

Boiling of Subcooled Liquid in a Flat Minichannel with a Graphene Coating

Kochkin D.Yu.¹, Arkhipov V.E.¹, Korepanova E.M.², Zaitsev D.V.¹

¹Kutateladze Institute of Thermophysics Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, Novosibirsk, Russian federation

²Novosibirsk State Technical University, Novosibirsk, Russian Federation

Abstract. Boiling occurs in many energy technologies, including thermal stabilization systems, where heat is removed from the wall due to the latent heat of vaporization of the coolant. Applying coatings to the heat-generating surface is one of the ways to enhance heat transfer during boiling. Carbon nanocoatings, such as graphene, are among the promising coatings for improving heat transfer. The main objective of the study is to determine the effect of graphene coating on heat transfer and the dynamics of vapor bubbles during water boiling in a flat, smooth minichannel. To achieve this goal, a minichannel with a height of 1.15 mm and a width of 10 mm was used. Boiling was implemented on the end of a copper sample with a cross section of $10 \times 10 \text{ mm}^2$, flush pressed into the lower wall of the channel. To determine the effect of the graphene coating on the bubble dynamics and heat transfer during water boiling in a minichannel, graphene was mechanically removed from the surface of copper samples in a number of experiments. The most important result is that the graphene coating provides a greater number of vaporization sites compared to the original copper without graphene, but does not have a significant effect on the heat transfer coefficient and boiling curves. It was also found that the graphene coating is unstable on the copper surface and is almost completely destroyed during boiling for several tens of minutes. The significance of the obtained results lies in determining the stability of the graphene coating, as well as its influence on heat exchange during boiling of water in a minichannel.

Keywords: heat transfer enhancement, boiling, minichannel, graphene, two-phase flow.

DOI: <https://doi.org/10.52254/1857-0070.2025.1-65.05>

UDC: 536.24, 574.46

Fierberea unui lichid subîncălzit într-un minicanal plat acoperit cu grafen

Kochkin D.Yu.¹, Arkhipov V.E.¹, Korepanova E.M.², Zaitsev D.V.¹

¹Institutul de Termofizică Kutateladze Filiala siberiană a Academiei Ruse de Științe, Novosibirsk, Federația Rusă

²Universitatea Tehnică de Stat din Novosibirsk, Novosibirsk, Federația Rusă

Rezumat. Fierberea are loc în multe tehnologii energetice, inclusiv în sistemele de stabilizare termică, unde căldura este eliminată din perete datorită căldurii latente de vaporizare a agentului de răcire. Aplicarea de acoperiri pe suprafața generatoare de căldură este una dintre modalitățile de îmbunătățire a transferului de căldură în timpul fierberii. Nanostraturile de carbon, cum ar fi grafenul, se numără printre straturile promițătoare pentru îmbunătățirea transferului de căldură. Obiectivul principal al studiului este de a determina efectul acoperirii cu grafen asupra transferului de căldură și a dinamicii bulelor de vapori în timpul fierberii apei într-un minicanal neted plat. Pentru a atinge acest obiectiv, a fost utilizat un minicanal cu o înălțime de 1,15 mm și o lățime de 10 mm. Fierberea a fost implementată pe capătul unei probe de cupru cu o secțiune transversală de $10 \times 10 \text{ mm}^2$, presată la nivel în peretele inferior al canalului. Grafenul a fost sintetizat direct pe proba de cupru prin depunere chimică de vapori (CCVD). Cel mai important rezultat este că stratul de grafen oferă un număr mai mare de locuri de vaporizare în comparație cu cuprul original fără grafen, dar nu are un efect semnificativ asupra coeficientului de transfer termic și a curbelor de fierbere. De asemenea, s-a constatat că stratul de grafen este instabil pe suprafața cuprului și este distrus aproape complet în timpul fierberii timp de câteva zeci de minute. Semnificația rezultatelor obținute constă în determinarea stabilității învelișului cu grafen, precum și a efectului acestuia asupra transferului de căldură în timpul fierberii apei într-un minicanal.

