

DOI:10.13364/j.issn.1672-6510.20180189

## 微米级液滴撞击低温球形颗粒的涂覆冻结

武秀胜<sup>1</sup>, 徐庆<sup>1,2</sup>, 王瑞芳<sup>1,2</sup>, 李占勇<sup>1,2</sup>

(1. 天津市轻工与食品工程机械装备集成设计与在线监控重点实验室, 天津科技大学机械工程学院, 天津 300222;  
2. 天津市低碳绿色过程装备国际联合研究中心, 天津 300222)

**摘要:** 对微米级液滴撞击低温球形表面的动态行为进行了可视化实验. 研究了液滴直径、球面温度等因素对微米级液滴撞击过程的影响及液滴撞击直径 3 mm 和 5 mm 金属钢球的冻结过程. 当实验球面温度分别为  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  和  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  时, 液滴撞击低温金属钢球表面时液滴铺展后迅速回缩成塔形状然后缓慢的铺展直至稳定状态, 与常温状态下相比, 液滴形态没有明显的振荡过程. 结果表明: 撞击速度越大, 液滴具有的初始动能越大, 液膜最大铺展弧长越大. 随着载体颗粒直径的增加, 液膜最大铺展弧长也随之增加, 液膜的厚度却随载体颗粒直径的增加而减小; 随着液滴直径的增加, 液膜铺展弧长及液膜厚度都随之增加. 通过实验数据统计分析可知, 环境温度的显著水平最高, 然后依次为液滴直径、载体颗粒直径.

**关键词:** 喷雾冷冻干燥; 单液滴; 撞击; 球形颗粒; 涂覆

中图分类号: TQ051 文献标志码: A 文章编号: 1672-6510(2019)03-0043-06

## Impact of Coating Droplet on Low Temperature Spherical Particles

WU Xiusheng<sup>1</sup>, XU Qing<sup>1,2</sup>, WANG Ruifang<sup>1,2</sup>, LI Zhanyong<sup>1,2</sup>

(1. Tianjin Key Laboratory of Integrated Design and On-line Monitoring for Light Industry & Food Machinery and Equipment, College of Mechanical Engineering, Tianjin University of Science & Technology, Tianjin 300222, China; 2. Tianjin International Joint Research and Development Center of Low-Carbon Green Process Equipment, Tianjin 300222, China)

**Abstract:** In this research, a visual experiment of the dynamic behavior of microsphere droplets impacting cryogenic spherical surfaces was performed. The influence of droplet diameter, spherical temperature and other factors on the impact process of micron droplets and the freezing process of droplets impacting metal balls of 3 mm and 5 mm diameters were studied. When the droplet impacted the surface of a metal ball of the spherical temperature at  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  and  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ , the droplet quickly retracted into a tower shape and spread slowly until it reached a stable state. Compared with that at room temperature, there is no obvious oscillation in the morphology of the droplet. The results show that the larger the impact velocity, the larger the initial kinetic energy of the droplet, the larger the maximum spreading arc length, and the larger the arc length of the liquid film; while with the increase of the carrier particle diameter, the thickness of the liquid film decreases and the maximum spreading arc length of the film increased. With the increase of the droplet diameter, the spreading arc length of the liquid film and the thickness of the liquid film both increased. Statistical analysis of the experimental data shows that the most influential factor is environmental temperature, followed by droplet diameter and carrier particle diameter.

**Key words:** spray freeze drying; single droplet; impact; spherical particles; coating

喷雾冷冻干燥 (spray-freeze drying, SFD) 是近几年来开发的一种新型的工程技术, 可以生产独特的粉

收稿日期: 2018-06-19; 修回日期: 2018-10-24

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (31571906, 21506163)

