文章编号: 1007 - 4252(2020) 03 - 0003 - 231

平铺玻璃珠光催化反应辐射场的实验研究

张国艳,陈作雁,刘刚,安兴才*
(甘肃自然能源研究所,甘肃兰州 730046)

摘要: 采用自制辐射场测试平台,探究了平铺玻璃珠种类、直径和层数对辐射场的影响,结果表明,玻璃珠直径对辐射通量几乎没有影响; 玻璃珠种类对辐射通量影响较大,未处理玻璃珠辐射通量最大,预处理次之,负载二氧化钛玻璃珠的辐射通量最小; 玻璃珠层数对辐射通量的影响最大。对于以玻璃珠为载体的固定床光催化反应器填充玻璃珠层数不宜大于两层。

关键词: 测试平台,辐射场,玻璃珠,辐射通量,光催化

Experimental study on the radiation field of photocatalytic reaction of glass beads

Zhang Guoyan, Chen Zuoyan, Liu Gang, An Xingcai*
(Gansu Natural Energy Research Institute, Lanzhou 730046)

Abstract: Radiation field variation law is studied by using the self-made radiation field test platform, and the influence of the type, diameter and number of layers of glass beads is discussed. The results indicated that the diameter of glass beads had almost no effect on the radiation flux; the type of glass beads had a greater impact on the radiation flux that the untreated glass beads had the largest radiation flux, the pretreatment followed, and the loaded titanium dioxide glass beads had the smallest radiation flux; The number of layers of glass beads has the greatest influence on the radiation flux. The number of glass beads filled should not be more than two layers for the fixed bed photocatalytic reactor with glass beads.

Keywords: test platform, radiation field, glass beads, radiation flux, photocatalytic

0 引言

光催化技术是高级氧化技术之一,因其环保清洁、安全无毒、反应条件温和、能矿化绝大多数有机物等特点,与传统水资源处理技术相比,在处理难降解有机废水、深度水处理和杀灭水中病菌、细菌、微

收稿日期: 2020-05-28; **修订日期:** 2020-06-27
基金项目: 甘肃省知识产权计划项目(18ZC1LA005) ; 兰州市科技计划项目(2018-4-18) 资助; 甘肃自然能源研究所青年科技创新计划项目(2018QN-01) ; 甘肃自然能源研究所重点研发计划项目(2019YF-02) .Supported by Gansu Province Intellectual Property Project(18ZC1LA005) ; Lanzhou Science and Technology Project (2018-4-18) ; Youth Science and technology innovation program of Gansu Natural Energy Research Institute(2018QN-01) and Key R & D Project of Gansu Natural Energy Research Institute(2019YF-02) .
作者简介: 张国艳(1989-) ,女,山东济宁人,助理研究员,从事光催化水处理数值模拟研究,(E-mail: 1057139525@ qq.com) 。
通信作者: 安兴才(1964-) ,男,研究员,主要从事水处理方面的研究,(E-mail: anxingcai@ unido-isec.org) 。

生物方面具有明显优势[1]，应用前景巨大。对于光催化反应而言，光(太阳光或供灯等光源)为能量来源，反应系统中的辐射场分布对反应速率的影响十分重要[2]。因此，确定反应器内辐射能的空间分布规律是光催化反应必须解决的问题。

目前，许多国外学者对多层平板光催化反应器[3-4]、多管光催化反应器[5]和流化床光催化反应器[6]的辐射场做了大量研究，利用数值模拟方法考察反应器内辐射场影响因素及分布情况。国内学者采用双通量模型[7-8]、光导纤维[9]等方法对光催化反应器的辐射能分布规律也做了研究，发现辐射能与穿透距离的关系。王鑫[10]利用 CFD 方法采用 DO 模型对环形柱状光催化反应器的辐射场进行了数值模拟，模拟结果与实验结果相近; Gustavo E. Imoberdorf 等人[11]利用蒙特卡洛的方法对一层平铺未负载与负载 TiO_2 的玻璃珠进行辐射场模拟研究，发现玻璃珠的粗糙度、吸收率、发射率、反射率和光学厚度对辐射场的空间分布都有影响，且局部净辐射量随高度角呈光滑下降趋势。根据文献中提供的模拟思路与设备参数自制辐射场测试平台，与文献中光源辐射通量进行对比，自制辐射场测试平台光源平行性更好。因此，利用自制辐射场测试平台进行不同层数不同直径的未处理、预处理和负载 TiO_2 的玻璃珠的辐射强度的测试，研究辐射场的变化规律，保证辐射场的准确性和精确性，为固定床光催化反应提供理论依据。

