

Małgorzata STANEK, Michał DRZAZGA, Jan THULLIE

e-mail: jan.thullie@polsl.pl

Katedra Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Wydział Chemiczny, Politechnika Śląska, Gliwice

## Określenie efektywnego współczynnika przewodnictwa cieplnego nanopłynów za pomocą wzorów analitycznych

### Wstęp

Przewodnictwo cieplne nanopłynów jest badane począwszy od lat dziewięćdziesiątych, gdy po raz pierwszy [1, 2] zastosowano nanocząstki dla podwyższenia przewodnictwa cieplnego płynu. Istotą zagadnienia było to, że nanocząstki nie podlegają silnej sedimentacji w kanałach, stąd nie prowadzą do ich zatykania, co było główną barierą w poprawieniu współczynnika przewodzenia ciepła mieszanin za pomocą cząstek większych rozmiarów.

Szybko okazało się jednak, że klasyczne wzory jak np. *Hamiltona* i *Crossera* [3] czy *Waspa* [4] określające efektywne przewodnictwo cieplne mieszaniny cząstek ciała stałego zawieszonych w cieczy zaniżają wartości w porównaniu z danymi eksperymentalnymi [5, 6]. Nie wszystkie eksperymenty potwierdzały to stanowisko. *Xuan* i *Li* [7] uzyskali wyniki eksperymentalne zgodne z równaniami *Hamiltona* i *Crossera*, natomiast *Lee* i wsp. [8] również potwierdzili słuszność tych wzorów dla nanocząsteczek  $Al_2O_3$ . Jednakże większość prac proponuje odmienne od klasycznych zależności określające efektywny współczynnik przewodnictwa cieplnego nanopłynów.

### Przegląd podstawowych wzorów

Klasycznym równaniem opartym o teorię *Maxwella* [9] jest modyfikacja *Hamiltona-Crossera* najczęściej przedstawiana w postaci [10]:

$$\frac{k_{eff}}{k_f} = \frac{k_p + (n-1)k_f - (n-1)\phi'(k_f - k_p)}{k_p + (n-1)k_f + \phi'(k_f - k_p)} \quad (1)$$

gdzie  $n$  to empiryczny współczynnik kształtu określony w następujący sposób:

$$n = \frac{3}{\psi} \quad (2)$$

przy czym  $\psi$  jest współczynnikiem sferyczności (stosunek powierzchni kuli o objętości równej objętości cząstki do powierzchni cząstki).

Jedną z modyfikacji klasycznego modelu *Maxwella* zaproponował *Xue*. Model ten opisuje zależność współczynnika przewodnictwa cieplnego od warstwy międzyfazowej i można go przedstawić za pomocą następującego równania [10]:

$$9\left(1 - \frac{\phi}{\lambda}\right) \frac{k_{eff} - k_f}{2k_{eff} + k_f} + \frac{\phi}{\lambda} \left[ \frac{k_{eff} - k_{c,x}}{k_{eff} + B_{z,x}(k_{c,x} - k_{eff})} + 4 \frac{k_{eff} - k_{c,y}}{2k_{eff} + (1 - B_{z,x})(k_{c,y} - k_{eff})} \right] = 0 \quad (3)$$

gdzie

$$\lambda = \frac{abc}{(a+t)(b+t)(c+t)} \quad (4)$$

Tutaj  $a$ ,  $b$  i  $c$  są półpromieniami założonych eliptycznych cząsteczek, a  $t$  jest grubością powłoki eliptycznej.

*Yu* i *Choi* zaproponowali dwa modele: jeden opiera się na teorii *Maxwella*, drugi natomiast jest modyfikacją modelu *Hamiltona-Crossera*. Modele te również uwzględniają wpływ warstwy międzyfazowej. W modelach *Yu* i *Choi* przewodnictwo cieplne i udział objętościowy wzwieszonych cząstek stałych zostały zamienione na przewodnictwo cieplne i udział objętościowy cząstek zastępczych, czyli występujących w nanowarstwie.

