

概 述

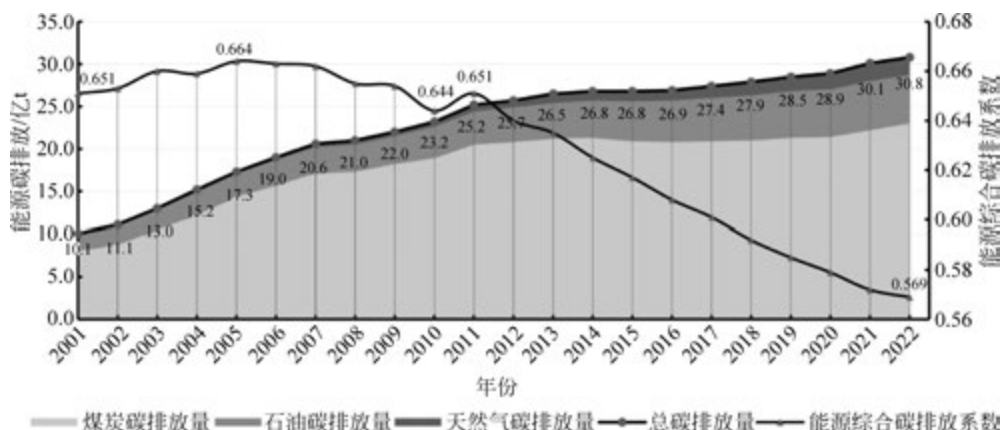
1.1 背景介绍

1.1.1 工业应用场景

在过去的 20 世纪里,全球能源消耗量增加了 17 倍。其中,化石燃料(如煤炭、石油和天然气)燃烧所提供的能源比例超过 85%。然而,使用化石燃料所带来的环境污染问题日益严峻^[1],例如,造成空气污染的主要污染物来自于化石燃料燃烧所产生的二氧化碳、一氧化碳、二氧化硫、氮氧化物等。第 21 届联合国气候变化大会达成抑制全球气候变暖的《巴黎协定》,提出各国共同控制碳排放,实现碳中和。

2001 年至 2022 年,我国的二氧化碳排放量逐年递增,如图 1.1 所示。2023 年,我国一次能源消费总量为 48.3 亿 tce,比上年增长 4.2%。巨大的能源消费背后是我国门类齐全的工业发展,富氢燃气是工业生产过程中的副产物和排放物,具有排放总量大、对环境污染重、有用组分资源浪费等特点。2020 年 9 月,我国提出了“二氧化碳排放力争于 2030 年前达到峰值,努力争取 2060 年前实现碳中和”的双碳目标。因此,为了在满足全球工业化高能源需求的同时,实现碳中和的目标,在燃烧领域内,除了开发纯氢气、纯氨气等非碳燃料的先进燃烧技术,将富氢燃气作为典型的低碳替代燃料,也是实现低碳燃烧的关键途径之一^[2]。

随着我国经济的快速增长,能源消耗量急剧上升,富氢燃气的产量也在大幅增加。截至 2022 年,国内生产生物质气的农户已超过 3050 万,年生产生物质气约 124 亿 m^3 ,其热量相当于 1900 万 tce^[4]。同时,国内约有 600 个生物质气化装置正在运行,已为超过 20 万户家庭提供合成气^[5]。国内已有 260 余座炼铁高炉,有效容积超过 1000 m^3 ,产生数量巨大的副产气^[6]。在这一背景下,中国预见到了高效利用富氢燃气的巨大机遇和挑战。

图 1.1 2001 年至 2022 年我国能源碳排放的数量与系数^[3]

