doi:10.6043/j.issn.0438-0479. 201611031

**传质过程中Marangoni界面湍动现象的**

**研究进展**

王振风，钟亦兴，沙 勇\*

（厦门大学化学化工学院，福建 厦门361005）

**摘要：**传质过程中出现的Marangoni界面湍动现象，能够促进界面更新、影响传质面积，会对传质过程产生重要的影响。本文针对气液和液液传质过程中Marangoni界面湍动相关领域的研究，对Marangoni界面湍动的实验观测、理论及数值模拟的研究成果进行了系统的总结和展望。

**关键词：**Marangoni现象；传质；实验观测；数值模拟；表面张力

**中图分类号：**TQ 028 **文献标志码：** A

在气液和液液传质传热系统中，由于传递过程中液相化学和物理性质的改变，传热和传质过程往往会引发界面运动不稳定性，由此引发的界面宏观对流现象称之为界面湍动现象，其中由于界面处表面张力梯度的存在导致的对流现象称为 Marangoni 界面湍动，也叫做Marangoni效应或Marangoni对流[1]。界面湍动对传质过程有重要影响，因此众多学者的开始研究这一现象。

**1 Marangoni界面湍动现象**

对于Marangoni界面湍动现象，可用无因次数 Ma 来对其进行表征其强度：



Marangoni对流有两种产生机理。当气液或液液相界面切线方向存在张力梯度时，会产生表面张力小的流体流向表面张力大的流体，引发了流体的宏观运动，这种界面湍动即为Marangoni对流。此外，当传质传热过程中液体表面张力增大即Δ*σ*＞0，导致*Ma*大于某一临界值时，这种表面张力差亦可造成Marangoni不稳定性。以上两种不稳定性导致的两种类型的对流统称之为 Marangoni 对流或者Marangoni效应。

显然，Marangoni对流的发生，促进了界面流体更新，对系统的传质传热有极大的影响，这种现象的重要特征在于相界面运动的流体力学不稳定性，因此，Marangoni对流对传质过程有非常大的影响[2]。有序和无序对流是界面湍动的一般表现形式，其中有序对流有着统一的几何尺寸、相似的特点，包括细胞状、界面波形和多边形等规则的结构。但是实际传质现象中主体湍动较为强烈，有序的界面湍动现象难以形成，界面上通常呈现无序对流结构。

1855年，Thompson[3]在酒精饮料表面第一次观察到Marangoni对流，之后涌现了许多针对 Marangoni 效应的宏观对流结构的研究[4-13]。得到了如细胞状、多边形、滚筒状等规则以及一些不规则的结构，加深了对界面湍动这一现象的直观认识，并为理论研究提供了实验依据。1900年，Bénard[14]首次研究了水平方向上液层的细胞对流，通过在静止的薄液层底部加热，观测到溶液表面产生了六边形蜂窝状对流结构；Zhang 等[15]观测到了在薄液层内由蒸发所引起的循环对流和不稳定对流现象，并进一步研究了其产生机理；Mancini[16]研究了蒸发潜热引发的对流流形，发现蒸发潜热能够引起界面上形成垂直的温度梯度，进一步导致表面张力梯度的产生，由此引发界面湍动现象，所观察到的有序的对流结构与Bénard实验得到的对流结构非常相似。

界面湍动在液液萃取体系中应用较为常见，Lewis等[17]采用悬滴法测量相际界面张力时发现界面波纹、不稳定的脉动及悬挂表面运动等现象，并证实这三者综合作用，能显著增强传质；Orell和Westwater[18]利用纹影技术，在观察乙酸乙酯从乙二醇中萃取乙酸的过程中，观察到了蜂窝状、多边形和滚筒状等对流结构；而近些年更多的研究小组，如Engberg和Chen等[19-20]团队工作者的实验研究均报道了二元液-液体系中界面对流的存在。Marangoni界面湍动的实验观测、理论及数值模拟的研究成果，可有力的促进对传质微观机理的理解，有助于开发强化传质的技术措施和设备。

**2 Marangoni对流的研究手段**

**2.1 Marangoni对流流场的显示**

截止目前，大量工作研究了界面湍动现象，如果相界面可视，人们一般以示踪法、粒子成像测速（PIV）及光学测量法等观测方法对其进行直接观测。

示踪剂显影测量法，即在液相中添加细微铝粉、铝箔及光敏材料等示踪物质，观察其伴随界面流体流动的轨迹，以此可获得界面对流流场的变化信息[21-22]。比如Schwabe[23]以铝箔作为示踪剂，在微重力下通过加热平坦自由液层从而产生Marangoni对流，观察到了对称的多边形、射线状等多种流型结构。

通过摄取激光片光源照射散播在流场区域的示踪粒子图像的帧序列，并对相邻两帧图像序列之间的时间间隔进行图像相关分析，识别示踪粒子图像的位移，从而得到流体的速度场，该技术即为粒子成像测速。比如Shi等[24]发现，界面处的反应会导致表面张力发生变化，从而产生 Marangoni 效应。PIV法既具备了高精度和高分辨率，同时又能获得平面流场的整体结构和瞬态图像。但其对硬件的要求较高，而且所选择示踪粒子的性能直接影响到测试的精度，使其在研究界面湍动中受到限制。