Cuvinte-cheie: intensificarea transferului de căldură, fierbere, minicanal, grafen, flux în două faze.

Кипение недогретой жидкости в плоском миниканале с графеновым покрытием**Кочкин Д.Ю.¹, Архипов В.Е.¹, Корепанова Е.М.², Зайцев Д.В.¹**¹Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе Сибирского отделения Российской академии наук, Новосибирск, Российская Федерация²Новосибирский государственный технический университет, Новосибирск, Российская Федерация

Аннотация. Кипение встречается во многих энергетических технологиях, в том числе в системах термостабилизации, где тепло отводится от стенки за счет скрытой теплоты парообразования теплоносителя. Нанесение покрытий на тепловыделяющую поверхность является одним из способов интенсификации теплообмена при кипении. Углеродные нанопокрытия, такие как графен являются одними из перспективных покрытий для улучшения теплопередачи. Основной целью исследования является определение влияния графенового покрытия на теплообмен и динамику паровых пузырей при кипении воды в плоском гладком миниканале. Для достижения поставленной цели использовался миниканал высотой 1,15 мм и шириной 10 мм. Кипение реализовывалось на торце медного образца с сечением $10 \times 10 \text{ мм}^2$, заподлицо впрессованного в нижнюю стенку канала. Синтез графена осуществлялся непосредственно на медном образце методом химического осаждения из газовой фазы (CCVD). Спектральный анализ образца показал, что покрытие соответствует многослойному графену (8-10 слоев). Для определения влияния графенового покрытия на динамику пузырей и теплообмен при кипении воды в миниканале в ряде экспериментов графен был механически удален с поверхности медных образцов. Наиболее важным результатом является то, что графеновое покрытие обеспечивает большее количество центров парообразования, по сравнению с исходной медью без графена, однако не оказывает существенного влияния на коэффициент теплоотдачи и кривые кипения. Также было обнаружено, что графеновое покрытие нестабильно на поверхности меди и практически полностью разрушается при кипении в течение нескольких десятков минут. Значимость полученных результатов состоит в определении устойчивости графенового покрытия, а также его влияния на теплообмен при кипении воды в миниканале.

Ключевые слова: интенсификация теплообмена, кипение, миниканал, графен, двухфазный поток.

ВВЕДЕНИЕ

Кипение жидкости происходит во многих технологических процессах, в том числе в системах термостабилизации, где тепло отводится за счет скрытой теплоты парообразования. Различают иммерсионные и каналные [1,2] двухфазные системы охлаждения. Одним из способов интенсификации теплообмена при кипении является модификация тепловыделяющей поверхности, в том числе с использованием различных нанопокрытий. Для интенсификации теплообмена при кипении в большом объеме используют наномодифицированные гидрофильные и гидрофобные медные поверхности [3,4]. В работе [5] представлены результаты исследования влияния гидрофобного фторполимерного покрытия на многомасштабные характеристики теплообмена при кипении воды в большом объеме. Одним из перспективных методов модификации поверхности кипения для систем терморегулирования являются покрытия на основе графена. Плотность пузырьков на поверхности графенового покрытия более чем в 2 раза превышает плотность пузырьков на непокрытой медной поверхности, что приводит к увеличению

коэффициента теплоотдачи при кипении в большом объеме до 200% [6]. В работе [7] представлены результаты исследования теплопередачи и критического теплового потока CHF при кипении в большом объеме диэлектрической жидкости FC-72 на теплогенерирующей поверхности из оксида индия-олова (ИО) с нанесенными на нее покрытиями, в том числе графеновыми. Для поверхностей нагрева с пористыми графеновыми слоями значения CHF были увеличены на 90%. Теплопередача при течении кипения недогретой жидкости в миниканале на графен-функционализированных нанокompозитных покрытиях с контролируемой смачиваемостью путем термического отверждения графеновых нанопластинок и эпоксидных добавок изучалась в [8]. В [9] исследовался теплообмен при кипении в большом объеме на покрытых графеном спеченных пористых поверхностях. Максимальное улучшение с графеновым покрытием составило 24% по сравнению с пористой медной поверхностью без графена. В работе [10] исследовалось проточное кипение в миниканале с графеновым покрытием спеченной пористой медной поверхностью при давлении ниже

