研究论文

石墨悬浮液的热导率与黏度分析

马雷[1,2]，Wang Jianjian[2]，Marconnet Amy[2,3]，刘伟[1]，Chen Gang[2]
([1] 华中科技大学能源与动力工程学院，湖北 武汉，430074；[2] School of Mechanical Engineering, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts 02139, United States；[3] School of Mechanical Engineering, Purdue University, West Lafayette, Indiana 47907, United States)

摘要：通过实验测量，对石墨悬浮液进行热导率和黏度系数的研究。采用不同的超声时间，从而获得不同大小颗粒的石墨悬浮液。在不同的超声时间下得到了石墨悬浮液的热导率随体积分数的变化规律，并对其热流逾渗现象进行了分析。同时，对于室温下的石墨悬浮液进行了黏度系数的测量，可以得到石墨悬浮液的逾渗点的导热性质和黏度性质的对比，从而得到了两者是截然相反的结论。

关键词：热导率；黏度系数；悬浮液；逾渗
DOI：10.3969/j.issn.0438-1157.2014.z1.033
中图分类号：TK 01　　**文献标志码**：A　　**文章编号**：0438—1157(2014)S1—206—05

Analysis of thermal conductivity and viscosity of graphite suspensions

MA Lei[1,2], WANG Jianjian[2], MARCONNET Amy[2,3], LIU Wei[1], CHEN Gang[2]
([1] *School of Energy and Power Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan* 430074, *Hubei, China*; [2] *School of Mechanical Engineering, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts* 02139, *United States*; [3] *School of Mechanical Engineering, Purdue University, West Lafayette, Indiana* 47907, *United States*)

Abstract: Thermal conductivity and viscosity of graphite suspensions were experimentally studied by transient hotwire method and ARG2 method, respectively. By choosing different sonication time, thermal conductivity of graphite suspension at different volume fractions were obtained, as well as a thermal percolation behavior was observed. The viscosity shows opposite trend compared with thermal conductivity near percolation regime, which increases much faster before percolation than after percolation.

Key words: thermal conductivity; dynamic viscosity; suspension; percolation

引 言

在工业、化工等应用中，传统的传热介质如水、油、乙二醇等的传热特性相对于固体颗粒较差，尤其在热导率方面。通常，固体的热导率是液体的百倍。为此，很多学者开始尝试新型的传热流体，将固体颗粒混合到传统的传热介质中。纳米流体最早是由 Choi 等[1]提出，作为一种新型的传热

2014－02－10 收到初稿，2014－02－15 收到修改稿。
联系人：CHEN Gang。第一作者：马雷（1986—），男，博士研究生。
基金项目：US AFOSR FA9550-11-1-0174 (J. J. W. and G. C.)；国家重点基础研究发展计划项目（2013CB228302）；国家自然科学基金项目（51036003）；教育部博士点基金项目（20100142110037）。

Received date: 2014－02－10.
Corresponding author: Prof. CHEN Gang, gchen2@mit.edu
Foundation item: supported by US AFOSR FA9550-11-1-0174 (J. J. W. and G. C.), the National Basic Research Program of China (2013CB228302), the National Natural Science Foundation of China (51036003) and the Doctoral Foundation of Education Ministry of China (20100142110037).

?1994-2014 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

介质，将金属或者非金属颗粒（1～100 nm）分散在传统介质中，形成一种新型稳定的介质。关于纳米流体的导热机制，已经被多次讨论[2-5]。这里认为纳米流体的导热提高的重要原因是由于微粒团簇的产生[6-10]。在提高传热系数的同时，流体的黏度也受到了极大的关注。众多学者[11-24]通过实验等方法对不同的纳米流体的黏度进行了研究。通过这些研究显示，纳米流体的黏度远高于基液的黏度，并且随着纳米流体的固体颗粒的体积分数的增加而增加。由于石墨具有热导率高、价格低等特点，为此，本文采用石墨作为固体颗粒而形成的悬浮液，并对其进行了热导率和黏度的研究。

