

基于剩余熵黏度标度理论预测混合制冷工质黏度

康凯¹，谷雅秀¹，王晓坡²

(1. 长安大学建筑工程学院，710061，西安；2. 西安交通大学热流科学与工程教育部重点实验室，710049，西安)

摘要：为了获得不同工况新型环保混合制冷工质黏度基础数据，为工业过程设计、系统优化以及设备研发提供技术支持，利用简化版扰动链统计缔合流体理论，构建包括氢氟烯烃(HFO)、氢氟烃(HFC)、烷烃和 CO₂ 在内的 11 种制冷工质无量纲对比黏度与系统剩余熵的函数关系，系统研究了汽液相平衡性质和可能存在的受分子结构及静电分布影响的高度非理想黏度性质，并结合带有预测性的混合法则将本文提出的纯质模型参数推广至多元复杂体系。结果表明：针对所研究的多元复杂体系，除去部分近临界区含 CO₂ 系统外，模型预测值与文献数据间最大绝对平均偏差小于 5.1%。该模型可以精确预测远临界区不同工况下混合制冷工质的黏度数据，能够有效补充现有实验数据的不足，但对处于近临界区工况的复杂体系，该模型仍需进一步改进。

关键词：黏度模型；剩余熵；混合制冷工质

中图分类号：TK121 **文献标志码：**A

DOI：10.7652/xjtuxb202112021 **文章编号：**0253-987X(2021)12-0180-09



OSID 码

A Viscosity Model of Refrigerant Mixtures Based on Excess Entropy Scaling Method

KANG Kai¹，GU Yaxiu¹，WANG Xiaopo²

(1. School of Civil Engineering, Chang'an University, Xi'an 710061, China;

2. Key Laboratory of Thermo-Fluid Science and Engineering of MOE, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: In order to obtain reliable basic viscosity data of the new environment mixed refrigeration working medium and to provide technical support for industrial process design, system optimization and equipment research and development, the simplified perturbed-chain statistical association fluid theory is used to establish the function relationship between the reduced residual entropy and the dimensionless reduced viscosity of 11 refrigerants, including hydrofluorolefins, hydrofluorocarbons, alkanes and CO₂. The vapor-liquid equilibrium properties and the possible highly non-ideal viscosity properties affected by molecular structure and electrostatic distribution are systematically studied. The parameters of pure compounds are extended to multivariate complex system by combining the predictive mixing rule. The results show that the maximum absolute mean deviation between the predicted viscosities from the model and the experimental data is less than 5.1% for the multivariate complex system, except for some systems containing CO₂ in the near critical point. It is verified that the proposed model is capable of predicting the viscosity of complex refrigerant mixtures far away from the critical region. However, the model still needs to be further improved for the complex system in the near critical

zone.

Keywords: viscosity model; residual entropy; refrigerant mixture

准确描述制冷工质的黏度性质有利于降低制冷系统内部压降从而改善换热效率,对工业过程设计、系统优化以及设备研发有重要意义^[1]。此外,液相系统具有较短的分子平均自由程,导致其中存在很强的分子间相互作用,而探究其黏度性质有助于理解分子间作用中潜藏的客观规律和内在机理^[2]。

McInden 等研究表明,现有单一工质难以兼顾实际生产对替代工质热力学性能的需求与日益严苛的安全及环保法规^[3]。而选取适当的配比能够使混合工质保留各组分的优点,这样既可以缓解使用制冷工质对全球变暖的不利影响,又能保障使用时的安全性,并大幅度降低因循环工质更替而导致的更换系统装置所造成的经济损失。因此,如何构建性能优良的潜在多元混合制冷工质是当前研究的重点问题。随着各种新型环保混合制冷工质的不断提出,其黏度数据是必须首先解决的关键基础问题之一。由于完全依靠实验测试不可能获得任意配比和工况下的混合制冷工质黏度性质,因此通常采用准确可靠的黏度模型进行有效补充。Rosenfeld 提出的剩余熵标度规律能够将流体无量纲黏度和剩余熵间建立明确的函数关系^[1],而扰动链统计缔合流体理论(PC-SAFT)是近年来得到广泛应用的一种模型参数具备明确物理内涵的热力学状态方程^[4]。Novak 于 2011 年将上述两种理论相结合,以 18 种烷烃为研究对象提出了基于 PC-SAFT 链节参数的剩余熵黏度标度理论^[5]。在其研究基础上,Lötgering-Lin 和 Fouad 等人基于基团贡献法极性版 PC-SAFT 状态方程(即 GC-Polar PC-SAFT)改进了对比无量纲黏度与剩余熵间的函数关系,并成功推广到 5 种氢氟烃(HFC)和 2 种氢氟烯烃(HFO)类制冷工质^[6-7],证明了该理论在一定程度上具备准确描述制冷工质系统黏度性质的潜力。

近两年来,基于剩余熵标度方法对混合制冷工质的理论研究已逐渐成为国内外的研究热点。热力学状态方程是剩余熵标度方法中计算系统剩余熵和相平衡性质的理论基础,如何在回归尽量少的模型参数的前提下同时兼顾其计算精度对于黏度模型的工程应用尤为重要。基于此,Liu 等人利用 CPA 状态方程对部分二元 HFC/HFO 混合系统的气、液相黏度性质开展了开拓性研究,引入缩放因子简化了现有剩余熵标度方法工程应用的难度^[7]。Yang 等

