

激光全息干涉测定微通道内气液传质

季喜燕

(内蒙古科技大学包头师范学院化学学院, 内蒙古 包头 014030)

摘要 为了进一步理解微通道内气液两相传质过程机理,利用激光全息干涉条纹与流体折射率以及折射率与流体浓度的关系,采用激光显微全息干涉测试系统对微通道入口处 Taylor 气泡形成过程中的液相侧浓度分布进行了测定。微通道尺寸为深 $100\ \mu\text{m}$,宽 $2000\ \mu\text{m}$,长 $4\ \text{cm}$ 。气相采用 CO_2 ,液相使用无水乙醇。利用图像采集系统对干涉条纹的变化过程进行实时记录,并利用自编图像处理软件对干涉条纹图像进行处理,得到了 Taylor 气泡形成过程中液相侧浓度分布和近界面浓度边界层厚度。结果表明,在 Taylor 气泡形成过程中有较强的传质发生,液相近界面浓度和浓度边界层厚度均随着气液相流速的增大而减小。结果显示,利用激光显微全息干涉测试系统,对微观尺度通道内部的气液传质过程进行实时测定研究,可得到清晰的图像和满意的结果。

关键词 激光显微全息干涉;微通道;Taylor 气泡;浓度分布

中图分类号 O434.3 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP49.101404

Measurement of Gas-Liquid Mass Transfer in Microchannel using Microscopic Laser Holographic Interferometry

Ji Xiyan

(College of Chemistry, Inner Mongolia University of Science and Technology Baotou Teachers College, Baotou, Inner Mongolia 014030, China)

Abstract In order to understand further the gas-liquid two-phase mass transfer process mechanism in microchannel, by using the relationship between stripes and fluid refractive index and that between refractive index and the fluid concentration, the microscopic laser holographic interferometry is used to study the concentration distributions on the liquid side during the formation of Taylor bubble at the inlet of microchannel. The dimension of microchannel is $100\ \mu\text{m}$ in depth, $2000\ \mu\text{m}$ in width, and $4\ \text{cm}$ in length. CO_2 is used as gas phase and ethanol is used as liquid phase. The shift of the interference stripes during the absorption is recorded by image acquisition system, and the images are treated by a self-designed digital image processing system. Experimental results show that there is obvious mass transfer during the generation processes of Taylor bubbles, and both the liquid side concentration near the interface and the thickness of concentration boundary layer decrease with the increment of liquid and gas velocities. The results show that, for real-time determination of gas-liquid mass transfer process, microscopic laser holographic interferometry testing system can obtain clear images and satisfactory results in the micro scale channels.

Key words microscopic laser holography interferometry; microchannel; Taylor bubble; concentration distribution

OCIS codes 140.3948; 090.2880; 180.3170

1 引言

随着环境污染日益严重,废气中 CO_2 的脱除成为实际工业生产中可持续发展战略亟待解决的问题。传统工业生产中 CO_2 脱除设备因体积巨大、能耗高、处理效率低等缺点,实际使用率较低,对环境保护所做贡献甚微。而微型反应器内,两相流体在微通道内径向流动距离非常小,已被证明比常规设备的传质和传热性能提高 $1\sim 2$ 个数量级^[1~6],因此微型反应器在废气脱除中应具有极大的应用空间。微通道是微反应器内部流体的主要接触场所,也是微型反应器的主要组成部分,因此,研究微通道内液相吸收 CO_2 气体的传质过程

收稿日期: 2012-06-06; **收到修改稿日期**: 2012-07-04; **网络出版日期**: 2012-08-20

作者简介: 季喜燕(1983—),女,博士,讲师,主要从事微通道,微反应器内流体流动,传质过程及微反应器应用等方面的研究。E-mail: jixiyan66@163.com