1.1.2 富氢燃气分类及构成

富氢燃气主要分为三类：生物质气、合成气和副产气。生物质气是一种清洁的可再生能源，由废弃物经有机分解产生。废弃物主要包含农业废弃物、污水、污泥和工业有机废弃物等^[7]。生物质气的主要成分为甲烷、氢气、二氧化碳、氮气和硫化氢。由于不同来源的生物质气中甲烷的浓度存在差异，其热值也略有差别，普遍在 $5.0 \sim 7.5$ ($\text{kW} \cdot \text{h}/\text{m}^3$)。合成气通常通过煤气化或生物质气重整产生，其主要成分包含氢气、一氧化碳、二氧化碳等^[8]。合成气的组成成分比例受生产工艺的影响，其低位热值普遍在 $1.0 \sim 2.6$ ($\text{kW} \cdot \text{h}/\text{m}^3$)。副产气通常来自于冶金行业、钢铁行业、采油行业、化工行业的工艺生产过程^[9]，常见的副产气有油田伴生气、焦炉煤气、转炉煤气、高炉煤气、兰炭尾气、裂解气、解析气等，其气体成分主要为氢气、一氧化碳、甲烷、氮气和氮气。尽管生物质气、合成气、副产气的来源各不相同，但作为典型的富氢燃气，其可燃组分相近（氢气、一氧化碳和甲烷），因此，具有相近的燃烧特征。与甲烷相比，表 1.1 显示了典型富氢燃气的组成和物理特性。

表 1.1 典型富氢燃气的组成和物理特性

燃料	体积分数/%					低位热值 /(($\text{kW} \cdot \text{h}/\text{m}^3$))	密度 /(kg/m^3)
	H_2	CH_4	CO	CO_2	N_2		
甲烷	—	100	—	—	—	9.94	0.67
生物质气	—	52	—	40	8	5.17	1.20
合成气	9	7	14	20	50	1.44	1.18
焦炉煤气	62	28	6	4	—	4.75	0.38
油田伴生气	—	21	—	19	60	2.10	1.27
高炉煤气	2.5	—	22.5	—	75	0.87	1.22

1.2 富氢燃气的燃烧组织方式

为实现富氢燃气的稳定燃烧,常用的燃烧策略包括传统燃烧、多孔介质燃烧、无焰燃烧、富氧燃烧、双燃料燃烧等。其中,传统燃烧的应用最为广泛,并可以根据不同富氢燃气的特性进行火焰刚性、火焰形状等的定制化设计。多孔介质燃烧和无焰燃烧通过预热提高了富氢燃气的火焰温度,从而增强了火焰的稳定性和燃烧效率。富氧燃烧和双燃料燃烧分别通过改变氧化剂组分和添加高热值燃料的方式,来增强富氢燃气燃烧过程中的化学反应强度,从而实现稳定燃烧。

1.2.1 传统燃烧

传统燃烧通过独立的燃气进口和助燃空气进口将燃料和氧化剂引入燃烧器喷嘴,在喷嘴内部通过分层通道、燃气支管、钝体稳焰盘、旋流叶片等机械结构实现燃气和空气的高效混合,最终在喷嘴下游形成稳定火焰。在富氢燃气的实际应用中,传统燃烧会根据燃气组成的不同,结合现场工艺要求和燃烧室几何限制,综合应用扩散燃烧、预混燃烧、分级燃烧、烟气循环等技术手段,设计定制的燃烧器喷嘴,从而使富氢燃气火焰匹配燃烧室结构并满足工业生产要求。传统燃烧对富氢燃气的定制化设计,使得火焰刚性、火焰直径、火焰长度可人为调控,在工业应用场景的适应性上明显优于其他燃烧策略。

相比常规燃料(甲烷、丙烷等),富氢燃气的火焰温度较低、燃烧速度较慢、稳燃范围较窄,因此,常规燃料的传统燃烧设计准则(燃气分级比、特征喷射速度等)无法直接应用于富氢燃气的燃烧,往往需要结合特殊的混合结构和稳焰方式,才能实现燃烧的稳定、高效。当前国内外学者对富氢燃气的传统燃烧策略开展了不同侧重点的研究。例如,Petro 等^[10]采用传统射流燃烧设计方法开发了一款富氢燃气燃烧器,并通过仿真模拟和实验研究优化了射流孔径和歧管直径,使改进后的燃烧器效率比原始燃烧器提升了 10%。Decker 等^[11]在将传统钝体燃烧器应用于燃烧富氢燃气时,通过数值仿真和实验测试手段分析了钝体直径、来流速度和混合物密度对输出功率的影响,结合实验结果优化了燃烧器的端口几何形状,实现了热效率 3.8% 的提升。