作者简介: 武秀胜 (1994—), 男, 山西人, 硕士研究生; 通信作者: 李占勇, 教授, zyli@tust.edu.cn

末状产品,同时还包括常规冷冻干燥产品的优点,主要用于奶粉、药物蛋白、卵清蛋白、流感疫苗<sup>[1-4]</sup>等高附加值热敏性产品的制备.为了解决粉体的团聚、粉体颗粒尺寸不均匀等现象,进一步提高喷雾冷冻干燥技术在工程实际中的应用,实现批量生产,李占勇等<sup>[5]</sup>设计了一种惰性粒子流化床喷雾冷冻干燥设备,即在密闭的流化床内引入惰性粒子作为流化载体,同时这类载体颗粒也可作为最终产品的添加剂使用,在封闭的流化床内雾化液滴在处于低温且流化状态的载体颗粒上进行冻结、升华干燥和剥离等操作.由于整个干燥过程处于密闭的系统下操作,所有步骤都在同一个设备中连续的操作,避免了污染环境,通过这种方法可以实现料液食品和含药性成分的溶液一步干燥成粉体产品,无需二次加工;而且,设备结构简便、操作过程方便快捷、能够实现设备的一体化.液滴在载体上的涂覆效果是影响该过程最终产品的颗粒结构的重要因素,因此研究液滴撞击低温载体颗粒表面动力学行为,进而作为以后设备工程化应用的理论指导. Bakshi 等<sup>[6]</sup>通过实验研究了单液滴撞击干燥球形表面的过程,从实验和理论方面研究了液滴撞击球面时液膜厚度的变化过程.通过对实验图像的分析可以得出结论:液滴撞击过程液膜的形态变化可以分为三个阶段,分别为液膜初始快速铺展阶段、惯性力主导阶段和表面应力和黏性力主导的阶段; Walford 等<sup>[7]</sup>详细研究了空气中微小液滴的冻结机理,实验是将水滴轻轻地落在冷铜表面,冻结形成冰的尖塔状颗粒,得出液滴冻结过程中固液界面处剪切牵引力与水平的冷表面平行,冰珠的黏性力在 $-22\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的情况下达到最大值. Hu 等<sup>[8]</sup>实验研究结冰的小水滴的非稳态传热和相变过程,以阐明结冰现象的重要微观物理过程.实验采用基于分子的寿命标记法(MTT)技术的开发和实施,得出成液态的小水滴的平均温度在不断增加,而不是减少.

这些研究中大多是对毫米级的液滴在撞击低温壁面过程中的动力学行为,很少涉及微米级液滴的碰撞问题,且液滴与壁面的撞击现象多涉及平面,很少涉及曲面的碰撞现象,因此本文主要研究在颗粒表面低温状态下( $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ )雾化液滴(240、400、600  $\mu\text{m}$ )撞击低温球形颗粒过程中液膜的铺展等动力学行为,其中载体颗粒的尺寸为 3 mm、5 mm. 通过研究液滴在载体颗粒的涂覆现象对制备表面具有多孔结构的粉体颗粒提高粉体的速溶性和尺寸均匀性具有重大意义.

## 1 材料及方法

### 1.1 实验材料

采用的料液为黏度较大的普鲁兰溶液作为液滴材料.普鲁兰多糖作为新增 4 种食品添加剂产品之一,结构上极富有弹性,溶解度比较大,而且成膜性、可塑性、黏性均较强,因此广泛被应用于医药、食品、轻工、化工和石油等领域.实验使用蒸馏水溶解普鲁兰多糖配成质量分数分别为 5%、10%、15%、20% 的普鲁兰多糖溶液,用黏度计(DV-III型,美国博力飞公司)测得其黏度<sup>[9]</sup>.质量分数为 20% 溶液黏度为 0.908 Pa·s,该黏度已接近喷雾极限,因此质量分数为 20% 的溶液并无研究意义;质量分数为 5%、10% 的溶液黏度分别为 0.052 8 Pa·s、0.143 5 Pa·s,但由于其中的普鲁兰多糖含量较少,干燥等量的糖需消耗更多能源.因此,本文采用质量分数为 15% 的普鲁兰多糖溶液,其黏度为 0.221 5 Pa·s.

### 1.2 实验仪器与设备

如图 1 所示,实验装置主要有液滴产生装置、图像采集所用的计算机、高速摄像机、不锈钢球及其配套支撑架、照明灯、在线式红外线测温仪和制冷冰柜.

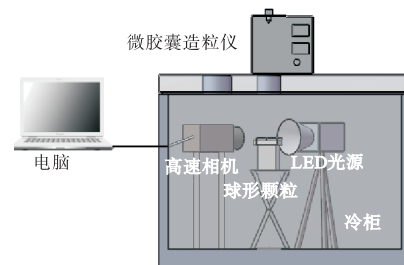


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 The diagram of experimental device

#### 1.2.1 液滴发生装置

微米级液滴是由微胶囊造粒仪(B-395Pro型,瑞士BUCHI公司)产生的,它利用层流液体喷射并加以高频率振动,制造出极其均匀的圆形微颗粒,如图2所示.该设备生成的球形液滴粒径可以根据喷嘴的选择预先设定,范围为0.15~2 mm,粒径分布窄(<5%标准偏差).液滴产生后具有一定动能,并竖直下落撞击在颗粒表面.本实验选用液滴直径( $d_L$ )分别为240、400、600  $\mu\text{m}$ ,液滴出口温度为室温,喷嘴流量为8 mL/min.

