nucleate Pool Boiling Heat Transfer Characteristics of Graphene Nanorefrigerant

WANG Yi-feng, PENG Hao, CHEN Ya-qin

(Engineering Research Center of Shipping Simulation (Ministry of Education), Shanghai Maritime University, Shanghai, China, Post Code: 201306)

Abstract: In order to analyze the influence mechanism of single-layer graphene nanoplatelets (GNPs) on nucleate pool boiling heat transfer, the nucleate pool boiling heat transfer characteristics of nanorefrigerants formed by dispersing single-layer GNPs were experimentally investigated. The thermal conductivity and the surface tension of GNP nanorefrigerants were measured by Hot Disk thermal constants analyzer and platinum plate method, respectively. The wettability as well as morphology of heating surface after boiling were observed by contact angle analyzer and scanning electron microscope (SEM). The single-layer GNP mass fraction (ω) ranged from 0.02% to 0.5%, the saturation pressure was atmospheric pressure, and the heat flux ranged from 20 to 200 kW/m². The experimental results show that the addition of single-layer GNPs enhances the nucleate pool boiling heat transfer of refrigerant R141b, and the enhancement reaches the maximum value of 57.7% at ω of 0.2%. With the increase of ω , the thermal conductivity of graphene nanorefrigerant increases and the surface tension decreases. The surface wettability increases also,

收稿日期:2019-03-12; 修订日期:2019-06-02

基金项目:上海市自然科学基金(No. 19ZR1422300);上海市青年东方学者人才计划(QD2016045)

Fund-supported Project: The Natural Science Foundation of Shanghai(19ZR1422300); The Program for Young Eastern Scholar at Shanghai Institutions of Higher Learning(QD2016045)

作者简介:王一峰(1993-),男,江苏连云港人,上海海事大学硕士研究生。

通讯作者:彭浩(1982-),男,安徽颍上人,上海海事大学副教授, E-mail: hpeng@shmtu.edu.cn.

while the number of micro-cavities increases and then decreases. The combined effects of above factors result in an optimal single-layer GNP mass fraction (i. e. $\omega = 0.2\%$) for achieving the maximum heat transfer enhancement.

Key words: graphene, nucleate pool boiling, refrigerant, wettability, surface morphology

引言

纳米流体是将纳米尺度的固体粒子分散到基液中形成的换热流体^[1];作为强化传热手段,其在热管、换热器和动力机械的冷却系统^[2-4]等领域已得到应用。近年来,研究人员将纳米粒子分散到制冷剂中形成纳米制冷剂^[5],用于提升蒸汽压缩式制冷系统的效率、节能降耗^[6-7]。由于纳米粒子的种类影响纳米制冷剂的热物性、进而影响其传热流动特性,选择合适的纳米粒子是制备高效纳米制冷剂的关键。通常,选择热导率高的纳米粒子有利于纳米制冷剂导热和相变传热性能的提高^[8]。石墨烯作为二维的碳纳米材料,拥有高热导率,如单层石墨烯的热导率可达 $5\,300\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ^[9];因此将石墨烯作为纳米制冷剂的分散相有望实现纳米制冷剂的性能高效。蒸汽压缩式制冷系统涉及气液相变,而核态池沸腾是基本的相变模式;因此,明确石墨烯纳米制冷剂的核态池沸腾换热特性,是清楚其在蒸汽压缩式制冷系统中工作机制的前提。

目前,针对纳米制冷剂核态池沸腾换热的研究中,基液采用纯制冷剂或制冷剂-润滑油混合物,纳米粒子采用零维的金属(如 Cu ^[10-11])、非金属(如金刚石^[12])和金属氧化物纳米颗粒(如 TiO_2 ^[13-15]、 Al_2O_3 ^[16-17])以及一维的碳纳米管^[18-19]。多数研究表明纳米粒子的加入使制冷剂或制冷剂-润滑油混合物的核态池沸腾换热得到强化^[10-12,16-18],也有研究结果表明纳米粒子的加入会造成核态池沸腾换热的恶化^[14-15];纳米粒子的种类和粒径对纳米制冷剂核态池沸腾换热影响显著^[10,19]。由于石墨烯纳米片和上述纳米粒子的热物性存在差异,现有的纳米制冷剂核态池沸腾换热的研究结果无法直接拓展到石墨烯纳米制冷剂。

