

文章编号: 1671-6612 (2022) 03-377-05

氧化石墨烯/乙二醇纳米流体动力粘度研究

陈璇 殷德顺

(河海大学力学与材料学院 南京 210000)

【摘要】 纳米流体作为一种新型传热工质, 为研究其动力粘度, 通过两步法制备了体积分数 0.2%-1.0% 的试样, 并在剪切速率 $26.4\text{--}118.8\text{ s}^{-1}$ 及温度 $10\text{--}30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下进行了粘度测量试验, 结果表明: 该纳米流体的粘度随剪切速率的增大而迅速升高, 在较高剪切速率时粘度变化幅度很小; 其粘度随温度升高而显著降低, 下降速率逐渐减小; 其粘度大致随体积分数递增。此外, 还发现了少量添加的氧化石墨烯能降低基液粘度的反常现象, 这对于降低泵送功率有利。最后, 基于机器学习的支持向量机方法建立了粘度模型, 与试验数据吻合较好, 展现了优异的预测能力。

【关键词】 纳米流体; 氧化石墨烯; 动力粘度; 支持向量机

中图分类号 TK124 文献标识码 A

Experimental Study on the Flow Characteristic of Graphene Oxide/Ethylene Glycol Nanofluids

Chen Xuan Yin Deshun

(College of Mechanics and Materials, Hohai University, Nanjing, 210000)

【Abstract】 To investigate the viscosity characteristic of GO/EG nanofluids with various influential factors, nanofluids with a volume fraction of 0.2%-1.0% were prepared by two-step method and measured at several shear rates and temperatures with ranges of $26.4\text{--}118.8\text{ s}^{-1}$ and $10\text{--}30\text{ }^{\circ}\text{C}$, respectively. Results indicate that this nanofluid is shear-thickening fluid, showing much smaller viscosity fluctuations at higher shear rates. Furthermore, the viscosity of nanofluids decreases with rising temperature sharply, while increases with growing volume fraction roughly. Besides, it is notable that the slight addition of GO can reduce the viscosity of based fluids, implying the decrease of pumping power. Finally, the viscosity model has been built based on support vector machine algorithm and is in good agreement with experiments.

【Keywords】 nanofluids; graphene oxide; dynamic viscosity; support vector machine

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (11872173)

作者简介: 陈璇 (1997.2-), 女, 在读硕士研究生, E-mail: xuanchen97@163.com

通讯作者: 殷德顺 (1972.7-), 男, 教授, E-mail: yindeshun72@163.com

收稿日期: 2022-02-23

0 引言

日益严重的能源问题促使了研制更高效的传热工质, 纳米流体应运而生。它是以一种一定的方式和比例将纳米材料分散到基液中形成的, 这一概念由 Choi^[1] 在 1995 年首次提出。由于纳米流体独特的物理特性, 它在热科学领域和新能源技术领域有着广阔的应用前景^[2]。其中, 氧化石墨烯/乙二醇纳米流体这一新兴纳米流体, 在低温集热方面有巨大的

潜在应用价值^[3]。

纳米流体的动力粘度对实际应用十分重要, 是研究其传热增强潜力的基本参数之一。一方面, 粘度对纳米流体速度的影响会改变温度分布, 从而影响传热过程; 另一方面, 粘度会直接影响换热系统的泵送功率, 进而影响工程成本。

相较于纳米流体导热性能方面详尽的研究^[2,4,5], 动力粘度方面的研究仍较匮乏。纳米流体的

粘度会受到浓度（体积分数或质量分数）、温度和剪切速率等因素的影响。Moghaddam 等人^[6]，Ahammed 等人^[7]以及 Yang 等人^[8]分别通过试验探究了石墨烯-甘油纳米流体，石墨烯-水纳米流体以及氧化石墨烯-水纳米流体的粘度特性，均发现：粘度随浓度的增加而增加，随温度的升高而降低。纳米流体可能表现出牛顿或非牛顿特性，这取决于纳米材料的类型、尺寸和浓度等。Yang 等人^[8]通过实验测定了氧化石墨烯-水纳米流体在质量浓度 1.0~3.5mg/mL、温度 25~50℃时的粘度，发现该纳米流体在各质量分数下均为非牛顿流体。Zheng 等人^[9]则发现，随着石墨烯的加入，会导致石墨烯-乙二醇纳米流体从牛顿流体变为非牛顿流体。石墨烯类纳米流体（纳米材料为石墨烯或氧化石墨烯）的粘度变化规律十分复杂，虽然目前已经得到了一些简单的规律性结论，但对其粘度的理解仍不够充分，亟待更为详尽的实验探究。

