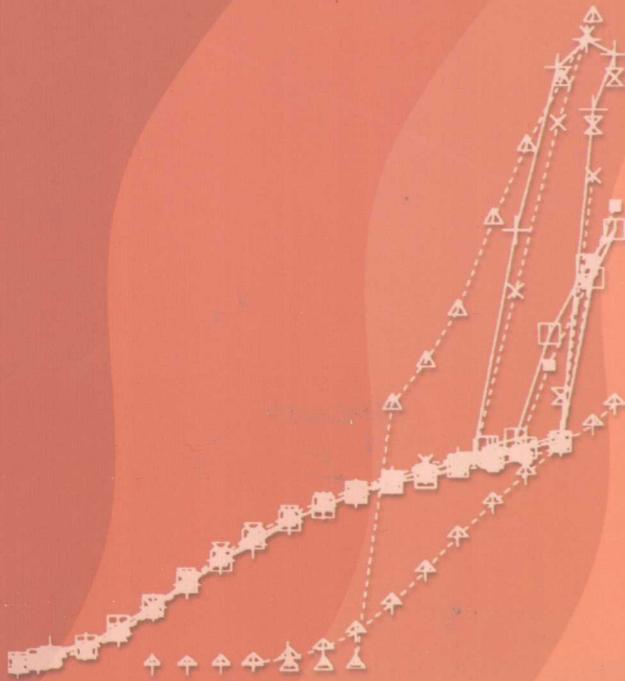


Mechanisms and Applications of  
Catalytic Combustion of Natural Gas  
with Near Zero Pollutant Emissions

张世红 [法] Dupont Valerie 周琦 [英] Williams Alan 著

天然气催化燃烧  
近零污染物排放  
机理和应用



科学出版社  
[www.sciencep.com](http://www.sciencep.com)

# 天然气催化燃烧近零污染物排放 机理和应用

Mechanisms and Applications  
of Catalytic Combustion of  
Natural Gas with Near Zero  
Pollutant Emissions

张世红 [法]Dupont Valerie 著  
周 琦 [英]Williams Alan

北京建筑工程学院学术著作出版基金资助出版

科学出版社

北京

## 内 容 简 介

本书是对国外进行贫甲烷和空气混合物催化燃烧的理论研究和国内天然气催化燃烧实际应用的总结。第1、第2章是对贫甲烷和空气混合物在催化燃烧炉中的镀贵金属蜂窝状独石支撑物横断面上燃烧温度、稳定性和催化燃烧过程可达到近零污染物排放的研究。第3、第4章是对甲烷催化燃烧近零污染物排放机理的研究,采用对催化剂表面及整个气相的燃料转化率进行计算机模拟和CO选择性的模拟方法,并与实验进行比较,得出铂表面的异相反应抑制了气相氧化反应的程度,并且提高了单相点燃的表面温度。第5~7章分析了天然气催化燃烧的应用和产业化以及有待解决的问题,如催化剂的高温失活、低成本催化剂配方及制备工艺,论述了工业化大功率天然气催化燃烧器结构和催化燃烧控制系统的研发、天然气催化燃烧实际应用研究。

本书可供从事动力工程、燃烧、供热、化工、环境工程、制冷空调及能源工程和工程热物理等专业的本科生、研究生使用,也可作为相关专业研究人员的参考书。

### 图书在版编目(CIP)数据

天然气催化燃烧近零污染物排放机理和应用 = Mechanisms and Applications of Catalytic Combustion of Natural Gas with Near Zero Pollutant Emissions / 张世红等著. —北京:科学出版社, 2008

ISBN 978-7-03-020647-3

I. 天… II. 张… III. 天然气-催化-燃烧原理 IV. TE646 TK175

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2008)第 045709 号

责任编辑:刘宝莉 王向珍 / 责任校对:张琪

责任印制:刘士平 / 封面设计:王浩

科学出版社出版

北京东黄城根北街 16 号

邮政编码: 100717

<http://www.sciencep.com>

双青印刷厂印刷

科学出版社发行 各地新华书店经销

\*

2008 年 4 月第 一 版 开本:B5 (720×1000)

2008 年 4 月第一次印刷 印张:7 1/4

印数:1—3 000 字数:127 000

定价:30.00 元

(如有印装质量问题, 我社负责调换(双青))