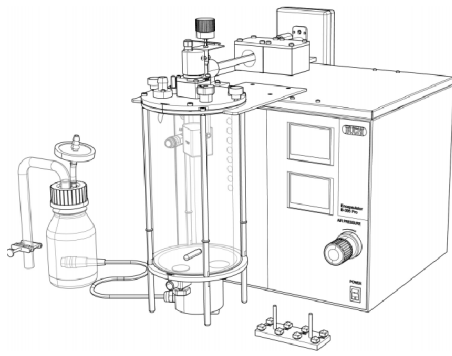


图2 微胶囊造粒仪

Fig. 2 Microcapsule granulator

### 1.2.2 制冷调控装置

本文研究雾化的液滴撞击球面温度( $T$ )为 $-20$ 、 $-30$  °C的颗粒的碰撞过程。为满足实验要求,利用冷柜(DW-60W156型,海尔公司)作为制冷装置。冷柜的内部尺寸为长100 cm、宽70 cm、高60 cm;温度检测装置采用在线式红外线测温仪(DT-380型,东美公司)。

### 1.2.3 高速摄像装置

实验是通过高速摄像机记录液滴的碰撞过程,并对其进行数据分析,从而揭示液滴碰撞过程中动力学行为。拍摄采用高速摄像机(SA3系列,日本Phtron公司)搭配Tokina微距镜头(100 mm,  $f=2.8$ )。为了获得的照片具有良好的清晰度,全面的记录液滴运动过程,在实验过程中将拍摄速度定位5000帧/秒,图像为1024像素 $\times$ 512像素,摄像机和被拍摄的颗粒在同一个水平面上。为了清楚地拍摄整个撞击过程的液滴运动状态,采用背光法拍摄,照明光源由60 W的LED摄影灯提供,在光源和撞击球面之间设有柔光罩。采用低照度的光源避免背光拍摄过程中对相机的损害,同时采用柔光罩可以柔化强光使光线均匀平行地投射在球面上。

### 1.3 实验方法

由于整个实验过程都是在冷柜中完成,为了提高效率保证实验环境温度恒定,在实验开始前选取10颗等直径钢球放置在长20 cm、宽2.5 cm、高0.8 cm的铝板上(铝板上10个手工开凿的圆形凹槽,凹槽直径为2 mm,深度为1 mm,相邻凹槽的间距为2 cm)。将铝板放置在中间开槽矩形铝管中,且可以自由滑动,使得雾化液滴通过槽的间隙撞击在钢球表面而且不影响其他钢球的撞击涂覆。移动铝板,使铝板上第一个钢球与铝管槽、喷嘴三者保持同一直线,打开液滴产生装置,并用高速摄像机记录,调节升降

台,使喷嘴与钢球球心距离为50 cm,移动铝板,对下一刻钢球重复实验,依此顺序记录10次钢球表面的碰撞行为。

### 1.4 数据处理

以液膜的厚度及铺展弧长描述液滴在碰撞过程中的形态变化。图像处理采用Matlab软件,首先对图像进行灰度处理,提取图像中液膜与钢球边界,然后对钢球轮廓进行拟合。钢球的直径是定值,以钢球为参照物进行标定,然后采用图3所示的处理过程可以得出液膜厚度和铺展弧长。