示踪法和PIV法均需在流体中添加可能对流场造成干扰的示踪剂，不能准确反应流场信息。利用光对流动介质无干扰，对研究的区域无影响的特点，光学观测法被广泛的应用于流体流动的研究中。其原理是观察记录光线在折射率不均匀的透明流场介质中改变传播路线的变化信息，来确认流场中肉眼无法识别的界面对流现象，包括间接观测的激光全息干涉条纹法，以及直接观测的纹影法和投影法。采用光学观测法，要求相界面明确可视，比如水平静止液层表面，不互溶的液滴界面等[25]。



(a) without desorption (b) with desorption

图1竖直下降皂膜纹影图像[26]

Fig. 1 Schlieren images of falling soap film[26]

通过纹影法，利用丙酮从竖直下降皂膜的解吸过程，沙勇[26]第一次观察到了微米级厚度皂膜中由于传质引发的Marangoni对流纹影图像，如图1所示，显示Marangoni对流呈现出竖直排列的滚筒状结构。利用投影法，江桂仙[27]研究了多种双组分溶液挥发过程气液相界面所引发的Marangoni对流。陈虹伶[28]通过实验观测了水平方向上不同双组分体系液滴在气液相界面出现的 Marangoni 对流如图2所示，实验结果显示不同体系的对流结构有所差别，而在同一体系下，直径和浓度都会对界面的对流结构产生影响。



(a) 异丙醇-水体系 (b)丙酮-水体系

图 2水平面液滴界面 Marangoni 对流结构[28]

Fig. 2 Marangoni convection at the interface in the horizontal plane[28]

与纹影法相比，投影法的设备条件及操作较为简单，但是，它针对的是整幅图像的投影，不能反映内部物体的运动，而纹影法的成像对比度小是其最大的缺点，且需要专门的纹影仪设备，价格昂贵，但它的操作简单，灵敏度较高，因此在流体力学观测上应用更加广泛。

**2.2 间接测量法**

在传递过程中引发的 Marangoni 对流可以加快表面更新并促进溶质向主体的渗透，对传递过程有着极大的增强作用。在传递过程中Marangoni 对流发生时，传递系数会明显的高于只依赖扩散机理作用时的传递系数，因此根据观测传递系数的改变情况，就可以间接地判断Marangoni对流的发生与否。

沙勇等[29]研究了湿壁塔中乙醚解吸过程中Marangoni 效应对传质的影响。研究表明，相比不考虑 Marangoni 效应的扩散传质而言，Marangoni 对流的发生显著的增强了液相传质系数。并且引入增强因子*F*，通过计算*F*即可以间接的衡量Marangoni 效应对传质效果的强化程度，进一步的实验数据拟合结果显示增强因子*F*和*Ma*数之间具有幂函数关系。周超凡[30]等建立了一套气液传质设备，同样引入增强因子*F*，证实了Marangoni效应极大促进了传质效率，关联得到液相*Sh*、*Ma*和*Re*之间的关系为。刘长旭等[31]采用纹影仪，对乙醇水溶液解吸过程中界面湍动做了定性观察和定量分析，观测了传质过程中的Marangoni对流结构，表明局部较大的张力梯度是引发界面湍动的主因。这种定量分析较单一的定性观察更实用，为进一步对界面湍动现象的分析提供了帮助。于海路[32]采用纹影仪系统定性观察和定量分析了乙醇解吸CO2过程中所产生的对流结构，其中，定性观察到了界面处旋涡状的Marangoni对流结构，而定量的结果指出位于对流胞型的边界和中间的界面张力梯度，促成了界面流体的环流流动，而这样的环流运动导致了对流胞型边缘浓度比内部浓度大，更新了近界层流体，从而增强了气液传质。

工业化工传质设备中，液液或者气液两相是通过一定的介质相互接触的，所以研究填充介质设备中Marangoni 效应对传质的影响，更具有实际意义。Post 等[33]提出了一种新颖的实验方法，建立了两套分别以平面间隙板和球形颗粒为填充物的装置，在研究异丙醇水溶液的蒸发过程中，探讨界面湍动、填充物间隙宽度、颗粒直径大小对气液传质的影响。他们在一维计算模型的基础上，最终得出Marangoni 效应作用下的增强因子关联式：对于填充物为平面间隙板来说，，而为球形颗粒填充物时，。

**2.3 Marangoni对流的理论分析**

显然，Marangoni对传质有着重大的影响，对其微观机理的认识更能加深对传质过程的理解，而单纯的采用实验手段是无法详细说明微观上的不稳定性，也无法完整地了解Marangoni效应的实质，这时借助理论方法显得至关紧要。对Marangoni效应的理论研究主要集中在线性稳定性和非线性不稳定性分析上。

因为Marangoni现象的本质是非线性的，故对其直接采用数学分析是很难行得通的。许多学者采用小扰动分析的线性理论忽略方程中的非线性项，对其进行合理的简化，由此将其进行线性化表述，这样就大大降低了求解的复杂性。

Pearson[34]较早的使用线性稳定性分析理论研究加热薄液层下的 Marangoni效应，研究了表面张力引发下的胞状对流运动情况，分析了Marangoni 对流出现的临界数；Brian[35]在Pearson的基础上，引入了Gibbs吸附层的影响，结果表明 Brian的边界条件更为接近实际情况，其研究成果也被许多研究者采用，但后来一些研究者的实验结果还是指出了由于其理论分析过于简化而存在的偏差。近年来，一些研究者取得了越来越接近实际的理论分析结果。Isa[36]通过下部加热、上部冷却水平流体层的方式，对线性稳定性分析做了详细的研究，分析了温度、磁场等参数对Marangoni对流作用的影响。Hoyas[37]对平板上薄液膜的Marangoni不稳定流动情况进行了线性稳定性分析，考察了重力和Bond数等几何参数对Marangoni问题的线性稳定性的影响，获得的结论与一些报道的实验结果一致。