Wyrażenia opisujące modele *Yu* i *Choi* [10]:

– na podstawie modelu *Maxwella*:

$$\frac{k_{eff}}{k_f} = \frac{k_{pe} + 2k_f + 2\phi(k_{pe} - k_f)(1 + \sigma)^3}{k_{pe} + 2k_f - \phi(k_{pe} - k_f)(1 + \sigma)^3} \quad (5)$$

– na podstawie modelu *Hamiltona-Crossera*:

$$\frac{k_{eff}}{k_f} = 1 + \frac{n\phi_{eff}E}{1 - \phi_{eff}E} \quad (6)$$

gdzie:

$$E = \frac{1}{3} \sum_{j=a,b,c} \frac{k_{pj} - k_f}{k_{pj} + (n-1)k_f} \quad (7)$$

Natomiast współczynnik kształtu jest określony jako:

$$n = 3\psi^{-\phi} \quad (8)$$

Model, który zaproponowali *Jang* i *Choi* [11] obejmuje następujące sposoby transportu energii w nanopłynach: (i) zderzenia cząstek płynu bazowego, (ii) termodyfuzja nanocząstek w płynie, (iii) oddziaływania cieplne dynamicznych lub „tańczących” nanocząstek z cząstkami płynu bazowego, (iv) zderzenia nanocząstek na skutek ruchów *Browna* (ten sposób został pominięty w ostatecznej wersji modelu, gdyż proces ten jest bardzo powolny). Model *Janga* i *Choi* wyrażony jest następującym równaniem [11]:

$$k_{eff} = k_f(1 - \phi) + k_p\beta\phi + 3C_1 \frac{d_f}{d_p} k_f Re_{dp}^2 Pr\phi \quad (9)$$

gdzie:

$\beta$  – stała związana z tzw. oporem *Kapitzya*,

$C_1$  – stała proporcjonalności,

$d_f$  – średnica cząstki cieczy,

$Re_{dp}$  – zmodyfikowana liczba *Reynoldsa*, zdefiniowana jako:

$$Re_{dp} = \frac{\bar{C}_{R.M.} d_p}{\nu} \quad (10)$$

gdzie  $\bar{C}_{R.M.}$  jest prędkością ruchu losowego nanocząstek określoną wzorem:

$$\bar{C}_{R.M.} = \frac{D_o}{\ell_f} \quad (11)$$

gdzie

$\ell_f$  – długość średniej drogi swobodnej cząstek płynu bazowego,

$D_o$  – współczynnik dyfuzji nanocząstek określony wzorem:

$$D_o = \frac{k_B T}{3\pi\mu d_p} \quad (12)$$

Model *Koo* i *Kleinstreuera* [12] składa się z dwóch członów: pierwszy z nich to model *Maxwella*, natomiast drugi uwzględnia wpływ ruchów *Browna* na efektywny współczynnik przewodnictwa cieplnego nanopłynów. Model *Koo* i *Kleinstreuera* zdefiniowany jest poprzez następujące wyrażenie:

$$k_{eff} = \frac{k_p + 2k_f + 2(k_p - k_f)\phi}{k_p + 2k_f - (k_p - k_f)\phi} k_f + 5 \cdot 10^4 \beta \phi \rho_p c_p \sqrt{\frac{k_B T}{\rho_p D}} f(T, \phi) \quad (13)$$

gdzie  $\beta$  określa ilość płynu, która przemieszcza się razem z nanocząstkami, a zatem maleje wraz ze wzrostem stężenia objętościowego nanocząstek.

Na podstawie danych z pracy [13] *Koo* i *Kleinstreuer* wyprowadzili również empiryczną zależność  $f(T, \phi)$ :

$$f(T, \phi) = (-6,04\phi + 0,4705)T + (1722,3\phi - 134,63) \quad (14)$$

Autorzy modelu zalecają stosowanie go w zakresie udziału objętościowego:  $1\% < \phi < 4\%$  oraz temperatury:  $300 < T < 325$  K.

Model *Prashera* [14] uwzględnia konwekcję spowodowaną przez ruchy *Browna* nanocząstek. Jest to zmodyfikowany model *Maxwella* o postaci:

$$k_{eff} = (1 + ARe^m Pr^{0,333} \phi) \left[ \frac{k_p + 2k_f + 2(k_p - k_f)\phi}{k_p + 2k_f - (k_p - k_f)\phi} \right] k_f \quad (15)$$