是微反应器应用的前提和关键。

由于微通道的特征尺度通常为微米量级,常规研究气液传质过程的方法无法应用在微通道中,因此需要寻找一种能够在微尺度条件下测定气液传质过程的方法。近年来,激光全息干涉方法由于具有高灵敏度和高精度^[7,8],对测量体系无干扰,并且可实时测定等优点被越来越多的研究者所使用^[9~11]。本文利用激光显微全息干涉系统,对微通道内气液两相传质过程中液相侧浓度分布进行了测定,使用的气体为 CO₂,液体为无水乙醇。打破了无法实时测定微观尺度下气液两相传质过程的局限,实时测定了微通道内气液传质过程。改变了以往对微通道内传质过程的研究方式,即只测定通道进口和出口的气液相参数的“黑盒子”式研究方法,实现了微尺度下气液传质过程的可视化,为进一步深入研究微通道内多相流体传质过程开辟了新的方法。

2 测试系统及测试原理

2.1 激光全息干涉系统

激光全息干涉实验装置由两部分组成。一是激光全息干涉光路系统,二是气液流动系统。实验装置全部放置于位移传感器自动调平复位的防震台上。

图1为实验所采用的单波长激光实时全息干涉光路流程图。由 He-Ne 激光器 1 发出的激光经分束镜 4 分成两束,一束为物光,一束为参考光,两束光分别经扩束镜 5、准直镜 6 变为均匀的平行光。物光再通过微通道芯片 7,与参考光在全息干版 9 上会合,发生全息干涉。干涉条纹由毛玻璃接收屏 10 接收,干涉条纹由 CCD 11 接收并通过图像采集卡由计算机采集与存储,可实时得到随不同物系、不同时刻浓度变化的干涉条纹。图中 2 为全反射镜头,3 为曝光定时器,8 为放大镜。

2.2 激光全息干涉条纹图像的采集与处理

采用 1024 pixel×768 pixel 的 CCD 接收干涉图像,CCD 拍摄的频率为 30 frame/s。用装有图像采集卡的计算机记录存储图像。为了提高数字图像处理的精度,降低错误率,减小编程工作量,在实际处理时,采用人工干预的方法,指定某一块图像质量较好的区域进行数字图像处理。程序设置如图 2 所示。

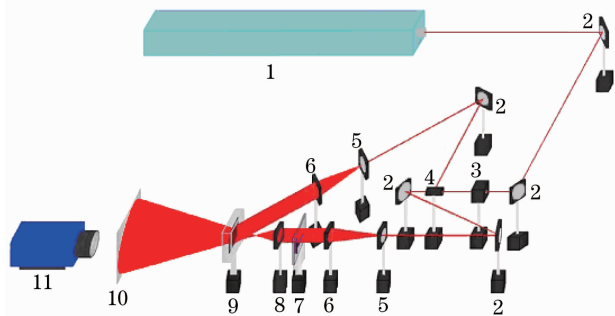


图1 激光全息干涉光路图

Fig. 1 Optical representation of laser holographic interferometer

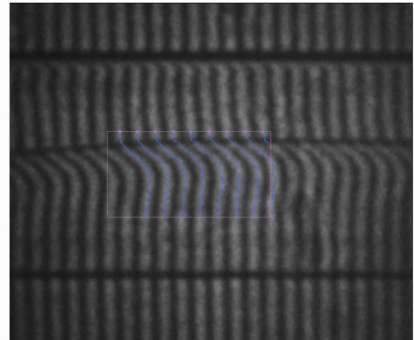


图2 数字图像处理程序界面

Fig. 2 Procedure menu of images processing

亮条宽度、亮条数量、条纹宽度等数值由人工输入,用以辅助软件对图像进行处理,减小程序的出错率。采集储存后的图片,利用自编的图像处理软件,处理得到干涉条纹的偏移量及条纹间距,代入相应公式(见 2.3 节及 2.4 节),计算得到液相中 CO₂ 的浓度分布。