人基于 Liu 的研究构想^[8],进一步通过多参数 Helmholtz 能状态方程给出的系统剩余熵提出了一套能够准确描述混合系统的关联函数,并与广义对应态模型进行全面的比对并阐述其优势和不足^[9]。简化版 PC-SAFT(sPC-SAFT)^[9]和 CPA 相较于 Polar PC-SAFT 和多参数 Helmholtz 能状态方程模型参数更少,对于非缔合物质,前两种模型参数均为 3 个,这对于实验数据较为匮乏的物质来说有利于减少参数回归时必需的实验数据量,一定程度上降低了剩余熵标度方法在工程实际中推广和使用的难度。但与 CPA 相比,sPC-SAFT 对于系统基础热力学性质(如液相密度性质)的预测更为准确^[10],可为剩余熵标度方法提供坚实的理论支撑。

基于兼顾模型计算精度和模型参数数量的考量,本文选取 Novak 提出的基于链节参数的剩余熵黏度标度理论,利用计算效率更高的 sPC-SAFT 状态方程,对 11 种制冷工质(包括 HFO、HFC、烷烃和 CO₂)的黏度性质进行了计算,同时结合预测性无量纲对比黏度混合法则,将该理论推广至更多元、更复杂的混合系统。通过与文献实验数据进行比对,验证该理论在三元等更多组分复杂系统内的有效性和实用性,评估其优势和局限性,可为进一步推动新型环保混合工质的工程应用提供理论依据和基础数据。

1 理论模型

1.1 简化版 PC-SAFT 状态方程

基于统计缔合理论的 PC-SAFT 方程是由 Gross 等在扰动理论的基础上,以硬球链为参考系统提出的^[4]。基于剩余 Helmholtz 自由能的 PC-SAFT 状态方程如下

$$a^{\text{res}} = a^{\text{hc}} + a^{\text{disp}} + a^{\text{ass}} \quad (1)$$

式中: a^{hc} 、 a^{disp} 和 a^{ass} 分别是硬链参考项、色散力以及缔合作用(如氢键)的贡献项。对于非缔合流体,PC-SAFT 具有 3 个包含明确物理意义的模型参数,即链节数 m 、各链节的硬球直径 σ 和各链节的能量参数 ε/k_{B} 。PC-SAFT 模型参数通常由纯质饱和蒸汽压及液相密度实验数据回归得到。von Solms 在原始版本 PC-SAFT 的基础上对其混合法则进行优化,从而获得了一种能够保证计算精度同时提高计算效率的数学模型,即 sPC-SAFT。鉴于 sPC-SAFT 仅改进了模型混合法则,因此其与 PC-SAFT

状态方程的纯质模型参数完全一致。

结合公式(1),特定工况下的系统剩余熵可通过系统剩余 Helmholtz 自由能对温度的偏导计算得到,即

$$\frac{S^{\text{res}}(\rho, T)}{R} = \frac{S(\rho, T)}{R} - \frac{S^{\text{id}}(\rho, T)}{R} = -T \left[\frac{\partial a^{\text{res}}}{\partial T} + \frac{a^{\text{res}}}{T} \right] \quad (2)$$

式中: ρ 、 T 、 R 和 $S^{\text{res}}(\rho, T)$ 分别表示密度、温度、理想气体常数和系统剩余熵。

1.2 剩余熵黏度标度理论

在 Rosenfeld 的研究成果中,他系统阐述了简单流体的无量纲对比黏度(η^*)能够通过系统剩余熵估算得到^[1],具体的计算公式如下

$$\ln \eta^* = A_i + B_i \frac{S^{\text{res}}(\rho, T)}{N_A k_B} \quad (3)$$

式中: A_i 和 B_i 是与工质对应的标度参数; N_A 和 k_B 分别表示阿伏伽德罗常数和玻尔兹曼常数。但是该模型在低密度区的黏度预测能力有限,尤其是无法准确描述具有长程极性作用或者短程氢键系统的黏度性质。基于此,Novak 采用 Chapman-Engskog 黏度($\eta_{\text{CE},i}$)得到了更准确的纯质无量纲对比黏度计算公式^[5],即

$$\eta_i^* = \frac{\eta_i}{\eta_{\text{CE},i}} \quad (4)$$

式中

$$\eta_{\text{CE},i} = \frac{5}{16} \frac{\sqrt{M_i k_B T / (N_A \pi)}}{\sigma_i^2 \Omega_i^{(2,2)*}} \quad (5)$$

其中, M_i 是组分 i 的分子量, σ_i 是组分 i 的硬球直径,碰撞积分 $\Omega_i^{(2,2)*}$ 由 Neufeld 提出的经验关联式获得。基于 Novak 和 Lötgering-Lin 等人的研究^[6],纯质工质的无量纲对比黏度与剩余熵的表达式为

$$\ln \eta^* = A_i + \ln \sqrt{1/m_i} + B_i S_i^* + C_i S_i^{*2} + D_i S_i^{*3} \quad (6)$$