$A$  i  $m$  są stałymi, a liczbę *Reynoldsa* określa wzór:

$$Re = \frac{1}{\nu} \sqrt{\frac{18k_B T}{\pi \rho_p d_p}} \quad (16)$$

Model *Xie* [15], podobnie jak modele *Yu* i *Choi* oraz *Xue*, uwzględnia wpływ warstwy międzyfazowej na efektywny współczynnik przewodnictwa cieplnego. Model ten jest określony przez następujące równanie:

$$\frac{k_{eff}}{k_f} = 1 + 3\Theta\phi_T + \frac{3\Theta^2\phi_T^2}{1 - \Theta\phi_T} \quad (17)$$

gdzie:

$$\Theta = \frac{\beta_{if}[(1 + \sigma)^3 - \beta_{p1}/\beta_{f1}]}{(1 + \sigma)^3 + 2\beta_{if}\beta_{p1}} \quad (18)$$

$$\phi_T = \phi(1 + \sigma)^3 \quad \sigma = \frac{\delta}{r_p} \quad (19) (20)$$

$$\beta_{if} = \frac{k_{ir} - k_f}{k_{ir} + 2k_f} \quad \beta_{p1} = \frac{k_p - k_{ir}}{k_p + 2k_{ir}} \quad \beta_{f1} = \frac{k_f - k_{ir}}{k_f + 2k_{ir}} \quad (21) (22) (23)$$

Model *Gao* i *Zhou* [16] bazuje na innym klasycznym modelu: modelu *Bruggemana*. Uwzględnia on jednak anizotropię geometryczną oraz fizyczną:

$$1 - \phi = \left( \frac{k_f}{k_{eff}} \right)^{3D_1} \left( \frac{k_f + B_1}{k_{eff} + B_1} \right)^{3C_1} \left( \frac{k_f + B_2}{k_{eff} + B_2} \right)^{3C_2} \quad (24)$$

gdzie  $D_1$ ,  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $B_1$  oraz  $B_2$  są stałymi. Dla cząstek kulistych model ten redukuje się do modelu *Bruggemana*.

W modelach *Leonga* i *Mursheda* [17] założono, że warstwa międzyfazowa stanowi odrębny element układu. Równanie *Leonga* opisuje współczynnik przewodnictwa cieplnego dla nanocząstek kulistych:

$$k_{eff} = \frac{(k_p - k_{ir})\phi k_{ir}(2\gamma_1^3 - \gamma^3 + 1) + (k_p + 2k_{ir})\gamma_1^3[\phi\gamma^2(k_{ir} - k_f) + k_f]}{\gamma_1^3(k_p + 2k_{ir}) - (k_p - k_{ir})\phi(\gamma_1^3 - \gamma^3 - 1)} \quad (25)$$

Natomiast model *Mursheda* opisuje współczynnik przewodnictwa cieplnego dla nanocząstek cylindrycznych:

$$k_{eff} = \frac{(k_p - k_{ir})\phi k_{ir}(\gamma_1^2 - \gamma^2 + 1) + (k_p + k_{ir})\gamma_1^2[\phi\gamma^2(k_{ir} - k_f) + k_f]}{\gamma_1^2(k_p + k_{ir}) - (k_p - k_{ir})\phi(\gamma_1^2 - \gamma^2 - 1)} \quad (26)$$

gdzie

$$\gamma = 1 + \frac{h}{a} \quad \gamma_1 = 1 + \frac{h}{2a} \quad (27) (28)$$

Model *Velagapudi* [18] uwzględnia wpływ temperatury, rozmiaru nanocząstek, stężenia objętościowego nanocząstek w płynie bazowym oraz ruchów *Browna* na efektywny współczynnik przewodnictwa cieplnego i wyrażony jest wzorem:

$$\frac{k_{nf}}{k_f} = cRe_m^p d_p^q \left( \frac{k_p}{k_f} \right)^r \quad (29)$$

gdzie  $Re_m$  jest zmodyfikowaną liczbą *Reynoldsa* o postaci:

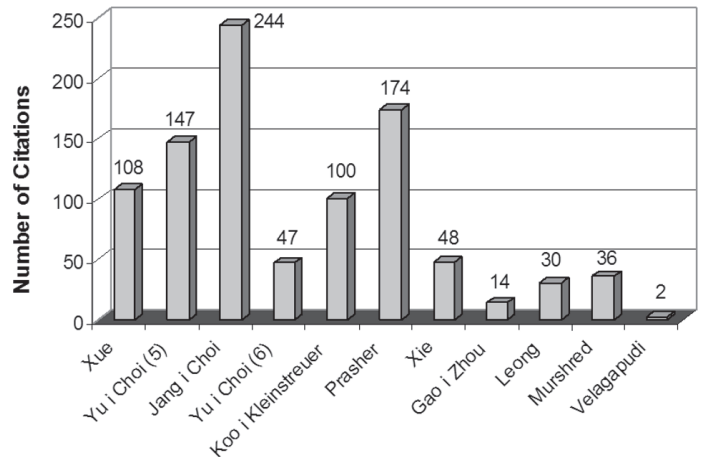
$$Re_m = \left( \frac{1}{\nu_f} \right) \sqrt{\frac{18k_B T}{\pi \rho_p d_p}} \quad (30)$$

Wartości stałych  $p$ ,  $q$  oraz  $r$  zostały przyjęte w oparciu o dane literaturowe jako równe odpowiednio: 0,175; 0,05 oraz 0,2324. Wartości stałej  $c$  zależą od rodzaju nanopłynu.

