

研究论文

面激光诱导荧光技术用于快速液液微观混合研究

骆培成^{1,2}, 程 易¹, 汪展文¹, 金 涌¹, 杨万宏²

(¹ 清华大学化工系, 北京市绿色反应工程与工艺重点实验室, 北京 100084;

² 烟台万华聚氨酯股份有限公司, 山东 烟台 264002)

摘要: 建立了面激光诱导荧光技术研究液液微观混合过程的实验方法, 在无干扰流场条件下, 研究了毫米尺度通道内、错流接触的两股液膜的时空混合行为, 以可视化的手段揭示了液液微观混合过程的二维瞬态浓度场, 发现了液膜快速错流接触后形成的有序波形涡结构, 涡的尺度大小为 1~2 mm, 涡的发展过程是影响两股流体混合的主要因素. 同时建立了混合过程的定量表征方法, 用混合液膜中组分的离析度 (intensity of segregation, IOS) 定量描述了混合过程所达到的程度, 获得了不同液膜流速下液液混合过程 IOS 值随着液体流动方向的变化趋势图, 并分析了两股液膜之间的速率比以及混合液膜的 Reynolds 数对混合过程的影响.

关键词: 微观混合; 面激光诱导荧光技术; 无干扰流场测试技术; 波形涡; 离析度

中图分类号: TQ 028

文献标识码: A

文章编号: 0438-1157 (2005) 12-2288-06

Study of fast liquid-liquid micromixing using PLIF technique

LUO Peicheng^{1,2}, CHENG Yi¹, WANG Zhanwen¹, JIN Yong¹, YANG Wanhong²

(¹ Beijing Key Laboratory of Green Chemical Reaction Engineering & Technology,

Department of Chemical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

² Yantai Wanhua Polyurethane Co., Ltd., Yantai 264002, Shandong, China)

Abstract: Planar laser induced fluorescence (PLIF) technique was established to study the liquid-liquid turbulent micromixing process. A typical process of liquid-liquid cross-flow mixing in flow channels at millimeter scale was visualized by using this non-invasive measurement technique. Transient measurements of concentration field highlighted by the excited fluorescence dye were recorded. A wave-like vortex structure at the scale of 1 to 2 millimeter was found after the two liquid cross flows met each other. The results showed that the development of the vortex was the main factor affecting the mixing performance. The mixing process was also analyzed quantitatively by using the intensity of segregation (IOS). The trend of IOS value *vs* *y* locations was also illustrated and the effect of velocity ratio of two liquid flows and Reynolds number of the mixing liquid flow on the mixing process was studied.

Key words: micromixing; planar laser induced fluorescence (PLIF); non-invasive measurement; wave-like vortex; intensity of segregation

引 言

液液混合过程广泛地应用于各种过程工业, 如

化学工业、制药、环保等过程中. 针对过程特点的不同, 对混合过程的时间尺度和空间尺度要求有很大的差别, 因而造成了混合机理和设备型式的多样

2005-06-13 收到初稿, 2005-08-29 收到修改稿.

联系人: 程易. 第一作者: 骆培成 (1977-), 男, 博士, 博士后.

基金项目: 中国博士后科学基金项目 (2005037364).

Received date: 2005-06-13.

Corresponding author: CHENG Yi, associate professor.
E-mail: Yicheng@mail.tsinghua.edu.cn

Foundation item: supported by China Postdoctor Science Foundation (2005037364).