式中: m_i 为组分 i 的链节数; C_i 、 D_i 均为无量纲黏度系数;

$$S_i^* = \frac{S^{\text{res}}(\rho, T)}{N_A k_B m_i} \quad (7)$$

对于复杂混合系统,本文在 Fouad 和 Vega 的工作基础上,利用 sPC-SAFT 状态方程,并采用 Lötgering-Lin 所提出的无量纲对比黏度混合法则^[11]以及 Wilke 提出的 Chapman-Engskog 黏度混合法则^[6]进行计算,其无量纲对比黏度所采用的混合法则为

$$\ln(\eta_i^*) = \sum_i^n x_i A_i + \sum_i^n x_i \ln \sqrt{1/m_i} + \sum_i^n \frac{x_i m_i}{\bar{m}} B_i S_i^* + \sum_i^n \frac{x_i m_i}{\bar{m}} C_i S_i^{*2} + \sum_i^n \frac{x_i m_i}{\bar{m}} D_i S_i^{*3} \quad (8)$$

式中: n 和 x_i 分别是混合物组分数量和对应的摩尔分数; $\bar{m}$ 为系统平均链节数。此外,上述混合法则不包含二元作用参数 k_{ij} ,即混合系统的无量纲对比黏度是各组分纯质黏度性质与各自链节数的函数,同时没有引入修正参数(如 k_{ij})对混合系统黏度预测值进行修正,因此在混合系统无量纲对比黏度预测层面具备更强的预测性。

Wilke 提出的 Chapman-Engskog 黏度估算混合法则^[5]如下

$$\eta_{\text{CE,mix}} = \sum_{i=1}^n \frac{x_i \eta_{\text{CE},i}}{\sum_{j=1}^n x_j \phi_{ij}} \quad (9)$$

式中

$$\phi_{ij} = \left[1 + \left(\frac{\eta_{\text{CE},i}}{\eta_{\text{CE},j}} \right)^{1/2} \left(\frac{M_j}{M_i} \right)^{1/4} \right]^2 / \left[8 \left(1 + \frac{M_i}{M_j} \right) \right]^{1/2} \quad (10)$$

2 模型计算结果与讨论

2.1 无量纲对比黏度多项式参数和二元作用参数

本文首先对文献中目标工质的 PC-SAFT 模型参数进行整理搜集,并自行回归得到 R134a、R32、R125 和 R143a 的模型参数,详见表 1,表中 D^0 为本文计算值与文献饱和液相密度的平均绝对偏差。

$$D = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left| \frac{\eta_{i,\text{cal}} - \eta_{i,\text{lit}}}{\eta_{i,\text{lit}}} \right| \times 100\% \quad (11)$$

式中: N 为实验数据个数; $\eta_{i,\text{cal}}$ 、 $\eta_{i,\text{lit}}$ 分别为黏度计算值和文献值。

结合表 1 中的模型参数,利用 PC-SAFT 状态方程导出剩余熵,然后采用 NIST 数据库^[12]给出的纯质饱和液相黏度数据建立对数无量纲对比黏度与剩余熵的关联式,参照式(6)。所得无量纲多项式参数(A 、 B 、 C 、 D)和相应温度范围详见表 2, D^0 为文献黏度值与计算值的平均绝对偏差。

为了验证表 2 中参数的可靠性,系统比对了剩余熵黏度标度理论计算值与文献中目标纯质黏度实验数据。对于本文所研究的纯质系统,剩余熵黏度标度理论在不同工况下的计算结果准确,最大绝对平均偏差小于 4.36%。图 1 中实线为 R1234yf 和 R1234ze(E)黏度计算值,可以看出,计算值与文献黏度实验数据吻合良好。

此外,鉴于研究对象属于复杂多元混合制冷工质体系,其中可能存在受分子结构及静电分布影响的高度非理想黏度性质,为了更好地描述系统不同工况,特别是饱和状态下的剩余熵性质,本文首先系统研究了目标工质的二元汽液相平衡性质及对应的二元作用参数。

表 1 目标工质的 PC-SAFT 模型参数

Table 1 PC-SAFT model parameters of the compounds in study

工质	m	σ/nm	$(E \cdot k_B^{-1})/\text{K}$	数据来源	温度范围/K	$D^e/\%$
R134a	3.248 3	0.301 6	170.60	本文	273~337	0.27 ^[12]
R1234yf	2.857 8	0.336 2	176.86	[12]	260~350	0.12
R152a	2.734 5	0.309 7	191.52	本文	260~350	0.80 ^[12]
R227ea	3.580 5	0.329 4	162.86	本文	250~350	0.15 ^[12]
R1234ze(E)	3.006 7	0.328 4	179.87	[12]	250~330	0.12
R32	2.575 8	0.276 9	180.94	本文	250~330	1.13 ^[12]
R600a	2.261 6	0.375 7	216.53	[12]	113~407	1.47
R290	2.002 0	0.361 8	208.11	[12]	85~523	0.77
CO ₂	2.072 9	0.278 5	169.21	[12]	216~304	2.73
R125	3.133 1	0.311 6	156.01	本文	250~339	0.14 ^[12]
R143a	2.675 5	0.321 7	172.54	本文	250~330	0.88 ^[12]

