

频率可重构的微波煤炭脱硫实验装置

程钰间, 夏支仙, 王磊, 樊勇

(电子科技大学极高频复杂系统国防重点学科实验室 成都 611731)

【摘要】国内外现有实验结果已经初步证明微波脱除煤中硫具有很好的效果,但是对其反应机理和最优条件尚无认知,尤其无法确定微波脱硫的最佳工作频率。该文基于这一应用需要,提出了一种频率可重构的实验装置,包括宽带微波源、宽带微波传输系统和频率可重构的反应腔,介绍了反应腔的实现原理和设计流程。相较传统微波反应装置,该设计结构简单、成本低廉,可实现大于67%可调范围(500~1 000 MHz)的谐振式工作。这就有效地开展微波煤炭脱硫实验,在较低输入功率下,准确认知最优反应频率和工作条件。该套装置也可以适用于相关微波化学反应实验。

关键词 频率可重构; 微波能; 微波辐照; 微波反应腔

中图分类号 TN99

文献标志码 A

doi:10.3969/j.issn.1001-0548.2014.01.005

Frequency Reconfigurable Microwave Reaction Experiment Apparatus for Coal Desulphurization

CHENG Yu-jian, XIA Zhi-xian, WANG Lei, and FAN Yong

(EHF Key Laboratory of Fundamental Science, University of Electronic Science and Technology of China Chengdu 611731)

Abstract The rate of coal desulphurization can be promoted by microwave irradiation much more, which have be recognized and validated from recent experiment results. However, there still exist many unanswered questions, which creates significant limit on its development. To investigate the best frequency for such a microwave reaction, a frequency reconfigurable microwave reaction experiment apparatus is proposed and designed in this paper, including a wideband microwave source, a wideband microwave transmission system, and a frequency reconfigurable reactor. This apparatus offers a 67% tunable bandwidth to cover the operation frequency range of 500 ~ 1 000 MHz. Compared with other reaction apparatus with the same function, our design is simple and low cost. Furthermore, it can be employed in other microwave chemical experiments.

Key words frequency reconfigurable; microwave energy; microwave irradiation; microwave reactors

煤炭是我国的主体能源,约占一次能源消费量的70%。然而,我国煤炭资源禀赋条件差,中高硫煤和高硫煤约占15.5%,主要集中在西南、中南和华东等地^[1]。因此,利用物理和化学方法脱除其中硫杂质,使之成为可有效利用的燃料或高品质原料,对于我国实现以煤为主的能源持续供给,保障经济快速持续发展具有重大战略意义。

目前,大功率微波已经被广泛应用于加热、医疗、干燥、镀膜、环保、辅助萃取等场合,获得较佳效果^[2-6]。围绕煤中有机硫脱除,国内外学者探索过化学、生物等多种脱硫方法^[2],其中微波煤炭脱硫使用2.45 GHz微波,以NaOH等为助剂,对有机硫脱除率最高可达到50%。由于受到研究条件和技术手段等因素的制约,对微波脱硫的化学和物理机理

缺少研究,目前仅仅是粗浅的推测^[7];研究使用的微波绝大多数是频率为2.45 GHz的连续波,对其他微波频段和使用脉冲微波调控脱硫的研究还是空白,对电磁谐振效应与微波脱硫的关系缺少研究^[8]。这些问题严重制约了高硫煤资源的大规模开发。因此,必须研究并掌握煤中各类硫化学结构脱硫降解规律,以推动和指导煤微波脱硫技术的发展。其中最为重要的一个研究方面即为微波频率对脱硫效果的影响。

在微波化学的研究中,研究人员发现微波频率对反应效果非常重要。如某一样品对微波的吸收是与微波频率相关的,即某一频率下,能更好地吸收微波能量,提高效率。因此,希望开展不同微波频率下微波反应的相关研究,从而准确认知不同物质

收稿日期: 2012-07-06; 修回日期: 2013-06-25

基金项目: 国家973项目(2012CB214900)

作者简介: 程钰间(1983-),男,博士,副教授,主要从事微波电路、毫米波集成天线、微波能应用方面的研究。

微波反应的最佳频率，这就对微波反应装置提出了新的要求，即工作频率可重构。这意味着在一段较宽的频率范围内，微波反应装置均可工作，但每次工作时带宽很窄，便于确定最佳频率。

