

# 矩形波导谐振腔微波化学反应器的研究

孙永志, 杨鸿生

(东南大学电子工程系, 毫米波国家重点实验室, 江苏南京 210096)

**摘要:** 改变矩形波导谐振腔微波化学反应器的结构尺寸如: 耦合膜片的形状、尺寸, 反应管的直径、管壁厚度、材料和位置, 利用 HFSS 软件计算不同结构尺寸反应器的 S 参数, 仿真的最优结果与实验结果一致, 得到了最优结构尺寸的反应器. 反应管和短路活塞位置会影响反应器内的电磁场分布, 因而直接影响微波化学反应器的工作. 在反应管位置  $z_0$  为 106mm, 短路活塞位置  $L_0$  为 146mm 的最优结构尺寸反应器中, 反应管以及内部的甲烷气体处在电场最强的位置且场分布均匀, 这有利于甲烷得到足够的能量产生放电. 仿真结果和我们的实验结果符合较好.

**关键词:** 微波化学; 矩形波导谐振腔微波反应器; HFSS 软件

**中图分类号:** TN61 **文献标识码:** A **文章编号:** 0372-2112 (2006) 09-1708-03

## The Research of Microwave Chemistry Reactor Made of the Rectangular Waveguide Resonator

SUN Yong-zhi, YANG Hong-sheng

(Department of Electronic Engineering, Southeast University, National Key Laboratory of Millimeter Waves Nanjing, Jiangsu 210096 China)

**Abstract** HFSS (High Frequency Structure Simulator) was used to calculate the S parameter of the different structural microwave chemistry reactor made of rectangular waveguide resonator while changing the structure dimension of the microwave chemistry reactor such as shape and dimensions of iris diameter of reaction tube and thickness of reaction tube wall material and positions of reaction tube. The optimal simulating results were consistent with experimental results and the optimal structure dimensions of the microwave chemistry reactor were given. The positions of the reaction tube and the plunger affected the distribution of electromagnetic field in microwave chemistry reactor and hence it directly affected the work of the microwave chemistry reactor. In the optimal structure reactor where the positions of the reaction tube and the plunger were 106mm and 146mm respectively, the methane in reaction tube were positioned at the strongest and uniform electric intensity, which made it easier for the methane obtain enough microwave power to discharge. The simulating results were consistent with our experimental results.

**Key words** microwave chemistry; microwave chemistry reactor made of rectangular waveguide resonator; HFSS soft

### 1 引言

微波化学有两个突出优点: 一是大大加快化学反应速度, 二是使原来较难产生的化学反应, 可以产生反应. 因而微波化学已渗透到有机化学、无机化学和分析化学等化学的各个领域. 一个典型的例子是用化学气相沉积方法生成人造金刚石. 通常希望能生长出大面积的、均匀的人造金刚石且生长速率又较快, 这就需要化学气相沉积反应器进行数值分析和设计研究. 另一个例子是甲烷在微波作用

下生成  $C_2$  烃, 要想达到甲烷的高转化率和  $C_2$  烃的高选择性也要求对微波化学反应器进行最优化设计.

在电磁场和微波技术领域数值计算方法已有很大发展. W. Tan et al, A. M. Gorbachev et al 和 M. Nagatsu et al 用 FDTD 分析了化学气相反应器内微波电磁场与等离子体的相互作用<sup>[1-3]</sup>. E. Pleuler et al 和 C. Bonnet et al 等人用有限元方法 FEM 分析了化学气相反应器内微波电磁场与等离子体的相互作用<sup>[4,5]</sup>. 用于甲烷制  $C_2$  烃的微波化学反应器目前尚未见有关这类反应器优化设计的报导.

本文用有限元方法的 HFSS (High Frequency Structure Simulator) 软件研究矩形波导谐振腔微波化学反应器的优化设计。

## 2 矩形波导谐振腔微波化学反应器

矩形波导谐振腔微波化学反应器如图 1 所示。矩形波导的一端为耦合膜片, 另一端为短路活塞。在矩形波导上、下宽面中心线距原点  $z_i$  处有一个直径为  $D$  的孔, 反应管垂直于宽面并穿过上、下宽面的孔。反应管内通入甲烷气体, 甲烷气体在微波能量的作用下, 就会放电生成等离子体, 得到  $C_2$  烃产物。

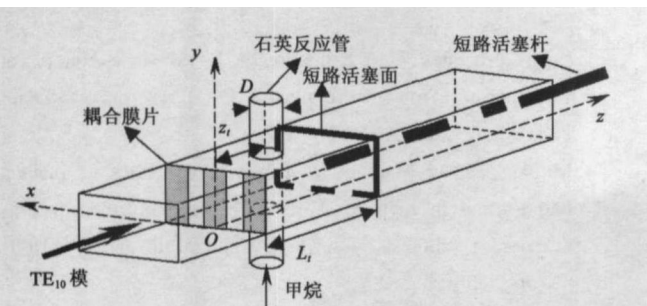


图 1 矩形波导谐振腔微波化学反应器

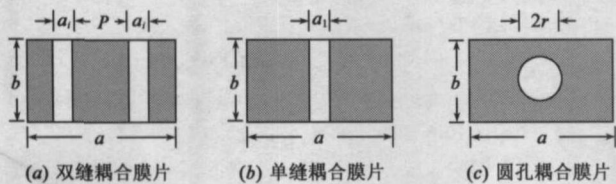


图 2 矩形波导内的耦合膜片 ( $a$  为波导宽边,  $b$  为波导高度)