**北京建筑工程学院学术著作  
出版基金委员会**

**主任：**郑文堂

**副主任：**朱光 宋国华

**委员：**张大玉 吴海燕 汤羽扬 吴徽 李德英

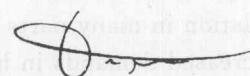
陈志新 何佰洲 王晏民 孟宪颐 刘临安

高春花

## Preface

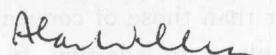
We are delighted to write a foreword to this exciting book which presents the results of a comprehensive investigation into the catalytic combustion of natural gas as a near-zero emissions technology for potential use in domestic boilers. Catalytic combustion has been known since 1818, the year in which Sir Humphrey Davies observed that coal-gas and oxygen were able to sustain a combustion reaction on a platinum wire in the absence of a flame, giving off thermal radiation from the wire in its place. The advantage of burning gaseous fuels completely, that is, without forming carbon monoxide or leaving fuel unreacted, and flamelessly in a large excess of air, and at temperatures below the threshold of nitrogen oxides formation, has been exploited in many combustion applications since the 1970s. The technology showed a slow uptake in commercialization due to the high cost and limited lifetime of the supported noble metal catalysts required for the catalytic oxidation reactions, the comparatively low cost of competing conventional combustion burners, and the then lenient legislation on  $\text{NO}_x$ , CO and unburnt hydrocarbon emissions. But as the decades passed, the stability and costs of the materials for catalytic combustion improved enormously, often benefiting from the knowledge gained from the related technology of the catalytic oxidation for motor vehicle exhausts converters, as well as improvements in catalyst manufacture processes. With growing concerns over both urban and indoor air quality, increases in population in many parts of the world and fast growing economies resulting in increased demands in heat and power from the industry, commercial and domestic sectors, the more mature catalytic combustion becomes attractive to the environmentally conscious countries and legislators. In addition, the combustion and thermal efficiencies of the fuel-lean catalytic burners are larger than those of conventional combustion, offering a low-carbon energy technology in addition to its zero emission claims, potentially helping countries fulfilling their wish to reduce carbon emissions. To date, commercial catalytic burners or combustors can be found in space heaters, process heaters, gas turbines, cookers, and water heaters, and many

handheld small-scale heating devices such as cordless hair dryers, or hand warmers. Most large natural gas distributor companies as well as gas turbine manufacturers have a significant programme of research into catalytic combustion. Catalytic burners are also able to burn most hydrocarbon gaseous fuels, with little sensitivity to their sulphur content as long as the combustion temperature is above approximately 800°C where the sulphur oxides no longer bind to the surface and cannot poison it. This book presents the results of fundamental research carried out by the authors in the department of Fuel and Energy at Leeds University, UK, and continued later on with a practical applications approach in the Thermal Fluids Division of the Beijing University of Civil Engineering and Architecture (BUCEA). This is reflected in the early chapters authored by the Leeds team, which relied heavily on Dr S. H. Zhang's PhD thesis work on honeycomb platinum and palladium coated monolithic catalytic burners, and the later chapters authored by the BUCEA team, when Dr Zhang returned upon completion of her thesis and set out to incorporate catalytic burners in domestic water heaters and investigate their thermal efficiency, zero pollutant claims, and perhaps most importantly their stability and longevity, without which its commercialization could not be envisaged. It is a considerable feat of dynamism that Dr Zhang has been able to communicate her knowledge, enthusiasm and faith for this technology to the remaining authors of the BSCA team, resulting over the years, in the long term demonstration of several catalytic burners in a domestic boiler setting, certified with zero pollutant emissions. We are proud of having contributed to the foundations of this feat and by the publication of this book, we would hope to increase the number of converts to the clean technology of catalytic combustion.



Dr Valerie Dupont

(PhD, INSA Lyon Energy Engineering, member of the Combustion Institute, member of the American Chemical Society)



Professor Alan Williams

(Commander of the British Empire-CBE, Fellow of the Royal Academy of Engineering-FREng, BSc, PhD, CEng, CChem, FRSC, FEI, FIGEM, FRSA)