性。本文的研究背景针对工业快速液液混合过程，这些过程往往伴随着复杂的并行-连串反应，反应速度快，而且反应物可与中间产物进一步发生副反应，因此初始的液液微观尺度的混合效果直接决定了产物的选择性，也即产品质量。喷射类反应器是实现流体快速混合的一大类混合器设计，一般是利用两股或多股流体之间的喷射、撞击接触等产生强烈的湍流，实现液液的快速混合，并期望在毫米尺度甚至更小的尺度上实现液液的微观混合。由于这类混合过程的机理复杂，时间尺度和空间尺度小，因而给研究带来了较大的困难。目前对该类反应器的混合过程机理研究还相对较少，喷射反应器的设计、优化大都依靠经验来完成。

面激光诱导荧光 (PLIF) 技术是一种新型无干扰流场测试技术，可用于可视化液相 (或气相) 流场的流动结构，并能够定量地测量浓度场、温度场等信息，是化学工程领域研究传质、传热过程的高级测试技术。目前 PLIF 技术已成功用于研究搅拌釜内液液混合^[1]、火焰的流场和组分浓度场^[2,3]等，并可联合 PIV 测速技术，同时获得空间的流场信息^[4]。

Unger 等^[5]利用激光诱导荧光技术定量地表征了撞击流喷射混合器内流体的混合效率；Pan 等^[6]利用 PIV 技术和 PLIF 技术同时获得了 Tee 形喷射混合器内的速度场和浓度场分布图；Gordon 等^[7]利用 PLIF 技术测量了小孔错流喷射混合器的浓度场分布情况，为错流式喷射混合器的设计提供了一定的实验依据。

喷射类的混合器一般先设计两股液流的高速错流接触，并辅之以文丘里式缩径设计进一步加强混合，即两股高速运动的流体相撞后在狭窄通道内继续相互作用。由于混合过程在较小区域内完成，流体在小空间内的相互强烈作用产生的湍流涡结构的尺度比较小，小尺度的湍流在湍流拉伸、剪切力的作用下进一步变形、分割成更小尺度的涡，直至 Kolmogorov 尺度的微团，从而实现液液高效、快速混合。同时，利用管径的缩小提高混合后的两股流体的流动速度，增加湍流度，强化两股流体的混合过程。

本文基于这种思想，设计了一种具有普遍研究意义的液液快速混合结构，建立和发展面激光诱导荧光技术研究液液微观混合过程，可视化两股液体的快速混合过程，并在较高的空间分辨率下定量测

量瞬态浓度场和时均浓度场，从实验的角度揭示快速液液混合过程的物理现象，为深化认识和模型化液液混合过程提供坚实的实验基础。

1 PLIF 测量原理

激光诱导荧光测试技术的基本原理为：荧光物质在激光的激发下吸收特征频率的光子，由基态跃迁至第一或第二激发态中各个不同振动能级和转动能级，处于激发态的分子不稳定，返回基态时发生荧光。这一激发致光过程在瞬间完成，而且荧光物质只有在激光的照射下才发光，光强不积累。由于低浓度时荧光强度与荧光物质的浓度呈线性关系，因此，可以通过检测荧光强度达到测量浓度的目的。另外，由于激发和发射之间存在着一定的能量损失，使荧光光谱中存在着斯托克斯 (Stokes) 位移，也就是说，荧光的波长总是大于激发光的波长。利用这一点可以采用滤光片将激发光和荧光分离，只检测荧光强度以提高测量精度。

在液相混合的研究中，将荧光物质加入到流体中，在面激光的激发下，产生特定的荧光信号，同时用带有滤光片的高速相机捕获整个流场的荧光信号。溶液中某一点荧光信号的强度与该点荧光物质的浓度之间的关系可以用式 (1)、式 (2) 表示^[8,9]

$$I = \Gamma_1 C \exp(-\Gamma_2 C) \quad (1)$$

$$I_{\text{cap}} = I + I_b \quad (2)$$

式中 I 为荧光信号的强度； Γ_1 是与实验条件相关的系数，主要与激光的激发强度、CCD 相机与测量流场之间的距离等实验条件有关，在一定的条件下为一常数； C 为荧光物质的浓度； Γ_2 是与激光激发荧光物质的效率相关的参数； I_b 为背景信号的强度； I_{cap} 为 CCD 相机捕获的信号总强度。从式 (1) 可以看出，当荧光物质的浓度较低时，荧光信号的强度 I 与浓度 C 呈线性关系，利用此关系可以定量测量流场的浓度分布信息。常用的荧光物质有罗丹明 B、罗丹明 6G、荧光素钠、丙酮、吡啶、香豆素、蔡等。