为了研究多影响因素下氧化石墨烯/乙二醇纳米流体的动力粘度变化规律，本研究通过两步法制备了多个体积分数的纳米流体，并在不同温度、剪切速率进行了粘度测量实验，详细分析了各因素对粘度的影响，最后基于机器学习的支持向量机方法建立了粘度模型。

1 实验材料与方法

1.1 纳米流体制备

实验选取的纳米材料为氧化石墨烯（GO），购于深圳市图灵进化科技有限公司，厚度 1nm，单层直径 0.2~10 μm ，密度 0.5g/cm³；选取的基液为乙二醇（EG），购于国药集团化学试剂有限公司。对选用的纳米材料进行了 XRD 分析（见图 1），图中的衍射峰与氧化石墨烯相匹配。

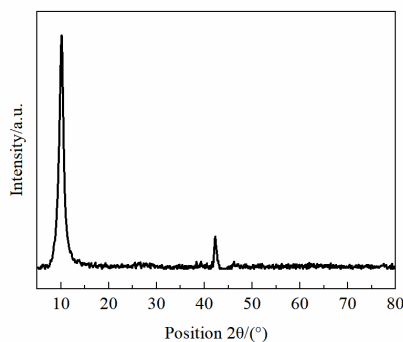


图 1 氧化石墨烯的 XRD 分析

Fig.1 XRD patterns of Graphene oxide

制备仪器有：METTLER TOLEDO 电子秤，型号 ME204E，最大称量为 220.0g，可读性达到 0.0001g；单道移液器；KQ-500DE 型数控超声波清洗器，超声频率为 40kHz，超声输入功率达到 500W；T09-1S 型磁力搅拌器，搅拌转速最高达 2000r/min。

分散良好的纳米材料是测量纳米流体粘度的基础，本研究通过两步法制备 GO/EG 纳米流体，具体的制备步骤为：根据配比将氧化石墨烯加入乙二醇中，磁力搅拌 15min 后辅以机械搅拌，再进行 30min 超声振荡，重复上述步骤 4 次。

1.2 粘度测量实验

粘度测量仪器为 Brookfield DV3TLV 型流变仪，并有配套的恒温水浴装置和小样适配器，实验测得的为动力粘度。GO 的体积分数选取为：0、0.2、0.4、0.6、0.8、1.0 vol%；温度选取为：10、15、20、25、30℃；转速选取为：20、30、40、50、60、70、80、90 RPM（实验所用转子的转换系数为 1.32，即对应剪切速率为：26.4~118.8s⁻¹）。由单道移液器取 6.7mL 实验样品置于小样适配器，测量时温度及剪切速率保持恒定。

纳米流体制备过程的称量误差、测量过程的温度误差以及流变仪本身的测量误差是实验误差的主要来源。同一条件下，多次测量取均值以减小误差的影响。结果显示，单次测量的标准差均在 0.683 以下。

2 结果与讨论

2.1 剪切速率对纳米流体粘度的影响

图 2 给出了 GO/EG 纳米流体的粘度-剪切速率曲线。由图 2 知，粘度均随剪切速率的增加而增加，且粘度上升的速率逐渐减小，在较高剪切速率时粘度变化幅度很小。根据粘度与剪切应力的关系，见式（1），可以将粘度-剪切速率曲线转换为剪切应力-剪切速率曲线（见图 3）。