## 前　　言

在“贫甲烷/空气混合物催化燃烧的研究”中,通过对其在催化燃烧装置镀贵金属蜂窝状独石支撑物横断面上燃烧温度、稳定性和污染物排放的调查,发现只有催化燃烧可达到近零污染物排放。理论研究中,首次从实验和模拟的角度提出了燃料转化率和 CO 选择性与铂表面温度(一直到超过了单相点燃温度区)的关系。根据分步化学机理方法模拟出的结果可以得出,铂表面的异相反应抑制了气相氧化反应的程度,并且提高了单相点燃的表面温度。实验观察到的抑制作用比预料的要强烈,实验表明在催化燃烧的高温区,抑制作用在这一较大区域里一直起主导作用,即异相反应推迟单相点燃的机理,催化燃烧炉中在 1200℃左右还是异相催化燃烧,排放物中只含有极少量的 CO、氮氧化物和不完全燃烧的碳氢化合物。

在此理论的指导下,以催化燃烧机理和应用研究为课题,对近零污染物排放、催化剂失活特性和贫天然气/空气混合比如何调节等问题进行了深入研究,开发研制出催化燃烧 I、II、III、IV 型炉。

经北京市技术监督局 CMA 认证及国家资质认可的除尘设备检测中心测试的结果表明:催化燃烧 II 型炉烟气中排放的 CO、NO<sub>x</sub> 浓度很低,低于 4ppm<sup>①</sup>,远低于《北京市锅炉污染物综合排放标准》中燃气锅炉 NO<sub>x</sub> 排放浓度低于 97ppm 的要求。

在解决了天然气催化燃烧近零污染的同时,研制出 III 型催化燃烧器,该燃烧器在催化燃烧控制理论和控制技术方面取得突破性进展,已实现催化燃烧的吹扫、预混、点火、预热和催化燃烧过程的自动控制。

该燃烧器具有大气污染物排放显著低于国内目前同类产品的排放水平,目前催化燃烧除可以解决污染问题外,还以节约能源为背景,这一成果的推广应用将为环保和节能做出贡献。

本书第 1~4 章是由张世红、Dupont Valerie 和 Williams Alan 撰写,第 5 章是由张世红撰写,第 6、第 7 章由周琦撰写。

感谢全国人大常委会副委员长、欧美同学会会长韩启德对我们工作的关

① 1ppm=1×10<sup>-6</sup>,下同。

心。衷心感谢于隶群老师对我们工作提出建议。深深感谢柯文进教授、李德英教授、王燕京老师、贺小昆博士、桓源峰博士、叶书明教授、裴立德老师、王立教授、马重芳教授、岳光溪教授、林乐耘教授、贾天新老师、王丽水老师、孙功谊老师、祈颖先生、蒋学清老师、陈恭颐老师、任钢炼老师、刘向奎老师、申瑞军老师、申文义老师、温建芳老师、赵金瑞老师、汪慧贞教授、余启灏教授、付忠诚教授、钱申贤教授、王庆森老师、李岱森老师、谢文华老师、艾效逸教授、王随林教授、潘树源老师、张永祥老师、王文海老师、邱林老师、黄忠臣老师、毛亚林老师、方青老师、邵宗义老师、陈红兵老师、史永征老师、雷启华老师和北京建筑工程学院科研处、人事处、财物处及资产处,北京锅炉厂,晶锐瓷业(北京)有限公司,昆明贵研催化剂有限责任公司,北京振兴华龙制冷设备有限责任公司,英国的 Johnson Matthey 对此工作给予的支持和帮助。对王祺、闫征、宋鹏、刘雪莲、李斌、董庆珊、段之殷、张倩子、石远方、张杰、宋庆东等同学参加催化燃烧炉实验研究工作表示诚挚的谢意。

本书研究成果得益于以下基金项目:人事部 2005 年度留学回国人员科技活动择优资助重点项目;北京市教育委员会科技发展计划面上项目(项目编号:KM200610016011)和北京市供热、供燃气、通风与空调工程重点实验室开放课题。