1.2.2 多孔介质燃烧

多孔介质燃烧^[12]以陶瓷或金属多孔介质为火焰载体,在多孔介质表面或内部燃烧可燃气体的混合物。其中,多孔介质骨架材质的差异会导致燃烧特性的显著不同^[13]。当使用金属型多孔介质时,依托金属的高导热特性,可在多孔介质内部回收燃烧释热量用于预热未燃气体混合物。同时,多孔介质内部的复杂通道强化了

未燃气体混合物同多孔介质骨架的热交换,使得多孔介质燃烧能适应更宽泛的富氢燃气组分。然而,当燃气组分、来流速度、当量比和输出功率发生大幅变化时,多孔介质燃烧容易发生回火和熄火,这种不稳定燃烧的工况会急剧增大氮氧化物和一氧化碳的排放量。

多孔介质燃烧的内部回热机制和多孔介质骨架的高热容量是实现富氢燃气稳定燃烧的有效手段,众多学者已经对多孔介质燃烧在稳定运行极限、火焰位置、温度分布和辐射效率等方面进行了广泛的研究。研究表明,多孔介质燃烧的火焰稳定性对富氢燃气的气体组分(如氢气含量)敏感,这与气体组分变化后的层流火焰速度和绝热火焰温度等燃烧特性发生显著改变有关^[14]。多孔介质骨架的材料和形状对火焰特性的影响明显,Al-Hamamre 等^[15]对比了以 SiC 和 Al_2O_3 为材质的多孔介质骨架,发现与 Al_2O_3 相比,辐射特性更强的 SiC 多孔介质骨架具备更好的抗回火性能,一些新的多孔介质结构^[16]和多孔介质预热空气方法^[17]也受到了普遍关注。

1.2.3 无焰燃烧

无焰燃烧^[18]通过预热未燃燃气和增强烟气循环比例(exhaust gas recirculation ratio, EGR),在燃烧室内形成低温度梯度、不可见火焰锋面,其具备高燃烧效率、低污染物排放等特点。图 1.2 展示了无焰燃烧模式与烟气循环比例和反应物温度的函数关系^[19]。如图所示,无焰燃烧发生于氧气含量较低且反应物温度高于自着火温度的区域。

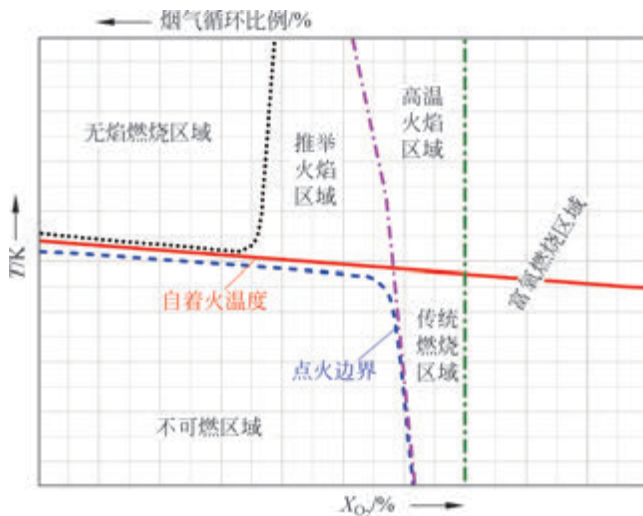


图 1.2 不同燃烧状态的示意图^[20]

为了达到无焰燃烧状态,通常需要以下 3 个步骤^[21]:

(1) 通过传统燃烧方式产生稳定的火焰,持续提升燃烧室温度,直至燃烧室温度超过反应物的自着火温度;

(2) 增加反应物的来流速度,以提高烟气循环比例,从而导致火焰锋面不可见,火焰平均温度下降;