2 实验装置和方法

图 1 为本研究建立的 PLIF 技术测量液液快速混合过程的示意图。两股液流分别经流量计计量后进入混合器，混合器的局部详细结构如图 2 所示。液体 A 进入混合器内环流道，经狭缝形成的液膜

(2.5 mm) 与外环流道的液体 B (2.5 mm 环隙) 错流接触, 错流夹角为 20° 。经过一段狭窄流道湍流混合接触后汇合, 混合流道同时设计成文丘里缩径形式。实验中采用罗丹明 B 作为荧光物质, 一定浓度的罗丹明 B 溶液通过恒流泵连续注入其中一股流体 (如液体 A), 经充分发展后进入混合器的内环隙, 与另外一股未混有荧光示踪剂的液体 B 错流混合。混合流场在激光片光源的激发下产生荧光信号。在 CCD 相机前装有高通滤光片, 滤掉强度很大的绿色激光信号, 进而只捕获橙色的荧光信号, 经图像采集系统进入计算机, 转换为混合流场的灰度强度图, 用 Matlab 软件处理后得到示踪流体的浓度分布图。

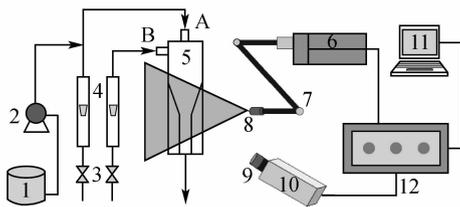


Fig. 1 Schematic diagram of experimental system

- 1—Rhodamine B solution tank; 2—constant flow pump;
- 3—valve; 4—flow meter; 5—liquid-liquid mixer;
- 6—double pulsed Nd: YAG laser; 7—articulated arm;
- 8—planar laser beam; 9—high pass optical filter;
- 10—CCD camera; 11—data acquisition system;
- 12—synchronization controlling system

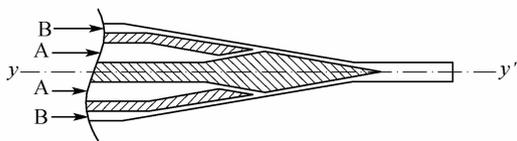


Fig. 2 Illustration of liquid-liquid mixer design in this work

本研究的激光发生系统采用 Dantec 公司生产的 Flow Map PIV 1500 系统, Nd: YAG 固体激光器发出波长为 532 nm 的绿色激光, 强度为 100 mJ。通过导光臂和片光镜形成厚度为 0.5 mm 的片光源。CCD 相机为 Nikon Hisense C4742-53-12NRB 型数码相机, 其分辨率为 $1280 \text{ pixel} \times 1024 \text{ pixel}$, 每秒最多可以采集 9 组图像。针对本研究, 相机采集的有效区域为 $35 \text{ mm} \times 115 \text{ mm}$, 对应 $220 \text{ pixel} \times 720 \text{ pixel}$, 因此本实验的测量空间分辨率为 $160 \mu\text{m} \times 160 \mu\text{m}$ 。通过调整相机的位置, 本系统可达到的空间分辨率长度为 $50 \mu\text{m}$ 。另外, 为