但是Marangoni对流的线性化表述并不适合所有的情况，在 Marangoni 超临界点区域，此时线性理论不能很好地解释实验现象，数学模型中的非线性项就需要得到考虑。Kang等[38]基于非线性理论分析方法，在忽略表面扩散和考虑Gibbs吸附影响下，得出一组新的稳定性方程，发现通过减小施密特数和毕渥数，液体层变得更稳定。Simanovskii[39]研究了在浮力和热毛细效应存在下的多层系统中震荡不稳定性的非线性发展，通过有限差分法研究对流状态，结果表明，震荡具有不对称性，且其不稳定性的发展导致特定类型的非线性震荡，非线性震荡区域从下往上都会受到Grashof数的影响。尽管还没有对Marangoni效应的理论进行充分的研究，将目前理论研究的成果与实际情况对照，仍然可以得到大量的有用信息，并对深入研究Marangoni效应下复杂流体流动和传质传热研究奠定基础。

**2.4 Marangoni对流的流体力学模拟计算**

如果非平衡限制条件能够引发界面湍动的时候，应用理论分析的方法研究Marangoni现象就会有一定的偏差，并且对于Marangoni现象在数学上进行详尽的线性、非线性分析是十分困难的，所以数值模拟得到了研究者的关注。

“传质过程中的 Marangoni 对流本质上是一种动量和质量传递过程耦合的流体流动现象，数值模拟可以避免目前实验观测和理论求解的困难，提供了获取 Marangoni 流场信息的可能性”[40]。

在无重力或者微重力的条件下，许多研究小组[41-44]利用有限元数值模拟考差了Marangoni对流对液体稳定性及外形的影响。计算流体力学的发展也为研究者提供了不同的方法来研究不同场合下的Marangoni对流。Wang等[45]运用水平集方法，模拟了单液滴与不混溶液体间的传质过程，结果表明溶质浓度足够高时会引发Marangoni效应的发生，相间传质增强，结果与实验数据一致。Chen等[46]基于格子波尔兹曼方法，并提出了固定扰动和自再生界面两种模型，用于气液传质过程中Marangoni对流的模拟，模拟的结果与之前实验的数据具有很好的一致性。朱明[47]利用VOF模型模拟降膜流动过程，考虑了Marangoni效应对传质的影响引入Marangoni作用力以更好地描述气液两相的传质过程。Javadi[48]则模拟了在液滴内添加表面活性剂所引发Marangoni对流，模拟结果与实验结果的对比显示实验引发Marangoni对流的时间比模拟情况下要晚10s左右，进一步的分析表明延迟可能是由于实际过程中界面的波动防止了界面吸收层的建立抑制了Marangoni对流的引发。

对 Marangoni 效应数值模拟的研究使得人们进一步了解 Marangoni 现象，尤其是Marangoni引发之后的发展过程，及其对传质的影响。数值模拟Marangoni对流可以避开复杂复杂的传递微分方程组的困难，并且可以人为引入相应的边界条件，对于了解问题的本质同理论方法并没有不同，可反映较为真实的伴有Marangoni对流的传递过程。另外，迅速发展的计算流体力学，使得通过模拟计算求解非线性问题的数值解变的可能，所以结合它的技术进展，利用数值模拟研究Marangoni效应将成为一个重要途径和趋势。

**3 液液传质过程中的Marangoni对流**

液液传质过程广泛存在于萃取、精馏等实际工业传质设备中，如何提高它们的效率是人们一直关心的问题，而Marangoni效应对液液传质过程的影响也已经得到越来越多的重视。

**3.1 液液系统中Marangoni对流**

在萃取、精馏等液液传质过程中，广泛存在着以液滴为分散相的两相流传质过程，并时常伴有界面湍动现象的发生。因此，研究单液滴与连续相的传质过程，是研究液液传质系统中Marangoni效应的出发点。

Lode等[49]采用摄像技术，来测量单液滴形成后的传质速率，发现界面湍动发生的情况下明显高于稳定系统的预测结果。陆平等[50]以醋酸为溶质，在MIBK-醋酸-水体系中研究了静止单液滴内，溶质在分散相与连续相中扩散时，界面湍动的发生对传质的增强作用。他们发现，溶质浓度越大，界面对流越激烈，Marangoni效应对传质系数的增强效果也越明显，且液滴形成时间也越短。Wegener等[51]运动3D模拟手段，考察了液滴直径、运动黏度比和界面张力梯度等一系列参数对Marangoni效应引发界面流动下的单液滴传质的影响。

对于运动的液滴，Steiner等[52]在水-甲苯-丙酮体系中，考查了丙酮液滴传质方向的情况，发现界面湍动对传质有显著的增强作用，且溶剂纯度越高，对传质增强的效果越高。同时传质方向很大程度上影响了界面湍动对传质的增强作用，如果丙酮从甲苯向水中传递，传质速率较高。Engberg[53-55]等近年来较为系统的通过数值模拟及实验验证了Marangoni效应对有机相单液滴在静止的水相中上升过程的影响，比较了两种结果下的液滴形状、上升速度和轨迹，结果表明，无论是利用虚拟流方法还是连续表面力方法，模拟液滴形状及上升速度的结果都基本上符合实验研究及文献报道的结果。他们进一步分析了模拟与实验结果的差异主要是传质中网格分辨率的不足，有望在将来在数值模拟中获得进一步更有价值的见解。