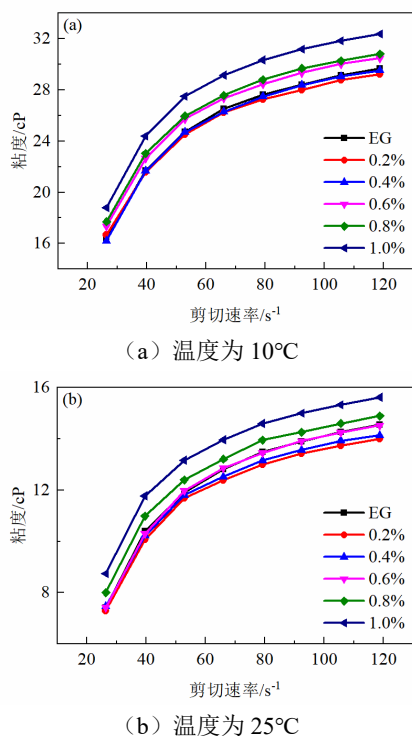


图 2 GO/EG 纳米流体粘度-剪切速率变化曲线

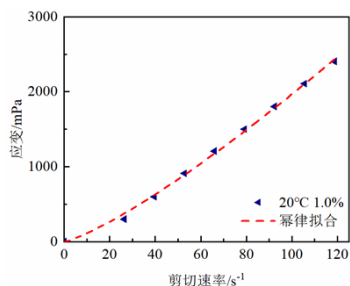
Fig.2 Viscosity profiles versus shear rate

$$\tau = \mu \dot{\gamma} \quad (1)$$

式中, τ 是剪切应力; μ 是粘度; $\dot{\gamma}$ 是剪切速率。当剪切应力与剪切速率呈正比时, 流体表现出牛顿行为; 其他情况则表现出非牛顿行为。显然, GO/EG 纳米流体是非牛顿流体, 它表现出剪切变稠行为, 这可能与纳米材料微细观层面的轻微团聚受剪切速率控制有关。剪切应力与剪切速率的关系也被称为流体的本构关系, 由图 3 可知该纳米流体的本构关系大致呈幂律形式, 故选取幂律流体本构方程, 见式 (2), 对试验数据进行拟合。

$$\tau = K \dot{\gamma}^n \quad (2)$$

式中, K 是稠度系数; n 是流动特性指数。由图 3 可知, 与实验数据吻合较好, 说明基于幂律流体本构可以较好的描述该纳米流体粘度随剪切速率的变化规律。



实点为 20°C, 体积分数 1% 下的试验数据, 虚线为幂律本构方程的拟合曲线

图 3 GO/EG 应力-应变率关系

Fig.3 Shear stress versus shear rate and fitting profiles

2.2 温度对纳米流体粘度的影响

图 4 给出了 GO/EG 纳米流体的粘度随温度的变化曲线, 由图可知, 该纳米流体的粘度均随温度的升高而显著降低, 且下降速率逐渐减小。当温度从 10°C 升高到 30°C 时, 各配比试样的粘度均下降 59.5% 以上。纳米材料的加入或剪切速率的变化都没有改变该纳米流体的粘度-温度变化趋势, 这与大多数流体的粘-温演化规律类似, 因为液体的粘度来自分子引力, 温度升高, 使得分子间的距离加大, 分子引力减小, 内摩擦减弱, 所以粘度减小 [10]。

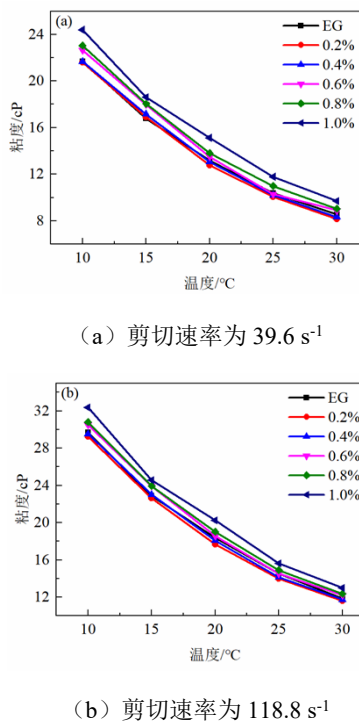


图 4 GO/EG 纳米流体粘度-温度变化曲线

Fig.4 Viscosity profiles versus temperature

2.3 体积分数对纳米流体粘度的影响

图 5 给出了 GO/EG 纳米流体的粘度随 GO 体积分数的变化曲线。由图 5 可知, 粘度大致随体积分数的增大而升高; 在 GO 体积分数较小时 (不高于 0.4%), 粘度会有轻微的降低趋势。粘度极小值大致出现在体积分数为 0.2%~0.4% 时, 体积分数临界值主要受剪切速率的影响。相对粘度 (纳米流体