由于作者水平有限,书中难免存在不足之处,恳请读者批评指正。

## 主要符号

$\alpha$	燃料混合物的强度, $\frac{\dot{V}_{\text{CH}_4}}{\dot{V}_{\text{CH}_4} + \dot{V}_{\text{O}_2}}$
$\epsilon$	发射率
$\rho$	燃气密度, $\text{kg}/\text{m}^3$
$\rho_0$	喷射器出口燃气密度( $x = 0\text{cm}$ ), $\text{kg}/\text{m}^3$
$\sigma$	黑体辐射常数, 等于 $5.67 \times 10^{-8}\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K}^4)$
$\dot{\omega}_k$	组分 $k$ 的摩尔生成率, $\text{mol}/(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$
$A$	独石辐射面的表面积为 $8.107 \times 10^{-3}\text{ m}^2$
$A_n$	独石柱上的净横截面的表面积
$\text{CV}_{\text{天然气}}$	标准状态下天然气的低热值, $8250\text{kcal}^{①}/(\text{N} \cdot \text{m}^3)$
$\text{CV}_{\text{CH}_4}$	甲烷的转化率
DET	分步化学反应机理
DET*	优化 1 分步化学反应机理
DET <sub>HET</sub>	分步异相化学反应机理
DET <sub>HOM</sub>	分步单相化学反应机理
DET <sub>HET+HOM</sub>	施加测量的气体温度的分步异相/单相耦合化学反应机理
DET <sub>HET+HOM, ENRG</sub>	利用数值法解能量方程的分步异相/单相耦合化学反应机理
$F$	燃烧表面对周围介质的角系数, 书中实验为 0.8
$F_k$	铂箔表面组分 $k$ 的质量通量, $\text{kg}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$
GL	综合化学反应机理
GL <sub>HET</sub>	综合异相化学反应机理
GL <sub>HET</sub> *	优化 1 综合异相化学反应机理
GL <sub>HET</sub> **	优化 2 综合异相化学反应机理
SEL <sub>k</sub>	生成物组分 $k$ 的选择性
SPFR	滞止点流动反应器
$T$	温度, $^\circ\text{C}$ 或 $\text{K}$
$T_a$	载体所处的空间平均温度, $\text{K}$

① 1 cal = 4.1868J, 下同。

$T_s$	催化燃烧载体表面温度, K
$U_0$	喷射器出口轴向速度( $x=0\text{cm}$ ), m/s
$\dot{V}(t)$	独石内部在时间 $t$ 下的体积流量
$W_k$	$k$ 组分的摩尔质量
$X$	独石通道的轴向距离, mm
$X_{\text{N}_2}$	反应混合物中氮气的摩尔分数, $\frac{\dot{V}_{\text{N}_2} + 0.79\dot{V}_{\text{air}}}{\dot{V}_{\text{tot}}}$
$Y_{\text{CH}_4,0}$	喷射器出口燃料质量分数( $x=0\text{cm}$ )

# 目 录

## Preface

### 前言

### 主要符号

<b>第 1 章 绪论</b> .....	1
1-1 燃烧的环境污染问题 .....	2
1-2 催化燃烧技术的兴起 .....	3
1-3 催化燃烧的国内外研究现状 .....	3
参考文献 .....	4
<b>第 2 章 甲烷在催化燃烧器燃烧中催化剂反应区的研究</b> .....	5
2-1 概述 .....	5
2-2 实验装置 .....	7
2-3 催化剂独石通道中的温度变化 .....	8
2-4 讨论实验结果 .....	12
2-5 数值模型建立和模拟结果 .....	13
2-6 结论 .....	18
参考文献 .....	18
<b>第 3 章 滞止点流动反应器中甲烷在铂表面上进行氧化反应的实验与模拟</b> .....	20
3-1 概述 .....	20
3-2 甲烷在铂表面上进行氧化反应的实验 .....	21
3-3 甲烷在铂表面上进行氧化反应的数值模拟 .....	23
3-4 实验结果 .....	27
3-5 模拟结果 .....	30
3-6 讨论铂箔使用时间长短的影响 .....	33
3-7 讨论反应物中氮气含量的影响 .....	34
3-8 讨论燃料混合物强度的影响 .....	34
3-9 讨论数值模拟方法 .....	36
3-10 结论 .....	37

---

参考文献 .....	38
<b>第4章 高温催化燃烧和气相点燃的催化抑制作用 .....</b>	<b>41</b>
4-1 蜂窝独石燃烧器的研究 .....	41
4-2 大型滞止点流动反应器的研究 .....	43
4-3 结论 .....	52
参考文献 .....	52
<b>第5章 催化燃烧炉特性的实验研究 .....</b>	<b>54</b>
5-1 催化燃烧炉辐射效率 .....	55
5-2 催化燃烧炉中催化剂使用寿命研究 .....	59
5-3 催化燃烧炉传热特性 .....	64
参考文献 .....	66
<b>第6章 催化燃烧器及核心技术研究 .....</b>	<b>68</b>
6-1 催化燃烧器结构及原理 .....	68
6-2 催化燃烧器流体系统阻力特性实验研究 .....	76
6-3 催化燃烧器核心技术研究 .....	80
6-4 催化燃烧器研究结果及结论 .....	88
参考文献 .....	95
<b>第7章 催化燃烧应用前景及可行性研究 .....</b>	<b>97</b>
7-1 催化燃烧应用前景 .....	97
7-2 燃气催化燃烧应用可行性研究 .....	99
7-3 催化燃烧应用及产业化所面临的问题 .....	99
参考文献 .....	101