1　石墨悬浮液的制备与测量方法

通过对石墨进行酸性处理，微波膨胀，然后将石墨与基液乙二醇进行充分混合，最后对混合好的液体进行超声振动，从而获得稳定的石墨悬浮液[25]。本文最先制备出体积分数为 1%的石墨悬浮液，然后对其进行稀释，从而获得体积分数分别为 0.8%，0.6%，0.4%，0.25%，0.2%，0.15%，0.11%，0.1%，0.09%，0.08%，0.07%，0.05%，0.03%的石墨悬浮液。在制备过程中超声时间分别采用 25 min 和 35 mim，从而获得不同大小的石墨颗粒的悬浮液。

本文采用瞬时热线法对石墨悬浮液流体进行了热导率的测量[25]，对于液体的黏度，这里采用圆锥-平板法进行测量，如图 1 所示。其中，图 1（a）为实验台架，图 1（b）为黏度测试原理，被测液体放于图 1（b）的圆锥和下平板之间，圆锥与下平板之间的角度 θ 为 2°。下平板为静止平板，被测液体随着圆锥体的转动而转动。对于不同的液体，由于其黏度的不同，会产生不同大小的阻力，从而使得圆锥体受到不同大小的力矩 Ω。通过测量力矩 Ω，可以得到液体的黏度。

式（1）～式（3）分别给出了流体质点的速度、质点在圆锥和平板之间的高度以及流体的剪切率。可以看出，通过圆锥-平板法测量液体的黏度，剪切率是角速度 ω 的单值函数。由此可以得到在不同的剪切率下流体黏度的变化规律。

流体质点的速度为

$$v = r\omega \tag{1}$$

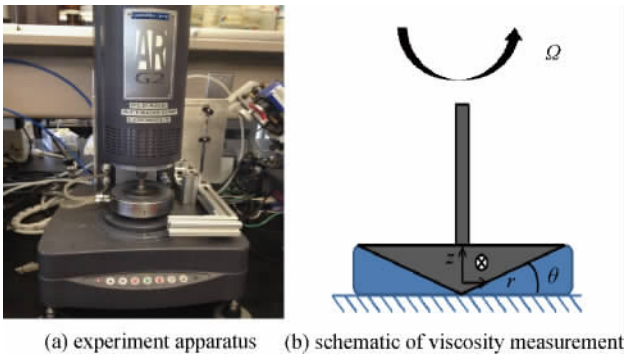
流体质点在圆锥和平板之间的高度为

$$h = r\tan\theta = r\sin\theta = r\theta \tag{2}$$

这里，由于 θ 很小，故取等号。

流体的剪切率（速度梯度）为

$$\dot{r} = \frac{V_0}{h} = \frac{V(r)}{h(r)} = \frac{\omega}{\theta} \tag{3}$$



(a) experiment apparatus　(b) schematic of viscosity measurement

图 1　圆锥-平板法测黏度

Fig. 1　Viscosity measurement with cone-plate setup

2　石墨悬浮液的热导率

本文认为石墨悬浮液热导率的提高是由于石墨颗粒形成团簇，从而使得热量主要通过团簇完成传递。图 2 显示了常温下，在不同的体积分数下，超声时间为 25 min 和 35 min 的石墨悬浮液的热导率的提高倍数值，即悬浮液的热导率与基液乙二醇的热导率（0.252 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$）之比。如图 2 中数据可以看出，随着体积分数的提高，石墨颗粒的数量增大，石墨团簇数量增多，从而石墨悬浮液的热导率明显提高。石墨悬浮液不同体积分数的光学照片如图 3 所示。不同的超声时间对石墨悬浮液的影响较大，较短的超声时间使得石墨悬浮液的热导率增加。这是由于较长的超声时间减小了石墨颗粒的大小，从而使得颗粒间的热阻增大，导致热导率的降低。