表 2 目标工质对比黏度标定参数

Table 2 Calibration parameters of the compounds in study

工质	A	B	$C/10^{-3}$	$D/10^{-4}$	温度范围/K	$D^v/\%$
R134a	-5.045 0	-0.403 9	-13.588	-3.860 9	200~360	0.20 ^[12]
R1234yf	-5.075 7	-0.392 8	-11.941	-2.498 0	220~360	0.44 ^[12]
R152a	-4.257 1	-0.179 8	3.226 9	0.769 9	200~360	0.49 ^[12]
R227ea	-5.025 0	-0.405 0	-9.424 3	-1.929 1	200~360	0.25 ^[12]
R1234ze(E)	-5.019 7	-0.357 0	-6.974 4	-1.124 0	200~360	1.29 ^[12]
R32	-5.301 0	-0.400 9	-14.004	-3.124 1	200~350	1.40 ^[12]
R600a	-3.988 1	-0.187 8	0.084 5	-0.109 1	200~360	0.08 ^[12]
R290	-5.025 0	-0.404 7	-15.411	-3.272 7	200~360	1.25 ^[12]
CO ₂	-5.766 4	-0.604 1	-34.613	-10.017 0	220~300	0.50 ^[12]
R125	-5.025 9	-0.424 0	-14.930	-4.125 2	200~330	0.34 ^[12]
R143a	-5.116 9	-0.407 4	-14.628	-3.681 7	200~340	0.52 ^[12]

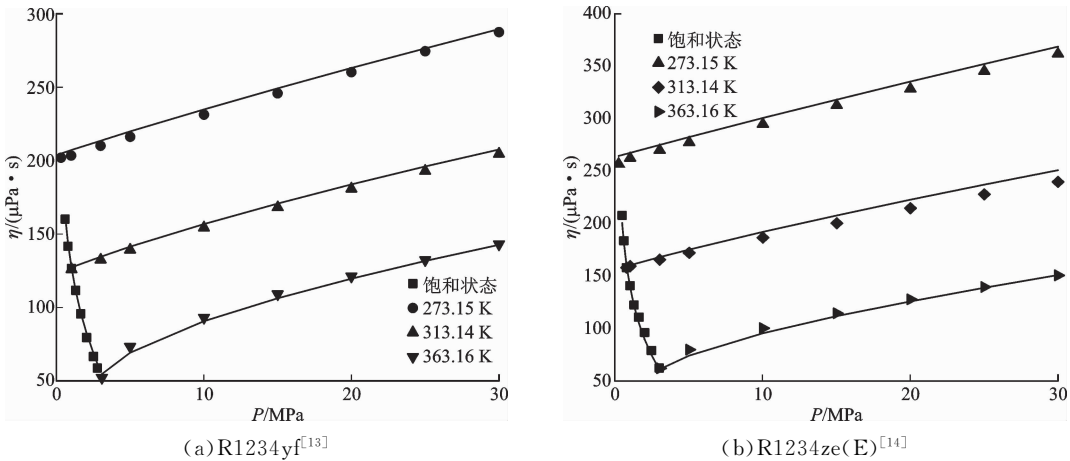


图 1 不同工况下 R1234yf^[13] 和 R1234ze(E)^[14] 黏度实验数据^[13-15] 与本文计算值的对比

Fig. 1 Comparison between literature viscosities^[13-15] and calculated results of R1234yf^[13] and R1234ze(E)^[14]

图 2 给出了 R152a+R600a 和 R32+R134a 的等温汽液相平衡性质比对结果。符号和实线分别表示文献黏度实验数据和本文计算结果。实验数据与本文计算值间的最大绝对平均偏差小于 1.3%。根据结果可以看出,sPC-SAFT 状态方程能够准确预

测包括共沸或近共沸(如 R152a+R600a)以及接近理想溶液性质(如 R32+R134a)的二元体系汽液相平衡性质,为剩余熵黏度标度理论提供了坚实的理论支撑。表 3 给出基于文献数据得到的二元作用参数。

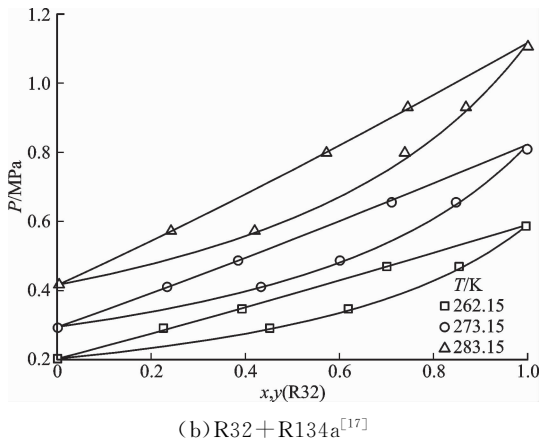
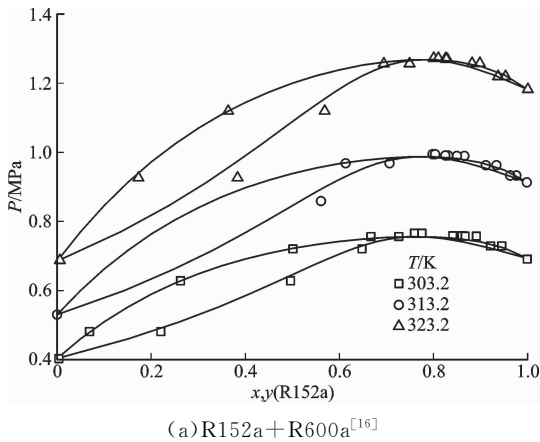