Hu 等人^[20]实验测定了石墨烯纳米片作为分散相的乙二醇水溶液纳米流体的核态池沸腾换热系数,结果表明,石墨烯纳米片的质量百分含量(ω)小

于 0.02% 的情况下,乙二醇水溶液的核态池沸腾换热系数由于石墨烯纳米片的加入得以提高,换热系数最大可以提高 46.9% ;但 ω 超过 0.02% 的情况下,换热系数反倒降低。制冷剂的热物性不同于乙二醇水溶液,必然导致石墨烯纳米制冷剂的核态池沸腾特性不同于乙二醇水溶液-石墨烯纳米流体。

本文研究石墨烯纳米片的浓度对纳米制冷剂核态池沸腾换热的影响规律,并从热物性、沸腾表面润湿性和形貌特征的角度分析其内在影响机理。

1 实验装置与方法

实验用的石墨烯纳米制冷剂由单层石墨烯纳米片和制冷剂 R141b(一氟二氯乙烷, $\text{CH}_3\text{CCl}_2\text{F}$) 混合制备而成。单层石墨烯纳米片的透射电子显微镜(TEM)照片如图1所示。



图1 单层石墨烯纳米片透射电镜照片

Fig. 1 Transmission electron microscope (TEM) photograph of single-layer graphene nanoplatelet

石墨烯纳米制冷剂的具体制备步骤:(1)采用高精度电子天平(精度为 0.1 mg)称量实验所需质量的石墨烯纳米片和表面活性剂十二烷基苯磺酸钠(SDBS),并置于烧杯中;(2)用量筒量取 R141b,并将量取后的 R141b 与石墨烯纳米片和 SDBS 混合;(3)机械搅拌混合液体,然后采用超声波粉碎仪对混合液体超声振荡(时间为 60 min)。由于 R141b 易挥发,在超声过程中需要补充 R141b 以维持其体积不变。

实验中选取 5 种不同的单层石墨烯纳米片质量

百分含量(ω),包括 0.02%、0.05%、0.10%、0.20% 和 0.50%。表面活性剂 SDBS 选取分散稳定时效长的浓度,本次实验取 2 000 mg/L。

核态池沸腾测试实验台主要包含沸腾腔体、电加热装置、蒸汽凝结系统和数据采集仪等 4 部分,如图 2 所示。沸腾腔体为圆柱形不锈钢容器,高度为 150 mm、内径为 80 mm。上下两个端面均为不锈钢板;上端面开有 5 个穿孔,其中 2 个用于连接冷凝盘的进出口,其余 3 个分别用于连接充注装置、热电偶和压力传感器;下端中心开有直径为 30 mm 的圆形穿孔,以连接包裹特氟龙材料的导热铜柱。电加热棒作为辅助加热器,从下端插入液体中,用于维持液体的核态沸腾和控制蒸发压力。液体温度和腔体内部压力分别由 T 型热电偶(标定后精度为 $\pm 0.1\text{ }^{\circ}\text{C}$)和压力传感器(精度为 $\pm 0.1\text{ kPa}$)进行监测。

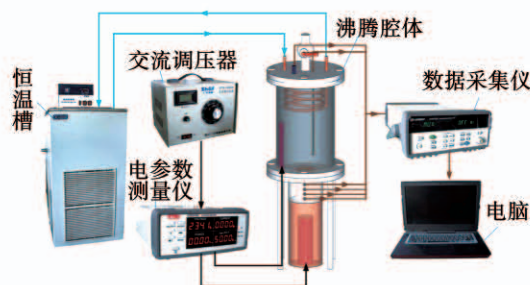


图 2 核态池沸腾实验装置

Fig. 2 Schematic diagram of nucleate pool boiling facility

电加热装置由电加热棒嵌入紫铜柱加工而成。紫铜柱顶部切削成直径是 20 mm 的圆柱,上端水平圆形表面即为沸腾表面,粗糙度(Ra)为 $1.6\text{ }\mu\text{m}$ 。在沸腾表面下方开 5 个小孔,深度至紫铜柱中轴线, T 型热电偶(标定后精度为 $\pm 0.1\text{ }^{\circ}\text{C}$)插入其中,其测定的温度分布用于推算沸腾表面温度。