атмосферного. Другим подходом к модификации поверхности кипения с использованием графена является выращивание углеродных нанотрубок на покрытых графеном медных подложках [11]. В представленной работе экспериментально исследован процесс кипения воды в миниканале с нагревателем, покрытым графеном, синтезированным непосредственно на поверхности нагревателя.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОБОРУДОВАНИЕ И МЕТОДЫ

Исследования проводились на экспериментальном стенде (рис. 1), который состоит из рабочего участка (рис. 2), системы подачи жидкости, источника постоянного тока, системы высокоскоростной визуализации и системы сбора данных по температуре и тепловым потокам. Рабочий участок в свою очередь представляет собой плоский миниканал, нижней стенкой которого является фторполимерная пластина с выфрезерованной полостью канала глубиной 1,1 мм и шириной 10 мм, а также с отверстиями для подвода жидкости и отвода парожидкостной смеси. Верхней стенкой канала является прозрачное стекло, прижимаемое к фторопластовой пластине при помощи струбцин. Кипение реализуется на торце медного образца (нагревателя) с сечением 10×10 мм², впрессованного во фторопластовую пластину заподлицо с нижней стенкой канала. Тепло к медному образцу подводится от прикрепленного к нему стык в стык медного цилиндра, внутри которого находятся два патронных электронагревателя, запитываемых от источника постоянного тока.

Тепловой поток через медный образец, а также температура охлаждаемого торца определяются по показаниям встроенных в образец термопар.

Для уменьшения потерь тепла медный цилиндр обернут теплоизоляцией. Подача жидкости в канал осуществляется при помощи шприцевого насоса, оснащенного системой заправки шприцов.

Температура рабочей жидкости на входе в миниканал контролируется путем прокачки жидкости через пластинчатый

теплообменник, соединенный с жидкостным термостатом. В качестве рабочей жидкости используется дистиллированная вода, полученная при помощи аппарата Milli-Q. Для дегазации рабочую жидкость перед экспериментом кипятили в большом объеме более пяти часов. Высота канала измерялась при помощи конфокальной системы MicroEpsilon (с контроллером IFC2451 и хроматическим конфокальным датчиком IFS2405-3 [12-14]) в более чем 20 точках. Средняя высота канала над нагревателем составляла 1,15 мм с отклонениями не более 40 мкм. Визуализация кипения осуществлялась через верхнюю стенку канала при помощи скоростной камеры Phantom VEO и микроскопных объективов Mitutoyo с пятикратным, десятикратным и пятидесятикратным увеличением.

Миниатюрные сменные образцы (рис. 3), на торцах которых исследовалось кипение, позволяли наносить на них графен «in situ», а также характеризовать их различными методами В качестве материала образца использовалась медь марки М0.

Синтез графена осуществлялся в CCVD реакторе, представляющем собой кварцевую трубку, соединенную с одной стороны с каналом подачи газовой смеси, а с другой стороны с насосом для откачки газов.

Нагрев осуществляется с помощью подвижной трубчатой печи, установленной вокруг кварцевой трубки.

Ширина зоны нагрева рассчитывалась исходя из диаметра реакционной камеры (15 мм) и ширины реакционной зоны (15 мм) таким образом, чтобы поддерживать требуемую температуру подложки с градиентом не более 10°C. Графен наносился на медные подложки по следующей методике.

Сначала поверхность медных подложек механически полировалась. Для удаления загрязнений подложки очищались в ультразвуковой ванне. Для снижения шероховатости поверхности подложки также подвергались химической полировке, после чего многократно промывались большим объемом дистиллированной воды.

После полировки подложки отжигали в атмосфере водорода для удаления оксидного слоя с поверхности и увеличения размера зерна металла.