图 2 R152a+R600a^[16]和 R32+R134a^[17]汽液相平衡性质实验数据与本文计算值的比对结果
Fig. 2 Vapor-liquid equilibrium properties of R152a+R600a^[16] and R32+R134a^[17]

表 3 基于汽液相平衡性质的二元作用参数 k_{ij} 回归值
Table 3 Binary interaction parameter k_{ij} regressed from vapor-liquid equilibrium properties

二元制冷工质系统	k_{ij}
R134a+R32 ^[16]	-0.003 8
R600a+R152a ^[17]	0.055 6
R134a+R1234yf ^[18]	0.007 7
R32+R1234yf ^[19]	0.013 2
R134a+R1234ze(E) ^[19]	0.004 7
R134a+R152a ^[20]	-0.004 1
R32+R1234ze(E) ^[21]	0.004 5
CO ₂ +R1234ze(E) ^[22]	0.006 4
R134a+CO ₂ ^[23]	0.012 6
R290+R600a ^[24]	-0.006 4
R134a+R125 ^[25]	-0.001 6
R143a+R125 ^[26]	0.000 7
R152a+R1234yf ^[27]	0.007 9

2.2 多元混合制冷工质体系黏度预测

在纯质黏度计算结果和 k_{ij} 的基础上,结合无量纲对比黏度混合法则,本文计算得到多元体系基于链节的剩余熵黏度标度理论的计算值并与文献实验数据进行系统比对。图 3 给出了部分混合工质不同温度压力工况下的黏度计算值(实线)与表示文献黏度实验数据(符号)比对结果,图中 x 为摩尔分数。

从图 3 可以看出,剩余熵黏度标度理论适用于目标混合工质系统,能够准确预测二元及以上多元系统饱和状态下及高压工况下不同温度的液相黏度性质。此外,多元制冷工质体系(如图 3d 和图 3e)实验数据中存在部分无可用二元作用参数的工质对(如 R32+R125、R32+CO₂ 和 R1234yf+CO₂ 等)。剩余熵黏度标度理论能准确地反映其黏度性质,验证了基于链节的剩余熵黏度标度理论在三元及以上复杂混合工质系统的预测能力,同时也从侧面说明该理论具备明确的物理内涵,具有较强的预测复杂系统黏度性质的能力以及较高的工程应用价值。

表 4 为详细的多元系统黏度性质计算值与文献实验值比对结果。但是对于部分含 CO₂ 系统,当系统温度升至 300 K 附近,模型计算值与文献值的偏差出现波动(见图 3e),最大偏差可达 29%(当含 CO₂ 五元混合系统的系统温度为 313 K 时)。此情况在系统中 CO₂ 组分占比变大时尤为明显。

在近临界区,系统热力学性质对热力学状态的变化非常敏感,即处于近临界区的系统,其温度或压力即使发生微小的波动也可能会导致系统热力学性质产生较大的改变^[28-30]。因此,热力学模型难以准确描述近临界区系统剩余熵是否是造成含 CO₂ 系统黏度计算结果与文献数据偏差较大的原因。此外,也可能是由于现有无量纲对比黏度混合法则不适用所导致。为避免由于近临界区热力学模型预测

能力的恶化导致难以客观评价剩余熵黏度标度理论,本文借鉴文献[8,29]中提出的方法,在对比时剔除了近 CO₂ 临界区的实验数据。为此对于含 CO₂ 系统,表 4 中黏度偏差值 D^{η} 为仅包含系统温度低

于 295 K 的数据点比对结果。根据表 4 中结果可以看出,在远 CO₂ 临界区(系统温度低于 295 K),本文所得含 CO₂ 系统黏度计算结果与文献数据吻合良好,最大 D^{η} 小于 4.66 %。