我们采用基于有限元方法的 HFSS 软件计算不同结构尺寸参数: 耦合膜片的形状、尺寸 (如图 2 所示), 反应管的直径、管壁厚度、材料和位置对微波化学反应器  $S_{11}$  参数的影响。计算的最优结果和我们实验结果如表 1 所示。

从表 1 可以看出:

表 1 反应器各种结构参数的最优尺寸与  $S_{11}$  的关系

结构参数		最优尺寸	$S_{11}$	
			计算值	实验值
耦合膜片	双缝膜片	$a_1/a = 0.182$ $P = 29.20\text{mm}$	0.80397	0.79893
	单缝膜片	$a_1/a = 0.279$	0.88931	0.88369
	圆孔膜片	$r/a = 0.176$	0.87462	0.87015
反应管	直径 $D$	$D/a = 0.182$	0.87521	0.80986
	壁厚 $t$	$t/a = 0.095$	0.79568	0.79413
	材料	石英 玻璃	0.79832 0.99560	0.79827 0.99542
不同谐振腔长度 $L_i$ 下反应管的位置 $Z_i$	$z_0 (i=0) = 106\text{mm}$		0.74573	0.71289
	$L_0 (i=0) = 146\text{mm}$			
	$z_1 (i=1) = 65\text{mm}$		0.87159	0.87398
	$L_1 (i=1) = 219\text{mm}$			
	$z_2 (i=2) = 150\text{mm}$		0.81854	0.81801
	$L_2 (i=2) = 292.29\text{mm}$			

单缝耦合膜片和圆孔耦合膜片  $S_{11}$  参数较大。当耦合膜片的形状为矩形双缝耦合膜片并且  $a_1/a = 0.182$   $P = 29.20\text{mm}$  时,  $S_{11}$  最小, 此时使输入功率最大地进入微波化学反应器。

采用双缝耦合膜片, 固定反应管的壁厚、材料和位置, 只改变化学反应管的直径, 用 HFSS 优化了不同直径  $d$  的反应管对微波化学反应器的  $S_{11}$  参数的影响。反应管直径满足  $D/a = 0.182$  时,  $S_{11}$  的值最小。

在其他条件不变的情况, 反应管的壁厚  $t$  对  $S_{11}$  参数的影响较平缓, 且  $tD = 0.095$  时,  $S_{11}$  的值最小。

固定谐振腔的其他参数, 只研究反应管的材料对  $S_{11}$  参数的影响。实验中, 反应管采用两种材料: 玻璃和石英。石英制成的反应管比玻璃反应管更好。

反应管位于波导宽面中心线的不同位置  $Z_i$  时, 对  $S_{11}$  参数的影响很大。采用双缝耦合膜片, 固定化学反应管的直径、管壁厚度和材料, 用 HFSS 优化了在不同短路活塞位置  $L_i$  时改变反应管位置  $Z_i$  对  $S_{11}$  参数的影响。由表 1 可知, 当反应管位于  $z_0 (i=0) = 106\text{mm}$ 、短路活塞位置  $L_0 (i=0) = 146\text{mm}$  时  $S_{11} = 0.71289$  为最小值。短路活塞位置处在  $L_1$  和  $L_2$  时, 反应管的最佳位置分别位于  $65\text{mm}$  和  $150\text{mm}$ , 此时  $S_{11}$  较大。

综上所述, 在尚未建立微波等离子体情况下, 工作频率为  $2450\text{MHz}$  当耦合膜片为矩形的双缝耦合膜片, 尺寸  $a_1/a = 0.182$   $P = 29.20\text{mm}$ , 石英制成的化学反应管的直径和壁厚分别满足  $D/a = 0.182$   $t/D = 0.095$  且反应管位置  $z_0$  为  $106\text{mm}$ , 短路活塞的位置  $L_0 = 146\text{mm}$  时, 矩形波导谐振腔微波化学反应器的电磁谐振特性最好, 因此我们得到了最优结构尺寸的矩形波导谐振腔微波化学反应器。

## 3 不同谐振状态下矩形波导谐振腔微波化学反应器内的电磁场分布

通过上面的分析知道, 反应管的位置  $z_i$  和短路活塞的位置  $L_i$  对  $S$  参数的影响很大。研究反应管位置分别处于  $z_0 (i=0) = 106\text{mm}$   $z_1 (i=1) = 65\text{mm}$  和  $z_2 (i=2) = 150\text{mm}$  以及相对应的短路活塞位置  $L_0 (i=0) = 146\text{mm}$   $L_1 (i=1) = 219\text{mm}$  和  $L_2 (i=2) = 292.29\text{mm}$  三种不同谐振状态下微波化学反应器内二分之一矩形波导高度截面上的电磁场分布。因为矩形谐振腔的电磁场分布在  $y$  方向上是均匀场, 所以只需计算  $h = \frac{1}{2}b$  ( $b$  为矩形波导高度) 平面上的场分布。