本文提出频率可重构微波脱硫装置的搭建方案，着重设计了频率可重构的谐振式反应腔，为深入研究样品微波化学反应的频率响应特性创造条件，以奠定工业大规模高效应用的基础。

1 频率可重构的微波脱硫装置

针对煤中硫脱除的具体要求，结合当前的研究成果，对本文涉及的实验装置需满足以下指标：

1) 频率重构范围：500~1 000 MHz。

现有的微波脱硫实验通常在915 MHz和2 450 MHz的开展^[2,9-10]，而山西某煤矿对煤进行的脱硫实验，其结果显示在915 MHz频率下微波反应的效果优于2 450 MHz，从中推断微波脱硫的最优频率应该较低。

此外，微波能只能引起电介质分子的转向极化^[2,11]，微波场即是通过此极化作用完成对电介质的加热，而转向极化与电介质分子质量密切相关，煤中有机硫通常为复杂大分子结构，由此也可以推断其最佳反应频率较低。

另一方面，较低频率工作的谐振腔体积较大，单次处理样品较多，且穿透深度较大，同时在500~1 000 MHz频段大功率微波源容易获得。

2) 工作区域电场：大于 10^5 V/m。

物质在电磁场中接受辐射，电场强度越大物质受到的微波作用就越强；另一方面，空气的击穿电场强度是 3×10^6 V/m。为使电场尽量大且在安全范围内，故提出了工作区域电场强度大于 10^5 V/m。

目前，小规模微波反应装置已有多种，通常包括3个主要部分：微波源、微波传输系统、微波反应腔，如图1所示。图2给出了频率可重构的微波反应装置框图，对这3部分要求分别是：

- 1) 微波源可输出宽频带的大功率微波；
- 2) 微波传输系统可支持宽频带微波的传输；
- 3) 微波反应腔可在宽频带范围内工作。

1.1 宽带微波源

现有微波反应装置中普遍采用磁控管提供微波功率，但因其工作带宽较窄，无法满足频率可重构的要求。因此，需要采用信号发生器结合高增益固态放大器的方法。当然也可选择速调管等^[12]来提供大功率微波能量。

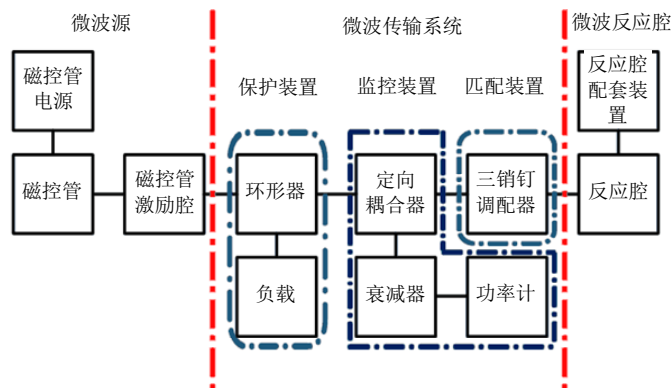


图1 普通微波化学反应装置框图

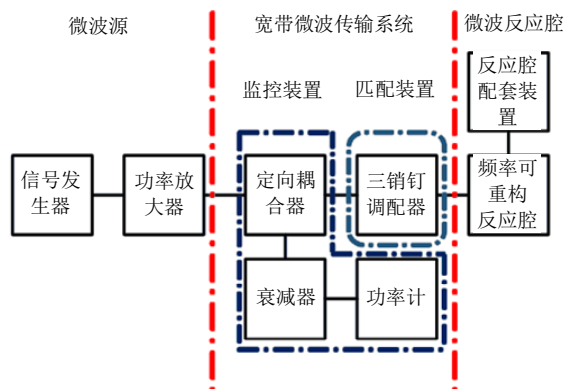


图2 频率可重构的微波化学反应装置框图

现有的信号发生器可以在非常宽的频带范围内工作, 提供单一频点信号, 输出所需频率和功率(一般较小), 用以驱动高增益固态放大器; 现有的商用固态功率放大器已经可以提供1 000 W的连续输出功率, 而根据本文的设计要求, 500 W的输出功率已经可以满足要求。因此, 该方案可在很宽频带内产生较大的微波输出功率。此外, 现有的信号发生器可以输出连续信号和脉冲信号, 可控反应时长、间隔和输出功率。

1.2 宽带传输系统

当微波传输系统传输功率低于500 W时, 可采用同轴传输线进行传输, 其单模使用频带范围远大于金属波导。同时, 微波反应装置中所需的辅助器件, 如耦合器、环形器、匹配器等, 也可采用同轴传输线来实现宽带工作。

由于微波化学中存在严重的非线性现象, 可能在某时刻出现跃变或拐点, 故此在传统反应装置中, 微波保护装置必不可少。但是, 考虑本文采用的商用功率放大器自带了保护电路, 即使在负载开路或短路时也不会发生危险, 可略去。因此, 本文的传输系统结构可化简为如图2所示。表1给出了所需同轴结构微波器件的可实现指标。