了保证足够长的图像采集时间, 两组图像采集的时间间隔设为 400 ms, 每次实验采集 100~200 组图像。

实验中为了减小有机玻璃壁面对激光的折射和反射作用, 在混合器测量区域的外部加上一方形夹套, 夹套内注满水。

为了标定罗丹明 B 的浓度与 CCD 相机捕获的荧光信号强度之间的关系, 分别配制浓度为 0、10、20、30、40、50、60、70、80、90、100、120、140 $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 的罗丹明 B 标准溶液, 将标准溶液置于 $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm} \times 200 \text{ mm}$ 的方形有机玻璃桶内, 方桶的壁厚为 5 mm, 与实验设备一致。在两种不同能量的片光源激发下, 分别用 CCD 相机连续拍摄每个标准溶液浓度场灰度图 100 幅, 并对图像进行时均处理。分析结果显示每幅图片灰度值分布标准偏差均小于 3%, 说明在均匀的浓度场下获得的灰度图每个像素对应的灰度值分布比较均匀。另外, 当溶液的浓度为零时, CCD 相机捕获的灰度图的平均灰度值为 51, 即背景信号的强度 I_b 为 51。

图 3 为两种不同的激光能量下, 标准溶液浓度场所产生的荧光信号光强度与罗丹明 B 的浓度之间的关系。从图中可以看出, 在本文实验条件下, 当溶液罗丹明 B 的浓度在 $140 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下时, 图片的平均灰度值与罗丹明 B 溶液的浓度呈线性关系。因此, CCD 相机获得的混合流场灰度图的灰度分布能够很好地描述相应的示踪物质浓度场分布。

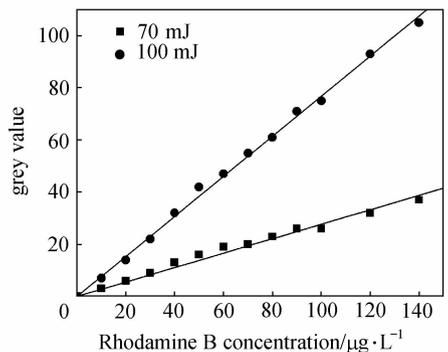


Fig. 3 Calibration of intensity of fluorescence vs Rhodamine B concentration in water

3 实验结果和讨论

实验的操作条件如表 1 所示, 通过改变液体 A 和液体 B 的流量, 考察两股液膜错流接触过程的动态

Table 1 Operating conditions in experiments

No.	Liquid A(inner fluid)			Liquid B(outer fluid)		
	$V_A/L \cdot h^{-1}$	$u_A/m \cdot s^{-1}$	Re_A	$V_B/L \cdot h^{-1}$	$u_B/m \cdot s^{-1}$	Re_B
1	400	0.61	3430	400	0.57	3160
2	400	0.61	3430	600	0.85	4740
3	400	0.61	3430	800	1.13	6320
4	600	0.92	5140	600	0.85	4740
5	800	1.23	6850	800	1.13	6320

混合现象以及在一定的操作范围内时均混合效果与流量配比之间的关系. 罗丹明 B 溶液通过恒流泵从内环连续注入, 调节罗丹明 B 的注入量使内环入口处罗丹明 B 溶液的浓度为 $100 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$.

3.1 混合过程的瞬态浓度场分布

图 4 所示为使用 PLIF 测试技术测得的不同实验条件下的瞬态浓度场分布图.

从图 4 可以看出, 两股流体在较小的空间内相互撞击混合, 在混合发展区的混合层内形成了有序的波形涡丝结构, 涡的尺度大小为 $1 \sim 2 \text{ mm}$. 且随着混合过程的不断发展, 形成的涡结构逐渐破碎、模糊, 直至最终消失. 当内、外环隙内两股流体的流速相当时, 形成的波形涡状结构相对平滑 [如图 4 (a)、(d)、(e) 所示]; 而当内、外环流体的流速相差较大时, 形成的有序涡的形状相对尖锐 [如图 4 (b)、(c) 所示]. 这主要是因为当两股流体流速相差较大时, 流体之间的相互剪切作用较强.