2.3 激光全息干涉条纹与折射率的关系

全息学中,折射率可以忽略的物体成为相位物体。本文所测的微通道芯片由透明玻璃制成且厚度仅为 5 mm,可以近似认为是相位物体。光线通过相位物体的光程为

$$L(x, y) = \int n(x, y) dz, \quad (1)$$

(1)式为折射率 n 沿光线路径的积分。

在首次全息曝光时,相位物体的折射率分布为 $n_1(x, y)$, 光波函数为

$$\sum_{01} = a_1(x, y) \exp[i\Phi_1(x, y)] = a_1(x, y) \exp\left[i \frac{2\pi}{\lambda} L_1(x, y)\right], \quad (2)$$

人为引入方向相位差, 光波函数变为

$$\sum_{02} = a_2(x, y) \exp[i\Phi_2(x, y)] = a_2(x, y) \exp\left\{i \frac{2\pi}{\lambda} [L(x, y) + \Delta L(x, y)]\right\}, \quad (3)$$

\sum_{01} 和 \sum_{02} 产生干涉条纹, a_1 和 a_2 具有相同的单位振幅, 光强表示为

$$I(x, y) = 2 \left\{ 1 + \cos \frac{2\pi}{\lambda} [\Delta L(x, y)] \right\}. \quad (4)$$

如图 3 所示, 假定光线平行于 z 轴方向, 折射率在 $x-y$ 平面内发生变化, 改变相位差, 使之产生垂直于界面的参考条纹, 条纹间距为 S , 光的波长为 λ , 则:

$$\Delta L = \frac{y}{S} \lambda. \quad (5)$$

浓度未发生变化时, 条纹为垂直于界面的平行条纹, 间距相等; 浓度发生变化时, 条纹随浓度变化发生偏移。在任意条纹上取两点: $A(x_0, y_0)$ 、 $B(x, y)$, A 点为浓度未发生变化, B 点为浓度变化区域的任意点。假定浓度仅在 x 方向上变化, y 方向上均匀, 有:

$$L(x, y) = L(x). \quad (6) \quad \text{Fig. 3 Schematic diagram of the interfere stripe variation}$$

根据全息干涉原理, 同一条纹上的两点应是等相位的, 因此有

$$\frac{2\pi}{\lambda} [L(x) + \Delta L(y)] = \frac{2\pi}{\lambda} [L(x_0) + \Delta L(y_0)], \quad (7)$$

将(1)式和(5)式代入(7)式, 并简化得:

$$\int \Delta n dz = -\frac{H}{S} \lambda, \quad (8)$$

式中 H 为条纹偏移量。

若相位物体沿光线的路径为 l , 则(8)式变为

$$[n(x) - n_0(x_0)]l = -\frac{H}{S} \lambda, \quad (9)$$

因 $n_0(x_0) = n_0$, (9)式改写为

$$n(x) = n_0 - \frac{H\lambda}{lS}. \quad (10)$$

对本文所测系统, n_0 为主体未发生浓度变化时的折射率, n 为点 x 截面处的折射率; l 为微通道芯片厚度 5 mm。

通过(10)式, 可以计算出传质系统浓度发生变化后任一点处的折射率 $n(x)$ 。

2.4 折射率与浓度的关系

液体折射率与密度之间的关系可用 Lorentz-Lorenz 方程来表示:

$$\frac{n^2 - 1}{\rho(n^2 + 2)} = r(\lambda). \quad (11)$$

式中 $r(\lambda)$ 为折射率差度, 是物质和波长的函数, 对于一定波长的光源, 在恒温恒压下, $r(\lambda)$ 为常数。在恒温恒压下, 对于二元理想物系, 混合物的密度 ρ 与组分的密度 ρ_1, ρ_2 之间的关系为