(3) 可见火焰逐渐过渡至不可见状态,燃烧区域向燃烧室下游扩散,直至整个燃烧室进入无焰燃烧状态。

针对富氢燃气的无焰燃烧研究得到了广泛关注。研究结果表明,随着富氢燃气中氢气组分的增加,无焰燃烧状态的高温区域增加。降低燃烧过程中氧气的含量有助于富氢燃气进入无焰燃烧模式^[22]。对无焰燃烧中氮氧化物排放的研究表明,不同氧气浓度下生成氮氧化物的主导化学反应机制不同,在氧气浓度较低时(3%),NNH 路径是生成氮氧化物的主导路径;在氧气浓度较高时(21%),热力型氮氧化物生成机制起主要作用。当氧气浓度在 3%~21%时,富氢燃气中氢气浓度的差异会造成氮氧化物生成机制的不同。当氢气浓度低于 5%时,NNH 路径对氮氧化物的生成起主导作用;当氢气浓度在 5%~10%时,CO₂ 路径起主导作用;当氢气浓度高于 10%时,热力型氮氧化物机制起主导作用^[23]。

1.2.4 富氧燃烧

富氧燃烧^[24]使用富氧空气或氧气作为助燃剂,通过改变助燃剂,富氢燃气的层流火焰传播速度增加、热释放速率增加、可燃极限扩大,如图 1.3 所示。同时,烟气中二氧化碳排放浓度增加,有利于二氧化碳捕集技术的应用。

当前富氧燃烧的研究热点集中于富氧火焰的不稳定性、二氧化碳的辐射影响及污染物排放特性等^[25]。Ba 等^[24]构建了富氧火焰不稳定性和反应物来流速度、输出功率、氧气浓度、预热温度的函数关系图,从而揭示了在不同富氧工况下的火焰不稳定极限,并指出为了提高富氢燃气的火焰稳定性、提升燃烧效率,可使用烟气预热未燃反应物或氧化剂。考虑到富氧燃烧时的火焰温度较高,易于产生大量的氮氧化物,在实际应用中往往使用烟气循环的方式将烟气与助燃剂混合,利用烟气中含有大量的二氧化碳和水,显著地降低火焰温度,减少氮氧化物排放。研究结果表明,即使在烟气中水含量较低的情况下,富氧燃烧的氮氧化物排放仍可减少约 50%^[25];当富氧燃烧与分级燃烧相结合时,氮氧化物排放可进一步降低。

1.2.5 双燃料燃烧

双燃料燃烧^[26]通常存在两种形式,一种是通过向富氢燃气中添加高热值燃料,从而提升富氢燃气的热值和化学反应活性;另一种是在组织燃烧时采用高热值燃料形成稳定的值班火焰,用于引燃富氢燃气进而形成主火焰。双燃料燃烧中