## 第1章 绪 论

人类的生存和发展依赖着能源的开发和利用,但由能源开发和利用带来的环境污染等负面影响,也日益威胁着人类的生存和社会的可持续发展。例如,由矿物燃料普通燃烧产生的排放物  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{CO}$  和未完全燃烧的碳氢化合物(UHC)以及石油和煤矿开采排放出的甲烷( $\text{CH}_4$ )等气体,造成酸雨、光化学烟雾和温室效应,激发哮喘病和呼吸道疾病,对生态环境造成严重破坏并威胁着人类健康。要解决由于燃烧造成的环境污染问题,必须改变传统落后的燃烧方式,提高燃烧效率,开发研制新的燃烧器和燃烧控制技术,对燃烧污染进行综合防治。

催化作用与燃烧技术的结合已有很长的历史,但现代催化燃烧技术是在近几十年来对环保与节能的要求日益迫切的形势下应运而生的一门新兴技术。20世纪50~60年代,汽车尾气净化技术和有机废气催化焚烧技术的发展,为燃气催化氧化反应积累了大量的实验依据。

本书着眼于对贫天然气/空气混合物在催化燃烧炉中的镀贵金属蜂窝状独石支撑物横端面上燃烧的污染物排放的研究。理论上对催化燃烧近零污染物排放机理的研究,采用了滞止点流动反应器(SPFR),在一个大气压和稳定状态下,用实验和计算机模拟来研究贫甲烷/氧气/氮气混合物的催化燃烧反应机理,用综合化学反应分子运动论(GL)及分步化学反应分子运动论(DET)数值模型对催化剂表面及整个气相的燃料转化率进行计算机模拟和 CO 选择性的模拟,得出铂表面的异相反应抑制了气相氧化反应的程度,并且提高了单相点燃的表面温度。实验观察到的抑制作用比预料的要强烈,实验表明在催化燃烧的高温区,抑制作用在这一较大区域里一直起主导作用。

催化燃烧(异相燃烧)应用的目的是用合适的燃料(如天然气)产生热量,燃烧效率达近 100%,催化剂表面温度可达  $1200\sim1300^\circ\text{C}$ ,因催化剂载体的承受能力,一般在  $1100^\circ\text{C}$  左右工作,同时能达到  $\text{CO}$  和  $\text{NO}_x$  均小于 5ppm 近零污染物排放。另外,催化反应还适用于净化有害物质流。催化燃烧反应较低的活化能允许反应在贫碳氢化合物浓度下发生,因此绝热反应的温度低于  $\text{NO}_x$  形成的限制,并完全氧化,不形成  $\text{CO}$  和未完全燃烧的碳氢化合物,燃烧发生在常规气相易燃极限之外,因此燃烧更稳定。

## 1-1 燃烧的环境污染问题

大气中的  $\text{NO}_x$  主要产生于微生物的代谢过程及人类的生产活动。在人为因素中, 各类燃烧器所产生的  $\text{NO}_x$  占有很大比例; 移动式污染源(如汽车)约占排放总量的 40%, 固定式污染源(如电厂)约占 40%, 远远超过化工与其他制造业的总和(Schrod, et al., 1985)。

由燃烧释放的  $\text{NO}_x$  主要是废气中的 NO 和  $\text{NO}_2$ 。这些  $\text{NO}_x$  由空气中的氮气在高温下氧化而成, 又称为热力  $\text{NO}_x$  及由燃料中的氮化合物氧化形成等渠道。