表1 所需同轴结构微波器件的指标

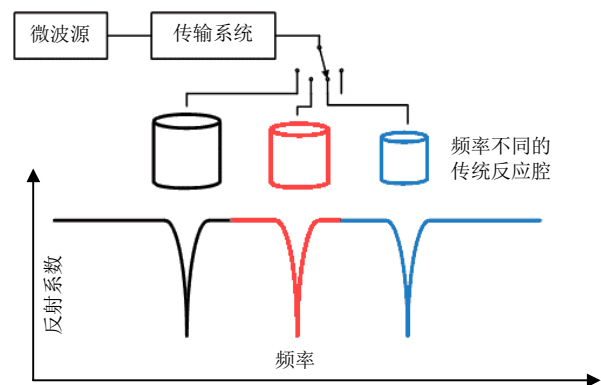
名称	指标
定向耦合器	功率容量: 500 W; 接口: N-K; 方向性 ≥ 18 dB; 主线驻波 ≤ 1.25 ; 损耗 ≤ 0.5 dB; 耦合度 26.5~32 dB
同轴衰减器	衰减量: 20 \pm 0.5 dB, 驻波: 1.2
同轴调配器	功率容量: 500 W, 驻波最小可调到 1.05

1.3 频率可重构的微波反应腔

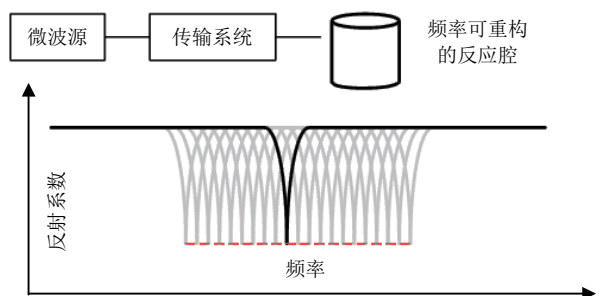
和磁控管等电真空器件相比, 上述方案可提供的微波功率较小, 再考虑传输损耗和失配损耗, 到达反应腔内部的微波功率预计为250~350 W。为了在有限输入功率下也能达到相关微波脱硫反应条件, 须采用谐振式反应腔, 利用谐振腔的电场放大效应来完成微波反应。另一方面, 为了准确判断最佳反应频率, 希望反应腔工作时仅能工作于某一特定频率, 而单模谐振式反应腔正好具有这一特点。因此, 本文采用单模谐振器来构成反应腔。

现有的谐振式反应腔只能工作于单一频点, 无法满足不同频率下的工作要求, 如图3所示, 只能通过多个不同尺寸的反应腔来覆盖若干离散的工作频率, 成本高昂, 使用不便。因此, 需要开发出新型微波反应腔, 具备不同频率下产生谐振的能力, 即利用同一个反应腔结构无间断地满足宽频带微波反应需求, 且每次谐振于单一频点, 从而准确认知频

率对微波反应的效果。



a. 频率不同的传统反应腔



b. 频率可重构反应腔

图3 不同反应腔的工作示意图

2 频率可重构的微波反应腔设计

2.1 腔体结构

本文的频率可重构反应腔包括反应腔外壁、频率控制杆、馈电同轴、微波抑制环和托盘, 如图4所示。反应腔外壁顶端开放, 便于观察和操作, 也可覆盖玻璃实现气密环境。频率控制杆从反应腔外壁底部中心孔伸入反应腔内部, 利用圆顶螺纹与外壁保持电接触, 同时可调节其进入长度, 从而控制谐振频率。馈电同轴通过反应腔外壁侧孔进入反应腔内部, 馈电同轴末端为N型头结构, 前端部分具有螺纹以调节馈电同轴伸入反应腔的长度, 从而获得良好匹配效果。石英对微波几乎不吸收, 对微波的损耗也非常小, 所以选用石英作为托盘的材料。考虑四分之一波长同轴谐振腔中电场的分布特性, 托盘的形状可以为圆锥形, 也可以为圆碗、圆盘等类似形状, 以提高微波反应效率和能量利用率。外壁外侧、频率控制杆底部、馈电同轴外侧覆盖绝热层。

上述结构为了确保在频率高端工作时不产生微波泄漏, 其外导体的内径尺寸受圆波导主模截止频率的限制, 这就局限了单次处理样品的容量。因此, 可增大外导体的内径, 同时引入微波抑制环, 其口

