

文章编号:1000-582X(2009)08-0887-05

微通道内甲醇重整反应的 LB 方法

曾建邦,李隆键,崔文智,陈清华,王 锋

(重庆大学 动力工程学院,重庆 400030)

摘 要:利用格子 Boltzmann 方法对微通道内甲醇水蒸汽重整制氢反应过程进行模拟,建立了双速率动力学平行反应机理的格子演化模型。分析了边界温度和进口流速的变化对甲醇转化率,氢气和一氧化碳的出口含量以及通道中的最大温差的影响。当边界温度和进口速度一定时,分析了整个反应过程中各组分的变化情况。结果表明,在水醇比,边界温度以及进口速度分别为 1.3、523 K、0.1 m/s 的情况下:甲醇出口转化率最高达 94.36%;氢气的含量为 0.098 9;CO 的含量为 0.009 5%。发现随边界温度升高,进口流速的减小,CO 的含量会进一步增加。

关键词:格子 Boltzmann 方法;微通道;双速率动力学;数值模拟

中图分类号:TK124

文献标志码:A

Simulation of methanol steam reforming in micro channel with lattice Boltzmann method

ZENG Jian-bang, LI Long-jian, CUI Wen-zhi, CHEN Qing-hua, WANG Feng

(College of Power Engineering, Chongqing University, Chongqing 400030, P. R. China)

Abstract: Lattice Boltzmann method is used to simulate the methanol steam reforming process in a micro channel. Lattice evolution model with dual-rate kinetic parallel reaction mechanism is established. The impacts of boundary temperature, inlet velocity on reaction outlet parameters, such as methanol conversion rate, outlet concentrations of hydrogen and carbon monoxide and maximum temperature difference, are studied. It is found that under a certain boundary temperature and inlet velocity, when the methanol molar ratio, boundary temperature and inlet velocity are 1.3, 523 K and 0.1 m/s respectively, the methanol conversion ratio can reach the highest value of 94.36%, together with the concentrations of hydrogen and carbon monoxide of 0.098 9 and 0.009 5% respectively. With the increase of boundary temperature and decrease of inlet velocity, the concentration of CO will increase.

Key words: lattice Boltzmann method; micro channel; dual-rate kinetics; numerical simulation

格子 Boltzmann 方法(LB 方法)近十几年来得到了飞速的发展,目前已经在多相流、多孔介质流、反应流等复杂流领域取得了很大的成果。化学反应过程总伴有反应—扩散—对流,过程非常复杂。但由于

LB 方法具有众多优点,利用其对多组分反应流探索研究,具有非常大的意义。现阶段这方面的文献报道还很少,在国内外先后很多学者采用 LB 方法对丙烷燃烧流场进行模拟计算^[1-5]。而田智威等建立的模型

收稿日期:2009-03-20

基金项目:国家自然科学基金资助项目(50276073);重庆市自然科学基金(CSTC,2008BB3161)

作者简介:曾建邦(1981-),男,重庆大学博士研究生;主要从事格子 Boltzmann 方法在多组分反应流方面的应用研究,
(E-mail)jbzeng68@sina.com。

李隆键(联系人),男,重庆大学教授,博士生导师,(E-mail)longjian@cqu.edu.cn。

欢迎访问重庆大学期刊社 <http://qks.cqu.edu.cn>

是在 Yu 等^[6]建立的多组分模型的基础上引进了 D2G9 模型。该模型突破 He-Luo 模型的限制,温度场和组分场均采用 LB 方法单独演化求解,从而保持了 LB 方法的优点。文献[5,7]分别利用该模型对丙烷燃烧反应进行模拟和单速率甲醇水蒸气反应机理进行模拟,所得到的结果都与传统的 Navier-Stokes 方法计算所得到的结果进行对比,两者均能较好地吻合,但文献[5]中热物性参数为定值,文献[7]中热物性参数随温度变化呈线性关系。

甲醇重整制氢是一条解决质子交换膜燃料电池 (PEMFC) 中氢源问题的有效途径^[8],其中甲醇水蒸汽重整 (SR) 制氢具有反应温度低,产物中氢气含量高,一氧化碳含量低等优点。但 SR 是强吸热反应,反应过程受传热传质的限制而表现为慢反应。该问题可通过减小反应通道尺寸、缩短热质传输距离来达到强化传热传质的目的^[9],从而避免反应通道中的出现最低温度点(即冷点)。微尺寸技术具有众多优点^[9-10],但理论和实验研究代价大,目前大都采用数值研究。而常用的 CFD 软件不适合对微尺度流动传热模拟计算,因此文中基于田志威等人建立的格子模型^[5]对微通道内甲醇重整反应进行模拟,重整反应机理采用双速率动力学平行反应。