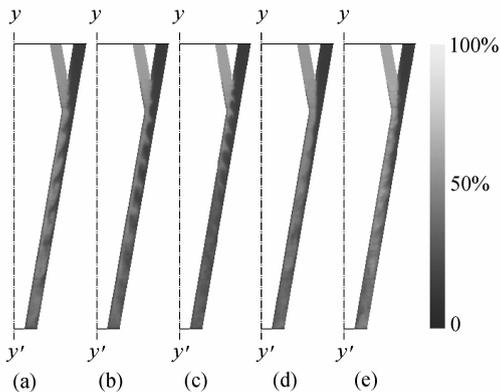


Fig. 4 Snap shots of transient concentration field taken by PLIF measurement technique (thickness of each liquid film is 2.5 mm)

涡的演变过程对于两股流体的混合起到至关重要的作用. 如图 4 (c) 所示, 在两股流体接触瞬间, 形成涡的尺度较小; 随着两股流体之间的不断

剪切作用, 形成的小涡不断发展、增大, 同时伴随着两股流体之间的相互传质; 当涡发展到一定的程度, 由于狭缝的限制, 形成的大涡逐渐破碎, 伴随着涡的产生、发展、破碎过程, 混合流场也逐渐趋于均一. 部分文献报道了较大空间尺度的混合层内的涡的演变过程与流场混合程度之间的关系, 林建忠等^[10]对这方面的文献进行了综述, 认为涡状拟序结构是湍流混合层的主体, 混合层的涡层为一个不稳定的波, 该波将形成一定间隔的涡结, 在涡的发展中, 小涡不断集中、增长, 最后发展成大涡 (见图 5). 由于涡的总能量是守恒的, 因此涡核的增长只能靠涡的合并来实现. 涡的合并主要有两种方式, 即涡的配对和破裂后的兼并. 前者指的是两个涡相互缠绕、旋转, 最后形成一个大涡; 后者指在一定条件下, 涡旋分解并被邻近的涡吸收并增长.



Fig. 5 Illustration of vortex structure development

3.2 混合过程的时均浓度场分布

对各实验条件下获得的 100 幅瞬态浓度场分布图进行时均处理, 得到液液混合过程的时均浓度场分布图 (图 6). 从时均图上可以看出, 两股流体混合效率主要受到混合层长度的影响. 在混合的初始阶段, 混合层的边界相对清楚; 随着混合过程的进行, 混合层的边界逐渐模糊, 浓度分布逐渐趋于均一. 在相同的外环隙流速下, 逐渐减小内环流体的速度 [图 6(a)~(c) 所示], 随着两股流体之间的速度差的逐渐增大, 混合过程形成的混合层逐渐变短, 达到一定混合程度所需的时间也逐渐缩短. 当两股流体的速度相当时, 如图 6 (a)、(d)、(e) 所示, 混合层的形状和长度基本相同.

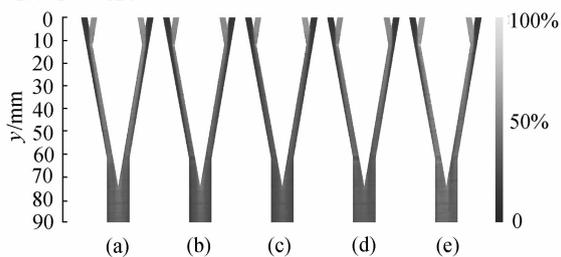


Fig. 6 Time-averaged concentration field taken by PLIF measurement technique (thickness of each liquid film is 2.5 mm)

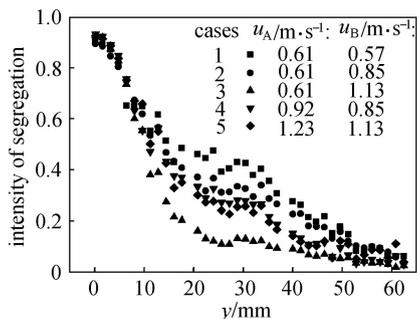


Fig. 7 Intensity of segregation at different y locations

3.3 混合过程的定量表征

3.3.1 离析度 离析度 (intensity of segregation, IOS) 的概念^[11]一般用于描述混合物 (A+B) 中组分 A 与组分 B 之间的隔离程度, 定义为