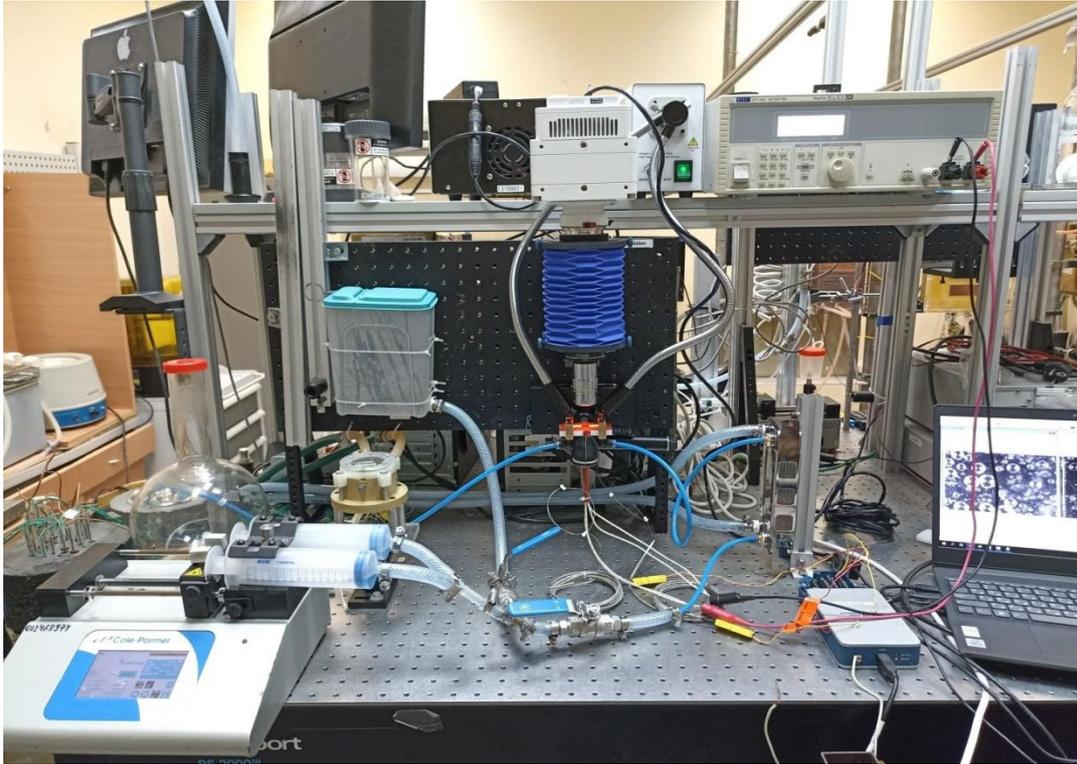


Рис. 1. Экспериментальный стенд для исследования кипения жидкости в миниканале с графеновым покрытием.

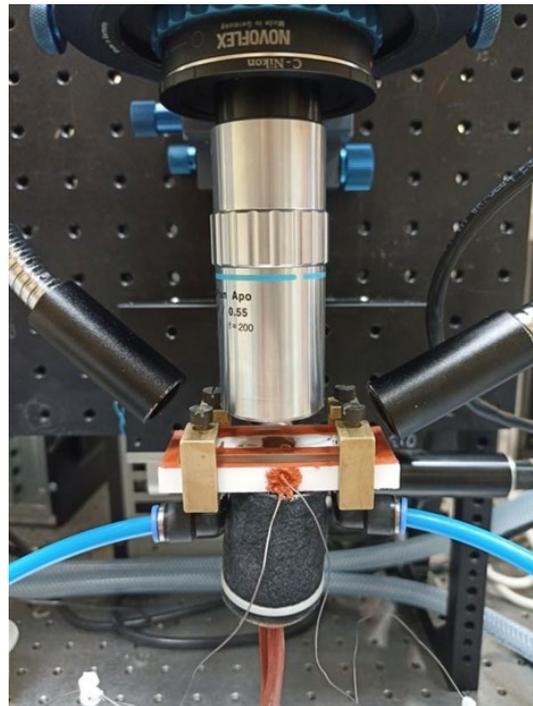


Рис. 2. Рабочий участок для исследования кипения жидкости в миниканале с графеновым покрытием.