## Porównanie modeli i wyników eksperymentalnych

Przedstawione modele mają istotne znaczenie, jeśli aproksymują przynajmniej w przybliżeniu wyniki eksperymentalne. Stąd istotnym jest porównanie ich z dostępnymi danymi eksperymentalnymi opublikowanymi w literaturze. Pewnych porównań dokonano już w przeglądowej pracy [12], dotyczyły one modeli *Yu* i *Choi*, *Koo* i *Kleinstreuera*, *Janga* i *Choi*, *Xie*, *Xue* i *Xu* oraz *Sitpraserta*.

Przed wyborem kolejnych równań do porównania dokonano zestawienia liczby cytowań poszczególnych wzorów na początku sierpnia 2010. Zestawienie to zaprezentowano na rys. 1.



Rys. 1. Zestawienie liczby cytowań poszczególnych wzorów

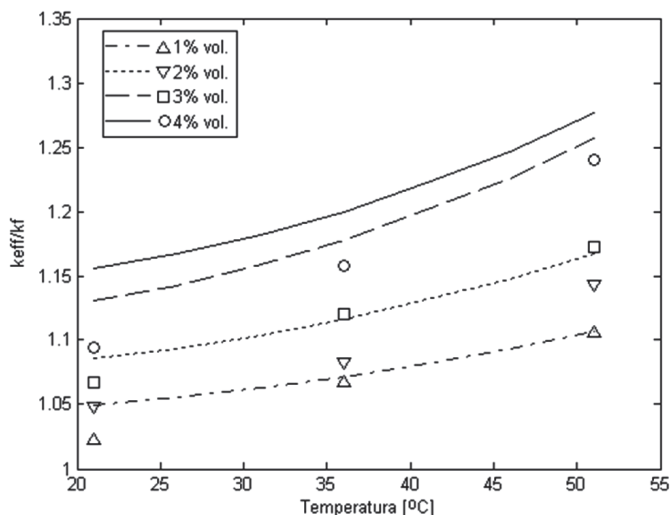
Wynika z niego wyraźnie, że pewne wzory są znacznie częściej cytowane, choć nie może to być wskazówką, że są lepsze od innych. Ważną sprawą jest również czas publikacji, gdyż wzory niedawno opublikowane nie mogą mieć jeszcze dużej liczby cytowań. Kierując się tymi przesłankami do porównania wybrano modele *Prashera*, *Janga* i *Choi* oraz *Velagapudi*. Dwa pierwsze mają największą liczbę cytowań, a ostatni z nich jest najnowszym z uwzględnionych w zestawieniu.

Przykładowym nanopłynem były nanocząstki  $Al_2O_3$  w wodzie przy stosowaniu różnych temperatur. Gęstość oraz współczynnik przewodnictwa cieplnego tlenku glinu nie zmienia się znacznie w badanym zakresie temperatur, dlatego przyjęto stałe wartości odpowiednio: 3970  $kg/m^3$  oraz 27  $W/mK$  [19]. Gęstość oraz współczynnik przewodnictwa cieplnego wody przyjmowano w zależności od temperatury.