为了便于作图分析，定义以下参数，r_d：探头与玻璃基板的距离，即测量半径，cm; r_d 12/22/32: 测量半径分别为 12/22/32cm; d4/5/6/7/8: 玻璃珠直径分别为 4/5/6/7/8mm; n0/1/2/3: 玻璃珠层数分别为 0/1/2/3 层。

1 实验部分

1.1 实验装置

本实验辐射场测试平台和控制采集软件均为自主开发，其运动机构结构示意图及软件界面如图 1 和图 2 所示。运动机构由微型步进电机控制可实现的 3 个运动自由度: 方位角(0~360°)，高度角(0~90°)，探头高度(12-32cm)组成，运动机构的控制通过运动控制卡与自动采集软件集成，可实现半球辐射场所需任意位置的测试。平行光路系统将大功率 LED 点光源与远心光路相结合产生一束平行度达 99%以上的理想平行光源，且辐射强度能达到 4.5E-4w/cm^2。

1.2 实验测试方法步骤

将样品(无样品或玻璃珠)放置在直径为 8cm 的样品照射台，打开装置总电源、平行光路系统和辐射计(ILT5000 Research Radiometer /Optometer/ Picoammeter)，开启软件设置参数如图 2: 选择串口，方位角 3 位移 15°，高度角 4 位移 5°，探头 6 高度 0cm，点击自动运行，状态栏按钮由灰色变成绿色，数据采集完毕后输出 txt 文档; 设置探头高度位移 5cm，点击反向、运行，探头 6 沿轨道 5 运动 5cm，然后点击正向、自动运行，进行下一探头高度上的数据采集，直至每一个高度上数据采集完毕，则整个半球的辐射场数据采集完毕。点击“回原点”按钮，探头返回 0cm 处，关闭软件、电脑、辐射计、光源和设备总开关。

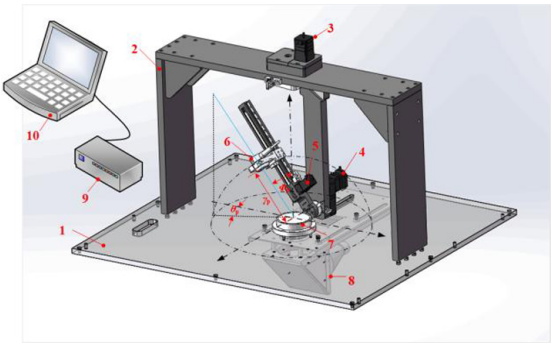


图 1 辐射场测试平台运动机构结构示意图

Fig.1 Schematic diagram of motion mechanism of radiation field test platform

1.工作台 2.龙门架 3.方位角 0~360°4.高度角 0~90°5.高度 12~32cm 6.探头 7.样品照射台 8.平行光路系统 9.辐射计 10. 装有测量软件包的计算机

1.platform 2. Gantry frame 3. Azimuth 0~360°4. Altitude angle 0~90°5. Height 12~32cm 6. probe 7. Sample irradiation table 8. Parallel light path system 9.Radiomete 10. Computers with measurement packages

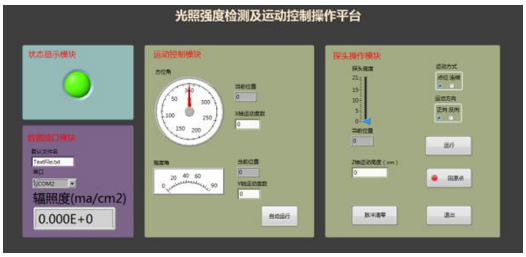


图 2 辐射场测试平台软件界面

Fig. 2 Software Interface of Radiation Field Test Platform

2　实验结果与分析

2.1　光源测试

实验装置中样品照射台直径为 8cm，由图 3 可看出，辐射通量以方位角 90° 为中心向两侧递减，在半径为 4cm 的光孔区域内，辐射通量基本稳定在最大值 4.5E−4w/cm^2，且与测量半径无关; 光孔以外的区域，辐射通量迅速减小，随着测量半径的增加，辐射通量梯度减小。可说明光源发出的光为一束平行性较好的光线，散射率低。