$$IOS = \frac{\langle f'^2 \rangle}{\langle f \rangle (1 - \langle f \rangle)} \quad (3)$$

$$f = \langle f \rangle + f' \quad (4)$$

其中, IOS 为一定空间尺度下混合物中不同组分之间的离析度, 当 A 与 B 处于完全隔离状态时, 即在该空间尺度下所有微元体内组分 A (或者 B) 的浓度为 0 或 1, 此时 IOS 的值为 1.0, 而当混合物中两组分在该空间尺度下均匀分散时, IOS 的值为 0.0; f 为组分 A (或 B) 的含量; $\langle f \rangle$ 为平均浓度; f' 为混合物中某个微元中组分 A 的浓度偏离平均浓度的程度; $\langle f'^2 \rangle$ 为 f' 的标准偏差. 本研究中, 用离析度的概念定量分析混合过程所达到的程度, 即通过分析不同位置横截面处混合流股中组分 A 与组分 B 之间的 IOS 值来定量表征混合过程所达到的程度, 如当 IOS 值为 0.0 时, 两股流体达到该空间尺度下的完全物理混合.

图 7 为不同实验条件下两股流体错流混合过程 IOS 值的变化趋势图. 在两股流体开始接触的初始阶段, IOS 值在 0.92 左右, 流体之间基本未进行混合; 随着混合过程的不断进行, IOS 值不断减小, 在 60 mm (y 方向) 处, IOS 值降至 5% 以下, 此时认为两股流体基本达到完全物理混合.

3.3.2 两股液膜速率比的影响 内、外环隙流体的速度大小对混合过程 IOS 值的变化趋势有着重要影响: 在相同的内环速度下, 内、外环隙流体速度相差越大, 达到特定的 IOS 值经过的距离越短, 混合效果越好. 如当内、外环之间的速度差最大 (case 3, $u_A/u_B=0.54$) 时, 在 $y=25$ mm 处 IOS 值降低至 10% 左右, 两股流体基本混合完全, 而

对于内、外环速度相差较小时, IOS 值分别为 35% (case 2, $u_A/u_B=0.72$)、40% (case 1, $u_A/u_B=1.1$) 左右, 液膜之间的混合过程尚未完成, 这与 3.2 中对时均图的定性分析结果类似. 因而, 两股液膜之间的速度差越大, 越有利于液液之间的快速混合.

3.3.3 混合液膜 Reynolds 数的影响 当内、外环液膜速率比一定时, 考察了混合液膜 Reynolds 数对混合过程的影响, 如 case 1、case 4、case 5 所示, $u_A/u_B=1.1$, 混合液膜的 Reynolds 数 (以混合液膜的平均流速计算) 分别为 6590、9880、13170. 从图 7 可以看出, 当混合液膜的 Reynolds 数较小时 (case 1), 达到一定的 IOS 值需要经过的距离相对较长, 混合效果相对较差; 而当混合液膜的 Reynolds 数相对较大时 (case 4、case 5), 液膜之间的混合效果明显增强, 且混合液膜的 Reynolds 数对 IOS 值的影响较小, 随着液膜速度的增大, 在相同的 y 位置, 混合液膜的 IOS 值略微有所降低. 可能的原因为: 当内、外环液膜速度相对较小时 (如 case 1, 内、外环隙液膜的 Reynolds 数均小于 3500), 在液膜接触的初始阶段流动可能处于层流和湍流之间; 而当液膜的速度较大时, 内、外环隙液膜的流动基本处于完全湍流状态, 两股液膜之间剧烈的湍流撞击强化了混合过程, 继续增大两股液膜的速度对混合过程的影响较小. 因而, 对于液膜错流接触混合过程, 在特定的流动区域内 (如液膜都处于完全湍流状态), 混合过程的工程放大效应较小.