的粘度除以基液的粘度)可以更直观的描述纳米材料对基液粘度的影响,这里绘制了相对粘度随体积分数的变化曲线(见图6)。结合前文的结果,发现了一个反常现象:在较低的GO体积分数下,该纳米流体的粘度会略小于基液(相对粘度小于1),即少量添加的GO可以降低基液的粘度。这种反常现象在温度更高时会更加明显。在其他的碳纳米材料制成的纳米流体,也有学者发现了类似的反常现象。Phuoc等人^[11]发现质量分数为0.5 wt%的水基碳纳米管纳米流体,其粘度低于基液蒸馏水。Banisharif等人^[12]则发现水基纳米多孔石墨烯纳米流体在两种低浓度(0.01%和0.10%)下的粘度低于基液。但两者都未提及这种反常现象的形成原因,只是简单归结于碳纳米材料的润滑效果。对于实际工程来说,少量添加的纳米材料便会显著提升基液的传热能力,而更低的粘度则意味着更低的泵送功率,从而更有利于纳米流体的应用。

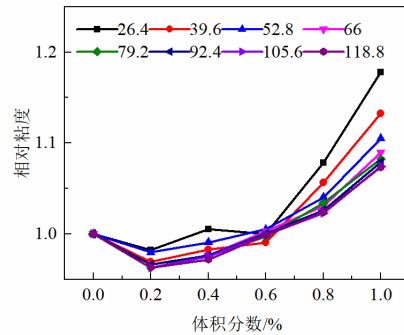


图6 GO/EG 纳米流体相对粘度-体积分数变化曲线,温度为 25°C

Fig.6 Relative viscosity profiles versus volume fraction, T=25°C

2.4 粘度模型

近年来,机器学习方法因其强大的建模能力和对复杂系统非线性行为的良好预测能力,被引入纳米流体领域^[13]。为了定量描述该纳米流体的粘度变化规律,基于机器学习的支持向量机(SVM)方法建立了粘度预测模型。SVM 是一种是按监督学习方式对数据进行二元分类的广义线性分类器,通常借助凸优化技术求解。SVM 的优点是对数据分布的要求低,具有较优异的小样本学习能力和非线性拟合能力,泛化能力强,参数设置相对简单。

本研究将实验数据作为数据集,输入变量为剪切速率、配比和温度,输出变量为粘度。再将数据集随机划分为两个不相交的集合,其中训练集数据占比 80%,测试集占比 20%。选取了使用最为广泛的两个指标:均方根误差(RMSE)及决定系数(R²)来评估模型性能。训练集的 R² 和 RMSE 分别为 0.9966 和 0.0598;测试集的 R² 和 RMSE 分别为 0.9945 和 0.0675,显然该模型具有很高的精度。为了更直观的反映该机器学习模型的性能,图7给了实验测量值和模型输出值的相关图。由图7可知,该模型与试验数据吻合较好,说明基于 SVM 方法的粘度模型可以很好的描述该纳米流体的动力粘度变化规律。