总结来说，对于含有液滴的液液传质，界面湍动的存在一般可使宏观平均传质系数增大数倍，明显的促进了传质。深入研究和利用界面湍动，对于工业设备中要求较高传递速率的传质过程，具有很大的实际意义。

**3.2表面活性剂对液液萃取体系Marangoni效应的影响**

单液滴的传质，是研究液-液分散体系质量传递的基本出发点，实际工业过程中，可以有意识的加入表面活性剂，表面活性剂的存在可以抑制或者促进Marangoni效应的发生。Arendt等[56]发现在甲苯-丙酮-水体系中表面活性剂在界面上形成了单分子膜，从而减弱了界面不稳定性增加了界面的阻力抑制了界面对流。Wegener[57]等研究了在甲苯-丙酮-水系统中Marangoni不稳定存在时，可溶性离子型表面活性剂十二烷基硫酸钠（SDS）对甲苯液滴上升速度及传质的影响。测量结果显示，即使表面活性剂SDS加量很少，液滴上升速度仍较不加SDS时低。并且当SDS浓度较高时，界面运动就会收到阻碍。传统观点认为，由于少量的表面活性剂在相际界面产生附加的表面层，减弱或者消除了Marangoni效应，使得传质效率降低。所以，大多数的研究认为表面活性剂在萃取过程中的存在，对传质过程会造成不利影响。但有文献报道，在某些系统中加入表面活性剂时，会增强或者促使Marangoni对流的产生。Agble等[58]观测了6种表面活性剂对水油两相界面不稳定性的影响，发现离子型表面活性剂容易促进Marangoni效应，而非离子型表面活性剂对界面对流无影响或有负面影响。王智慧[59]发现离子型和非离子型表面活性剂在浓度较低时都会抑制溶质界面对流；然而当SDS浓度较高时，会引发液滴的震荡行为并伴随强烈的Marangoni效应，传质系数强化因子高达3.37~6.3；而非离子型表面活性剂（TritionX-100）的浓度提高到0.5g/L时，会引发一种烟状流动，而且未观测到液滴震荡。所以说表面活性剂对液液萃取体系的影响，早就成为重要的课题之一，利用表面活性剂增强或削弱Marangoni对流也已经成为工业上常用的方法。

**4气液传质过程中的Marangoni对流**

相比于液液传质系统，由于很难精确测定气液传质过程中的近界面性质，Marangoni 效应对于气液传质系统的研究不够深入，需要进一步的研究，现有的少量对于气液传质系统的研究也为今后的研究提供了可借鉴的方法和方向。

**4.1气液传质过程中Marangoni对流的定性定量分析**

由于气液传质过程中发生的界面湍动在临近界面处发生，其浓度场和速度场难以测量，目前报道中多利用纹影法、投影法、干涉法等光学测试手段，对其湍动形态进行观察，为了解界面湍动提供直接视觉证据。沙勇等[60]采用点光源发出的发散光投影成像，在异丙醇和丙酮水溶液挥发过程中，获取了界面湍动区域的涡流和羽状结构的投影图像。于海路[61]搭建了一套纹影系统，对乙醇-CO2的解吸过程中在近界面处引发的Marangoni对流结构进行了观察，获得了较为清晰的近界面对流图像，体现为均匀分布的旋涡状的结构，并随时间聚合尺度逐渐变大。对于气液传质过程中出现的Marangoni界面对流，目前的实验研究均基于平坦界面条件，研究气液传质过程中单液滴界面的Marangoni对流，将有助于探讨Marangoni对流的发生机理及其实际应用。林晗丹等[62]通过氮气吹扫双组分液滴，用激光投影法定性观察结果表明，轻组分的挥发导致了液滴界面Marangoni对流的出现，具体表现为小尺度的涡流结构和大尺度的对称循环流动结构。

目前用定量的方法研究气液界面对流的报道还很少，大多数处于定性的观察，以此获得直观的视觉图像。可以用无量纲Marangoni数来表征Marangoni效应的强度，用Sherwood数*Sh*和Marangoni数*Ma*的关联式来表示Marangoni效应和传质系数之间的关系。报道指出，当Marangoni数大于一定的临界值时，传质会被加强效果[63]。式中*n*随 Marangoni 对流胞类型的不同，在 1/3 和1之间变化。Warmuzinski[64]等采用稳定性的线性化理论在乙醇胺水溶液吸收二氧化碳时得到*n*=0.265。Brian等[35]在丙酮从水溶液中解析的实验中得到*n*=0.25，然而在其他物系传质过程中n增加到0.5和1.01之间。周超凡[65]利用4种有机溶剂与氮气的气液传质中得到*n*在0.1~0.6变化。以上工作者得到的定量关系式即有相似又有区别，目前报道中还没有得到一个一致性的定量关系。

**4.2表面活性剂对气液传质体系Marangoni效应的影响**

近年来有文献报道，在某些系统中加入少量表面活性剂时，会增强或者诱发Marangoni对流的产生。因此通过在气液流体表面添加表面活性剂，可以此达到人为控制Marangoni效应发展的目的，很多研究者做了相应的探索。