蒸汽凝结系统是由紫铜管绕制的冷凝盘管、恒温槽、水泵和阀门构成,用于冷凝制冷剂蒸汽和控制蒸发压力。

实验在固定的饱和压力下(一个标准大气压)进行,热流密度范围为 $20\sim 200\text{ kW/m}^2$ 。利用调压器改变施加在电加热棒上的功率,进而控制热流密度。每测试一个热流密度,需要使沸腾腔体内纳米制冷剂的温度与饱和温度之间的差异稳定在 ± 0.1

$^{\circ}\text{C}$ 才能认为实验稳定,记录数据,再调整到下一个热流密度。

核态池沸腾换热系数:

$$h = \frac{q}{T_w - T_{\text{sat}}} \quad (1)$$

$$q = -\lambda_c \left. \frac{dT}{dz} \right|_w \quad (2)$$

式中: q —热流密度; T_w 、 T_{sat} —沸腾表面温度和饱和液体温度; λ_c —铜的热导率; $\left. \frac{dT}{dz} \right|_w$ —法线方向上的温度梯度。

依据 5 个测温点测得的温度($T_1 \sim T_5$),可以拟合出一次线性方程:

$$T = a_1 + a_2 z \quad (3)$$

式中: z —垂直于沸腾表面的坐标; a_1 、 a_2 —拟合得到的系数。

沸腾表面温度 T_w :

$$T_w = (a_1 + a_2 z)|_{z=0} = a_1 \quad (4)$$

实验中计算得到的热流密度与直接采用电加热棒加热功率确定的热流密度最大偏差为 1.7%。

核态池沸腾换热系数的相对误差为:

$$\frac{\Delta h}{h} = \sqrt{\left(\frac{\Delta q}{q}\right)^2 + \left(\frac{\Delta T_w}{T_w - T_{\text{sat}}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta T_{\text{sat}}}{T_w - T_{\text{sat}}}\right)^2} \quad (5)$$

依据该式可以计算得到实验工况下换热系数的最大相对误差为 9.0%。

2 实验结果与分析

2.1 石墨烯纳米制冷剂的核态池沸腾换热系数

图 3 表示不同热流密度下石墨烯纳米制冷剂和纯制冷剂的核态池沸腾换热系数(h),其中单层石墨烯纳米片的质量百分含量(ω)范围为 0.02%~0.5%。可以看出,单层石墨烯纳米片的加入,使制冷剂 R141b 的核态池沸腾换热得到强化; h 的提高比例在 ω 为 0.2% 时达到峰值;即 ω 低于 0.2% 时提高比例随 ω 的增加而增大, ω 高于 0.2% 时提高比例随 ω 的增加而下降。

为了定量描述石墨烯纳米片对核态池沸腾换热的影响,定义换热系数增幅:

$$\eta = \frac{h - h_0}{h_0} \times 100\% \quad (6)$$

式中: h 、 h_0 —石墨烯纳米制冷剂和纯制冷剂核态池沸腾换热系数。

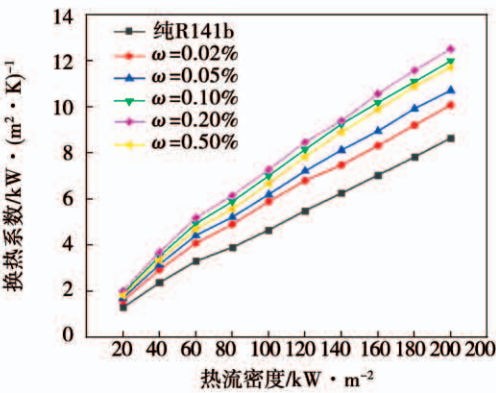


图 3 石墨烯纳米制冷剂和纯制冷剂的核态池沸腾换热系数

Fig.3 Nucleate pool boiling heat transfer coefficients of graphene nanorefrigerants and pure refrigerant

图 4 显示不同热流密度和石墨烯纳米片质量百分含量(ω)情况下的换热系数增幅(η)。由图可知,伴随热流密度的增加, η 首先微弱增加,之后呈降低趋势。当 ω 分别为 0.02%、0.05%、0.10%、0.20% 和 0.5wt% 时, η 的平均值分别为 21.7%、30.5%、46.8%、52.9% 和 40.8%, η 的最大值分别为 26.4%、33.9%、50.9%、57.7% 和 43.2%。