Для этого подложку помещали в реактор, вакуумировали реакционную камеру до остаточного давления $\sim 10^{-3}$ Па, затем камеру заполняли водородом до 2×10^3 Па, включали печь и нагревали реакционную зону реактора

до температуры 1050°C . Через 25 минут нагрев выключали, реактор охлаждали до комнатной температуры и снова вакуумировали реакционную камеру до $\sim 10^{-3}$ Па. Для синтеза графена подложку нагревали

до 1050°C в атмосфере, состоящей из 2 кПа водорода и 0,6 кПа метана, в течение 30 минут, после чего быстро охлаждали, отодвигая печь от реакционной зоны. После охлаждения до комнатной температуры образец извлекали из реактора. Структуру полученных образцов характеризовали методами рамановской спектроскопии на спектрометре Spex 1877 с возбуждением аргоновым лазером ($\lambda=514$ нм).

Спектральный анализ образца показал, что покрытие соответствует многослойному (8-10 слоев) графену [15].

Для определения влияния графенового покрытия на динамику пузырей и теплообмен в одинаковых условиях в ряде экспериментов графен был удален с поверхности медных образцов при помощи ластика.



Рис. 3. Медные образцы, на торцах которых осуществляется кипение жидкости в микканале. Полированный образец (до отжига) перед синтезом графена (слева); образцы, покрытые графеном (справа).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В ходе исследований было экспериментально установлено, что графеновое покрытие нагревателя (медного образца) способствует более интенсивному

пузырьковому кипению (рис. 4), по сравнению с нагревателем, с которого графен был удален (рис. 5), что выражается заметно большим количеством пузырьков пара на образце, покрытом графеном.

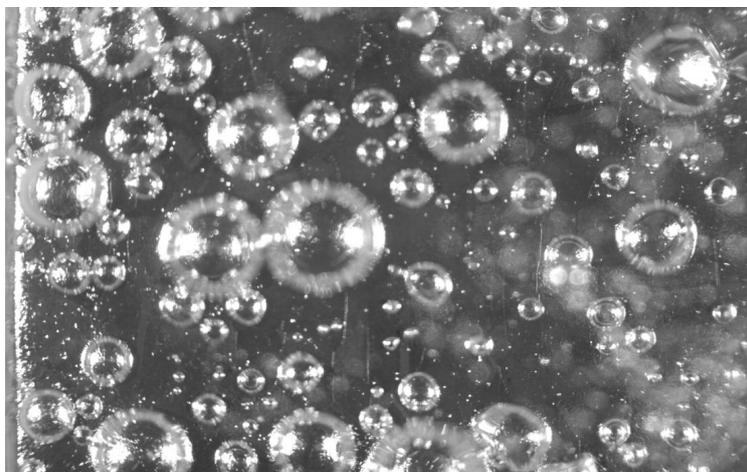


Рис. 4. Кипение воды в микканале на медном нагревателе, покрытом графеном, расход воды 10 мл/мин, температура нагревателя 112,5°C, тепловой поток 38,5 Вт/см², поле зрения 7,6×5 мм².