Lee等[66]通过近浸没边界法和界面扩散假设研究了不可溶的表面活性剂对在微通道内气泡和液滴的影响，结果表明即使很低浓度的表面活性剂也会引起Marangoni效应继而引发界面变形。马友光等[67]在乙醇吸收CO2的传质过程中，利用激光全息干涉技术研究了2种不同的表面活性剂对气液传质的影响，结果显示加入低浓度的十二烷基磺酸钠，传质速率和近界面浓度都减小，总的传质通量必然减小；聚丙烯酸同样降低了传质速率，但能使近界面浓度增加，两个因素共同作用使传质通量增大。这表明可以人为的选用不同的表面活性剂，来调控传质。Alvarez等[68]在鼓泡塔中研究加入了离子型表面活性剂SDS的水溶液吸收CO2过程中发现，当SDS加入浓度低于一定值时，随着SDS的浓度增加，传质会被增强。Still等[69]同样采用离子型表面活性剂SDS，对胶体液滴蒸发的影响做了定量研究，结果表明，SDS的加入诱发了空气­-水界面的Marangoni对流，从而使胶体颗粒的沉积更加均匀。从这些研究可见，表面活性剂对传质过程的影响是一个非常复杂的过程，特别是在利用表面活性剂对气液传质过程进行人为调控时，浓度的影响需要考虑在内。并且由于不同类型的表面活性剂对Marangoni效应的影响不同，有抑制或者强化的作用，为人工调控Marangoni效应提供了一种可能的路径。

**4.3 Marangoni效应与气液有效传质面积**

在气液传质过程中，Marangoni效应一方面对界面处的流体流动形态会产生影响，另一方面也会影响到有效的传质面积，进而影响传质效率。

Pohorecki[70]等测量了用水作溶剂，吸收4种混合物气体体系的有效相界面积，结果显示有效传质面积从大到小依次为正体系、中性体系和负体系。对于气体呈泡沫状态下的气液吸收而言，Marangoni效应会抑制气泡间的聚并，改变了气液相界面积从而影响气液传质。张志炳[71]发现在鼓泡状态下，正体系中液相表面张力随分浓度的增加而减小，这阻止了气泡聚并，因而有效传质面积增大。对于负体系，鼓泡层中容易产生不稳定的大气泡，气泡的聚并倾向会使有效传质面积下降，气液传质效果下降。邹华生[72]在研究添加剂对鼓泡塔中传质性能的影响时指出，在小浓度范围内，正辛醇的加入能够阻碍气泡的聚并并诱发了界面湍动的产生，从而增加了气液相界面积，传质过程得到强化，但当正辛醇的浓度增加到一定程度时，随着它的加入，界面面积和传质都会受到相反的影响。Wu等[73]讨论了界面现象对三乙二醇和溴化锂溶液吸收水蒸气传质性能的影响，研究指出，填料润湿面积受到界面扰动的影响，从而影响传质性能。其中，填料润湿面积随着三乙二醇溶液浓度和湿度的增加而扩展，表现为Marangoni正效应；而随着溴化锂浓度的浓度和湿度的增加，填料润湿面积收缩，此时传质系数随着溶液浓度的增加而线性增加，表现为Marangoni负效应。所以，Marangoni效应对气液有效传质面积的影响，与表面活性剂对气液传质的影响相类似，会最终表现在传质效率的改变上，并且两者对传质都能起到促进或者阻碍作用，因此在实际工业应用中可以人为的调控其影响，从而达到有效调控传质过程。

**4.4宏观传质设备内的Marangoni对流研究**

相对而言，关于Marangoni效应对传统的气液接触装置传质过程的影响的相关报道较少。这是因为很多研究者觉得Marangoni 对流认为强度较弱，只是存在于界面处，在考虑对实际传质过程的影响时，一般予以忽略，并且早期的一些宏观传质设备内Marangoni效应的研究成果并没有被应用到实际工业过程中，随着人们深入研究传质的微观机理，Marangoni 对流的现实意义得到越来越多的重视，许多研究者也开始关注宏观传质设备内Marangoni 对流的研究。

Proctor 等[74]使用不同尺寸的规整以及不规整填料研究了Marangoni 效应对精馏传质的影响；耿皎研究小组考察了Marangoni效应对规整填料液体流动分布及传质的影响[75-76]，结果表明对纯有机体系，Marangoni效应影响较小，而对有机物的水溶液，它是造成填料润湿差和传质效率下降的主要原因。另外，他们通过多种正体系和负体系精馏实验，还考察了对填料塔中传质过程的影响。研究指出正体系的气相体积总传质系数与组成无关，仅受流量的影响；而对负体系，Marangoni 效应的存在使得气相体积总传质系数沿着液相流动方向逐渐减小。其中沿流动方向，溶液的表面张力逐渐增大，塔内形成正的表面张力梯度的体系为正体系；负体系情况刚好相反。Jia等[73]将乙醇气体加入到CO2中，以增强鼓泡塔中水吸收CO2的程度，发现传质系数随着气相中乙醇浓度的增加呈现驼峰状形式的变化趋势。Marangoni效应的实际应用文献中也做了相应报道，冼爱平[77]较早提出了利用Marangoni运动制备均质的偏晶合金技术，该技术后来被广泛的应用于偏晶合金的制备中。王宝和[78]介绍了一种用于晶片表面新颖的Marangoni干燥技术，可以弥补传统离心甩干法和蒸汽干燥法的不足。这些研究结果表明，在实际的宏观传质设备中，Marangoni 效应的存在对液相的流动和传质效率有着很大的影响，其应用价值值得深入研究。