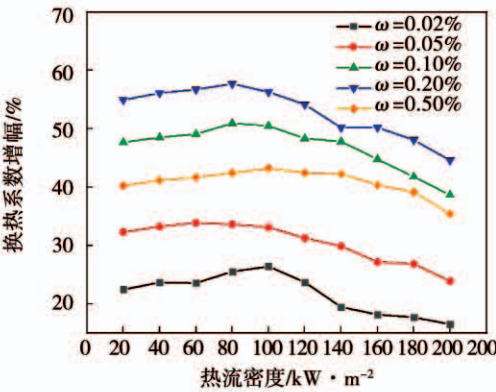


图 4 石墨烯纳米制冷剂的核态池沸腾换热系数增幅

Fig.4 Increment degrees of nucleate pool boiling heat transfer coefficients for graphene nanorefrigerants

2.2 机理分析

石墨烯纳米片强化制冷剂核态池沸腾换热可以从两个方面进行分析。

2.2.1 石墨烯纳米片对制冷剂热物性的影响

采用 Hot Disk 热物性分析仪和铂金板法分别测定了石墨烯纳米制冷剂的热导率和表面张力。图 5 给出了不同石墨烯纳米片质量百分含量(ω)情况下,石墨烯纳米制冷剂热导率和表面张力较纯制冷剂 R141b 变化的幅度。可以看出,在实验工况下,热导率增幅范围为 15.2%~39.2%,表面张力降幅范围为 2.4%~9.1%。热导率的增大会促进微液层的蒸发,表面张力的降低会导致气泡脱离直径减小以及气泡脱离频率增加,这两个因素都会导致核态池沸腾换热的强化^[21]。然而,在实验工况下,核态池沸腾换热系数增幅范围为 16.5%~57.7%,因此核态池沸腾换热的强化不能单纯用石墨烯纳米片对制冷剂热物性的影响来解释,需要考虑其对沸腾表面特性的影响。

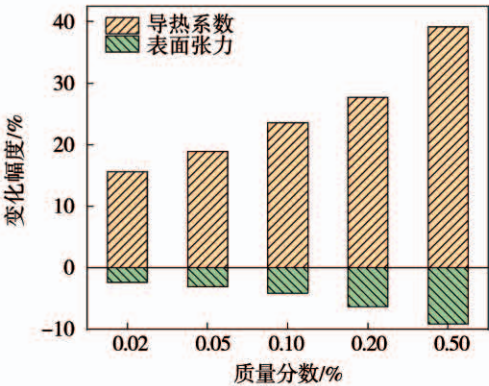


图 5 石墨烯纳米制冷剂的热导率和表面张力相对于纯制冷剂的变化幅度

Fig.5 Variations of thermal conductivity and surface tension of graphene nanorefrigerants relative to pure refrigerant

2.2.2 石墨烯纳米片对沸腾表面特性的影响

石墨烯纳米片对沸腾表面特性的影响主要从润湿性和表面形貌两方面进行分析。

图 6 给出了纯制冷剂 R141b 和石墨烯纳米制冷剂在沸腾后表面上的接触角。可以看出,与纯制冷剂 R141b 比较,石墨烯纳米片质量百分含量(ω)分别为 0.02%、0.05%、0.10%、0.20% 和 0.50% 的纳米制冷剂,其接触角分别减小 1.4%、5.4%、8.1%、12.4% 和 14.6%。说明石墨烯纳米片的存

在导致沸腾表面的润湿性增强,且增强程度与 ω 正相关。

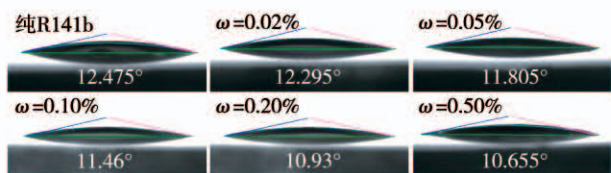


图6 纯制冷剂和石墨烯纳米制冷剂在沸腾后表面上的接触角

Fig. 6 Contact angles of pure refrigerant and graphene nanorefrigerants on surface after boiling