$$\frac{1}{\rho} = \frac{m_1}{\rho_1} + \frac{m_2}{\rho_2}, \quad (12)$$

以及归一化条件为

$$m_1 + m_2 = 1. \quad (13)$$

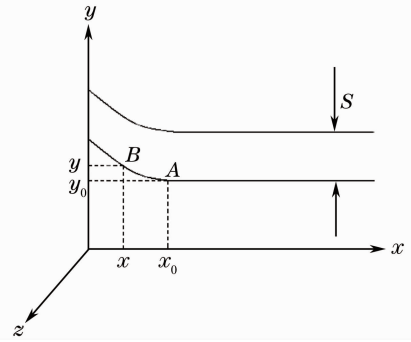


图 3 条纹变化示意图

式中 m_1, m_2 分别为组分的质量分数。简化(11)式、(12)式和(13)式,可得

$$\frac{n^2 + 2}{n^2 - 1} = p + qm_1, \quad (14)$$

式中 p, q 为参数。综合(11)式和(14)式可得

$$n = f(\lambda, m_1). \quad (15)$$

由(15)式可以看出,溶液的折射率是浓度和波长的函数。波长一定时,折射率将随着浓度而变化。当溶液可视无限稀释溶液时,折射率与浓度成线性关系。对于本文研究的气液二元体系,先用阿贝折射仪测定一系列浓度的折射率,回归出折射率与浓度关系式中的参数,这样只要知道浓度场发生变化后的折射率,就可得到相应的浓度值。折射率与液相中 CO_2 浓度 C_i 之间的关系可简化为

$$n = p + qC_i. \quad (16)$$

由阿贝折射仪实验测定无水乙醇的折射率回归得到的(16)式中参数 p 和 q 的值, $p=1.36, q=0.02411$ 。

2.5 激光全息干涉法的误差分析

对于浓度的误差分析,根据误差理论,折射率的绝对误差为

$$\Delta n(x) = \frac{\lambda}{Sl} \Delta H + \frac{H\lambda}{S^2 l} \Delta S + \frac{H\lambda}{Sl^2} \Delta l. \quad (17)$$

举例计算如下:

若 $H=0.2 \text{ mm}, l=5 \text{ mm}, S=0.2 \text{ mm}, \lambda=6.328 \times 10^{-4} \text{ mm}, \Delta H=0.001 \text{ mm}, \Delta l=0.01 \text{ mm}, \Delta S=0.001 \text{ mm}, n_0=1.3333$, 则

$$\Delta n(x) = 1.5 \times 10^{-8}, \quad (18)$$

相对误差为

$$\frac{\Delta n(x)}{n_0} = 1.125 \times 10^{-8}. \quad (19)$$

可见用全息干涉法测定近界面浓度分布的精度是很高的。

对于浓度边界层厚度的误差分析,实验过程中图像的放大倍数为 $500 \text{ pixel}/2 \text{ mm}$, 图像的最小单位为 1 pixel , 所以实验的空间分辨率为 0.004 mm 。测定的浓度边界层厚度大于 0.3 mm , 则测定浓度边界层厚度的误差为

$$\delta = \frac{0.004}{0.3} \times 100\% \approx 1.33\%. \quad (20)$$

所以用全息干涉法测定浓度边界层的实验结果是可靠的。

3 实 验

图4即为在微通道入口处, CO_2 气泡形成过程中拍摄到的干涉条纹图像。

实验开始时,微通道内部充满液体,干涉条纹平直稳定,随着气体的进入,在微通道入口处产生 Taylor 气泡,在气泡由小长大的过程中,干涉条纹发生明显弯曲。实验采用深 $100 \mu\text{m}$ 宽 $2000 \mu\text{m}$ 的微通道,使得在微通道宽度方向上能够拍摄到清晰的干涉条纹图片。

3.1 实验结果

图5为 CO_2 -无水乙醇流动体系中 Taylor 气泡在微通道入口处形成过程中发生传质的干涉条纹图, t 为时间。

在 Taylor 气泡的形成过程中,随着时间的推移,液相一侧干涉条纹的偏移量逐渐增大,说明 CO_2 向液相中的传质通量逐渐增加,这也证实了在气泡形成过程中有较强的传质发生。距离两相界面越远,传质的驱动力逐步减小,液相中 CO_2 的浓度也越小,条纹偏折程