$\text{NO}_x$  是燃烧器中  $\text{N}_2$  与燃料基的氮组分被助燃气中的  $\text{O}_2$  氧化的产物, 它随燃烧烟气进入大气层后, 与  $\cdot\text{OH}$ 、 $\cdot\text{O}_2\text{H}$  等自由基或臭氧发生进一步氧化反应产生更高价态的氧化物。这些酸性物质与空气中的蒸气、粉尘成为具有强烈刺激性的城市化学烟雾, 造成人们的各种呼吸系统疾病, 因此, 只有对燃烧过程进行彻底改造, 才能减少  $\text{NO}_x$  的排放量, 从根本上解决上述问题。

煤和各种高碳燃料油中存在大量芳香稠环化合物, 在火焰燃烧方式下, 氧化反应主要依靠自由基方式进行, 该类化合物稳定的电子结构使它在火焰中的稳定时间相当长, 甚至可以穿越整个反应区间进入尾气中, 致使燃烧尾气中携有高浓度的烃类和 CO 等不完全燃烧产物。这些污染物大多是带有恶臭、致癌性或毒性很强的化合物, 一般不能将其直接排放至大气中, 需要在排放终端加接催化燃烧焚烧器, 利用催化剂在氧化气氛下促使 NO 与 CO 等还原气体发生反应, 将 CO 和未燃烧烃类完全氧化为  $\text{CO}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$ , 达到同时消除 NO、CO 和未燃烧烃类的目的。另外, 火焰燃烧方式下的燃料燃烧不完全, 燃烧效率低, 也是燃烧产物中 CO 等不完全燃烧产物含量较多的原因之一。

加接焚烧器对尾气进行处理不但烦琐, 而且会增加设备初投资, 因此最直接的方法就是采用天然气的催化燃烧方式。CO 主要来源于含碳物质的不完全燃烧, 在催化燃烧过程中, 由于提高了空燃比, 加之催化剂表面活性氧的参与, 促进了含碳物质的完全氧化, 大大降低了 CO 的生成。

$\text{SO}_2$  是目前大气污染物中数量大、影响范围广的气态污染物之一, 通常所说的硫氧化物主要是指  $\text{SO}_2$ 。大气中  $\text{SO}_2$  的来源很广, 主要是燃烧含硫的化石燃料(煤、石油)产生的。由于  $\text{SO}_2$  能够使支气管收缩, 增加气管阻力, 因此, 当空气中  $\text{SO}_2$  浓度过高时, 人们会出现呼吸受阻的症状, 严重时还会出现支气管痉挛。

## 1-2 催化燃烧技术的兴起

人们对催化作用与燃烧技术结合应用的历史可以追溯到 19 世纪初,但现代催化燃烧领域的重要贡献都发生在 20 世纪 70 年代初,研究者最初主要关注的是汽轮机燃烧器的 NO<sub>x</sub> 的减少,Blazowski 等(1975)在这一领域作出了重要贡献,验证了使用贵金属作为催化剂的汽轮机产生的 NO<sub>x</sub> 比传统燃烧减少了一到两个数量级。经过几十年的发展,催化燃烧汽轮机已经达到了最后的寿命测试阶段。

从 20 世纪 70 年代中期开始,人们被催化燃烧技术所带来的经济效益和环境效益所吸引,各大企业和科研部门针对该技术的应用和基础理论展开了全球性的研究竞赛。

进入 20 世纪 90 年代后,燃烧催化剂的发展使催化剂成为燃烧器设计的主要革新力量。关于六铝酸盐催化 CO/H<sub>2</sub> 燃烧的研究结果表明,燃烧催化剂的使用有可能为现有燃料结构的调整提供一条新思路。

催化燃烧技术除了应用在汽轮机和航空器后燃室外,在干燥和热处理等领域也有所应用,如家用热水器、炉灶、有机废气处理、空间加热器等,某些产品已经得到了实际的应用。催化剂壁面具有很高的辐射通量,这导致了大量辐射加热器的发展。尽管有大量关于大型催化剂应用到石油化工工业的研究,但是有关表面辐射炉实际应用的报道却很少,可以预测应用大型的表面辐射燃烧炉是未来的发展方向。

存在限制的催化燃烧炉应用的主要问题是:催化反应机理的复杂性及催化剂的活性与稳定性问题。

## 1-3 催化燃烧的国内外研究现状

国际上催化燃烧技术主要集中在近零污染物排放、催化剂中毒的机理和实验研究方面,发展较便宜的、可再生的、稳定的催化剂是目前催化燃烧领域的一个新课题,在应用方面催化燃烧已引入燃气轮机发电领域、燃气热水器等。近年来数值模拟技术的发展为进一步研究催化燃烧奠定了基础。利用数值模拟软件模拟反应器的燃烧状况,并且进行特性参数的前期预测并结合部分实验给予验证,这不仅节约了实验经费,而且也起到了指导进一步实验研究的作用。