图3 Matlab图像处理过程

Fig. 3 Matlab image processing process

定义液膜厚度为 $H$ ,液膜顶点到圆心的距离为 $L$ , $R$ 为涂覆球面半径,则液膜的厚度

$$H = L - R \quad (1)$$

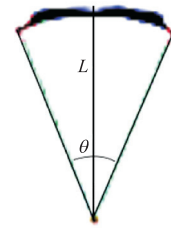


图4 液膜示意图

Fig. 4 Diagram of liquid film

如图4所示通过像素扫描可得液膜的边界定点位置,将两定点与圆心连接可得到两条连线之间的夹角 $\theta$ ,则液膜铺展弧长为

$$A = \theta \times R / L \quad (2)$$

定义颗粒的周长为 $C$ ,则液膜铺展弧长占颗粒周长比

$$\alpha = \frac{A}{C} \times 100\% \quad (3)$$

定义液膜厚度占颗粒半径比

$$\beta = \frac{H}{R} \times 100\% \quad (4)$$

## 2 结果与讨论

### 2.1 液滴碰撞过程

在球面温度为 $-30$  °C时,直径为600  $\mu\text{m}$ 的液滴撞击在直径为5 mm的钢球表面,液膜在2.6 ms的时

间范围内的形态变化过程如图 5 所示. 对比图 3 发现液滴撞击位置略有不同, 这是由于液滴粒径较小, 进入冷柜后, 在冷气流影响下, 发生偏移, 导致撞击位置发生偏差, 但实验图像与对心撞击位置偏移较小, 故忽略此误差影响, 并且可以看出液膜呈现厚度逐渐增加、对应弧长逐渐减小的趋势. 根据 Mitra 等<sup>[10]</sup>的实验可知, 在常温状态下液滴由铺展状态到恢复稳定状态大约需要 15 ms. 随着球面温度降低, 固体表面的黏性力增加, 在碰撞过程中液滴的表面张力也随之增大, 从而在液滴铺展和回缩阶段阻止液滴运动的阻力也随之增大. 因此, 液滴在过冷表面的运动时间与常温状态相比也会大大缩减.

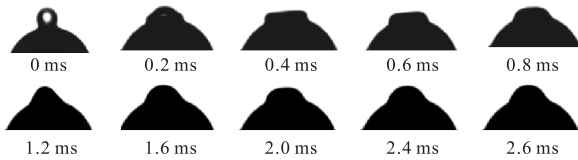


图 5 液滴撞击过程液膜的形态变化实验图像

Fig. 5 Snapshot of morphological changes of liquid film during droplet impacting process

## 2.2 过程参数对液膜形态的影响

### 2.2.1 液滴直径对液膜形态的影响

选取液滴直径为 240、400、600  $\mu\text{m}$  的液滴进行碰撞实验, 碰撞过程中的液膜厚度和  $\alpha$  变化分别见图 6 和图 7.

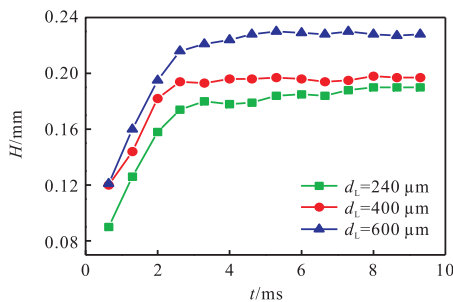


图 6 球面温度为  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  时, 不同直径液滴撞击 5 mm 球形颗粒过程中的液膜厚度变化

Fig. 6 Impacting effect of droplets of different diameters on the thickness of liquid film impacting on 5 mm spherical particles with spherical temperature of  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$

由图 6 可知: 在球面温度为  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  时, 在  $t = 0\text{ ms}$  时, 液滴开始接触钢球, 并开始铺展,  $t = 0.5\text{ ms}$  时铺展到最大, 此时液膜厚度最小, 随后液膜厚度呈现先急剧增加, 然后趋缓, 最后趋于稳定的状态. 这与文献描述的常温下液滴的碰撞过程有很大不同: 在常温下的液滴碰撞过程中, 由于受到惯性力、黏性力、表

面应力的相互作用, 液滴形态变化有明显的回缩和振荡过程; 然而, 在低温状态下液滴撞击球面过程中, 由于受球面温度的影响, 液滴在过冷表面铺展的瞬间液膜与固体表面交界面被冻结形成冰膜, 冰膜的表面应力和黏性力都急剧增加, 从而阻碍液滴运动. 具体过程是, 初始阶段的液滴在惯性力的主导下迅速铺展, 然后在表面应力和弹性势能的作用下逐渐回缩直至稳定. 液滴内部的弹性势能由于受到较大黏性力的影响很快转化为耗散能<sup>[11]</sup>, 因此低温状态下液滴的碰撞过程没有明显的振荡过程, 且冰膜形成后冰核逐渐增大, 水-冰界面逐渐向上推移直至整个液膜被冻结<sup>[12]</sup>. 如图 6 所示, 随着液滴直径的增大液膜厚度也随之增加.