**5结论与展望**

传质过程中的Marangoni效应，对传质过程具有重要的影响。有必要研究传质过程中的Marangoni界面湍动宏观对流结构，实际观测到的界面湍动对流结构可作为理论分析结果的直接判断依据，用以判断所采用的理论分析方法的可行性。此外，与液液传质系统相比，气液传质系统中Marangoni效应的研究还不够全面，特别是利用数值模拟的方法，所以对气液相际传质过程中的Marangoni效应的研究还是得到了很多研究者的关注，因为这对理论研究和工业应用都具有很大的指导意义。

Marangoni效应涉及了界面现象、传质过程和流体力学的计算等个领域，由于其复杂性，对Marangoni界面湍动及其对传质的定量影响目前认识尚未清晰，原因在于其涉及流体力学、传递过程以及设备等诸多因素，对于各种因素相互作用下的气液或液液复杂传质体系，例如实际工艺条件下的吸收、精馏及萃取过程，目前尚难以准确地预测和描述Marangoni界面湍动现象，因此今后可在实际工艺条件下对Marangoni界面湍动进行深入的实验和理论研究。目前借助于CFD 等现代流体计算学方法，对Marangoni界面的湍动模拟展现了良好的前景，对于简单传质系统的计算结果同实验结果吻合良好，由于CFD方法扩展性好，可以描述复杂传质系统，其应用前景十分广阔。

**符号表**

*Ma* Marangoni数，*Sh* Sherwood数，

界面与主体浓度表征的表面张力差，N·m-1 *Re* Reynolds数，

*d* 液膜厚度，m *Ra* Rayleigh 数，

D 溶质扩散系数，m2·s-1 *Sc* Schmidt 数，

溶剂黏度, Pa·s

**参考文献:**

[1]沙勇,成弘,余国琮. 质量、热量传递过程中的Marangoni效应[J]. 化学进展,2003,01:9-17.

[2]沙勇, 袁希钢, 成弘, 等. 传质过程中的 Rayleigh—Bénard—Marangoni 效应[J]. 化学工程, 2003, 31(5): 8-12.

[3]Thompson J. On certain curious motions observable at the surfaces of wine andother alcoholic liquors [J]. Phil. Mag, 1855, 10(67): 330-335.

[4]Langmuir I, Langmuir D B. The Effect of Monomolecular Films on the Evaporation of Ether Solutions[J]. The Journal of Physical Chemistry, 1927, 31(11): 1719-1731.

[5]Lowenthal M. Tears of strong wine [J]. Phil. Mag, 1931, 12: 462-472.

[6]Sha Y, Ye L. Unordered roll flow patterns of interfacial turbulence and its influence on mass transfer[J]. Journal of chemical engineering of Japan, 2006, 39(3): 267-274.

[7]Linde H, Velarde M G, Wierschem A, et al. Interfacial wave motions due to Marangoni instability[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1997, 188(1): 16-26.

[8]Pertler M, Häberl M, Rommel W, et al. Mass transfer across liquid-phase boundaries[J]. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 1995, 34(3): 269-277.

[9]Sun Z F, Yu K T, Wang S Y, et al. Absorption and desorption of carbon dioxide into and from organic solvents: effects of Rayleigh and Marangoni instability[J]. Industrial & engineering chemistry research, 2002, 41(7): 1905-1913.

[10]Shi Y, Eckert K. Orientation-dependent hydrodynamic instabilities fromchemo-Marangoni cells to large scale interfacial deformations [J]. Chinese Chem.Eng, 2007, 15(5): 748-753.

[11]Changxu L, Aiwu Z, Xigang Y, et al. Experimental study on mass transfer near gas–liquid interface through quantitative Schlieren method[J]. chemical engineering research and design, 2008, 86(2): 201-207.

[12]Okhotsimskii A, Hozawa M. Schlieren visualization of natural convection inbinary gas-liquid systems [J]. Chem. Eng. Sci, 1998, 53(14): 2547-2573.

[13]Agble D, Mendes-Tatsis M A. The effect of surfactants on interfacial mass transfer in binary liquid–liquid systems[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2000, 43(6): 1025-1034.

[14]Bénard H. Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquid [J]. Rerue Gén. Sci.Pures Appl, 1900, 11: 1261-1271.

[15]Zhang N, Chao D F. Mechanisms of convection instability in thin liquid layers induced by evaporation[J]. International communications in heat and mass transfer, 1999, 26(8): 1069-1080.

[16]Mancini H, Maza D. Pattern formation without heating in an evaporative convection experiment[J]. EPL (Europhysics Letters), 2004, 66(6): 812.

[17]Lewis J B, Pratt H R C. Oscillating droplets[J]. Nature, 1953, 171:1155-1156.

[18]Orell A, Westwater J W. Spontaneous interfacial cellular convection accompanying mass transfer: Ethylene glycol‐acetic acid‐ethyl acetate[J]. AIChE Journal, 1962, 8(3): 350-356.

[19]Engberg R F, Wegener M, Kenig E Y. The impact of Marangoni convection on fluid dynamics and mass transfer at deformable single rising droplets–A numerical study[J]. Chemical Engineering Science, 2014, 116: 208-222.

[20]Chen J, Yang C, Mao Z S. The interphase mass transfer in liquid–liquid systems with Marangoni effect[J]. The European Physical Journal Special Topics, 2015, 224(2): 389-399.

[21]Szymczyk J A. Marangoni and buoyant convection in a cylindrical cell under normal gravity[J]. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 1991, 69(6): 1271-1276.

[22]Zhang N, Chao D F. Mechanisms of convection instability in thin liquid layersinduced by evaporation [J]. Int. Comm. Heat Mass Transfer. 1999,26: 1069-1080.