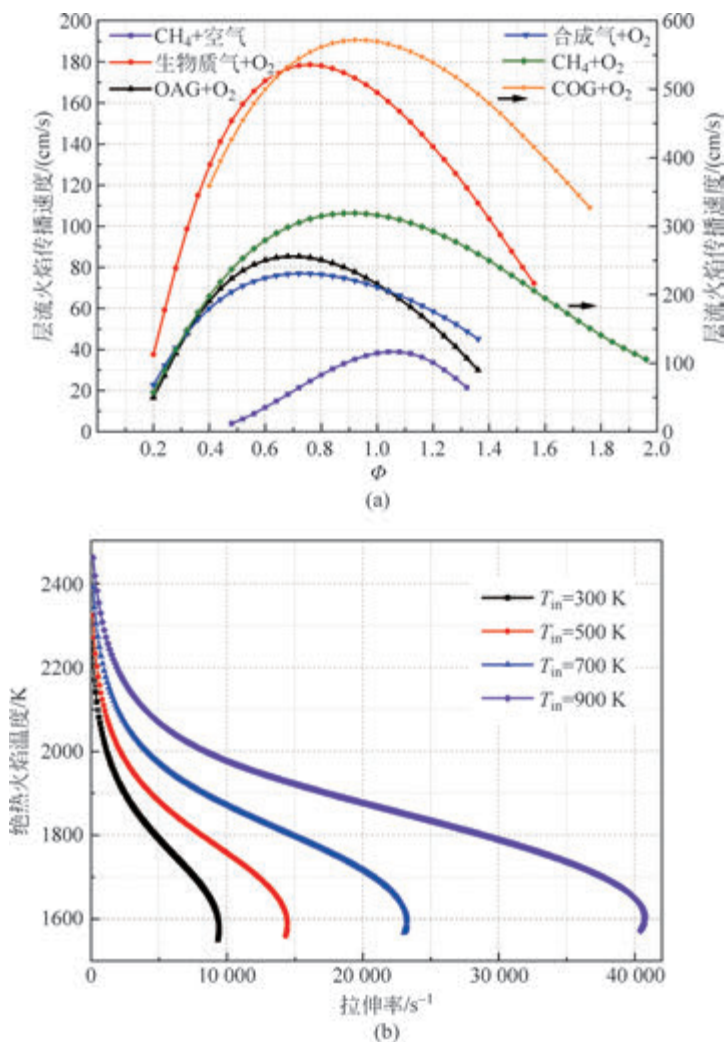


图 1.3 富氧燃烧对燃烧特性的影响

(a) 富氧燃烧时的层流火焰传播速度；(b) 合成气的绝热火焰温度与拉伸率的关系

常用的高热值燃料包括汽油、柴油、丙烷等。双燃料燃烧中释放的热量既来自高热值燃料，也来自富氢燃气。在保证富氢燃气高效燃烧的基础上，双燃料燃烧通常会限制高热值燃料的最大用量，从而使大部分输出功率通过燃烧富氢燃气来实现。

近年来，双燃料燃烧的研究主要集中在内燃机领域。其中，已有大量结合富氢燃气和高热值燃料的双燃料燃烧实验在压燃式发动机^[27-28]、火花点燃式发动机^[29-30]和直喷火花点燃式发动机^[31-32]上完成了测试和分析。例如，在燃烧生物质气和乙醚的压燃式发动机中，具有较高甲烷含量的生物质气可以成功地取代乙醚，贡献高达 60% 的输出功率。在火花点燃式发动机中，向合成气中掺混氢气可以显著提高火焰传播速度，使火焰向火花塞附近聚集。而向合成气中掺混甲烷会

增加烟气中一氧化碳和二氧化碳的排放,也会降低氮氧化物和未燃碳氢的排放。Mustafi 等^[33]和 Qian 等^[34]的综述全面描述了生物质气在内燃机中的应用,包括以生物质气为燃料时对气缸压力、空燃比、发动机寿命、发动机爆震和发动机排放的影响。

1.3 富氢燃气燃烧面临的技术挑战

1.3.1 污染物排放问题

在实际应用中,燃烧富氢燃气产生的污染物主要是一氧化碳和氮氧化物。其中,一氧化碳的来源为两部分,一部分是富氢燃气本身含有的一氧化碳组分在燃烧过程中未完全燃尽,仍残留在烟气中;另一部分是富氢燃气中的含碳组分未完全燃烧产生的一氧化碳。氮氧化物主要来自助燃空气中的氮气和富氢燃气中所含的氮气组分在燃烧室内的高温环境下形成的热力型氮氧化物。当燃烧富氢燃气时,两种主要污染物的排放水平受特定的燃烧组织形式和运行工况影响^[35],如图 1.4 所示,并且与燃气组分中一氧化碳和氮气的浓度密切相关^[36]。例如,当内燃机采用双燃料燃烧时,氮氧化物的排放量会显著减少,但一氧化碳的排放量会明显增加。因此,为了确保富氢燃气的高效燃烧,限制一氧化碳和氮氧化物这两种主要污染物的排放是当前所面临的重要技术挑战。