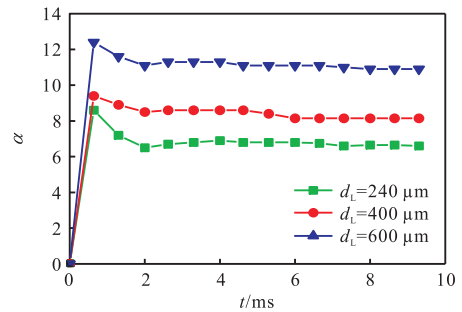


图 7 球面温度为  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  时, 不同直径液滴撞击 5 mm 球形颗粒过程中的  $\alpha$  变化

Fig. 7 Variation of  $\alpha$  with time and the droplets impingement on 5 mm spherical particles of different diameters at the temperature of  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$

由图 7 可知: 在碰撞初始阶段瞬间铺展到最大值, 其最大铺展弧长随着液滴直径的增加而增加. 液膜铺展弧长整体趋势呈现先降低然后趋于稳定状态. 液滴在碰撞的初始阶段由于受到黏性力影响, 液滴的初始动能不断地向耗散能转化, 直至液滴铺展弧长达到最大值. 液滴在表面应力和弹性势能作用下不断地回缩, 在液滴回缩阶段同时受到液滴黏性力的影响, 液膜迅速地达到最小铺展弧长<sup>[13]</sup>. 虽然在回缩阶段液膜铺展弧长有轻微的波动, 但整体呈现减小趋势并最终趋于稳定状态.

### 2.2.2 球面温度的改变对液膜形态的影响

统计液膜的厚度与载体颗粒的比值可以直观反映液膜在钢球表面的涂覆程度, 结果见图 8. 由图 8 可以看出: 不同球面温度下液膜的厚度在碰撞初始状态时大致相同, 随后呈现逐渐增加的整体趋势, 但不同球面温度时的最大液膜厚度也不相同. 随着球面温度的不断降低, 液膜厚度逐渐降低. 与低温状态相比, 常温状态下液膜的厚度明显较大. 在碰撞的初始

阶段液滴瞬间铺展到最大, 由于液滴初始动能较大, 铺展过程瞬间完成, 黏性力作用时间较短, 因此此时液膜的厚度与所处的球面温度无关, 但随后, 由于与常温状态相比低温状态下液滴表面应力和黏性力明显高, 因此低温状态下液膜的厚度最大值明显小于常温状态下的最大值. 当球面温度为 $-20$ 、 $-30$  °C时液膜厚度变化趋势相似, 说明在该低温状态下, 液滴表面的应力与黏性力基本相同, 液滴运动与冻结状态也十分相似.

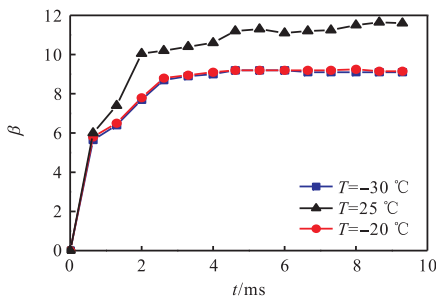


图 8 不同球面温度条件下,  $600 \mu\text{m}$  液滴撞击  $5 \text{ mm}$  球形颗粒过程中的  $\beta$  变化

Fig. 8 Changes of  $\beta$  in the process of  $600 \mu\text{m}$  droplet impinging on  $5 \text{ mm}$  spherical particles at different temperature

选择液滴直径分别为  $400$ 、 $600 \mu\text{m}$ , 球面温度分别为  $25$ 、 $-20$ 、 $-30$  °C, 研究液滴撞击球面时液膜铺展变化, 结果如图 9 所示.