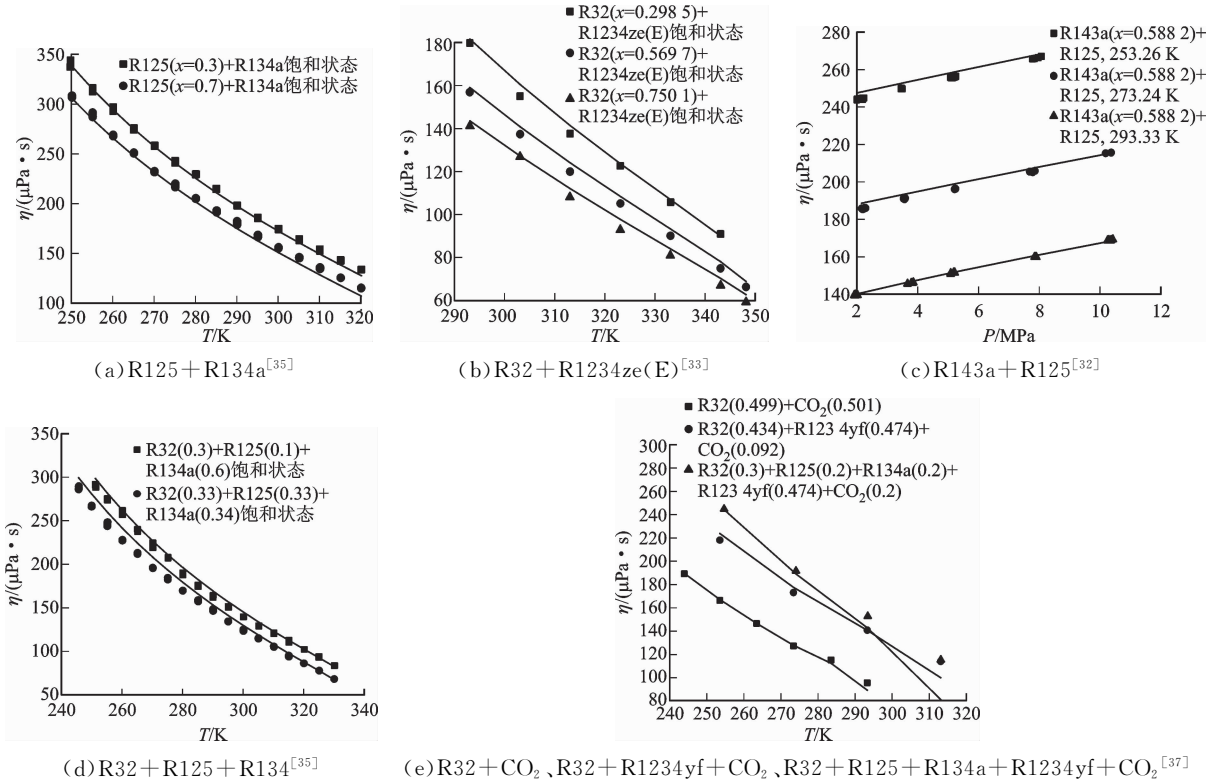


图 3 多元混合制冷工质液相黏度计算值与文献实验数据^[32-33,35,37] 比对

Fig. 3 A comparison between calculated and literature values of viscosity^[32-33,35,37] for multicomponent mixed refrigerants

表 4 多元混合制冷工质系统黏度性质计算值与文献实验值比对结果

制冷工质	温度范围/K	压力范围/MPa	数据个数	D^{η}
R32+R1234yf ^[31]	283.07~320.16	2.23~3.02	25	3.32
R143a+R125 ^[32]	253.26~293.33	1.92~9.93	110	0.99
R32+R1234ze(E) ^[33]	293.15~348.18	0.76~4.37	21	2.83
R1234yf+R152a ^[34]	278.12~333.15	0.38~1.67	12	1.54
R32+R134a ^[35]	246.07~335.10	0.17~2.63	147	2.48
R125+R134a ^[35]	248.93~345.11	0.17~2.80	156	2.12
R134a+R1234yf ^[36]	293.15~358.15	0.59~3.33	24	2.24
R134a+R1234ze(E) ^[36]	293.10~369.15	0.51~3.22	9	1.92
R32+R125 ^[37]	253.31~363.16	1.32~7.45	8	5.09
R125+CO ₂ ^[37]	253.61~322.96	3.82~8.08	11	4.66
R32+CO ₂ ^[37]	243.68~293.28	4.97~6.49	8	2.47
R134a+CO ₂ ^[37]	233.40~313.20	3.61~6.02	11	4.42
R32+R125+R134a ^[35]	245.65~330.10	0.22~2.83	81	3.48
R32+R1234yf+CO ₂ ^[37]	253.32~333.09	2.48~7.00	11	1.83
R32+R125+R134a+R1234yf+CO ₂ ^[37]	254.45~313.14	2.96~8.20	17	2.16

3 结 论

本文结合 sPC-SAFT 状态方程和基于链节的剩余熵黏度标度理论准确地描述和预测了不同工况下纯质与二元系统的液相黏度性质,并将其推广至三元及以上更复杂的混合制冷工质系统,其预测精度能够较好地满足工程实际需要。但同时对比结果表明该模型对于部分复杂系统的预测能力稍显不足,这可能是近临界区系统热力学性质随温度、压力变化波动较大导致的,而现有的高预测性混合法则不能很好地描述部分复杂系统近临界区的剩余熵,因此仍需基于统计缔合流体理论模型参数的物理内涵对现有混合法则展开更深层次的研究和改进。本工作能在一定程度上促进剩余熵黏度标度理论在多元复杂系统领域的推广,为其进一步的理论研究提供指导和借鉴。

(1)将制冷工质的无量纲对比黏度与 sPC-SAFT 状态方程给出的系统剩余熵相关联,获得一系列饱和状态下的多项式参数并成功应用于不同工况。此外,为了更好地与文献饱和液相黏度数据进行对比,系统研究了二元体系的汽液相平衡性质并给出相关二元作用参数。在此基础上,最终结合高预测性无量纲对比黏度混合法则,将该理论进一步推广至多元复杂混合系统。