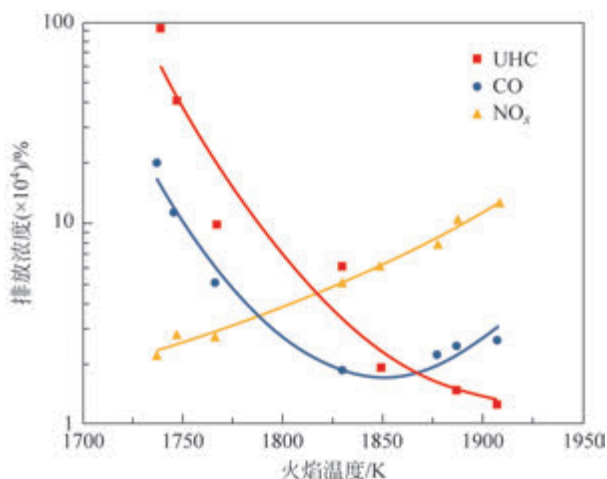


图 1.4 污染物排放浓度受燃烧工况的影响

UHC: unburned hydrocarbons, 未燃烧的碳氢化合物

针对一氧化碳的减排,在使用传统燃烧时,需合理匹配富氢燃气和助燃空气的局部当量比、特征速度及混合方式,使火焰可以在燃烧室内充分展开,同时,不冲击燃烧室壁面。此外,应用多孔介质燃烧、无焰燃烧、富氧燃烧和双燃料燃烧可以显

著提高火焰温度,以减少一氧化碳的排放^[37-38]。针对氮氧化物的减排,可采用在燃烧过程中应用低氮燃烧技术或对烟气进行脱除氮氧化物的后处理等方式^[39-40]。常用的低氮燃烧技术包括分级燃烧技术、烟气循环技术、水蒸气稀释技术等。当前,分级燃烧技术是最有效的降氮方法,该方法可以通过几何结构分级(分层供应氧化剂以调节局部当量比)或空气动力学分级(通过射流、旋流、钝体结构调整燃气和空气混合的空间位置)来实现。烟气循环技术是将未燃混合物与烟气混合,降低火焰峰值温度;水蒸气稀释技术是通过水蒸气从燃烧区吸收热量来减少燃烧室内的局部高温热点;二者均能实现对热力型氮氧化物的有效抑制。常用的后处理方法为选择性非催化还原方法和选择性催化还原方法。

尽管上述方法可以抑制富氢燃气在燃烧过程中的一氧化碳和氮氧化物排放,但在低负荷工况、燃料切换工况和运行参数波动时,难以维持较低的污染物排放水平。因此,为进一步解决富氢燃气的污染物排放问题,需要深入探索兼顾高效和低污染物排放的燃烧策略,同时,减少富氢燃气在供应过程中的组分波动和工况参数波动(压力、流速等)同样具有重要意义。

1.3.2 振荡燃烧问题

在富氢燃气燃烧领域,振荡燃烧是另一项常见的技术挑战。在非设计工况下,工业燃烧设备偏离设计点运行,容易发生不稳定的振荡燃烧。此时燃烧室内的物理量(温度、压力等)产生大幅波动,对燃烧设备的机械结构造成损坏,影响设备的安全运行。当以富氢燃气为燃料时,燃烧室内的热强度降低,振荡燃烧问题更为突出,如图 1.5 所示。