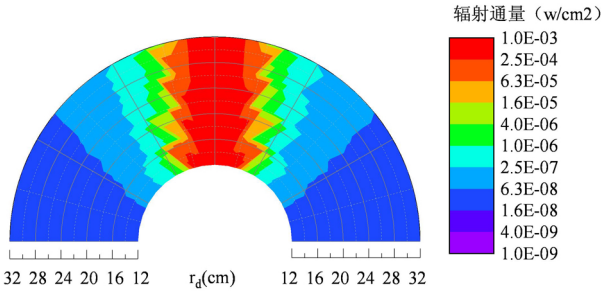


图 3　光源的辐射通量云图

Fig. 3 Radiation flux cloud of the light source

样品照射台直径为 8cm 时，对应的高度角为 18.435°，光源辐射通量的实验值与文献 4 中光源辐射通量进行对比，如图 4 所示，二者最大辐射通量基本相等，且高度角大于 25° 时，辐射通量保持不变; 在高度角小于 18.435° 的范围内，文献值较实验值下降较快，即实验中光的平行性相对较好。

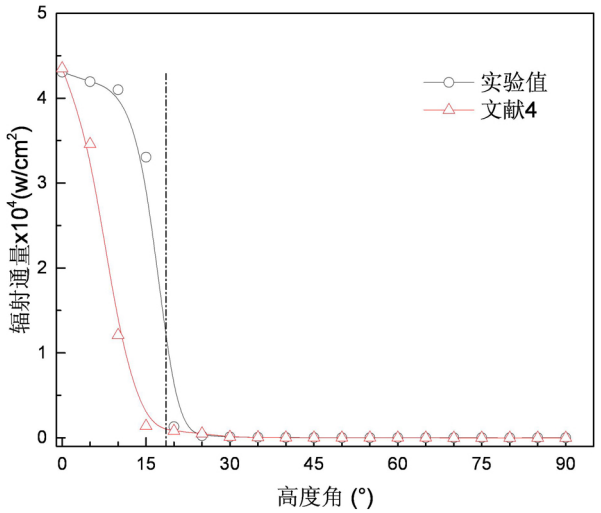


图 4　光源辐射通量文献值与实验值对比

Fig.4 Comparison of literature and experimental values of radiation flux of light source

2.2　平铺玻璃珠辐射场实验结果分析

2.2.1 玻璃珠直径对辐射通量的影响

以一层未处理玻璃珠为例，研究玻璃珠直径对辐射通量的影响。考察玻璃珠直径对辐射通量的影响，取一层未处理玻璃珠在不同测量半径上的辐射通量，如图 5 所示，随着测量半径的增加，辐射通量逐渐减小，在样品照射台范围内，随着测量半径的增加，辐射通量梯度增加，而在样品照射台范围以外，辐射通量梯度减小; 在同一测量半径上，不同玻璃珠直径的辐射通量基本相等，说明玻璃珠直径对辐射通量几乎没有影响。