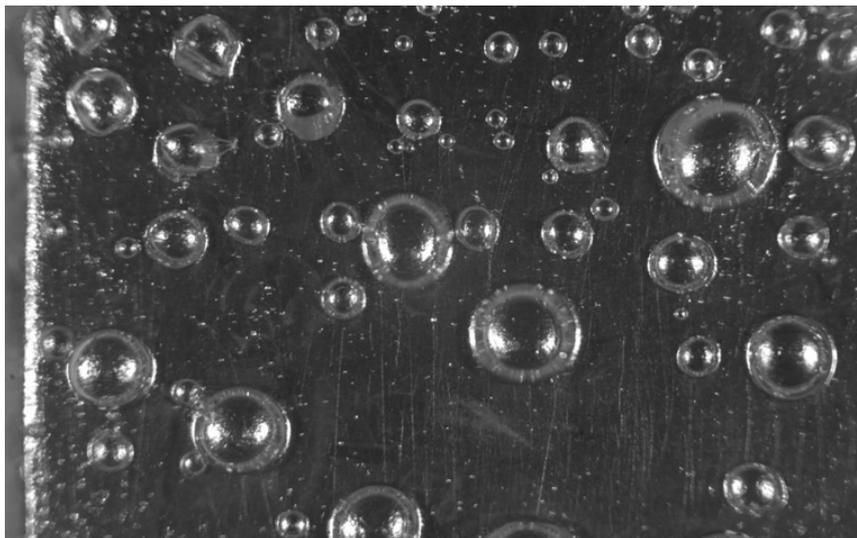


Рис. 5. Кипение воды в микканале на медном нагревателе с удаленным графеном, расход воды 10 мл/мин, температура нагревателя 111,5°С, тепловой поток 38,4 Вт/см², поле зрения 7,6×5 мм².

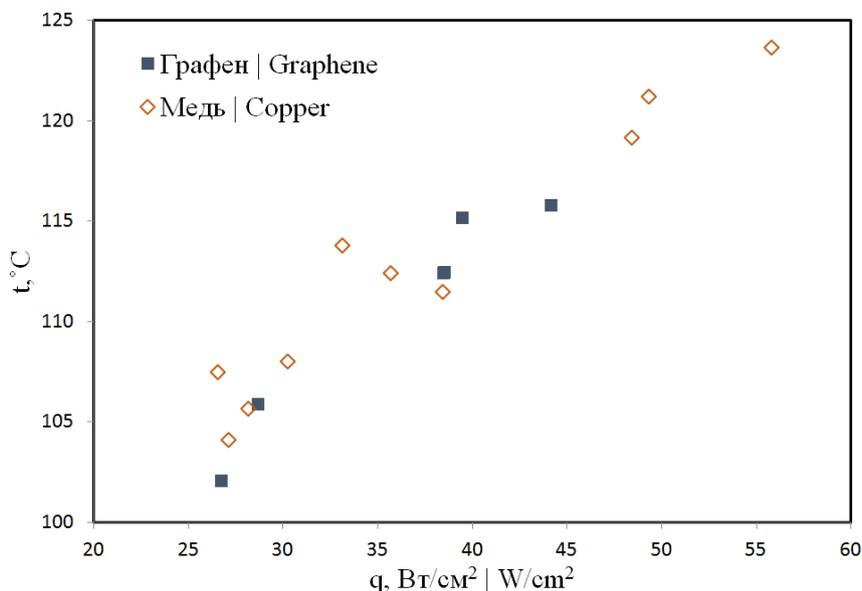


Рис. 6. Кривая кипения воды в микканале при расходе жидкости 10 мл/мин.

Как на медных образцах с графеном, так и на образцах без графена зарождение пузырьков может происходить либо из центра парообразования непосредственно на подложке, либо из-за микропузырьков газа (размером 10-30 мкм) в потоке жидкости, которые касаясь нагревателя, резко увеличиваются в размерах и, по сути, являются блуждающими центрами парообразования. Рост паровых пузырьков сменяется их схлопыванием за счет конденсации, при этом пузырьки осциллируют (периодически растут и схлопываются) с частотой около 10 кГц. Помимо газовых микропузырьков и паровых

пузырей в канале наблюдаются большие пузыри, по всей видимости, состоящие из растворенного в воде газа, которые не конденсируются, а растут и периодически покидают зону нагрева, что может вызывать пульсации температуры нагревателя.

Совместно с экспериментами по визуализации проведены эксперименты по теплообмену в микканале с нагревателем с графеновым покрытием. Также было проведено сравнение полученных результатов с данными на нагревателе, с которого графен был механически удален. На рисунках 6 и 7 представлены кривые кипения на медных образцах с графеном и без него. Несмотря на

то, что на медном образце с графеном наблюдается большее количество пузырей, существенного влияния графенового покрытия на кривые кипения и коэффициент теплоотдачи замечено не было. Также было обнаружено, что графеновое покрытие нестабильно на поверхности меди и практически полностью разрушается при

кипении в течение нескольких десятков минут. При этом конструкция рабочего участка исключает повреждение графена механическими и термическими воздействиями во время установки медных образцов в рабочий участок, что говорит о повреждении графенового покрытия именно вследствие кипения.