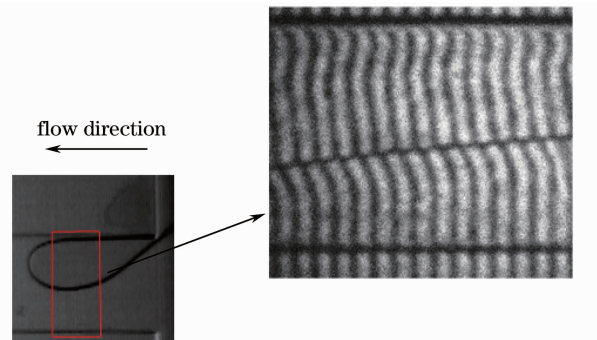


图4 Taylor 气泡形成过程中干涉条纹图
Fig. 4 Interference fringe in the formation of Taylor bubble

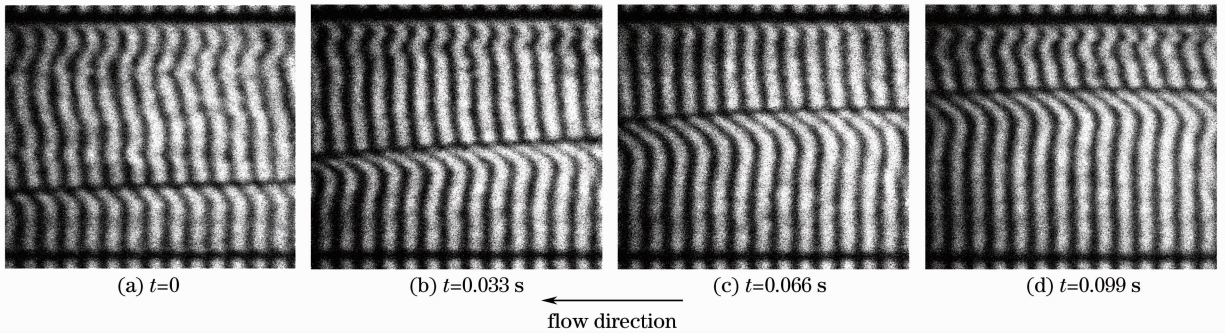
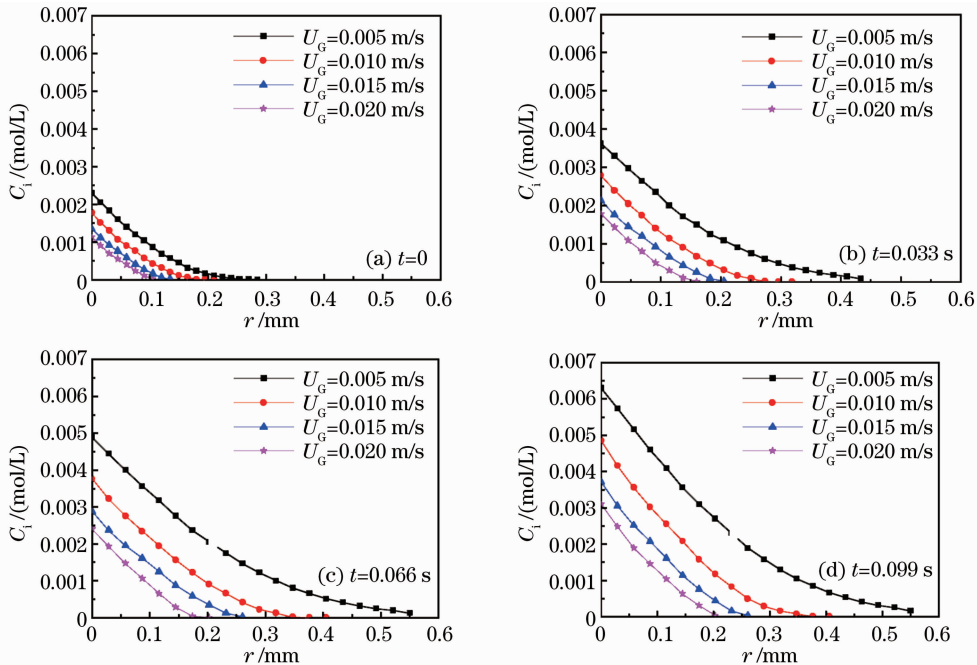
图 5 CO_2 气泡在形成过程中干涉条纹变化图