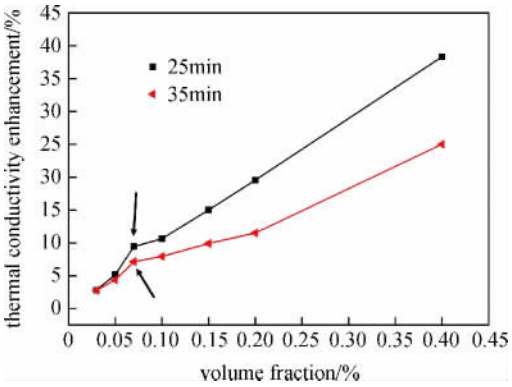


图 2　石墨悬浮液的热导率的提高倍数

Fig. 2　Enhancement of thermal conductivity of graphite suspensions

?1994-2014 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

从图 2 中还可以看到两个临界点，如图中箭头所示。对于图 2 中所示任意的超声时间而言，在临界点前热导率的增加斜率远大于临界点之后的增加斜率，这里称为“热流逾渗现象”。即随着悬浮液的体积分数的增加，液体中的石墨片的接触增加，使得石墨团簇之间不断增加接触面积。如图 3 所示，体积分数为 0.07%的石墨悬浮液，石墨团簇的接触面积明显大于体积分数为 0.03%的悬浮液。当体积分数为 0.15%左右时，悬浮液的团簇网络已经彻底形成。如按照传统的理解，当出现热流逾渗现象后，热导率应该明显增加，即在热流逾渗点之后热导率增加的斜率应明显大于热流逾渗点之前的斜率。然后实验结果却与之相反。这是由于在热流逾渗点之前，孤立的石墨团簇趋近于能量最小化，从而使得团簇内石墨片之间接触紧密，具体的机理和实验验证可以参考文献 [26-28]。

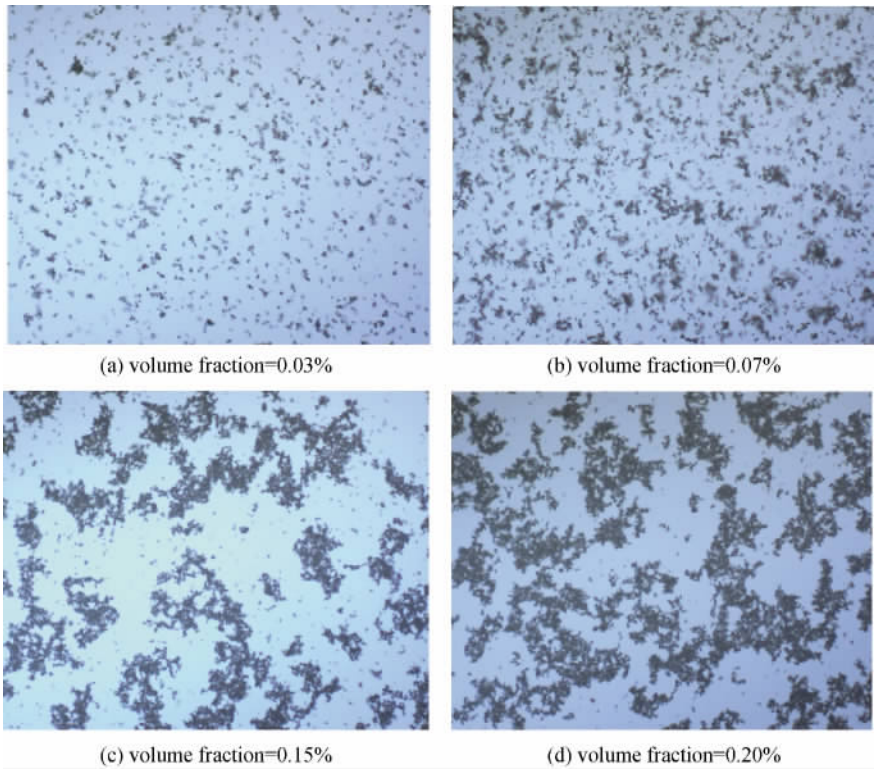


图 3 石墨悬浮液的光学显微照片

Fig. 3 Optical pictures of graphite suspensions

3 石墨悬浮液逾渗点的热导率与黏度的对比

通过以上的分析、数据和文献，可以看出逾渗点对于热导率和导电系数有着明显的影响，对于黏度，在逾渗点周围依然有着不同的性质。图 4 所示为超声时间为 35 min 的石墨悬浮液的热导率的提高和黏度的提高。其中图 4 (a) 是对图 2 的曲线重新绘制而得。通过之前的讨论，在逾渗点之前热导率增加的斜率应明显大于热流逾渗点之后的斜率，然而对于黏度，这里呈现相反的结论，即在不同的剪切率的情况下，逾渗点之后的黏度增加的斜率明显大于热流逾渗点之前的斜率，而黏度在逾渗点周围的变化规律与导电系数的变化规律相同[26-27]。