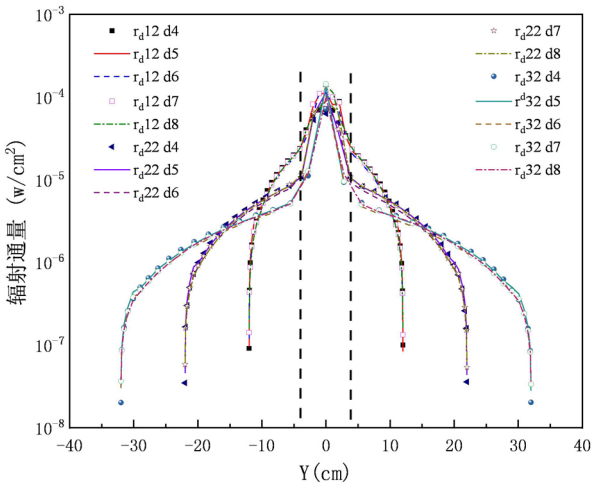


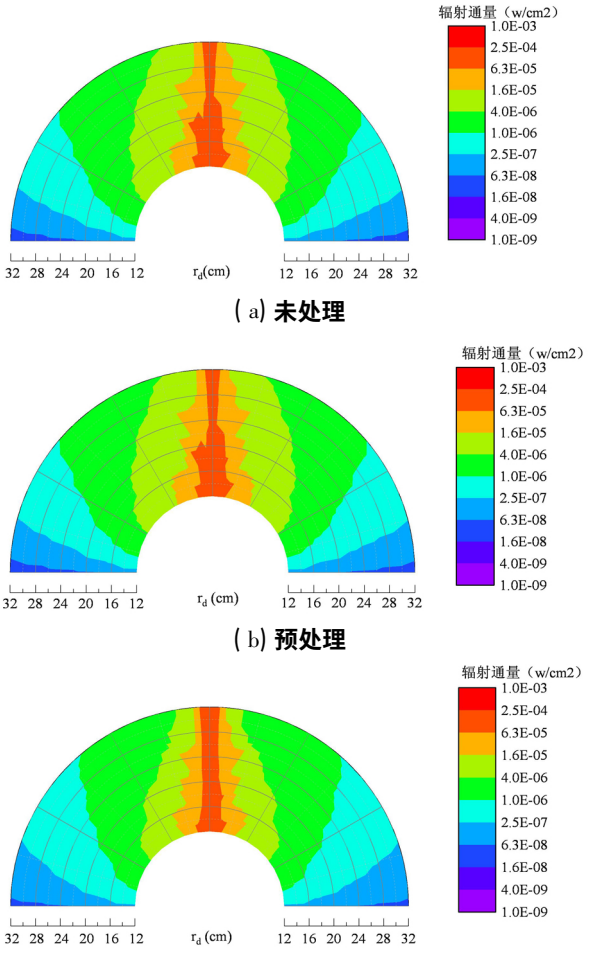
图 5　不同直径玻璃珠的辐射通量对比

Fig.5 Comparison of radiation flux of glass beads with different diameters

2.2.2 玻璃珠种类对辐射通量的影响

以一层 6mm 玻璃珠为例，研究玻璃珠种类(未处理、预处理、负载) 对辐射通量的影响。如图 6 所示，玻璃珠的辐射通量随着测量半径的增加而减小，并以方位角 90° 为中心向两侧递减。在样品照射台(r=4cm) 范围内，辐射通量最大值数量级均达到 10^{-4} w/cm^2，且辐射通量梯度较大; 样品照射台以外的区域内，辐射通量逐渐减小，最小值数量级达到 10^{-8} w/cm^2。这是因为光源发出一束半径为 4cm 的平行光，散射率低，因此，样品照射台范围内光强度大，周围光强度小，辐射通量低。未处理和预处理玻璃珠的辐射通量大小和变化趋势基本完全相等，而负载二氧化钛的玻璃珠的辐射通量稍微小一点。这是因为负载二氧化钛的玻璃珠，表面粗糙且透光性

变差，吸收系数增加，辐射通量减小。



（a）未处理

（b）预处理

（c）负载二氧化钛

图 6 玻璃珠的辐射通量云图

Fig.6 Radiation flux cloud of glass beads

比较不同种类玻璃珠（未处理、预处理、负载）在不同测量半径上的辐射通量，如图 7 所示，在同一测量半径上，各玻璃珠的辐射通量的变化趋势相同，样品照射台内辐射通量大、梯度大，周围辐射通量小、梯度小、边界处辐射通量梯度陡增；随着测量半径的增加，各玻璃珠的辐射通量逐渐减小，这是因为光源是一束半径为 4cm 的散射率较小的平行光，样品照射台内辐射强度大，周围辐射强度小。在各测量半径上，未处理玻璃珠辐射通量最大，预处理次之，负载二氧化钛玻璃珠的辐射通量最小。这是由于玻璃珠的透光性和吸收系数所致，透光性越好，吸收系数越小，辐射通量越大。未处理玻璃珠透光性最好、吸收系数最小，预处理后的玻璃珠呈磨砂面，透光性降低、吸收系数增大，负载二氧化钛的玻璃珠表面呈粗糙的磨砂面，透光性最差、吸收系数最大。