[23]Schwabe D. Marangoni instabilities in small circular containers under microgravity[J]. Experiments in fluids, 2006, 40(6): 942-950.

[24]Shi Y, Eckert K. Orientation-dependent hydrodynamic instabilities from chemo-Marangoni cells to large scale interfacial deformations [J]. Chinese Chem.Eng, 2007, 15(5): 748-753.

[25]沙勇.传质导致的 Rayleigh-Bénard-Marangoni 对流研究 [D]. 天津: 天津大学, 2002.

[26]沙勇, 陈虹伶, 李樟云, 等. 皂膜解吸 Marangoni 对流观察及分析[J]. 2010.

[27]江桂仙.气液界面湍动现象研究[D]. 厦门: 厦门大学, 2010.

[28]陈虹伶.单液滴传质过程界面湍动现象[D]. 厦门: 厦门大学, 2011.

[29]沙勇, 叶李艺. 界面湍动对湿壁塔液相传质系数的影响[J]. 厦门大学学报, 2005, 44(5): 672–674.

[30]周超凡, 余黎明, 曾爱武, 等. 气液界面 Marangoni 效应对传质系数的影响[J]. 高校化学工程学报,2005, 19(4): 433–437.

[31]刘长旭, 曾爱武, 余国琮. 气液界面对流传质的观测与定量分析[J]. 化学工业与工程, 2008, 25(4):283–288.

[32]Hailu Y U, Aiwu Z. 气液传质过程中 Marangoni 对流的观测与定量分析[J]. 化工学报, 2014, 65(10): 3760-3768.

[33]Post S, Urukova I, Tsotsas E. Interfacial convection during evaporation of binary mixtures from porous obstacles[J]. AIChE journal, 2005, 51(12): 3257-3274.

[34]Pearson J R A. On convection cells induced by surface tension[J]. Journal of fluid mechanics, 1958, 4(05): 489-500.

[35]Brian P L T. Effect of Gibbs adsorption on Marangoni instability[J]. AICHE Journal,1971,17:765-772.

[36]Isa S P M, Arifin N M, Nazar R, et al. Effect of non-uniform temperature gradient and magnetic field on onset of Marangoni convection heated from below by a constant heat flux[J]. Applied Mathematics and Mechanics, 2010, 31(7): 797-804.

[37]Hoyas S, Fajardo P, Pérez-Quiles M J. Influence of geometrical parameters on the linear stability of a Bénard-Marangoni problem[J]. Physical Review E, 2016, 93(4): 043105.

[38]Kang K H, Choi C K, Hwang I G. Onset of solutal Marangoni convection in a suddenly desorbing liquid layer[J]. AIChE journal, 2000, 46(1): 15-23.

[39]Simanovskii I B. Nonlinear oscillatory convective regimes in a three-layer system with an inclined temperature gradient[J]. Physical Review E, 2011, 84(1): 016306.

[40]沙勇,江桂仙,叶李艺,等. Marangoni对流数值模拟[J]. 厦门大学学报(自然科学版),2009,01:95-98.

[41]Chun C H. A micro-gravity simulation of the Marangoni convection[J]. Acta Astronautica, 1978, 5(9): 681-686.

[42]唐泽眉, 李家春. 微重力环境下 Marangoni 对流的有限元数值模拟[J]. 力学学报, 1991, 23(2): 149-156.

[43]Zhao J F, Li Z D, Li H X, et al. Thermocapillary migration of deformable bubbles at moderate to large Marangoni number in microgravity[J]. Microgravity Science and Technology, 2010, 22(3): 295-303.

[44]Kawamura H, Nishino K, Matsumoto S, et al. Report on microgravity experiments of Marangoni convection aboard international space station[J]. Journal of Heat Transfer, 2012, 134(3): 031005.

[45]Wang J, Wang Z, Lu P, et al. Numerical simulation of the Marangoni effect on transient mass transfer from single moving deformable drops[J]. AIChE Journal, 2011, 57(10): 2670-2683.

[46]Chen S, Yuan X, Fu B, et al. Simulation of interfacial Marangoni convection in gas-liquid mass transfer by lattice Boltzmann method[J]. Frontiers of Chemical Science and Engineering, 2011, 5(4): 448-454.

[47]朱明. 降膜流动的强化与气液传质的研究[D]. 天津: 天津大学, 2011：20-23.

[48]Javadi A, Karbaschi M, Bastani D, et al. Marangoni instabilities for convective mobile interfaces during drop exchange: experimental study and CFD simulation[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2014, 441: 846-854.

[49]Lode T, Heideger W J. Single drop mass transfer augmented by interfacial instability[J]. Chemical Engineering Science, 1970, 25(6): 1081-1090.

[50]Lu P, Wang Z, Yang C, et al. Experimental investigation and numerical simulation of mass transfer during drop formation[J]. Chemical Engineering Science, 2010, 65(20): 5517-5526.

[51]Wegener M. A numerical parameter study on the impact of Marangoni convection on the mass transfer at buoyancy-driven single droplets[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2014, 71: 769-778.

[52]Steiner L, Oezdemir G, Hartland S. Single-drop mass transfer in the water-toluene-acetone system[J]. Industrial & engineering chemistry research, 1990, 29(7): 1313-1318.

[53]Engberg R F, Kenig E Y. Numerical simulation of rising droplets in liquid–liquid systems: A comparison of continuous and sharp interfacial force models[J]. International Journal of Heat and Fluid Flow, 2014, 50: 16-26.