4 结 论

本文对石墨悬浮液进行热导率和黏度的实验研究，分别获得了在不同的超声时间下的不同大小颗粒的石墨悬浮液。通过对石墨悬浮液的热导率的测量，获得了热导率随体积分数的变化规律，并对其热流逾渗进行了分析。在室温的条件下，对石墨悬浮液进行了黏度的测量，并对石墨悬浮液的逾渗点的热导率和黏度进行了对比，可以得到在逾渗点之前热导率增加的斜率明显大于热流逾渗点之后的斜率，然而对于黏度，在不同的剪切率的情况下，逾渗点之后的黏度增加的斜率明显大于热流逾渗点之前的斜率。

?1994-2014 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

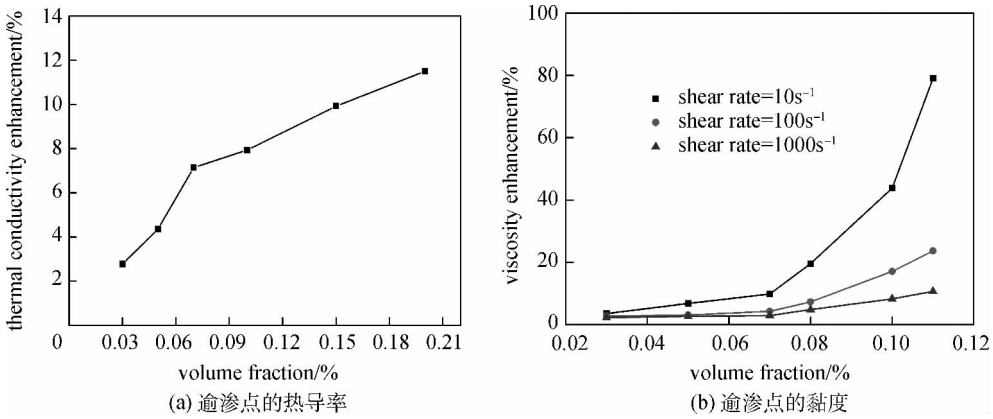


图 4　逾渗点的热导率与黏度

Fig. 4　Comparision of thermal conductivity and viscosity properties near percolation point

References

[1] Choi S U S, Eastman J A. Enhancing Thermal Conductivity of Fluids with Nanoparticles [M]. New York: ASME, 1995

[2] Keblinski P, Phillpot S, Choi S U S, Eastman J A. Mechanisms of heat flow in suspensions of nano-sized particles (nanofluids) [J]. *International Journal of Heat Mass Transfer*, 2002, **45** (4): 855-863

[3] Prasher R, Phelan P E, Bhattacharya P. Effect of aggregation kinetics on thermal conductivity of nanoscale colloidal solutions (nanofluid) [J]. *Nano Letters*, 2006, **6** (7): 1529-1534

[4] Gao J W, Zheng R T, Ohtani H, Zhu D S, Chen G. Experimental investigation of heat conduction mechanisms in nanofluids clue on clustering [J]. *Nano Letters*, 2012, **9** (12): 4128-4132

[5] Kumar D H, Patel H E, Kumar V R R, Sundararajan T, Pradeep T, Das S K. Model for heat conduction in nanofluids [J]. *Physical Review Letters*, 2004, **93** (14): 144301

[6] Chen H S, Ding Y L, He Y R, Tan C Q. Rheological behaviour of ethylene glycol based titania nanofluids [J]. *Chemical Physics Letters*, 2007, **444** (4): 333-337

[7] Chen H S, Ding Y L, Lapkin A, Fan X L. Rheological behaviour of ethylene glycol-titanate nanotube nanofluids [J]. *Journal of Nanoparticle Research*, 2009, **11** (6): 1513-1520