1 基本模型

1.1 物理模型

反应通道的几何尺寸如图 1 所示,高度和长度分别为: $h=100 \mu\text{m}$, $L=1\ 000 \mu\text{m}$ 。进口温度和上下壁面温度一致(简称边界温度)。水醇摩尔比为 1.3 : 1。为简化计算,对模型做如下假设:①反应混合气体为理想不可压流体,且不考虑外力影响;②不考虑流场的密度变化对流场的影响,流场的温度、组分方程可分别独立求解;③忽略粘性能量耗散和辐射热的损失;④催化剂附着在反应通道的上下壁面上,厚度忽略不计,忽略其体积和内扩散,只发生表面反应。

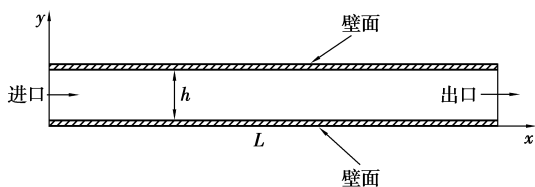


图 1 反应通道模型计算区域图

1.2 数学模型

在 LB 方法的计算中,流场演化方程为

$$g_i(\mathbf{x} + c\mathbf{e}_i\Delta t, t + \Delta t) - g_i(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{\tau_v}(g_i(\mathbf{x}, t) - g_i^{eq}(\mathbf{x}, t)), \quad (1)$$

式中:格子间距为 $\Delta\mathbf{x} = c\mathbf{e}_i\Delta t$; c 为流体微团的速度; Δt 为时间步长; \mathbf{e}_i 为离散速度方向; τ_v 为松弛时间; $g_i(\mathbf{x}, t)$ 为密度分布函数;平衡态分布函数为

$$g_i^{eq}(\mathbf{x}, t) = \alpha_i p + s_i(\mathbf{u}), \quad (2)$$

其中:

$s_0(\mathbf{u}) = \omega_0[3(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u})/c^2 + 4.5(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u})^2/c^4 - 1.5u^2/c^2]$ 当 $i=0$ 时, $\alpha_0 = -4\eta/c^2$, $\omega_0 = 4/9$; 当 $i=1 \sim 4$ 时, $\alpha_i = \vartheta/c^2$, $\omega_i = 1/9$; 当 $i=5 \sim 8$ 时, $\alpha_i = \gamma/c^2$, $\omega_i = 1/36$ 。参数 η, ϑ, γ 满足方程组: $\vartheta + \gamma = \eta$, $\vartheta + 2\gamma = 0.5$ 。

流体速度和宏观压力计算式为: $\mathbf{u} = \sum_{i=0}^8 c\mathbf{e}_i g_i$, $p = \frac{c^2}{4\eta}(\sum_{i=1}^8 g_i + s_0(\mathbf{u}))$ 。通过多尺度技术展开,演化方程回归可得宏观方程^[2],其中粘性系数为 $\nu = \frac{1}{3}c^2(\tau_v - \frac{1}{2})\Delta t$ 。

在文献[6]中温度场和组分场可分别通过下面 2 个方程演化而得

$$T_i(\mathbf{x} + c\mathbf{e}_i\Delta t, t + \Delta t) - T_i(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{\tau_T}(T_i(\mathbf{x}, t) - T_i^{eq}(\mathbf{x}, t)) + \Delta t \omega_i Q_T^*, \quad (3)$$

$$Y_i^{\sigma}(\mathbf{x} + c\mathbf{e}_i\Delta t, t + \Delta t) - Y_i^{\sigma}(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{\tau_{\sigma}}(Y_i^{\sigma}(\mathbf{x}, t) - Y_i^{\sigma(eq)}(\mathbf{x}, t)) + \Delta t \omega_i Q_{\sigma}^*. \quad (4)$$