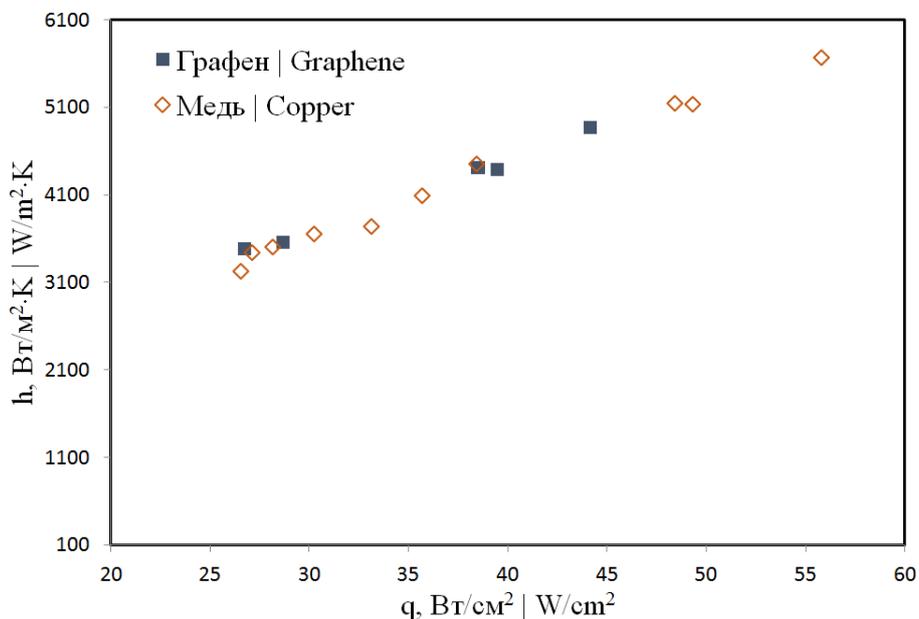


Рис. 7. Кривая кипения воды в микканале при расходе жидкости 10 мл/мин.

Таким образом, в эксперименте интенсификация теплообмена за счет использования графенового покрытия не была замечена, что, по всей видимости, объясняется наличием достаточного количества центров парообразования на исходном медном образце без графена. Возможно, на более гладкой поверхности, например, на кремнии, где может быть недостаточно центров парообразования, увеличение центров парообразования за счет нанесения на тепловыделяющую поверхность графена приведет к более существенному эффекту. Однако вопрос устойчивости покрытия из графена остается ключевым.

Исследование поддержано грантом Российского научного фонда № 22-49-08018. <https://rscf.ru/project/22-49-08018/>. Оптическая система скоростной визуализации подготовлена в рамках государственного задания ИТ СО РАН № 121031800213-0.

Литература (References)

[1] Xiao L., Zhuang Y., Wu X., Yang J., Lu Y., Liu

Y., Han X. A Review of Pool-Boiling Processes Based on Bubble-Dynamics Parameters. *Appl. Sci.*, 2023, vol. 13, no. 21, art. 12026.
 [2] Khaziev I.A., Filippov M.D., Tupotilova A.V., Lyulin Yu.V., Dedov A.V.. Pressure effect on pool boiling heat transfer characteristics of high-volatile liquids with structured surface. *Interfacial Phenomena and Heat Transfer*, 2024, vol. 12, no. 2, pp. 63–76.
 [3] Ronshin F.V., Dementiev Y.A., Chinnov E.A. Investigation of dielectric liquid FC-72 boiling in a slit microchannel. *Thermophys. Aeromech.*, 2022, vol. 29, pp. 975–980.
 [4] Wei J., Zhang Y., Zhao J., Guo D.. Enhanced heat transfer of flow boiling combined with jet impingement. *Interfacial Phenomena and Heat Transfer*, 2013, vol. 1, no. 1, pp. 13–28.
 [5] Khmel S., Baranov E., Vladimirov V., Safonov A., Chinnov E. Experimental study of pool boiling on heaters with nanomodified surfaces under saturation. *Heat Transf. Eng.*, 2022, vol. 43, no. 20, pp. 1724–1742.
 [6] Chinnov E.A., Khmel S.Y., Vladimirov V.Y., Safonov A.I., Semionov V.V., Emelyanenko K.A., Emelyanenko A.M., Boinovich L.B. Boiling heat transfer enhancement on biphilic surfaces. *Energies*, 2022, vol. 15, no. 7296, pp.1-9.