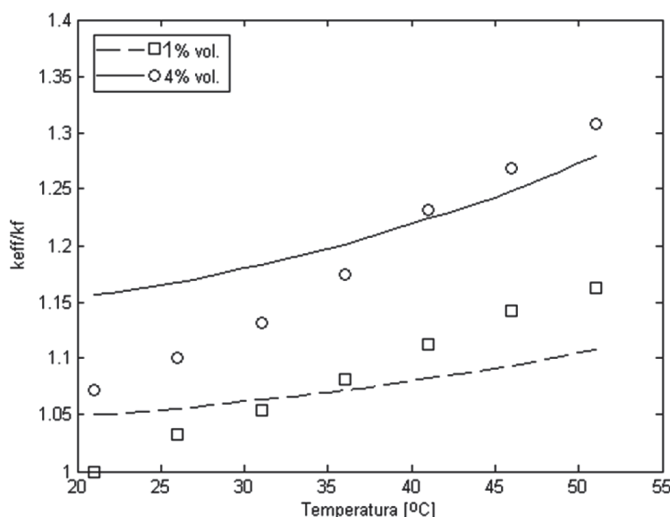
Dla modelu *Prashera* ustalono następujące wartości stałe:  $A$  równe  $4 \cdot 10^4$  oraz  $m$  równe: 2,3 dla  $\phi > 0,5\%$ ; 2,4 dla  $\phi > 1,5\%$ ; 2,5 dla  $\phi > 3,5\%$ ; 2,6 dla  $\phi > 5\%$ ; 2,7 dla  $\phi < 8\%$  oraz 2,8 dla  $\phi > 8\%$ . Dla modelu *Jang* i *Choi* wartości stałe to:  $\beta = 0,01$ ,  $C_1 = 18 \cdot 10^6$ ,  $d_f = 0,383$  nm oraz  $\ell_f = 0,738$  nm. Wyniki z badanych modeli porównywano z wynikami modelu *Hamiltona-Crossera*.

Na rys. 2 pokazano przewidywania modelu *Prashera* w porównaniu z danymi w pracy [13]. Najlepsze wyniki osiągnięto dla niskich koncentracji zawartości nanocząstek. Dla wyższych koncentracji wyniki są zawyżone, przy czym wydaje się, że pochylenie krzywych eksperymentalnych jest większe. W przypadku danych z pracy [20] przedstawionych na rys. 3 błędne określenie pochylenia krzywych eksperymentalnych jest jeszcze lepiej widoczne. W przypadku danych z pracy [21] przedstawionych na rys. 4 już nie tylko pochylenie krzywych, ale również wartości względnego przyrostu współczynnika przewodnictwa cieplnego są zupełnie źle określone.

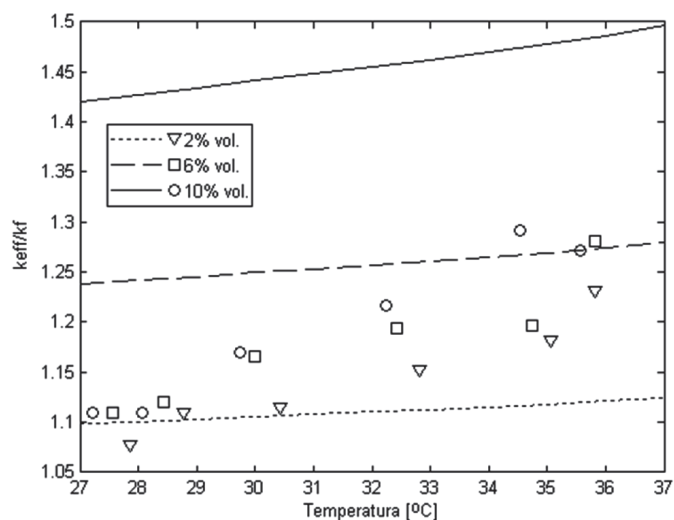
Wyniki porównania przewidywań modeli *Velagapudi* oraz *Janga* i *Choi* przedstawione w pracy [22] obrazują również zmienną jakość przewidywania wartości względnego przyrostu efektywnego współczynnika przewodnictwa cieplnego. Przewidywania modelu *Velagapudi* są generalnie niższe od rzeczywistych wyników otrzymanych na



Rys. 2. Przewidywania modelu *Prashera* (linie) w porównaniu z danymi eksperymentalnymi (punkty) *Dasa* i wsp. [13] dla czterech różnych stężeń objętościowych cząstek  $\text{Al}_2\text{O}_3$  w wodzie



Rys. 3. Przewidywania *Prashera* (linie) w porównaniu z danymi eksperymentalnymi (punkty) *Palma* i wsp. [20] dla dwóch różnych stężeń objętościowych cząstek  $\text{Al}_2\text{O}_3$  w wodzie