式中各参数都已无量纲化,温度 T 和各组分的质量分数 Y^{σ} 可以由分布函数得到,即 $T = \sum_i T_i$, $Y^{\sigma} = \sum_i Y_i^{\sigma}$,其平衡态分布函数分别为

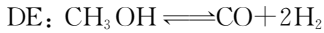
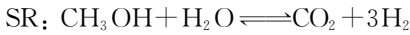
$$T_i^{eq} = \omega_i T \left[1 + 3 \frac{\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u}}{c^2} + 4.5 \frac{(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u})^2}{c^4} - 1.5 \frac{u^2}{c^2} \right],$$

$$Y_i^{\sigma(eq)} = \omega_i Y^{\sigma} \left[1 + 3 \frac{\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u}}{c^2} + 4.5 \frac{(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{u})^2}{c^4} - 1.5 \frac{u^2}{c^2} \right].$$

其中权重系数 ω_i 与计算流场取值相同。通过多尺度技术展开^[2],式(3)、(4)可回归到能量方程和质量传输方程,并得到热扩散系数和各组分的质量扩散系数:

$$k = \frac{1}{3}c^2(\tau_T - \frac{1}{2})\Delta t, D_{\sigma} = \frac{1}{3}c^2(\tau_{\sigma} - \frac{1}{2})\Delta t.$$

温度场和组分场需要对源项进行计算。甲醇蒸汽重整反应机理十分复杂,在不同的催化剂上,反应机理有所不同^[9],因此可建立不同的动力学模型,一般有单速率^[7],双速率^[9-11],和三速率^[12-13]动力学模型。按一定比例的甲醇蒸汽和水蒸汽进入反应通道内,壁面上的催化剂为 CB-7 型,该催化剂适合 SR 和 DE 制氢反应^[11]



其反应速率方程为

$$r_{\text{SR}} = 1.4 \times 10^6 T^{3.025} C_1^{1.626} C_2^{1.339} \exp(-E_1/(RT))(1 - C_3 C_4^3 / (K_{\text{SR},C} C_1 C_2)) \quad (5)$$

$$r_{\text{DE}} = 1.4 \times 10^9 T^{1.127} C_1^{1.274} \exp(-E_2/(RT)(1 - C_5 C_4^3 / (K_{\text{DE},C} C_1))) \quad (6)$$

式中反应速率 $r_{\text{SR}}, r_{\text{DE}}$ 单位为 $\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$, R 为通用气体常数取值 $8.31 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$; E_1 为 SR 的活化能取值 $999.37 \text{ J}/\text{mol}$; E_2 为 DE 的活化能取值 $121.571 \text{ J}/\text{mol}$; $K_{\text{SR},C}, K_{\text{DE},C}$ 分别为 SR 和 DE 反应的平衡系数; $K_{\text{SR},C} = k_1 \exp(-E_1/RT)$; $K_{\text{DE},C} = k_2 \exp(-E_2/RT)$ 。

由于在(5)和(6)式中计算浓度要用到当地密度,当地密度的计算方法如下

$$\rho = p_0 / (RT \sum_{\sigma=1}^5 Y_{\sigma} / M_{\sigma}), \quad (6)$$

其中: ρ 为混合的物密度; p_0 为一个大气压; M_{σ} 为各物质的摩尔质量(单位均为 g/mol), 在 SR 和 DE 反应中 $\sigma=1 \sim 5$ 分别表示为: $\text{CH}_3\text{OH}, \text{H}_2\text{O}, \text{CO}_2, \text{H}_2, \text{CO}$; $M_1 = 32.04$; $M_2 = 18.02$; $M_3 = 44.0$; $M_4 = 2.016$; $M_5 = 28.0$; 各组分的浓度可以根据式子 $C_{\sigma} = \rho Y_{\sigma} / M_{\sigma}$ 得到, 则无量纲源项可分别表示为

$$Q_{\text{T}}^* = Q_1 r'_{\text{SR}} L_0 / (\rho C_p T_0 U_0) + 0.82 Q_2 r'_{\text{DE}} L_0 / (\rho C_p T_0 U_0)$$

$$Q_{\sigma}^* = \delta_1^{\sigma} M_{\sigma} r'_{\text{SR}} L_0 / (\rho U_0) + \delta_2^{\sigma} M_{\sigma} r'_{\text{DE}} L_0 / (\rho U_0)$$