Kim 等人^[22]提出了沸腾表面汽化核心密度(n'')与接触角(θ)以及沸腾表面微腔数(N_c)之间的关系式:

$$n'' \propto N_c (1 - \cos\theta) \quad (7)$$

可以看出,接触角的减小,会造成沸腾表面汽化核心密度的降低。

图7给出了3种不同质量百分含量($\omega = 0.10\%$, 0.20% 和 0.50%)的石墨烯纳米制冷剂沸腾后表面的扫描电镜(SEM)照片。可以看出,从主流体中析出的石墨烯纳米片会附着在沸腾表面上。这是因为气泡在沸腾表面生成之后,其底端有一层薄的微液层,在气泡生长的过程中微液层中的液体不断蒸发,使得微液层中的石墨烯纳米片质量百分含量不断增大,引起石墨烯纳米片的沉积,进而导致沸腾表面微腔数增加。如图7所示,当 ω 从 0.10% 增大到 0.20% 时,微腔数增加;但 ω 继续增加到 0.50% 时,微腔数反而减小。由式(7)可以看出,沸腾表面微腔数与汽化核心密度正相关,故石墨烯纳米片的沉积会导致汽化核心密度的增大、强化池沸腾传热^[23]。

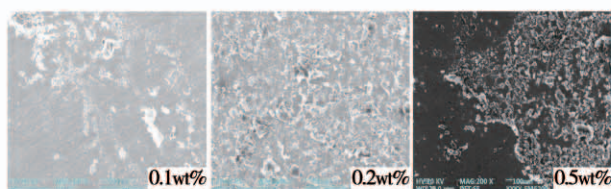


图7 石墨烯纳米制冷剂沸腾后表面形貌

Fig. 7 Surface morphology after boiling of graphene nanorefrigerants

石墨烯纳米片的加入会造成制冷剂在沸腾表面的接触角降低,同时会导致沸腾表面微腔数的增加;二者对汽化核心密度的影响规律相反,因此会出现最佳的石墨烯纳米片浓度,使得核态池沸腾换热强化程度最大。

3 结 论

(1) 单层石墨烯纳米片的加入,使制冷剂R141b的核态池沸腾换热得到强化;当石墨烯纳米片质量百分含量为 0.20% 时,换热系数提高比例出现峰值,其值为 57.7% 。

(2) 随着石墨烯纳米片质量百分含量的增加,石墨烯纳米制冷剂的热导率增大、表面张力减小,导致沸腾换热的强化。同时,石墨烯纳米片质量百分含量的增加会导致沸腾表面润湿性的增强和表面微腔数的先增后减。

参考文献:

- [1] 李 强,宣益民. 纳米流体强化导热系数机理初步分析[J]. 热能动力工程,2002(6):568-571,584-651.
LI Qiang,XUAN Yi-min. A preliminary analysis of the intensified thermal-conductivity mechanism of nano-fluids[J]. Journal of Engineering for Thermal Energy and Power,2002(6):568-571,584-651.
- [2] SARAFRAZ M M,POURMEHRAN O,YANG B,et al. Assessment of the thermal performance of a thermosyphon heat pipe using zirconia-acetone nanofluids[J]. Renewable Energy,2019(136):884-895.
- [3] 孙 斌,张冠男,左瑞良. 板式换热器内Cu-水纳米流体流动和传热特性数值模拟[J]. 热能动力工程,2015,30(5):666-671,816-817.
SUN Bin,ZHANG Guan-nan,ZUO Rui-liang. Numerical simulation of the flow and heat transfer characteristics of a Cu-water nano-fluid inside a plate type heat exchanger[J]. Journal of Engineering for Thermal Energy and Power. 2015,30(5):666-671,816-817.
- [4] 白敏丽,徐 哲,吕继组. 纳米流体对内燃机冷却系统强化传热的数值模拟研究[J]. 内燃机学报,2008(2):183-187.
BAI Min-li,XU Zhe,LYU Ji-zu. Nano fluid numerical simulation study of heat transfer enhancement of internal combustion engine cooling system[J]. Journal of internal combustion engine,2008(2):183-187.