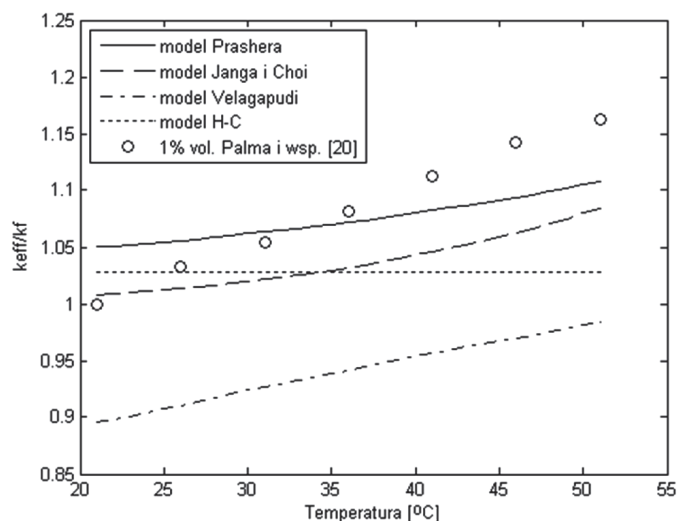


Rys. 4. Przewidywania *Prashera* (linie) w porównaniu z danymi eksperymentalnymi (punkty) *Li i Petersona* [21] dla trzech różnych stężeń objętościowych cząstek  $\text{Al}_2\text{O}_3$  w wodzie

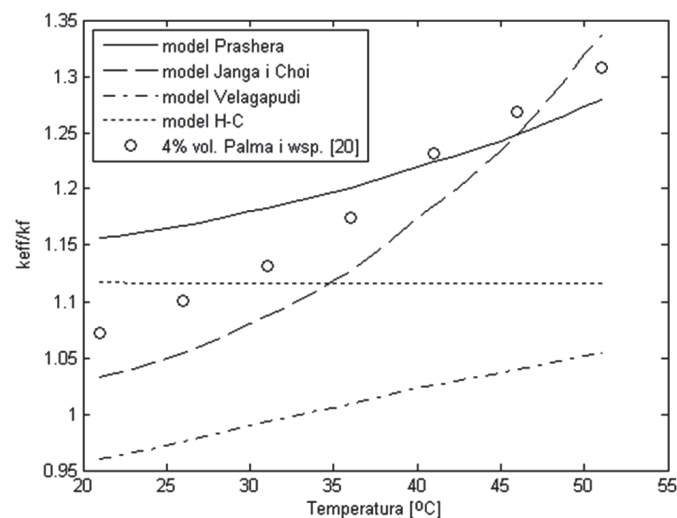
drodże doświadczalnej. Jedynie dla danych *Dasa* i wsp. [13] krzywe tego modelu mają podobne nachylenie do danych eksperymentalnych. Natomiast przewidywania modelu *Janga i Choi* w porównaniu z danymi z pracy [13] zaniżają wartości względnego przyrostu efektywnego współczynnika przewodnictwa cieplnego dla niskich badanych temperatur, a zawyżają dla temperatur wysokich. W przypadku danych pracy [20] przewidywania modelu *Prashera* nie są dokładne, dodatkowo nachylenie krzywych modelu jest inne niż nachylenie krzywych eksperymentalnych. Porównanie wyników tego modelu z danymi eksperymentalnymi *Li i Petersona* [21] daje dość dobre wyniki, zwłaszcza dla wyższych stężeń  $\text{Al}_2\text{O}_3$  w wodzie.

Na rys. 5 i 6 przedstawiono porównanie wyników eksperymentalnych *Palma* i wsp. [20] dla dwóch różnych stężeń objętościowych  $\text{Al}_2\text{O}_3$  w wodzie z przewidywaniami badanych modeli oraz modelu *Hamiltona-Crossera* (H-C).

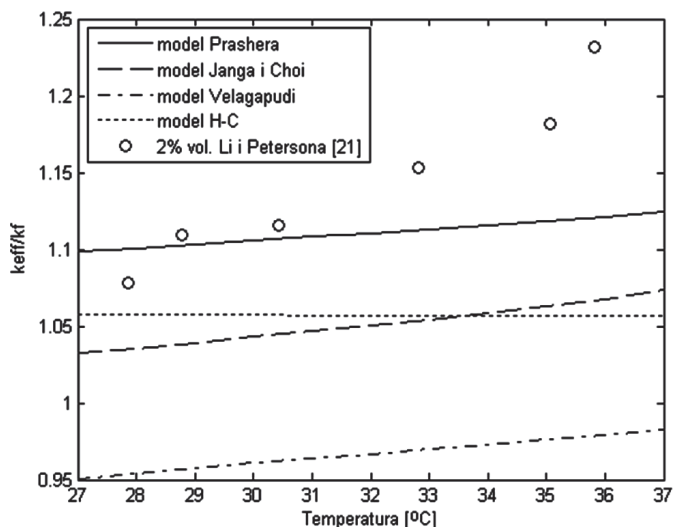
Przewidywania modeli *Prashera* oraz *Janga i Choi* częściowo zgadzają się z danymi eksperymentalnymi, jednak nachylenie krzywych wg modeli jest inne niż nachylenie krzywych eksperymentalnych. Natomiast przewidywania modelu *Velagapudi* w obu przypadkach dają zaniżone wartości względnego przyrostu efektywnego współczynnika przewodnictwa cieplnego. Jednak w przeciwieństwie do przewidywań