(2)由剩余熵黏度标度理论计算得到的 11 种纯质黏度与文献实验数据间的最大绝对平均偏差小于 4.36%,表明该模型能够非常准确地描述目标工质的纯质液相黏度性质。针对目标工质的汽液相平衡性质展开系统研究并给出相应二元作用参数,实验数据与本文计算值间的最大绝对平均偏差小于 1.3%。基于此,本文系统比较了 651 个多元混合制冷工质系统的液相实验数据,在所对比的温度和压力范围内(233.40~369.15 K, 0.17~9.93 MPa),模型计算偏差大于 5%的数据点占 7.9%,且偏差较大的数据点主要集中于近临界区的含 CO₂ 三元及五元复杂系统。

参考文献:

- [1] FOUAD W A, ALASIRI H. Molecular dynamic simulation and SAFT modeling of the viscosity and self-diffusion coefficient of low global warming potential refrigerants [J]. *Journal of Molecular Liquids*, 2020, 317: 113998.
- [2] FOUAD W A, VEGA L F. Transport properties of

HFC and HFO based refrigerants using an excess entropy scaling approach [J]. *The Journal of Supercritical Fluids*, 2018, 131: 106-116.

- [3] MCLINDEN M, BELL I, LINTERIS G. NIST technical note 2014: low-GWP alternative refrigerant blends for HFC-134a [R]. (2018-09-01) [2021-03-01]. <http://doi.org/10.6028/NIST.TN.2014.pdf>.
- [4] GROSS J, SADOWSKI G. Perturbed-chain SAFT: an equation of state based on a perturbation theory for chain molecules [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2001, 40(4): 1244-1260.
- [5] NOVAK L T. Fluid viscosity-residual entropy correlation [J]. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 2011, 9(1): A107.
- [6] LÖTGERING-LIN O, FISCHER M, HOPP M, et al. Pure substance and mixture viscosities based on entropy scaling and an analytic equation of state [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2018, 57(11): 4095-4114.
- [7] FOUAD W A. Thermal conductivity of pure fluids and multicomponent mixtures using residual entropy scaling with PC-SAFT: application to refrigerant blends [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2020, 65(12): 5688-5697.
- [8] LIU Hangtao, YANG Fufang, YANG Zhen, et al. Modeling the viscosity of hydrofluorocarbons, hydrofluoroolefins and their binary mixtures using residual entropy scaling and cubic-plus-association equation of state [J]. *Journal of Molecular Liquids*, 2020, 308: 113027.
- [9] YANG Xiaoxian, XIAO Xiong, MAY E F, et al. Entropy scaling of viscosity: III application to refrigerants and their mixtures [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2021, 66(3): 1385-1398.
- [10] VON SOLMS N, MICHELSEN M L, KONTORGEOGIS G M. Computational and physical performance of a modified PC-SAFT equation of state for highly asymmetric and associating mixtures [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2003, 42(5): 1098-1105.
- [11] KONTORGEOGIS G M, FOLAS G K. Industrial applications thermodynamic models for industrial applications from classical and advanced [M]. West Sussex, UK: John Wiley & Son, 2010: 34-36.
- [12] FOUAD W A, VEGA L F. On the anomalous composition dependence of viscosity and surface tension in refrigerant blends [J]. *Journal of Molecular Liquids*, 2018, 268: 190-200.