3.1  $z_0$  为  $106\text{mm}$ ,  $L_0$  为  $146\text{mm}$  最优结构尺寸反应器高度  $h = \frac{1}{2}b$

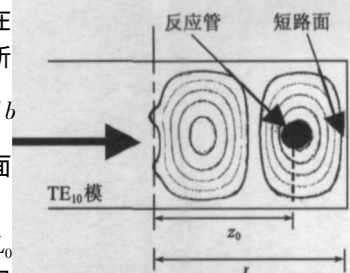


图 3 最优结构尺寸反应器内的场结构分布

截面上的场结构分布.

图 3给出了最优结构尺寸反应器的场结构分布. 从图 3可以看出, 反应管以及内部的甲烷气体处在电场最强的位置且场分布均匀, 这有利于甲烷得到足够的能量产生放电.

3.2 反应管位置  $z_1 = 65\text{mm}$ , 短路活塞位置  $L_1 = 219\text{mm}$  的谐振状态下, 反应器高度  $h = \frac{1}{2}b$  截面上的场分布情况是反应管内前半部分的场较强, 而后半部分的场较弱.

3.3 反应管位置处在  $z_2 = 150\text{mm}$ , 短路活塞位置处于  $L_2 = 292.29\text{mm}$  谐振条件下, 反应器高度  $h = \frac{1}{2}b$  截面上的场分布情况是反应管内后半部分的场较强, 前半部分的场较弱.

以上可知,  $z_0, L_0$  的谐振状态下, 场在反应管以及内部的甲烷气体中的分布均匀, 可以充分均匀地加热甲烷气体使其放电. 在  $z_1, L_1$  和  $z_2, L_2$  的两种谐振状态时, 反应器内场的分布很不均匀, 不利于甲烷气体的反应, 而且会对反应器造成不利的影响.

例如在  $z_2, L_2$  的谐振条件下, 反应器内的场分布很不均匀, 前半部分较弱, 后半部分较强, 这造成甲烷转化不均匀且转化率低, 而且生成了黑色的物质积聚在管壁的后半部. 这种物质积累多了会使甲烷转化率很低很低直接影响化学反应的进行.

我们对管壁上的黑色物质做了 XRD 谱图. 在样品的 XRD 衍射图中其  $d$  值为  $3.433\text{\AA}$ ,  $2.105\text{\AA}$ . 对照标准粉末衍射卡表明该样品是碳. 这种碳影响到微波化学反应器的正常工作. 仿真结果和我们的实验结果吻合.

#### 4 结论

利用 HFSS 软件仿真得到了最优结构尺寸的矩形波导谐振腔微波化学反应器. 反应管和短路活塞位置会影响

反应器内的电磁场分布. 最优结构尺寸反应器内的场在甲烷气体中的分布均匀, 有利于放电反应甲烷转化率也高. 当谐振腔处在  $z_1, L_1$  和  $z_2, L_2$  的谐振状态时, 场在反应管以及内部甲烷气体中的分布很不均匀, 场的不均匀分布不利于甲烷气体的放电反应甲烷转化率也低, 并造成反应管管壁的积碳, 仿真结果和我们的实验结果符合较好.

#### 参考文献:

- [1] W Tan T A Grotjohn Modelling the electromagnetic field and plasma discharge in a microwave plasma diamond deposition reactor[J]. *Diam Relat Mater* 1995, 4(9): 1145-1154.
- [2] A M Gorbachev V A Koldanov A L Vikharev Numerical modeling of a microwave plasma CAD reactor[J]. *Diam Relat Mater* 2001, 10(3-7): 342-346.
- [3] M Nagatsu M Makino M Tanga Diagnostics of plasma ball formed in high pressure microwave plasma for diamond film synthesis[J]. *Diam Relat Mater* 2002, 11(3-6): 562-566.
- [4] E Pleuler et al The CAP-reactor: a novel microwave CAD system for diamond deposition[J]. *Diam Relat Mater* 2002, 11(3-6): 467-471.
- [5] C Bonnet et al Study of the thermal repartition in a microwave reactor application to the nitrobenzene hydrogenation [J]. *Chem Engi Proc* 2004, 43(11): 1435-1440.

#### 作者简介:

孙永志 男, 现为东南大学电子工程系毫米波国家重点实验室博士研究生. 研究方向为微波等离子体和微波化学.

杨鸿生 男, 教授、博导. 1938年1月生于浙江. 1981.3~1983.9 美国威斯康星大学 (Madison) 访问学者和合作研究. 研究领域为电磁场理论, 微波、毫米波高功率电子学和技术, 微波等离子体和微波化学. E-mail: hsyang@seu.edu.cn