- [5] 庄大伟. 纳米制冷剂池沸腾换热特性的研究[D]. 上海交通大学, 2011.
- ZHUANG Da-wei. Research on nucleate pool boiling heat transfer characteristics of refrigerant-based nanofluid[D]. Shanghai Jiao Tong University, 2011.
- [6] 毕胜山, 史琳. 纳米制冷剂冰箱性能的实验研究[J]. 清华大学学报(自然科学版), 2007, 47(11): 2002–2005.
- BI Sheng-shan, SHI Lin. Experimental investigation of a refrigerator with a nano-refrigerant[J]. Journal of Tsinghua University (Science and Technology), 2007, 47(11): 2002–2005.
- [7] WANG Rui-xiang, WU Qing-ping, WU Ye-zheng. Use of nanoparticles to make mineral oil lubricants feasible for use in a residential air conditioner employing hydro-fluorocarbons refrigerants[J]. Energy and Buildings, 2010, 42(11): 2111–2117.
- [8] JIANG Wei-ting, DING Ging-liang, PENG Hao. Measurement and model on thermal conductivities of carbon nanotube nanorefrigerants[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2009, 48: 1108–1115.
- [9] SADEGHI M M, PETTES M T, SHI L. Superior thermal conductivity of single-layer graphene[J]. Nano Letters, 2008, 8: 902–907.
- [10] PENG H, DING Guo-liang, HU Hai-tao, et al. Effect of nanoparticle size on nucleate pool boiling heat transfer of refrigerant/oil mixture with nanoparticles[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2011, 54: 1839–1850.
- [11] PENG Hao, DING Ging-liang, HU Hai-tao. Effect of surfactant additives on nucleate pool boiling heat transfer of refrigerant-based nanofluid[J]. Experimental Thermal and Fluid Science, 2011, 35: 960–970.
- [12] PENG Hao, DING Guo-liang, HU Hai-tao, et al. Nucleate pool boiling heat transfer characteristics of refrigerant/oil mixture with diamond nanoparticles[J]. International Journal of Refrigeration, 2010, 33: 347–358.
- [13] NIKULIN A, KHLIYEVA O, ZHELEZNY V, et al. How does change of the bulk concentration affect the pool boiling of the refrigerant oil solutions and their mixtures with surfactant and nanoparticles[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2019, 137: 868–875.
- [14] TRISAKSRI V, WONGWISES S. Nucleate pool boiling heat transfer of TiO_2 –R141b nanofluids[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2009, 52: 1582–1588.
- [15] NAPHON P, THONGJING C. Pool boiling heat transfer characteristics of refrigerant-nanoparticle mixtures[J]. International Communications in Heat and Mass Transfer, 2014, 52: 84–89.
- [16] TANG X, ZHAO Y H, DIAO Y H. Experimental investigation of the nucleate pool boiling heat transfer characteristics of $\delta\text{-Al}_2\text{O}_3$ -R141b nanofluids on a horizontal plate[J]. Experimental Thermal and Fluid Science, 2014, 52: 88–96.
- [17] EID E I, KHALAF-ALLAH R A, TOLAN M. Enhancement of pool boiling characteristics by an addition of nano Aluminum oxide to R-141b over a rough horizontal steel circular heater[J]. International Journal of Refrigeration, 2019, 98: 311–322.
- [18] PARK K J, JUNG D. Boiling heat transfer enhancement with carbon nanotubes for refrigerants used in building air-conditioning[J]. Energy & Buildings, 2007, 39(9): 1061–1064.
- [19] PENG H, DING Guo-liang, HU Hai-tao, et al. Influence of carbon nanotubes on nucleate pool boiling heat transfer characteristics of refrigerant-oil mixture[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2010, 49: 2428–2438.
- [20] YANWEI H, HAORAN L, YURONG H, et al. Role of nanoparticles on boiling heat transfer performance of ethylene glycol aqueous solution based graphene nanosheets nanofluid[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2016, 96: 565–572.
- [21] 彭浩. 纳米制冷剂沸腾中纳米粉体的相间迁移与传热流动特性[D]. 上海: 上海交通大学, 2011.
- PENG Hao. Migration characteristics of nano-powders, heat transfer and flow characteristics in refrigerant-based nanofluid boiling[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2011.
- [22] KIM S J, BANG I C, BUONGIORNO J, et al. Surface wettability change during pool boiling of nanofluids and its effect on critical heat flux[J]. International Journal of Heat & Mass Transfer, 2007(50): 4105–4116.
- [23] 周儒鸿, 纪献兵, 孔庆盼, 等. 表面润湿性影响池沸腾传热的研究进展[J]. 热能动力工程, 2019, 34(2): 1–8.
- ZHOU Ru-hong, JI Xian-bing, KONG Qing-pan, et al. Research progress of pool boiling heat transfer on different wettability surfaces[J]. Journal of Engineering for Thermal Energy and Power. 2019, 34(2): 1–8.

(金圣迪 编辑)