径满足圆波导截止条件,从而避免微波泄漏。

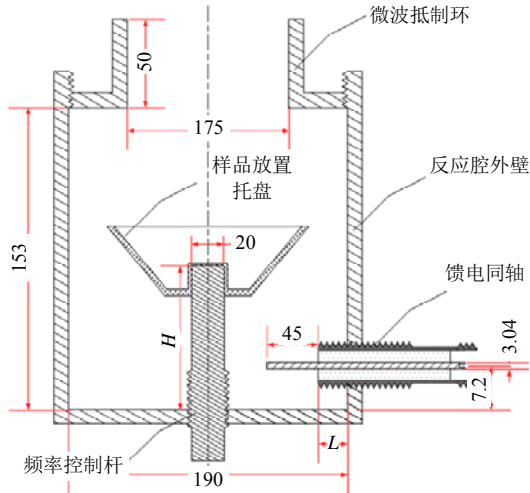


图4 频率可重构微波反应腔(单位: mm)

2.2 设计准则

本文设计基于四分之一波长同轴谐振腔来实现,当频率控制杆高度为谐振波长的四分之一时,产生谐振。此时,其内部电场呈驻波分布,频率控制杆顶端附近电场最大,汇聚了绝大部分微波能量,可在较小输入功率条件下满足微波反应所需条件,频率控制杆不同的高度对应了不同的工作频率。因此频率控制杆的长度便可根据工作频带要求合理选定。

此外,反应腔的频率控制杆半径 a 、外壁内半径 b 的设计要综合考虑下述问题:

1) 反应腔工作于TEM模式并抑制高次模式,这就要求最高工作频率所对应的最短工作波长满足 $\lambda_{\min} > \pi(a+b)$;

2) 为了防止微波能量泄露,需将外壁延长形成一段截止圆波导,要求此圆波导的工作模式 TE_{11} 截止,从而抑制微波泄漏,这就要求最高工作频率对应的最短工作波长满足 $\lambda_{\min} > 3.41b$;

3) 如果所需处理样品容量较大, b 过大导致条件2)无法满足,需要在外壁顶端增加微波抑制环,其半径需满足该条件。

2.3 设计结果

利用上述方法,完成了500~1 000 MHz的频率可重构反应腔设计。具体尺寸如图4所示。

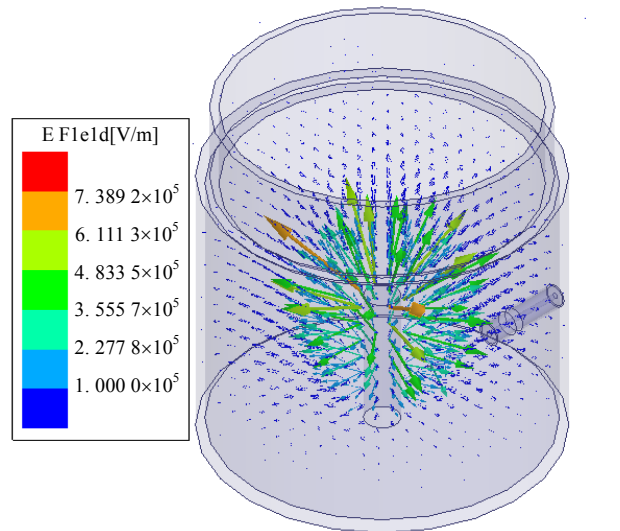
利用电磁全波仿真软件Ansoft HFSS在空载状态下仿真结果如表2所示。从中说明该反应腔通过调节 H 和 L 可以实现500~1 000 MHz宽频带范围内反应腔谐振频率的连续变化。

不同频率下的电场分布大致相同,主要集中在

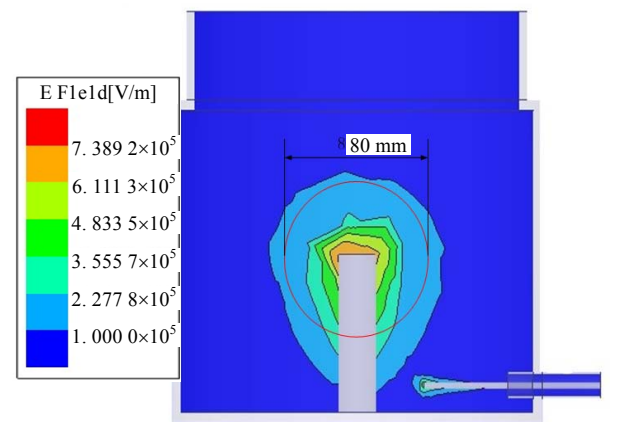
以频率控制杆顶端为中心的球形区域内,随球半径增大,场逐渐降低,如图5所示。当工作于730 MHz时,在300 W功率输入条件下,频率控制杆顶端中心附近电场可达 9×10^5 V/m;以频率控制杆顶端中心为球心,半径为20 mm球形区域内,电场均大于 3×10^5 V/m;以顶端中心为球心,半径为30 mm球形区域内,电场均大于 2×10^5 V/m;以顶端中心为球心,半径为40 mm球形区域内,电场均大于 1×10^5 V/m。