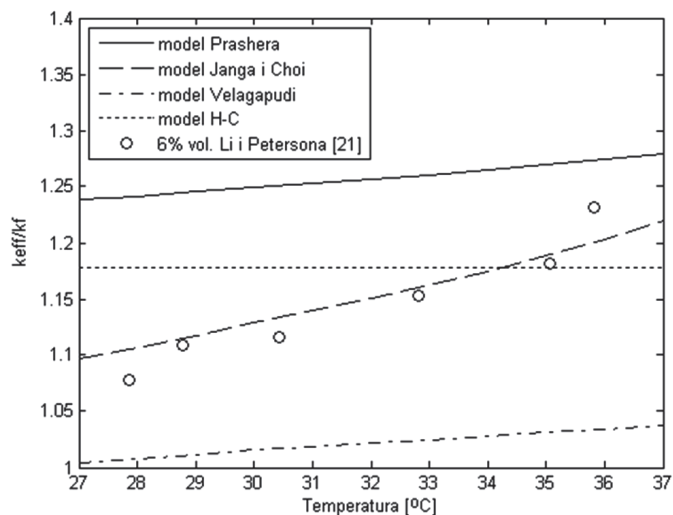
Rys. 5. Porównanie przewidywań badanych modeli z danymi eksperymentalnymi [20] dla 1% stężenia objętościowego  $\text{Al}_2\text{O}_3$  w wodzie



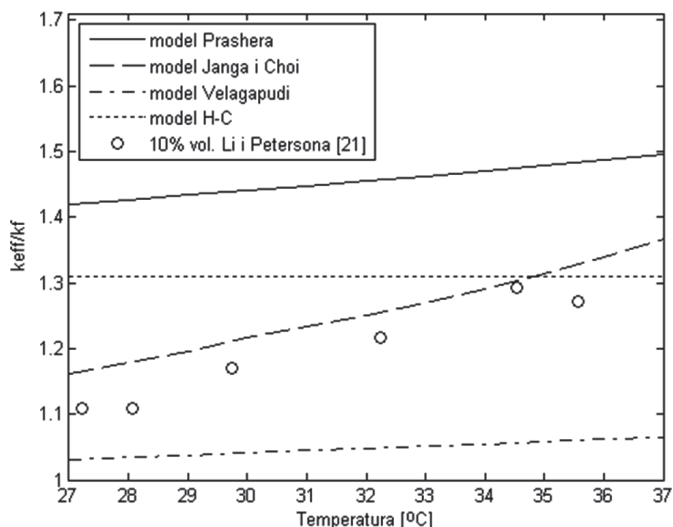
Rys. 6. Porównanie przewidywań badanych modeli z danymi eksperymentalnymi [20] dla 4% stężenia objętościowego  $\text{Al}_2\text{O}_3$  w wodzie



Rys. 7. Porównanie przewidywań badanych modeli z danymi eksperymentalnymi [21] dla 2% stężenia objętościowego  $Al_2O_3$  w wodzie



Rys. 8. Porównanie przewidywań badanych modeli z danymi eksperymentalnymi [21] dla 6% stężenia objętościowego  $Al_2O_3$  w wodzie



Rys. 9. Porównanie przewidywań badanych modeli z danymi eksperymentalnymi [21] dla 10% stężenia objętościowego  $Al_2O_3$  w wodzie

modelu *Hamiltona-Crossera*, krzywe modelu *Velagapudi* mają zbliżone nachylenie do krzywych eksperymentalnych. Przewidywania modelu *Hamiltona-Crossera* nie uwzględniają wpływu temperatury na zmianę względnego przyrostu efektywnego współczynnika przewodnictwa cieplnego nanopłynów.