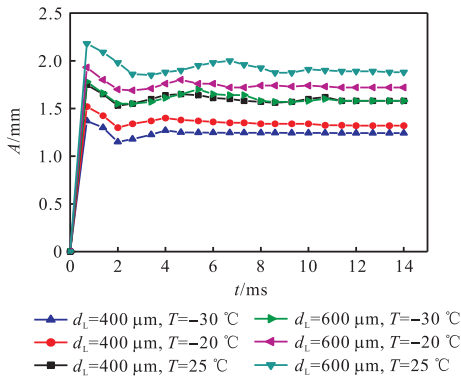


图 9 不同球面温度条件下, 不同直径液滴撞击  $5 \text{ mm}$  球形颗粒过程中的液膜铺展弧长变化

Fig. 9 Variation of liquid film spreading arc length of droplets with different diameters impacting  $5 \text{ mm}$  spherical particles at different temperatures

由图 9 可以看出: 两组液滴的铺展弧长随球面温度的变化趋势基本相同, 先急剧增大, 然后降低, 接着出现振荡, 最后趋于稳定. 显然, 液滴直径越大液膜的铺展弧长也越大. 其中对于同一组液滴, 随着温度降低, 液膜的铺展弧长也减小, 这是因为随着温度的降低, 液滴在与过冷的载体颗粒表面碰撞时, 在液

滴与固体表面交界处形成冰膜, 造成液滴表面应力和黏性力随温度的降低而增加. 由于表面应力和黏性力在液滴铺展回缩过程中起阻碍作用, 因此温度越低则铺展弧长就会越小. 由图 9 还可以看出: 随着球面温度的降低, 液滴在过冷载体颗粒表面的振荡次数也随之减少, 液滴在达到最大铺展弧长后会发生回缩和振荡的现象, 这与液滴内部张力及内部势能有关, 随着温度的降低黏性力急剧增大, 内部势能向黏性耗散能转变, 因此随着温度降低液滴内部耗散能降低, 则液滴的振荡次数也会随之减少. 相比于常温状态, 低温状态下液滴会更快地进入稳定状态. 因此, 球面温度的变化对液膜的动力学特性有极大的影响.

### 2.2.3 钢球直径对液膜形态的影响

选取液滴直径为  $240$ 、 $400$ 、 $600 \mu\text{m}$ , 钢球直径 ( $d_s$ ) 为  $3$ 、 $5 \text{ mm}$ , 研究液膜铺展弧长和液膜厚度随钢球直径的变化, 结果分别见图 10 和图 11.

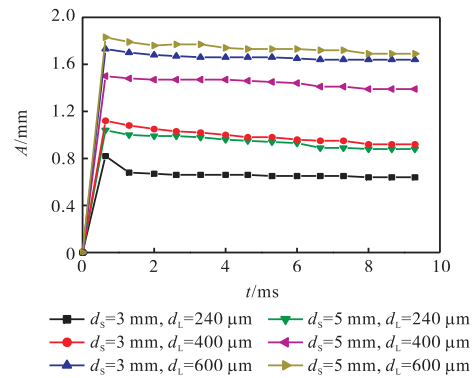


图 10 球面温度为  $-30$  °C 时, 不同直径液滴撞击不同直径球形颗粒过程中的液膜铺展弧长变化

Fig. 10 Changes of liquid film spreading arc length when droplets of varying sizes impinge on spherical particles of different diameters at spherical temperature  $-30$  °C

由图 10 可以看出: 对于不同的液滴直径和钢球直径, 液膜铺展弧长都呈现先增大后缓慢减小, 随后达到稳定状态. 其次, 液滴随钢球直径的增大其液膜铺展弧长也随之增加. 相同直径的液滴撞击在  $3 \text{ mm}$  和  $5 \text{ mm}$  的钢球表面, 液滴在  $3 \text{ mm}$  的钢球表面液膜铺展弧度 ( $\theta$ ) 明显大于在  $5 \text{ mm}$  钢球表面的铺展弧度, 但由于颗粒半径不同,  $5 \text{ mm}$  钢球表面的液膜铺展弧长相对较长. 从力学角度分析, 直径较小载体颗粒的曲率较大, 钢球表面上的液滴所受重力分量较大, 液滴有向下运动的趋势, 因此随着曲率增大, 在液滴铺展时所受重力分量也随之增加, 故其液膜铺展弧度增大; 但弧度较大时, 对应颗粒直径较小, 液膜弧度较大时对应的弧长仍小于液膜弧度较小时对应

的弧长.