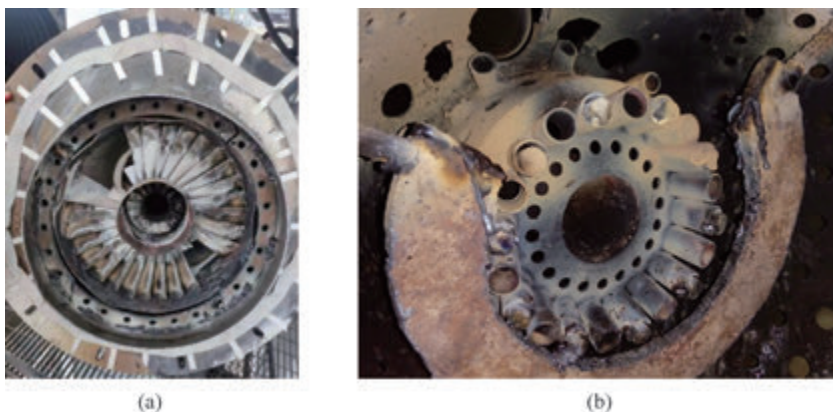


图 1.5 以富氢燃气为燃料的工业燃烧设备受振荡燃烧引起的结构损坏

(a) 富氢合成气燃烧器; (b) 富氢焦炉煤气燃烧器

如图 1.6(a)所示,富氢燃气的振荡燃烧主要由 3 个方面引起:①受其热值的影响,富氢燃气的燃烧强度较低,燃烧过程存在由其本身化学反应动力学所引起的

振荡过程^[41-42]；②随着工艺条件的改变，富氢燃气的组分和供应压力不稳定，进而产生由系统进口参数波动或波动叠加引起的振荡过程^[41]；③燃烧富氢燃气时通常存在多种燃料间的切换过程，燃料切换方式的差异也会造成振荡燃烧特性的不同^[41-42]。采用非稳态完全搅拌反应器模型对燃烧焦炉煤气的工业热风炉进行分析，得到不同环境温度下振荡燃烧温度的范围如图 1.6(b) 所示，随着环境温度从 760 K 增加至 900 K，工业热风炉中的平均燃烧温度从 1201 K 逐渐增加至 1282 K，振荡燃烧温度范围从 54 K (温度在 1174~1228 K 振荡) 减少到 10 K (温度在 1277~1287 K 振荡)。这表明当环境温度较高时，焦炉煤气可以更稳定地燃烧。当环境温度为 800 K 时，现场试验测得的振荡燃烧温度范围为 1224~1231 K，当环境温

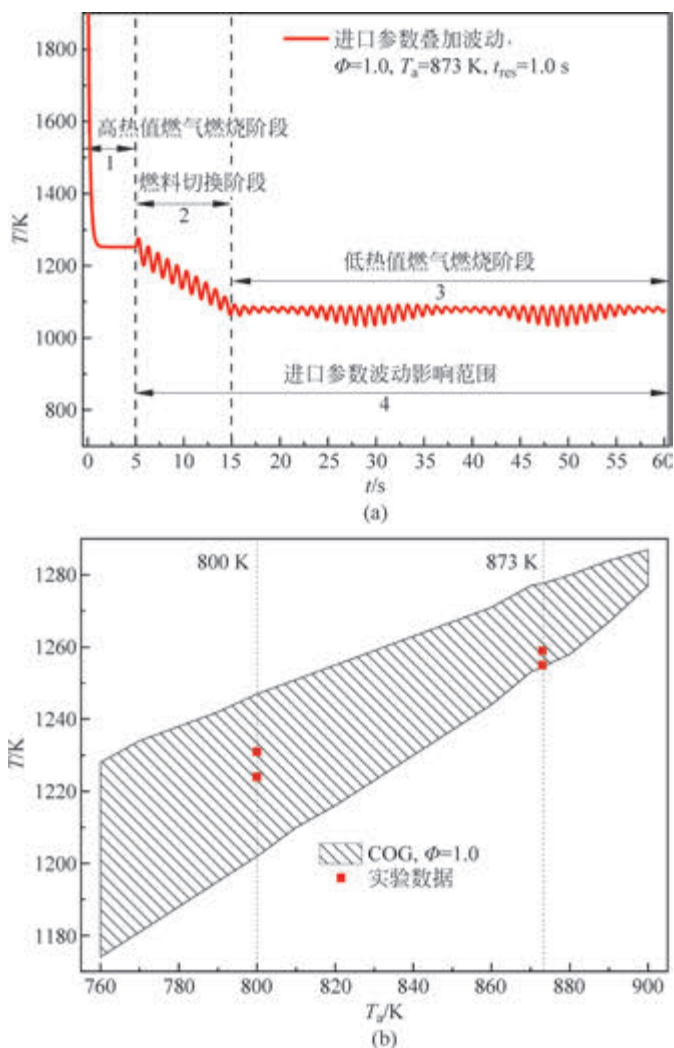


图 1.6 富氢燃气的振荡燃烧问题^[42]