Na rys 7–9 przedstawiono porównanie przewidywań badanych modeli oraz modelu *Hamiltona-Crossera* z danymi z pracy [21] dla trzech różnych stężeń objętościowych  $Al_2O_3$  w wodzie. We wszystkich przypadkach najlepsze rezultaty daje model *Janga i Choi*. Jednak dla 2% stężenia  $Al_2O_3$  w wodzie żaden z modeli nie uwzględnia w odpowiedni sposób wpływu temperatury na zmianę względnego przyrostu efektywnego współczynnika przewodnictwa cieplnego, co jest widoczne na rys. 7. Natomiast dla pozostałych stężeń model *Janga i Choi* daje dobre wyniki, a nachylenie krzywych modelu jest zgodne z nachyleniem krzywych eksperymentalnych.

## Podsumowanie

Przedstawione porównania wskazują wyraźnie, że w chwili obecnej nie ma wzorów ogólnych określających efektywny współczynnik przewodnictwa cieplnego nanopłynów. Teoria *Maxwella* i oparte o nią klasyczne równanie *Hamiltona-Crossera* może prowadzić do zaniżania wartości, natomiast stosowanie wzorów nowej generacji może albo zawiążyć albo zaniżyć wartości, dlatego do ich stosowania należy podchodzić ostrożnie.

Przedstawione porównania sugerują, że do pełnego opisu nanopłynów potrzebna jest większa liczba parametrów, które nie zawsze są podawane przez autorów prac eksperymentalnych. Na przykład przy nanopłynach, w których cieczą bazową jest woda, istotnym parametrem jest *pH*. Parametru tego wiele publikacji nie podaje. W efekcie opublikowane wyniki eksperymentalne nie mogą być wykorzystane do formułowania wzorów ogólnych.

W chwili obecnej ze wszystkich opublikowanych wzorów najbardziej ogólnym wydaje się wzór *Janga i Choi*, choć jak widać na wykresach nie można stosować go bezkrytycznie.

## LITERATURA

- [1] H. Masuda, A. Ebata, K. Teramae, N. Hishinuma: Jpn. J. Thermophys. Prop., 7, 227 (1993).
- [2] U. S. Choi: ASME FED 231, 99 (1995).
- [3] R. L. Hamilton, O. K. Crosser: IEC Fundam., 1, 182 (1962).
- [4] F. J. Wasp: Solid – Liquid Flow Slurry Pipeline Transportation, Trans. Tech. Pub., Berlin, 1977
- [5] D-H. Yoo, K. S. Hong, H-S. Yang: Therm. Acta, **455**, 66 (2007).
- [6] P. Bhattacharaya, S. K. Saha, A. Yadar, P. E. Phelan, R. S. Prasher: J. Appl. Phys., **95**, 6492 (2004).
- [7] Y. Xuan, Q. Li: Int. J. Heat Fluid Flow, **21**, 58 (2000).
- [8] S. Lee, S.U.S. Choi, S. Li, J.A. Eastman: ASME J. Heat Transfer, **121**, 280 (1999).
- [9] J. C. Maxwell, A Treatise on Electricity and Magnetism, Clarendon Press, Oxford, UK, 1891.
- [10] S. M. S. Murshed, K. C. Leong, C. Yang: App. Thermal Engineering, **28**, 2109, (2008).
- [11] S. P. Jang, S. U. S. Choi: Appl. Phys. Lett., **84**, 4316 (2004).
- [12] X-Q. Wang, A. S. Mujumdar: Int. J. Therm. Sci., **46**, 1 (2007).
- [13] S. K. Das, N. Putra, P. Thiesen, W. Roetzel: J. Heat Transfer, **125**, 567 (2003).
- [14] R. S. Prasher, P. Bhattacharya, P. E. Phelan: Phys. Rev. Lett., **94**, 025901 (2005).
- [15] H. Xie, M. Fujii, X. Zhang: Int. J. Heat Mass Transfer, **48**, 2926 (2005).
- [16] L. Gao, X. F. Zhou: Appl. Phys. Lett., **348**, 355 (2006).
- [17] S. M. S. Murshed, K. C. Leong, C. Yang: Int. J. Therm. Sci., **47**, 560 (2008).
- [18] V. Velagapudi, R. K. Konijeti, C. S. K. Aduru: Therm. Sci., **12**, 27 (2008).
- [19] S. E. Patel, T. Sundararajan, S. K. Das: Nanopart. Res., **12**, 1015 (2010).
- [20] S. J. Palm, G. Roy, C. T. Nguyen: App. Thermal Engineering, **26**, 2209 (2006).
- [21] C. H. Li, G. P. Peterson: J. Appl. Phys., **99**, 084314 (2006).
- [22] M. Stanek, Praca magisterska, Wydz. Chemiczny, Politechnika Śląska Gliwice 2010..