Q_1 为 SR 的反应热取值 $50.000 \text{ J}/\text{mol}$; Q_2 为 DE 的反应热取值 $91.000 \text{ J}/\text{mol}$; $C_p = \sum_{\sigma} Y_{\sigma} C_p^{\sigma}$ 为混合物的定压比热容, C_p^{σ} 为各组分的定压比热容; $\delta_1^{\sigma}, \delta_2^{\sigma}$ 为化学计量数, 其中 $\delta_1^{\sigma} (1 \sim 4) = -1, -1, 1, 3$; $\delta_2^{\sigma} (\sigma = 1, 5, 4) = -1, 1, 2$; U_0 为特征速度, 取值 0.1 ; L_0 为特征长度(对应通道高度), 取值 1.0 ; T_0 为特征温度, 取值边界温度; 反应速率分别为 $r'_{\text{SR}} = r_{\text{SR}}/h, r'_{\text{DE}} = r_{\text{DE}}/h$ 。

2 数值模拟及结果讨论

计算时反应通道边界温度计算间隔为 20 K , 变化范围 $443 \sim 523 \text{ K}$, 进口速度计算间隔为 $0.05 \text{ m}/\text{s}$, 变化范围 $0.1 \sim 0.3 \text{ m}/\text{s}$ 。利用 LB 方法的计算, 进口采用速度边界, 出口为定压边界条件, 温度和组分在出口则按出流边界处理。模型参数取 $\eta = 5/(12c^2), \vartheta = 1/(3c^2), \gamma = 1/(12c^2)$ 。出口压力为 $1/3$, 混合气体的密度为 1.0 。在边界温度一定的情况下, 只有定压比热容随着各组分质量分数变化而变化, 而粘性系数, 热扩散系数和质量扩散系数保持不变。如果边界温度改变, 各参数具有如下关系^[14]: $\nu = \nu_B T/T_B$; $k = k_B (T/T_B)^{0.75}$; $D_{\sigma} = D_{\sigma B} (T/T_B)^{1.75}$; $C_p^{\sigma} = C_{pB}^{\sigma} T/T_B$; 式中: $T_B, k_B, D_{\sigma B}, C_{pB}^{\sigma}$, 为变化前的温度, 热扩散系数, 各组

分的质量扩散系数和定压比热; $T, k, D_{\sigma}, C_p^{\sigma}$ 为温度变化后对应各参数。温度在 443 K 时, 各个物性参数取值分别为: $\nu = 2.4 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$; $k = 1.69 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$; $C_p^1 = 2440 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$, $C_p^2 = 1.835 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$, $C_p^3 = 880 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$, $C_p^4 = 14.157 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$, $C_p^5 = 1.010 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$; $D_1 = 4.26 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_2 = 4.05 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_3 = 3.30 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_4 = 4.38 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_5 = 3.51 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 。

图 2 为不同边界温度下, 进口速度对甲醇出口转化率的影响。在边界温度一定的情况下, 进口流速越大, 甲醇出口转化率越低, 即反应物在通道中停留的时间越短, 来不及反应就离开了反应通道; 而在进口流速一定的情况下, 边界温度越高, 甲醇出口转化率越大。当边界温度和进口速度分别为 $523 \text{ K}, 0.1 \text{ m}/\text{s}$ 时, 甲醇出口转化率, 氢气的出口含量及一氧化碳的出口含量都最高, 分别达到 94.36% ; 0.0989 (见图 3); 0.0095% (见图 4)。

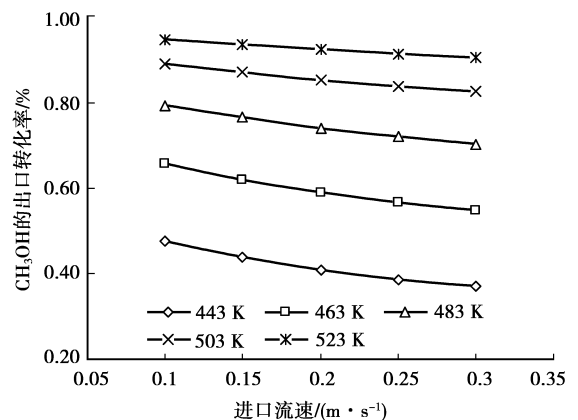


图 2 不同边界温度时进口流速对 CH_3OH 出口转化率的影响

图 3 为反应通道出口产物中氢气含量随着进口流速和边界温度的变化情况。从图中可以发现, 随着反应物进口流速的增大, 出口产物中氢气含量不断降低, 并且在进口流速较小的情况下, 速度的扰动对氢气的出口含量影响更大, 而在进口流速较大的情况下, 这种影响减弱; 在进口流速一定的情况下, 随着边界温度的升高, 出口产物中氢气含量不断升高。