(a) 存在燃料切换的典型振荡燃烧过程；(b) 不同环境温度时工业热风炉的振荡燃烧温度范围

度为 873 K 时,振荡燃烧温度范围为 1255~1259 K,模型仿真结果与实验数据定性一致。

当前,振荡燃烧问题不仅存在于富氢燃气的燃烧领域,还普遍存在于航空航天、电力、冶金、石油、化工、生物质气化等行业的热能设备中^[43-44]。通常情况下,振荡燃烧的发生会对燃烧系统产生不利的影响^[45-47],主要表现在振荡燃烧会造成系统释热量、压力、流速的大幅波动,导致燃烧系统剧烈振动,使系统偏离设计工况点运行,增加燃烧污染物,严重时甚至会造成系统部件的损伤和破坏^[48-50]。

针对富氢燃气存在的振荡燃烧问题,通过主动控制手段调控燃烧核心参数(流速、当量比等)可以在保持原有输出功率的情况下,有效地抑制或消除振荡燃烧问题。主动控制方法可分为开环主动控制^[51-55]和闭环主动控制^[56-60],其中,开环主动控制过程与振荡燃烧系统的响应无关,仅需要执行器和控制方法,不需要传感器,执行器根据控制策略无反馈地进行开环主动控制;闭环主动控制过程则包括反馈循环过程,由传感器获取的系统动态响应数据经过控制策略运算,得到控制结果来操作执行器调制系统参数,抑制或消除振荡燃烧现象,同时,系统动态响应实时被传感器测量,从而实现完整的闭环主动控制。闭环主动控制与开环主动控制对振荡燃烧的抑制机制有根本的不同。开环主动控制不会改变线性系统的动力学,因此,执行器需要在与振荡燃烧振幅相近的情况下运行才能达到抑制振荡燃烧的作用。而闭环主动控制可以改变系统的动力学特性,从而执行器可以通过较小振幅的驱动来减轻较大振幅的振荡燃烧现象。

为实现振荡燃烧主动控制策略的构建,振荡燃烧特性的分析方法^[42]和核心物理量的预测方法^[41,61]均需要同步开发。其中,振荡燃烧特性的快速分析可以实时、高效地提取富氢燃气燃烧的动态特性,进而分析振荡燃烧的诱因,明确核心物理量,常用的振荡燃烧特性分析方法包含结合弧长延拓的完全搅拌反应器分析方法^[62]、计算奇异摄动方法^[62]、化学爆炸模态分析方法^[42]等。依托振荡燃烧预测模型可以对核心物理量进行预测,主动控制策略依托准确的预测值,结合自适应控制算法对振荡燃烧过程进行动态抑制或消除。常用的振荡燃烧预测模型包含非线性自回归滑动平均模型^[41,61]、成簇神经网络模型^[41]等。常用的自适应主动控制策略包含自适应 PID 控制^[63]、滑模鲁棒控制^[64]和多层神经网络控制^[65]等。

1.3.3 燃烧状态优化问题

富氢燃气在燃烧过程中所面临的另一项技术挑战是燃烧状态的优化。图 1.7 为不同热损失系数下高炉煤气燃烧的温度演化曲线。横坐标是对数坐标下的系统停留时间,演化曲线采用 $\text{sign}[\text{Re}(\Lambda_e)] \cdot \lg(1 + |\text{Re}(\Lambda_e)|)$ 的值着色。当热损失系数为零时,系统温度随停留时间的增加而升高,呈现典型的 S 形曲线。上分支的最高系统温度为绝热火焰温度,特征值均为负值,表明系统处于稳定燃烧状态。下分支的系统温度始终为混合气的进口温度,特征值均为负值,表明系统处于未燃烧