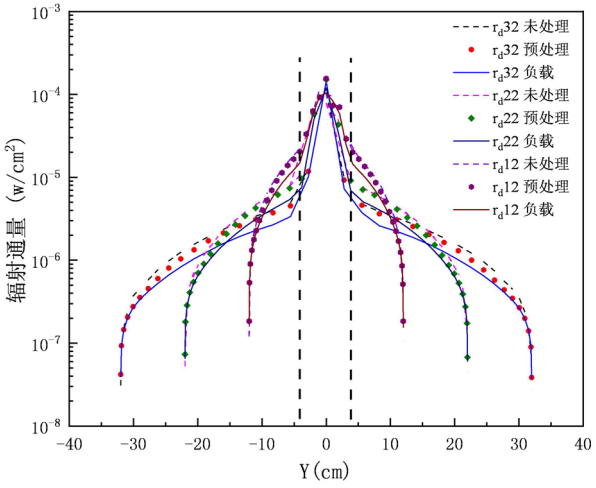


图 7 不同种类玻璃珠在不同测量半径的辐射通量

Fig.7 Radiation flux of different kinds of glass beads at different measuring radii

2.2.3 玻璃珠层数对辐射通量的影响

以 6mm 未处理玻璃珠为例，研究层数对辐射通量的影响。6mm 未处理玻璃珠不同层数的辐射通量如图 8 所示，同一测量半径上，在样品照射台范围内，辐射通量随着玻璃珠层数的增加而减小，在样品照射台范围外，平铺玻璃珠的辐射通量随着层数的增加而减小，而 0 层玻璃珠即光源的辐射通量小于平铺玻璃珠的辐射通量；同一玻璃珠层数时，辐射通量随着测量半径的增加而减小。光源的辐射通量随着测量半径的增加而减小，且在 Y = 4cm 处辐射通量梯度较大；一层玻璃珠的辐射通量随测量半径的增加呈光滑曲线减小；两层玻璃珠的辐射通量随测量半径的增加逐渐减小，在接近测量边缘处，辐射通量先增加后减小；三层玻璃珠时，辐射通量随测量半径的增加而减小，并趋于某一值，直到测量边界处骤减。这是因为玻璃珠之间存在反射和折射的作用，致使辐射通量随玻璃珠层数的不同而存在差异。

这里，我们定义净辐射通量比：

$$\eta = \frac{q_0 - q_n}{q_0}$$

其中：q_0：光源辐射通量，q_n：不同层数玻璃珠的辐射通量，n = 1/2/3。

不同层数玻璃珠的净辐射通量比如图 9 所示。样品照射台范围内，$q_0 \geqslant q_n$，η 在 0～1 范围内；光孔外，$q_0 \leqslant q_n$，$\eta < -1$，且随着 n 增大 $|\eta|$ 增大。

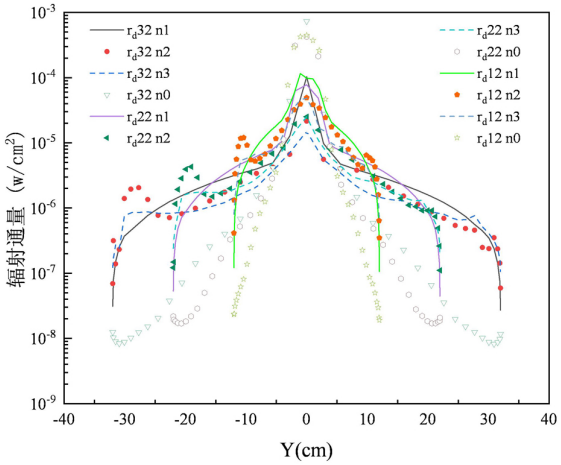


图 8　不同层数玻璃珠的辐射通量对比

Fig.8 Comparison of radiation flux between different layers of glass beads

这是因为，样品照射台内光源发出一束平行性较好的光线，散射率低，垂直穿过玻璃珠，玻璃珠之间的反射和折射作用小，大部分光强被玻璃珠消耗。样品照射台范围外，平铺玻璃珠后，部分光线射入玻璃珠，由于玻璃珠的反射、折射和衍射作用，增强了玻璃珠之间的辐射通量，致使平铺玻璃珠的辐射通量大于光源辐射通量。