随着技术的不断进步,在CH<sub>4</sub>低温燃烧的基础上出现了CH<sub>4</sub>高温燃烧,由于高温燃烧反应的温度超过1000℃,使得满足低温燃烧的催化剂已不能满足高温燃烧的要求,因此就需要开发新的催化剂。新的催化材料要求能够满足对CH<sub>4</sub>燃烧有低的点火温度和高的反应活性,并且还要有良好的耐高温性能,这就要探讨催化剂的自身特性、表面可能存在的吸附态、金属颗粒的影响以及催化剂在催化燃烧过程中的形貌变化等。

到目前为止,国内外催化燃烧技术主要集中在两个方面:一是催化剂及制备工艺;二是催化燃烧器及催化燃烧控制技术。对于天然气催化燃烧来说,在催化剂方面,首先要解决催化剂对CH<sub>4</sub>低温起燃、高温稳定性,研究其失活的机理,找到延长催化剂寿命或再生的方法。通过研究,使催化剂的性能达到低温起燃、高温稳定和长寿命的目标。研究性价比高的、可再生的、性能稳定的催化剂是目前催化燃烧领域的一个新课题。在催化燃烧器及催化燃烧技术方面,主要研究用于工业的大功率天然气催化燃烧器,其发展趋势,要求催化燃烧器结构简单、适应性强、用途广。而催化燃烧控制系统要求操作简便、性能可靠、成本低、自动化程度高。

#### 参 考 文 献

- Blazowski W S, Walsh D E. 1975. Catalytic combustion: An important consideration for future application. Combustion Science and Technology. 10, (233).
- Schrod M, Semel J, Steiner R. 1985. Processes for lowering NO<sub>x</sub> emissions in flue gases. Chemie Ingenieur Technik, 57(9): 717—727.

## 第2章 甲烷在催化燃烧器燃烧中 催化剂反应区的研究

本章研究贫甲烷/空气的混合气体在镀有贵金属的蜂窝独石中燃烧时的温度、稳定性、污染物排放等特性，并借助气相燃烧过程数值模拟来对实验结果进行分析解释。对所排放的污染物很低时，催化燃烧所处的稳定燃烧阶段燃料的最小燃烧浓度比传统的气相燃烧明显低，且这种优势还与催化剂本身的属性、涂层及气体混合物的流速有关。我们通过实验发现在燃烧器稳定运行时，催化剂钯在混合比配定和流速选择上比铂的最佳工作范围要大。而且燃烧器在稳定燃烧条件下运行时，通过检测，排放物中只含有极少量的 CO、氮氧化物和不完全燃烧的碳氢化合物。因此，在这种工作条件下可以认为此燃烧过程是近零污染物排放。到目前为止，只有催化燃烧可以实现这样的近零污染物排放。通过对独石通道内部温度分布的分析，可以证明催化剂的作用不仅是使燃料混合物的点燃温度低于传统燃烧的极限，而且在稳定燃烧状态下，可以确保通过通道内部表面的一些反应，使燃料完全氧化生成 CO<sub>2</sub>。实验还发现独石通道内部催化剂的反应区域是从通道的入口处到其后的 10mm 处结束。我们由此展开了针对独石通道长度作用的分析研究，发现在独石通道原始长度的基础上减少 70% 是可行的。

### 2-1 概 述

正是由于人们对降低燃烧过程中污染物排放的日趋重视，使催化燃烧的研究在很大程度上得到了促进。这是由于传统单相燃烧工艺总会产生一定数量的氮氧化物 (NO 和 NO<sub>2</sub>)、CO，并且含有未燃烧的燃料，而异相催化燃烧却可以使极贫碳氢化合物/空气混合物的燃烧低于传统燃烧的最小极限值且其污染物排放可以达到近零。

当有固体催化剂结合时，可以大致分成三个典型的燃烧过程，即催化燃烧、稳定催化助热燃烧 (CST)、异相-单相耦合燃烧。首先，燃料通过(固-气)异相反应完全转化成 CO<sub>2</sub>，值得注意的是这个反应只能发生在低温条件下。然