Fig. 5 Variations of interference fringe in the formation of Taylor bubble

度也随之降低,到某一临界位置后,条纹便不再发生偏移。这说明在 CO_2 向液相传质的过程中,界面浓度梯度存在于距两相界面很小距离的液相侧薄膜内。

3.2 液相测浓度分布

对不同时刻的干涉条纹进行分析可以得到气泡形成过程中不同时刻液相侧浓度分布。图 6 给出了液相流速 $U_L=0.03$ m/s 时弹状流型内在气泡形成的过程中液相一侧的 CO_2 浓度分布, U_G 为气相流速。

图 6 Taylor 气泡形成过程中液相侧 CO_2 浓度分布 ($U_L=0.03$ m/s)Fig. 6 Concentration distribution of CO_2 in Taylor bubble formation process ($U_L=0.03$ m/s)

由图 6 可知,随着时间的增加,近界面浓度逐渐增加,液相一侧的浓度梯度逐渐增大,浓度边界层的厚度也有所增加,说明随着时间的推移 CO_2 气体传质进入液相中的量逐渐增加^[12]。上述结果说明在气泡形成的过程中 CO_2 向液相中的传质并没有达到平衡,在气泡形成后与液相共同向前运动过程中,传质也在同时进行。

由图 6 还可以看到,相同的液相流速下,增大气相流速导致液相近界面浓度和浓度边界层厚度均减小,这是由于气体流速增大使得界面处的气液相接触时间缩短,界面处液相吸收的气体量减少,从而使近界面浓度减小;而近界面浓度的减小使得传质推动力同时减小,导致浓度边界层厚度减小。

3.3 液相流速对近界面浓度分布的影响

图 7 给出了不同液相流速对液相侧浓度分布的影响,选取 $t=0.066$ s 时刻的实验结果。

由图 7 可知,随着液相流速的增大,液相侧近界面浓度和浓度边界层厚度均减小。在液相流速较低时,

传质主要为分子扩散,随着扩散的进行,浓度边界层不断延伸,所以近界面浓度和浓度边界层都较大。随着液相流速的增加,对流传质逐渐起主导作用^[13],新鲜流体微元的更新频率增加,根据表面更新理论,传质系数与表面更新率的平方根成正比,随着液相流速的增大,液相流体在界面的停留时间缩短,表面更新率相应增加,导致传质系数增大。液相内对流传质的增大,使得吸收的气相来不及到达更深层的液相,流场内的浓度分布就趋于稳定,导致近界面浓度和浓度边界层的厚度均减小。

4 结 论

微观尺度下利用激光显微全息干涉测试系统,对微通道入口处 Taylor 气泡形成过程中的气液传质过程进行了实时测量。以无水乙醇为液相,CO₂ 作为气相,设定较小的气液流速以满足图像拍摄的需要,实验过程中得到了清晰的气液传质干涉条纹图像。利用自编图像处理软件,处理并得到了图片中干涉条纹产生的偏移量及条纹间距,计算得到了 CO₂ 气泡形成过程中无水乙醇一侧的浓度分布。得到了微通道内气液两相传质过程中实时的浓度分布及浓度场结果。

结果表明,利用激光显微全息干涉测试系统,对微观尺度通道内部的气液传质过程进行实时测定研究,可得到清晰的图像和满意的结果,为进一步可视化地研究微通道内气液两相传质过程机理奠定了基础。