在 Y = 0cm 处，n1/2/3 玻璃珠的净辐射通量比分别为 81.87%、93.38%和 93.67%。即说明在 Y = 0cm 处，辐射通量被第一层玻璃珠所消耗了 81.87%，被第二层玻璃珠所消耗了 11.51%，仅有 0.29%的光强被第三层玻璃所消耗。因此，在固定床光催化反应中玻璃珠层数不宜超过两层。

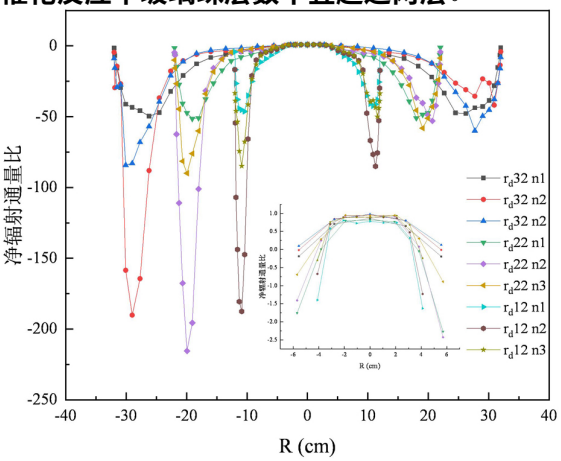


图 9　不同层数玻璃珠的净辐射通量比

Fig.9 Net radiative flux ratio of different layers of glass beads

3　结论

利用自制辐射场测试平台对平铺玻璃珠辐射场进行实验分析发现: 玻璃珠直径对辐射通量几乎没有影响; 玻璃珠种类对辐射通量影响较大，未处理玻璃珠辐射通量最大，预处理次之，负载二氧化钛玻璃珠的辐射通量最小，主要原因是玻璃珠的透光性和吸收系数所致; 玻璃珠层数对辐射通量的影响最大，在 Y = 0cm 处，n1/2/3 玻璃珠的净辐射通量比分别为 81.87%、93.38%和 93.67%。因此，以玻璃珠为载体的固定床光催化反应器中，玻璃珠层数不宜超过两层。

参考文献:

[1] 吴琦琪，乔玮，苏韧.异相光催化技术在能源与环境及有机合成领域的研究进展 [J] .科学通报，2019，64(32) : 3309-3326.

[2] 刘长安，孙德智，赵海发，母旋.多相光催化反应器中紫外光辐射能分布的研究 [J] .环境科学学报，2004(01) : 82-85.

[3] Vaiano V，Sacco O，Pisano D，et al. From the design to the development of a continuous fixed bed photoreactor for photocatalytic degradation of organic pollutants in wastewater [J] . Chemical Engineering Science，2015，137: 152-160.

[4] Zazueta A L L，Destaillats H，Puma G L. Radiation field modeling and optimization of a compact and modular multi-plate photocatalytic reactor (MPPR) for air/water purification by Monte Carlo method [J] . Chemical Engineering Journal，2013，217(1) : 475-485.

[5] Jeroen van Walsem，Jelle Roegiers，Bart Modde，Silvia Lenaerts，Siegfried Denys. Determination of intrinsic kinetic parameters in photocatalytic multi-tube reactors by combining the NTU m -method with radiation field modelling [J] . Chemical Engineering Journal，2018，354.

[6] Imoberdorf G，Taghipour F，Keshmiri M，et al. Predictive radiation field modeling for fluidized bed photocatalytic reactors [J] . Chemical Engineering Science，2008，63(16) : 4228-4238.

[7] 戴智铭，陈爱平，古宏晨，朱中南，顾明元.新颖填充床光催化反应器的辐射能分布模拟 [J] .化工学报，2002 (08) : 775-779.

[8] 罗薇楠，尤宏，姚杰.多相光催化反应器辐射能模型的建立与验证 [J] .环境工程学报，2011，5(05) : 1096-1100.

[9] 孙德智，刘长安，赵海发.一种测定光催化反应器中紫外

光辐射能的新方法[J].太阳能学报,2004(04):552-556.
[10] 王鑫. 光催化反应器中光辐射场与光催化表面反应数值模拟[D]. 天津大学, 2014.
[11] Imoberdorf G E, Alfano O M, Cassano A E, et al. Monte Carlo model of UV - radiation interaction with TiO2 - coated spheres[J]. Aiche Journal, 2007, 53(10):2688-2703.