4 结 论

(1) 建立了面激光诱导荧光技术研究液液微观混合过程的实验方法, 实验的空间分辨率为 160 μm . 同时对两股厚度为 2.5 mm 的液膜在毫

米尺度流道内的错流接触混合过程进行了可视化研究，利用建立的实验系统获得了两股流体混合过程的瞬态浓度场分布图和时均浓度场分布图。

(2) 观察到了两股液膜错流接触混合过程中形成的有序波形涡丝结构，涡的尺度大小为 1~2 mm，涡的发展过程是影响两股流体混合的主要因素。

(3) 利用离析度 (IOS) 的概念对混合过程进行了定量的表征，获得了不同液膜流速下液液混合过程 IOS 值随着液体流动方向 (y 方向) 的变化趋势图，并分析了两股液膜的速率比以及混合液膜 Reynolds 数对 IOS 值变化趋势的影响。

从本文的研究结果可以看出，PLIF 技术是研究液液微观混合过程的重要手段，可以定量地重构出液液混合过程的浓度场分布，为研究液液快速混合过程的影响因素、揭示混合过程的机理起到了重要作用。但是对于两股液膜错流接触混合过程中有序波形涡丝的形成机制、发展演变过程还需进行进一步深入研究，如能耦合 PLIF 技术和粒子图像测速技术 (PIV)，同时获得毫米尺度液膜混合过程的浓度场和速度场分布，将对于细致研究液液微观混合过程，揭示小尺度湍流混合机理具有重要的帮助，目前此方面的研究工作正在进行之中。

References

- [1] Nere N K, Patwardhan A W, Joshi J B. Liquid-phase mixing in stirred vessels: turbulent flow regime. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2003, **42**: 2661—2698
- [2] Cooper C S, Laurendeau N M. Laser-induced fluorescence measurements in lean direct-injection spray flames: technique development and application. *Meas. Sci. Technol.*, 2000, **11**: 902—911
- [3] Thurber M C, Hanson R K. Simultaneous imaging of temperature and mole fraction using acetone planar laser-induced fluorescence. *Exp. Fluids*, 2001, **30**: 93—101
- [4] Meyer T R, Fiechtner G J, Gogineni S P, Rolon J C, Carter C D, Gord J R. Simultaneous PLIF/PIV investigation of vortex-induced annular extinction in H₂-air counterflow diffusion flames. *Exp. Fluids*, 2004, **36**: 259—267
- [5] Unger D R, Muzzio F J. Laser-induced fluorescence technique for the quantification of mixing in impinging jets. *AIChE J.*, 1999, **45**: 2477—2486
- [6] Pan G, Meng H. Experimental study of turbulent mixing in a tee mixer using PIV and PLIF. *AIChE J.*, 2001, **47**: 2653—2665
- [7] Gordon M, Cater J E, Soria J. Investigation of mean passive scalar field in zero-net-mass-flux jets in cross-flow using planar-laser-induced fluorescence. *Phys. Fluids*, 2004, **16**: 794—808
- [8] Houcine I, Vivier H, Plasari E, David R, Villermaux J. Planar laser induced fluorescence technique for measurements of concentration fields in continuous stirred tank reactors. *Exp. Fluids*, 1996, **22**: 95—102
- [9] Guillard F, Fritzon R, Revstedt J, Tragardh C, Alden M, Fuchs L. Mixing in a confined turbulent impinging jet using planar laser-induced fluorescence. *Exp. Fluids*, 1998, **25**: 143—150
- [10] Lin Jianzhong (林建忠), Yu Zhaosheng (余钊圣), Shen Liping (沈利平). The advances on the large vortex structures and properties in mixed layers. *Adv. In Mech.* (力学进展), 1997, **27**: 217—231
- [11] Danckwerts P V. The definition and measurement of some characteristics of mixtures. *Appl. Sci. Res.*, 1952, **3**: 279—296