参 考 文 献

- 1 W. Ehrfeld, V. Hessel, H. Löwe. *Microreactors: New Technology for Modern Chemistry*[M]. Germany: Wiley-VCH Press, 2000
- 2 W. L. Chen, M. C. Twu, C. Pan. Gas-liquid two-phase flow in micro-channels[J]. *International Journal of Multiphase Flow*, 2002, **28**(7): 1235~1247
- 3 Yue Jun, Cheng Guangwen, Yuan Quan *et al.*. Study on gas-liquid mass transfer in microchannel[J]. *Journal of Chemical Engineering*, 2006, **57**(6): 1296~1303
- 乐 军, 陈光文, 袁 权 等. 微通道内气-液传质研究[J]. *化工学报*, 2006, **57**(6): 1296~1303
- 4 H. Ide, A. Kariyasaki, T. Fukano. Fundamental data on the gas-liquid two-phase flow in minichannels[J]. *International Journal of Thermal Sciences*, 2007, **46**(6): 519~530
- 5 S. Saisorn, S. A. Wongwises. Review of two-phase gas-liquid adiabatic flow characteristics in micro-channels [J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2008, **12**(3): 824~838
- 6 R. Pohorecki, P. Sobieszuk, K. Kula *et al.*. Hydrodynamic regimes of gas-liquid flow in a microreactor channel[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2008, **135**(1): 185~190
- 7 Qing Yi, Zhong Jingang. Theoretical and experimental research of digital holography with partially coherent light based on light-emitting diode[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(8): 2236~2241
- 秦 怡, 钟金钢. 基于发光二极管的弱相干光数字全息理论与实验研究[J]. *光学学报*, 2010, **30**(8): 2236~2241
- 8 Han Chao, Wei Sui, Quan Xilong *et al.*. Holographic display of digital micromirror device[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(1): 190~194
- 韩 超, 韦 穗, 权希龙 等. 数字微镜器件的全息显示[J]. *中国激光*, 2010, **37**(1): 190~194
- 9 Li Xiaofeng, Xu Jun, Zhang Shengxiu *et al.*. Edge detection algorithm of laser active imaging[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(6): 1599~1601
- 李晓峰, 徐 军, 张胜修 等. 激光主动成像图像边缘检测方法[J]. *中国激光*, 2010, **37**(6): 1599~1601
- 10 Zhang Yanco, Zhao Jianlin, Fan Qi *et al.*. Application of apodization digital holography in phase measurement[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(6): 1602~1606
- 张延曹, 赵建林, 范 琦 等. 切趾数字全息术在相位测量中的应用[J]. *中国激光*, 2010, **37**(6): 1602~1606
- 11 Wang Tian, Yu Jia, Wang Jincheng *et al.*. Technology of digital reconstruction in detecting hologram of underwater bubbles field[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2010, **47**(3): 031001

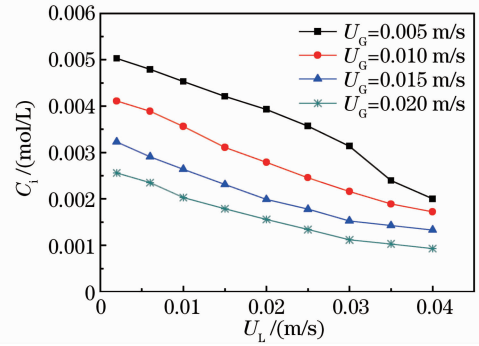


图7 液相流速对 CO₂ 近界面浓度的影响 ($t=0.066$ s)

Fig. 7 Effect of liquid velocity on CO₂ concentration near the interface ($t=0.066$ s)

- 王 添, 于 佳, 王金城 等. 水下气泡场探测全息图的数字再现技术[J]. 激光与光电子学进展, 2010, **47**(3): 031001
- 12 N. Shao, A. Gavriilidis, P. Angeli. Mass transfer during Taylor flow in microchannels with and without chemical reaction [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2010, **160**(3): 873~881
- 13 J. C. Charpentier. Mass-transfer rates in gas-liquid absorbers and reactors[J]. *Advances in Chemical Engineering*, 1981, **11**: 1~133