[54]Engberg R F, Wegener M, Kenig E Y. The influence of Marangoni convection on fluid dynamics of oscillating single rising droplets[J]. Chemical Engineering Science, 2014, 117: 114-124.

[55]Engberg R F, Wegener M, Kenig E Y. The impact of Marangoni convection on fluid dynamics and mass transfer at deformable single rising droplets–A numerical study[J]. Chemical Engineering Science, 2014, 116: 208-222.

[56]Arendt B, Eggers R. Interaction of Marangoni convection with mass transfer effects at droplets[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2007, 50(13): 2805-2815.

[57]Wegener M, Paschedag A R. The effect of soluble anionic surfactants on rise velocity and mass transfer at single droplets in systems with Marangoni instabilities[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2012, 55(5): 1561-1573.

[58]Agble D, Mendes-Tatsis M A. The effect of surfactants on interfacial mass transfer in binary liquid–liquid systems[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2000, 43(6): 1025-1034.

[59]Wang Z, Lu P, Zhang G, et al. Experimental investigation of Marangoni effect in 1-hexanol/water system[J]. Chemical engineering science, 2011, 66(12): 2883-2887.

[60]沙勇,李樟云,林芬芬,等. 气液传质界面湍动现象投影观察[J]. 化工学报,2010,04:844-847.

[61]Hailu Y U, Aiwu Z. 气液传质过程中 Marangoni 对流的观测与定量分析[J]. 化工学报, 2014, 65(10): 3760-3768.

[62]林晗丹,焦放健,余光雄, 等.气液传质液滴界面的Marangoni对流[J].化工学报,2013,64(8):2846-2852.

[63]Sha Y, Cheng H, Yu Y H. The numerical analysis of the gas-liquid absorption process accompanied by Rayleigh convection[J]. Chinese Journal of Chemical Engineering, 2002, 10(5): 539-544.

[64]Warmuziński K, Buzek J. A model of cellular convection during absorption accompanied by chemical reaction[J]. Chemical engineering science, 1990, 45(1): 243-254.

[65]周超凡. Marangoni效应与其他因素对传质系数影响的研究[D].天津大学,2005.

[66]Lee J, Pozrikidis C. Effect of surfactants on the deformation of drops and bubbles in Navier–Stokes flow[J]. Computers & fluids, 2006, 35(1): 43-60.

[67]马友光,汪晓红,成弘,等. 表面活性剂对气液传质的影响[J].化工学报,1998,03:358-361.

[68]Álvarez E, Gómez-Díaz D, Navaza J M, et al. Continuous removal of carbon dioxide by absorption employing a bubble column[J]. Chemical Engineering Journal, 2008, 137(2): 251-256.

[69]Still T, Yunker P J, Yodh A G. Surfactant-induced Marangoni eddies alter the coffee-rings of evaporating colloidal drops[J]. Langmuir, 2012, 28(11): 4984-4988.

[70]Pohorecki R, Kruszewski J, Duczmol B.The Influence of Surface Phenomena on the Interfacial Area during Absorption/Desorption on a Sieve Plate .IChemE. Symp. Ser , 1992, 128: A69-75.

[71]张志炳, 耿皎, 张锋, 等. Marangoni 效应与汽液传质过程[J]. 化工学报, 2003, 4.

[72]邹华生, 黄晨, 程小平. 超声场与添加剂对鼓泡塔中传质性能的影响[J]. 高校化学工程学报, 2013, 27(4): 567-572.

[73]Wu H. Effect of interfacial phenomena on mass transfer performance of an absorber packed closely with cylindrical packing[J]. Chemical Engineering Journal, 2014, 240: 74-81.

[74]Proctor S J, Biddulph M W, Krishnamurthy K R. Effects of Marangoni surface tension forces on modern distillation packings[J]. AIChE journal, 1998, 44(4): 831-835.

[75]耿皎, 洪梅, 肖剑, 等. 规整填料塔精馏的 Marangoni 效应[J].化工学报, 2002, 53(6): 600–606.

[76]耿皎, 洪梅, 张锋, 等. Marangoni 效应对填料塔精馏传质过程的影响[J]. 化学工程, 2003, 31(2): 7-12.

[77]Jia X, Hu W, Yuan X, et al. Influence of the Addition of Ethanol to the Gas Phase on CO2 Absorption in a Bubble Column[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2014, 53(24): 10216-10224.

[78]冼爱平, 张修睦, 李忠玉, 等. 利用 Marangoni 对流制备均质偏晶合金[J]. 金属学报, 1996, 32(2): 113-119.

[79]王宝和. MARANGONI 干燥技术[J]. 干燥技术与设备, 2009, 7(1): 3-6.

**Marangoni Interfacial Turbulence Phenomena duringMass Transfer**

WANG Zhenfeng, ZHONG Yixing, SHA Yong\*

（College of Chemistry and Chemical Engineering, Xiamen University, Xiamen 361005, China）

**Abstract：**Theinterface turbulenceinduced by Marangoni in the mass transfer process can promote the interface renewal and affect the mass transfer area, which will have important influence on the mass transfer process. In this paper, the research on the related fields of theinterface turbulence induced by Marangoniin the process of gas-liquid and liquid-liquid mass transfer was carried out, and the results of experimental observation, theory and numerical simulation of Marangoni interface turbulence were systematically summarized and forecasted.

**Key words：**Marangoni convection; mass transfer; experimental observation; numerical simulation; surface tension