表2 频率可重构微波反应腔的设计结果

H/mm	L/mm	谐振频率/MHz	谐振处 S_{11}/dB	Q_c
45	3.0	999.0	-16.90	666
50	4.0	943.0	-21.89	725
60	6.0	867.8	-39.09	868
70	8.8	783.5	-33.15	979
80	14.0	707.4	-24.85	884
90	18.0	639.6	-16.04	914
100	24.0	591.8	-15.12	740
110	32.0	551.7	-14.49	613
120	39.0	518.6	-29.74	370



a. 三维图



b. 侧视图

图5 频率可重构微波反应腔内部电场分布

将介电常数为3.6、损耗角正切0.01的无烟煤样品放置在圆锥形的托盘区域内, 研究有载情况。同理, 调节 H 和 L 可以实现500~1 000 MHz宽频带范围内反应腔谐振频率的连续变化。此时, 电场分布更为集中, 略为减小。

3 结 论

为了实现微波化学反应中微波频率与反应效果的实验研究, 结合微波煤炭脱硫具体要求, 本文设计了一种频率可重构微波反应装置, 讨论了宽带微波源、宽带微波传输系统的搭建方案, 并提出一种频率可重构的微波反应腔, 可在500~1 000 MHz的范围内工作。相较现有谐振式反应系统, 本方案结构简单、成本低廉, 能很好地满足实验要求。该装置可以方便的移植到其他微波化学反应系统中应用。

参 考 文 献

- [1] 苗真勇. 低品质煤大规模提质利用的基础研究项目简介[EB/OL]. [2012-03-12]. <http://dpzm973.cumt.edu.cn/index.html>.
MIAO Zhen-yong. Introduction of basic research of large-scale quality improvement and utilization of low-quality coal[EB/OL]. [2012-03-12]. <http://dpzm973.cumt.edu.cn/index.html>.
- [2] JONES D A, LELYVELD T P, MAVROFIDIS S D, et al. Microwave heating applications in environmental engineering—a review[J]. Resources, Conservation and Recycling, 2002, 34(2): 75-90.
- [3] HARAHSHEH M A, KINGMAN S W. Microwave-assisted leaching—a review[J]. Hydrometallurgy, 2004, 73(3-4): 189-203.
- [4] LAMBERT E F. Energy efficient microwave system[M]. Berlin, Germany: Springer, 2009.
- [5] MEHDIZADEH M. Microwave/RF applicators and probes for material heating, sensing, and plasma generation[M]. Oxford, UK: William Andrew, 2010.
- [6] REMYA N, LIN J G. Current status of microwave application in wastewater treatment—A review[J]. Chemical Engineering Journal, 2011, 166(3): 797-813.
- [7] JORJANI E, REZAI B, VOSSOUGH M, et al. Desulfurization of Tabas coal with microwave irradiation/peroxyacetic acid washing at 25, 55 and 85 °C[J]. Fuel, 2004(83): 943-949.
- [8] WENG S, WANG J. Exploration on the mechanism of coal desulfurization using microwave irradiation/acid washing method[J]. Fuel Process Technology, 1992(31): 233-240.
- [9] ZAVITION P D, BLRILER K W. Process for coal desulphurization: US, 4076607[P]. 1978.
- [10] HAYASHI J, OKU K, KUSAKABE K, et al. The role of microwaves irradiation in coal desulphurization molten caustics[J]. Fuel, 1990(69): 739-742.
- [11] 金钦汉, 戴树珊, 黄卡玛. 微波化学[M]. 北京: 科学出版社, 1999.
JIN Qin-han, DAI Shu-shan, HUANG Ka-ma. Microwave chemistry[M]. Beijing: Science Publishing Company, 1999.
- [12] 丁耀根. 大功率速调管的理论与计算模拟[M]. 北京: 国防工业出版社, 2008.
DING Yao-gen. Theory and calculated simulation of high-power klystron[M]. Beijing: National Defence of Industry Press, 2008.

编辑 税 红