[8] Hong K S, Hong T K, Yang H S. Thermal conductivity of Fe nanofluids depending on the cluster size of nanoparticles [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, **88** (3): 031901

[9] Nan C W, Shi Z, Lin Y. A simple model for thermal conductivity of carbon nanotube-based composites [J]. *Chemical Physics Letters*, 2003, **375** (5): 666-669

[10] Prasher R, Evans W, Meakin P, Fish J, Phelan P, Keblinski P. Effect of aggregation on thermal conduction in colloidal nanofluids [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, **89** (14): 143119

[11] Pak B C, Cho Y I. Hydrodynamic and heat transfer study of dispersed fluids with submicron metallic oxide particles [J]. *Experimental Heat Transfer*, 1998, **11** (2): 151-170

[12] Wang X W, Xu X F, Choi S U S. Thermal conductivity of nanoparticle-fluid mixture [J]. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 1999, **13** (4): 474-480

[13] Tseng W J, Wu C H. Aggregation, rheology and electrophoretic packing structure of aqueous Al_2O_3 nanoparticle suspensions [J]. *Acta Materialia*, 2002, **50** (15): 3757-3766

[14] Tseng W J, Lin K C. Rheology and colloidal structure of aqueous TiO_2 nanoparticle suspensions [J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2003, **355** (1): 186-192

[15] Teipel U, Förter-Barth U. Rheology of nano-scale aluminum suspensions [J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 2001, **26** (6): 268-272

[16] Tseng W J, Chen C N. Effect of polymeric dispersant on rheological behavior of nickel-terpineol suspensions [J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2003, **347** (1): 145-153

[17] Kwak K, Kim C. Viscosity and thermal conductivity of copper oxide nanofluid dispersed in ethylene glycol [J]. *Korea-Australia Rheology Journal*, 2005, **17** (2): 35-40

[18] Liu M S, Lin M C C, Huang I T, Wang C C. Enhancement of thermal conductivity with CuO for nanofluids [J]. *Chemical Engineering & Technology*, 2006, **29** (1): 72-79

[19] Tseng W J, Tzeng F. Effect of ammonium polyacrylate on dispersion and rheology of aqueous ITO nanoparticle colloids [J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2006, **276** (1): 34-39

[20] Kang H U, Kim S H, Oh J M. Estimation of thermal conductivity of nanofluid using experimental effective particle volume [J]. *Experimental Heat Transfer*, 2006, **19** (3): 181-191

[21] Chang H, Jwo C S, Lo C H, Tsung T T, Kao M J, Lin H M. Rheology of CuO nanoparticle suspension prepared by ASNSS [J]. *Review on Advanced Materials Science*, 2005, **10** (2): 128-132

[22] Prasher R, Song D, Wang J, Phelan P. Measurements of nanofluid viscosity and its implications for thermal applications [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, **89**

?1994-2014 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

(13): 133108

[23] Nguyen C T, Desgranges F, Roy G, Galanis N, Mare T, Boucher S, Angue Mintsa H. Temperature and particle-size dependent viscosity data for water-based nanofluids-Hysteresis phenomenon [J]. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 2007, **28** (6): 1492-1506

[24] Namburu P K, Kulkarni D P, Misra D, Das D K. Viscosity of copper oxide nanoparticles dispersed in ethylene glycol and water mixture [J]. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2007, **32** (2): 397-402

[25] Xie H Q, Gu H, Fujii M, Zhang X. Short hot wire technique for measuring thermal conductivity and thermal diffusivity of various materials [J]. *Measurement Science and Technology*, 2006, **17** (1): 208-214

[26] Zheng R T, Gao J W, Wang J J, Feng S P, Ohtani H, Wang J B, Chen G. Thermal percolation in stable graphite suspensions [J]. *Nano Letters*, 2011, **12** (1): 188-192

[27] Wang J J, Zheng R T, Gao J W, Chen G. Heat conduction mechanisms in nanofluids and suspensions [J]. *Nano Today*, 2012, **7** (2): 124-136

[28] Zheng R T, Gao J W, Wang J J, Chen G. Reversible temperature regulation of electrical and thermal conductivity using liquid-solid phase transitions [J]. *Nature Communications*, 2011 (2): 289

?1994-2014 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net