- [7] Surtaev A.S., Serdyukov V.S., Safonov A.I., Enhancement of boiling heat transfer on hydrophobic fluoropolymer coatings. *Interfacial Phenom. Heat Transf.*, 2018, vol. 6, pp. 269-276.
- [8] Mudhafar M.A.H., Jhang B.W., Sin Y.Y. Experimental comparison of pool boiling performance between Cu-plain surface and Functionalized Graphene layers. *Int. J. Refrig.*, 2022, vol. 139, pp.1-12.
- [9] Seo H., Chu J.H., Kwon S.Y., Bang I.C. Pool boiling CHF of reduced graphene oxide, graphene, and SiC-coated surfaces under highly wettable FC-72. *Int. J. Heat Mass Transf.*, 2015, vol. 82, pp. 490-502.
- [10] Sia G.Di, Tan M.K., Chen G.M., Hung Y.M. Performance enhancement of subcooled flow boiling on graphene nanostructured surfaces with tunable wettability. *Case Stud. Therm. Eng.*, 2021, vol. 27, no. 101283.
- [11] Ahmadi V.E., Khaksaran M.H., Apak A.M., Apak A., Parlak M., Tastan U., Kaya I.I., Sadaghiani A.K., Koşar A. Graphene-coated sintered porous copper surfaces for boiling heat transfer enhancement. *Carbon Trends*, 2022, vol. 8, no. 100171.
- [12] Ahmadi V.E., Guler T., Amin S., Apak A.M., Apak A., Parlak M., Tastan U., Kaya I.I., Sadaghiani A., Koşar A. Effect of graphene coating on flow boiling in a minichannel at sub-atmospheric pressures. *Int. J. Heat Mass Transf.*, 2024, vol. 229, no. 125762.
- [13] Udaya Kumar G., Soni K., Suresh S., Ghosh K., Thansekhar M.R., Dinesh Babu P. Modified surfaces using seamless graphene/carbon nanotubes based nanostructures for enhancing pool boiling heat transfer. *Exp. Therm. Fluid Sci.*, 2018, vol. 96, pp. 493-506.
- [14] Gupta A., Chen G., Joshi P., Tadigadapa S., Eklund P.C. Raman Scattering from High-Frequency Phonons in Supported n-Graphene Layer Films. *Nano Lett.*, 2006, vol. 6, pp. 2667-2673.
- [15] Smovzh D.V., Sakhapov S.Z., Andryushchenko V.A., Sorokin D.V., Betke I.A., Komlina S.V., Starinskiy S.V., Maximovskiy E.A. Stability of Graphene Films on Copper, Silicon, and Glass Substrates in Contact with Boiling Water, *Interfacial Phenomena and Heat Transfer*, 2023, vol. 11, no. 2, pp. 1-10.

Сведения об авторах.



Кочкин Дмитрий Юрьевич,
к.ф.-м.н., младший научный
сотрудник ИТ СО РАН.
Область научных интересов:
теплофизика двухфазных мини-
и микросистем.
E-mail:
kochkin1995@mail.ru



**Корепанова Ева
Михайловна**,
студент кафедры ТЭС НГТУ.
Область научных интересов:
теплофизика, энергетические
установки на основе CO2-
циклов.
E-mail:
korepanova.eve@yandex.ru



Зайцев Дмитрий Валерьевич,
к.ф.-м.н., старший научный
сотрудник ИТ СО РАН.
Область научных интересов:
теплофизика двухфазных мини-
и микросистем.
E-mail:
zaitsev@itp.nsc.ru