- [13] LEMMON E W, BELL I H, HUBER M L, et al. NIST standard reference database 23: reference fluid thermodynamic and transport properties-REFPROP, version 10.0 [DB/OL]. National Institute of Standards and Technology, Standard Reference Data Program, Gaithersburg. (2013-04-18) [2021-03-01]. <https://www.nist.gov/srd/refprop>.
- [14] ZHAO Guanjia, BI Shengshan, FRÖBA A P, et al. Liquid viscosity and surface tension of R1234yf and R1234ze under saturation conditions by surface light scattering [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2014, 59(4): 1366-1371.
- [15] MENG Xianyang, QIU Guosheng, WU Jiangtao, et al. Viscosity measurements for 2,3,3,3-tetrafluoroprop-1-ene (R1234yf) and trans-1,3,3,3-tetrafluoropropene (R1234ze(E)) [J]. *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 2013, 63: 24-30.
- [16] KANG Kai, WANG Xiaopo, KONTOGEORGIS G M, et al. Modeling hydrofluoroolefins with the cubic plus association and perturbed-chain statistical associating fluid theory equations of state [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2018, 57(50): 17289-17300.
- [17] CHUNG E Y, KIM M S. Vapor-liquid equilibria for the difluoromethane (HFC-32)+1,1,1,2-tetrafluoroethane (HFC-134a) system [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 1997, 42(6): 1126-1128.
- [18] LIM J S, PARK J Y, LEE B G, et al. Phase equilibria of CFC alternative refrigerant mixtures: binary systems of isobutane+1,1,1,2-tetrafluoroethane, +1,1-difluoroethane, and +difluoromethane [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 1999, 44(6): 1226-1230.
- [19] KAMIAKA T, DANG Chaobin, HIHARA E. Vapor-liquid equilibrium measurements for binary mixtures of R1234yf with R32, R125, and R134a [J]. *International Journal of Refrigeration*, 2013, 36(3): 965-971.
- [20] KOCHENBURGER T M, GOMSE D, TRATSCHEIT I, et al. Vapor-liquid and vapor-liquid-liquid equilibrium measurements and correlation of the binary mixtures 2,3,3,3-tetrafluoroprop-1-ene (R1234yf) + (tetrafluoromethane (R14), trifluoromethane (R23), octafluoropropane (R218), nitrogen (R728) and argon (R740) and ethane (R170) + trifluoromethane (R23) [J]. *Fluid Phase Equilibria*, 2017, 450: 13-23.
- [21] KLEIBER M. Vapor-liquid equilibria of binary refrigerant mixtures containing propylene or R134a [J]. *Fluid Phase Equilibria*, 1994, 92: 149-194.
- [22] JIA Tao, BI Shengshan, HU Xiaozhen, et al. Volumetric properties of binary mixtures of {difluoromethane (R32) + trans-1,3,3,3-tetrafluoropropene (R1234ze(E))} at temperatures from 283.15 K to 363.15 K and pressures up to 100 MPa [J]. *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 2016, 101: 54-63.
- [23] WANG Siyi, FAUVE R, COQUELET C, et al. Vapor-liquid equilibrium and molecular simulation data for carbon dioxide (CO₂) + trans-1,3,3,3-tetrafluoroprop-1-ene (R-1234ze(E)) mixture at temperatures from 283.32 to 353.02 K and pressures up to 7.6 MPa [J]. *International Journal of Refrigeration*, 2019, 98: 362-371.
- [24] DURAN-VALENCIA C, POINTURIER G, VALTZ A. Vapor-liquid equilibrium (VLE) data for the carbon dioxide (CO₂) + 1,1,1,2-tetrafluoroethane (R134a) system at temperatures from 252.95 K to 292.95 K and pressures up to 2 MPa [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2002, 47(1): 59-61.
- [25] KAYUKAWA Y, FUJII K, HIGASHI Y. Vapor-liquid equilibrium(VLE)properties for the binary systems propane (1)+n-butane (2) and propane (1)+isobutane(3) [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2005, 50(2): 579-582.
- [26] KIM C N, PARK Y M. Vapor-liquid equilibrium of HFC-32/134a and HFC-125/134a systems [J]. *International Journal of Thermophysics*, 1999, 20(2): 519-530.
- [27] HIGASHI Y. Vapor-liquid equilibrium, coexistence curve, and critical locus for pentafluoroethane +1,1,1,2-tetrafluoroethane (R125/R134a) [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 1999, 44(2): 328-332.
- [28] HU Peng, CHEN Longxiang, ZHU Wanbao, et al. Isothermal VLE measurements for the binary mixture of 2,3,3,3-tetrafluoroprop-1-ene (HFO-1234yf) + 1,1-difluoroethane (HFC-152a) [J]. *Fluid Phase Equilibria*, 2014, 373: 80-83.
- [29] BELL I H. Entropy scaling of viscosity: I A case study of propane [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2020, 65(6): 3203-3215.
- [30] LIU Hangtao, YANG Fufang, YANG Xiaoxian, et al. Modeling the thermal conductivity of hydrofluorocarbons, hydrofluoroolefins and their binary mixtures using residual entropy scaling and cubic-plus-association equation of state [J]. *Journal of Molecular Liquids*, 2021, 330: 115612.
- [31] 刘航滔, 杨富方, 张凯, 等. 惰性气体黏度的剩余熵标度模型 [J]. *工程热物理论*, 2021, 42(1): 1-8.

- LIU Hangtao, YANG Fufang, ZHANG Kai, et al. Residual entropy scaling model for the viscosity of noble gases [J]. *Journal of Engineering Thermophysics*, 2021, 42(1): 1-8.
- [32] LAESECKE A, HAFFER R F, MORRIS D J. Saturated-liquid viscosity of ten binary and ternary alternative refrigerant mixtures; part I Measurements [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2001, 46(2): 433-445.
- [33] CUI Junwei, BI Shengshan, MENG Xianyang, et al. Surface tension and liquid viscosity of R32 + R1234yf and R32 + R1234ze [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2015, 61(2): 950-957.
- [34] AVELINO H M N T, FARELEIRA J M N A, OLIVEIRA C M B P. Viscosity measurements of compressed liquid refrigerant blend R-507A, using a vibrating-wire technique [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2008, 53(1): 53-56.
- [35] YANG Xiaoxian, ARAMI-NIYA A, XIAO Xiong, et al. Viscosity measurements of binary and multicomponent refrigerant mixtures containing HFC-32, HFC-125, HFC-134a, HFO-1234yf, and CO₂ [J]. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 2020, 65(9): 4252-4262.
- [36] BOBBO S, NICOLA G D, ZILIO C, et al. Low GWP halocarbon refrigerants; a review of thermophysical properties [J]. *International Journal of Refrigeration*, 2018, 90: 181-201.
- [37] YANG Zhangzhang, WANG Xuehui, FANG Yibo, et al. The viscosity characteristics for the mixed refrigerant HFO-1234yf + HFC-152a [C/OL]. (2016-07-11) [2021-01-10]. <http://docs.lib.purdue.edu/iracc/1650/>.

(编辑 亢列梅)