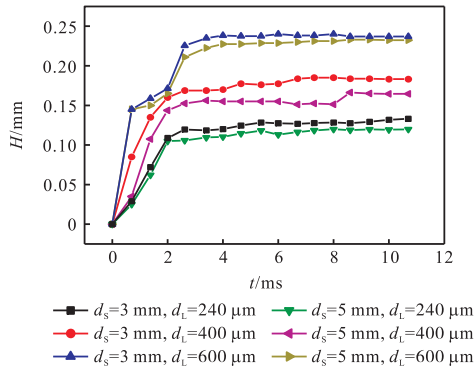


图 11 球面温度为 $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时,不同直径液滴撞击不同直径球形颗粒过程中的液膜厚度变化

Fig. 11 Variation of liquid film thickness when droplets impinge on spherical particles of different diameters at spherical temperature of  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$

由图 11 可以看出:液膜的厚度随时间呈现逐渐增加的趋势;不同直径的液滴撞击相同直径钢球表面,其液膜厚度随液滴直径的增加而增加;而相同直径的液滴撞击不同直径的钢球表面,液膜的厚度随钢球直径的增加而减小.这是因为随着钢球直径的增大,液膜弧长随之增大,随着相同直径的液滴在钢球表面液膜弧长增加,液滴与钢球表面接触的面积更大,当液滴在铺展到最大直径后,液膜所受黏性力和表面应力增大,即回缩阶段所受的阻力增加,故相同直径液滴撞击钢球表面时,随着钢球直径的增大,液膜的厚度随之减小.

### 3 结 论

(1) 在相同球面温度( $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ )条件下,液膜厚度随液滴直径的增大而增加,液膜铺展弧长随液滴直径增大而增加.

(2) 在相同液滴直径的条件下,液膜厚度随球面温度的降低而不断减小;常温状态( $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ )与低温状态( $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ )下液膜厚度相差较大,但低温状态下的不同温度对应的液膜厚度相差较小;随着温度的降低,液膜的铺展弧长也会随之减小.

(3) 相同直径的液滴撞击不同直径钢球表面时,液膜铺展弧长随钢球直径的增加而增加,液膜的厚度

随钢球直径的增加而减小.

### 参考文献:

- [1] Rogers S, Wu W D, Saunders J, et al. Characteristics of milk powders produced by spray freeze drying[J]. *Drying Technology*, 2008, 26(4): 404–412.
- [2] Leuenberger H, Plitzko M, Puchkov M. Spray-freeze-drying in a fluidized bed at normal and low pressure[J]. *Drying Technology*, 2006, 24(6): 711–719.
- [3] Yeom G S, Song C S. Experimental and numerical investigation of the characteristics of spray-freeze drying for various parameters: Effects of product height, heating plate temperature, and wall temperature[J]. *Drying Technology*, 2010, 28(2): 165–179.
- [4] 徐庆, 李占勇, 王瑞芳, 等. 单液滴撞击球形表面的涂覆效果[J]. *天津科技大学学报*, 2013, 28(1): 50–54.
- [5] 李占勇, 徐庆, 吴中华, 等. 一种惰性粒子喷雾冷冻干燥设备及方法: CN 102226629 B[P]. 2013–08–07.
- [6] Bakshi S, Roisman L V, Tropea C. Investigations on the impact of a drop onto a small spherical target[J]. *Physics of Fluids*, 2007, 19: 032102-1–032102-12.
- [7] Walford M E R, Hargeraves D M, Smith S. Freezing of water drops on a cold surface[J]. *Journal of Glaciology*, 1991, 125(37): 47–50.
- [8] Hu H, Jin Z Y. An icing physics study by using lifetime-based molecular tagging thermometry technique[J]. *International Journal of Multiphase Flow*, 2010, 36(8): 672–681.
- [9] 施琼琼. 速溶普鲁兰多糖颗粒的制备[D]. 天津: 天津科技大学, 2013.
- [10] Mitra S, Mayur J. Droplet impact dynamics on a spherical particle[J]. *Chemical Engineering Science*, 2013, 100: 105–119.
- [11] 徐庆, 王瑾, 李苗苗, 等. 单液滴撞击冷板面的实验和模拟[J]. *化工学报*, 2016, 67(10): 4160–4168.
- [12] Jin Z Y, Yang Z G. Visualization of icing process of a water droplet impinging onto a frozen cold plate under free and forced convection[J]. *Journal of Visualization*, 2013, 16(1): 13–17.
- [13] 耿县如, 徐庆, 李占勇, 等. 喷雾冷冻法单个液滴冻结过程模拟[J]. *化工进展*, 2012, 31(5): 981–986.

责任编辑: 常涛, 郎婧