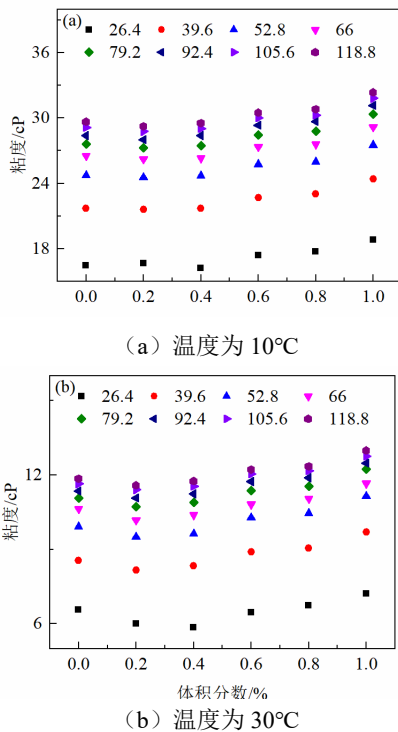


图5 GO/EG 纳米流体粘度-体积分数变化曲线

Fig.5 Viscosity profiles versus volume fraction

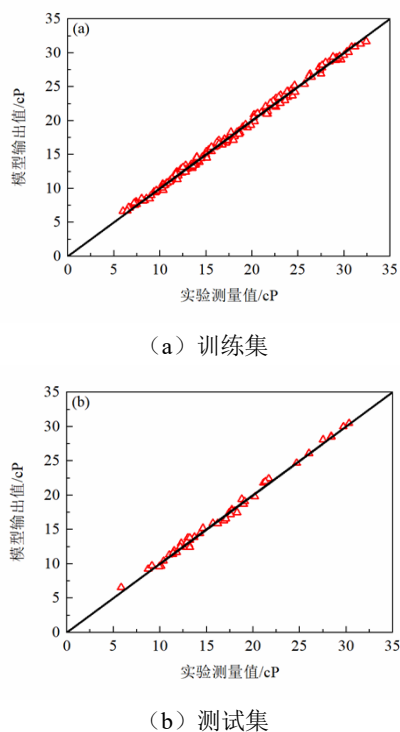


图7 实验测量值和粘度模型输出值的相关图

Fig.7 Comparison between experimental data and output data from model

3 结论

(1) 该纳米流体的粘度均随剪切速率的增加而增加,且粘度上升的速率逐渐减小,在较高剪切速率时粘度变化幅度很小。

(2) 其粘度随温度的升高而显著降低,且下降速率逐渐减小。当温度从 10℃ 升高到 30℃ 时,各配比试样的粘度均下降 59.5% 以上。

(3) 其粘度大致随体积分数的增大而升高。少量添加(低于 0.4%)的氧化石墨烯可以降低基液粘度,这一反常现象对于实际工程降低泵送功率有利。

(4) 基于 SVM 方法的粘度模型与试验数据吻合较好,表现了该模型优异的预测能力。

参考文献:

[1] CHOI S U S, EASTMAN J A. Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles[R]. Argonne National Lab., IL (United States), 1995.

[2] 宣益民. 纳米流体能量传递理论与应用[J]. 中国科学: 技术科学, 2014, 44(3): 269-279.

[3] 李富恒. 石墨烯纳米片-乙二醇纳米流体光热转化特性

研究[J]. 化工学报, 2020, 71(S1): 479-485.

- [4] 苏立功, 李晓兵, 孟曦. 倾斜方腔内纳米流体自然对流的数值研究[J]. 制冷与空调, 2012, 26(6): 627-631.
- [5] 孟曦, 侯海明, 马兵善, 等. 封闭腔内纳米流体自然对流换热的数值模拟[J]. 制冷与空调, 2012, 26(4): 330-333, 340.
- [6] MOGHADDAM M B, GOHARSHADI E K, ENTEZARI M H, et al. Preparation, characterization, and rheological properties of graphene-glycerol nanofluids[J]. Chemical engineering journal, 2013, 231: 365-372.
- [7] AHAMMED N, ASIRVATHAM L G, WONG-WISE S. Effect of volume concentration and temperature on viscosity and surface tension of graphene-water nanofluid for heat transfer applications[J]. Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, 2016, 123(2): 1399-1409.
- [8] XU Y, NGUYEN Q, MALEKAHMADI O, et al. Synthesis and characterization of additive graphene oxide nanoparticles dispersed in water: experimental and theoretical viscosity prediction of non-Newtonian nanofluid[J]. Mathematical Methods in the Applied Sciences, 2020: 1-20.
- [9] ZHENG Y, ZHANG X, SHAHSAVAR A, et al. Experimental evaluating the rheological behavior of ethylene glycol under graphene nanosheets loading[J]. Powder Technology, 2020, 367: 788-795.
- [10] 陈惠钊. 粘度测量(修订版)[M]. 北京: 中国计量出版社, 2003.
- [11] PHUOC T X, MASSOUDI M, CHEN R H. Viscosity and thermal conductivity of nanofluids containing multi-walled carbon nanotubes stabilized by chitosan[J]. International Journal of Thermal Sciences, 2011, 50(1): 12-18.
- [12] BANISHARIF A, ESTELLE P, RASHIDI A, et al. Heat transfer properties of metal, metal oxides, and carbon water-based nanofluids in the ethanol condensation process[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2021, 622: 126720.
- [13] TOGHRAIE D, SINA N, JOLFAEI N A, et al. Designing an Artificial Neural Network (ANN) to predict the viscosity of Silver/Ethylene glycol nanofluid

at different temperatures and volume fraction of nanoparticles[J]. Physica A: Statistical Mechanics and its

Applications, 2019,534:122142.