在进口流速一定的情况下, 产物中氢气含量随着边界温度的升高而增大, 但是这并不总是有利的, 还需要考虑产物中一氧化碳的含量。由于一氧化碳可以导致 PEMFC 的 Pt 电极中毒, 而 Pt 电极可以容许的最高浓度仅为 $100 \text{ mg}/\text{kg}$ ^[15], 因此需要严格控制产物中一氧化碳的含量。从图 4 可以看出, 在反应物进口流速一定的情况下, 随着边界温度的升

高,促进了DE反应的进行,从而增加了一氧化碳在出口产物中的含量,而在温度较低的情况下,SR反应起主导作用;同样在边界温度一定的情况下,随着进口流速增大,一氧化碳在出口产物中的含量不断降低;温度越高,反应物的进口流速对一氧化碳的出口含量影响越明显。

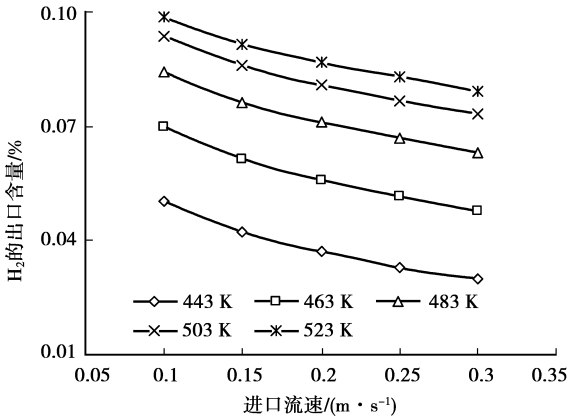


图3 不同边界温度时进口流速对氢气出口含量的影响

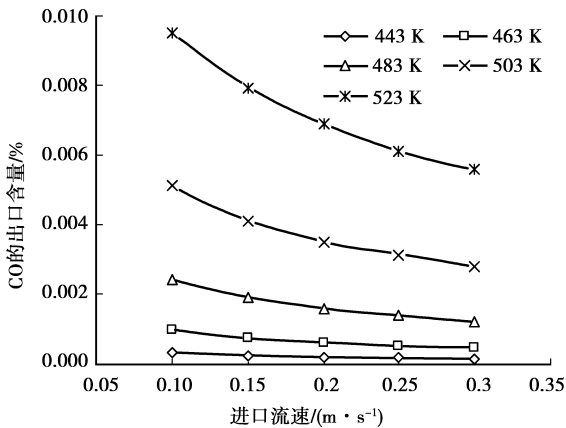


图4 不同边界温度时进口流速对一氧化碳出口含量的影响

以上分析了边界条件对反应通道出口产物的影响,而图5给出进口流速为0.2 m/s,边界温度为483 K时,沿反应通道长度方向各组分变化情况。从图中可以发现,随着反应的不断进行,反应物的质量分数在不断减小,产物中各组分的含量在不断升高,并且在进口段的时候甲醇蒸汽、水蒸气的质量分数减小的很快,这主要是因为是在进口段的时候甲醇蒸汽、水蒸气的浓度较大,从而反应速率大,而随着反应的不断进行,甲醇蒸汽、水蒸气的浓度降低,因而反应速率减小。

为了更好地了解整个反应过程,有必要对通道内部的温度分布做进一步分析。由于文中采用的模型尺寸属于微尺寸范围,并且反应物的进口流速变

化范围为0.1~0.3 m/s(在温度为443 K时雷诺数的变化范围为0.417~1.25),因此反应物有足够的停留时间在反应通道中,使反应更加充分,因而反应通道内的温度场比较均匀,反应通道中的冷点在通道的轴向中心线上,并随着进口流速的增大,距入口的距离越大,但都在距离入口20~40 μm 之间。图6给出了反应通道内与边界温度的最大温差,在进口流速一定的情况下,边界温度升高,反应通道内的最大温差增大,而在边界温度一定的情况下,反应物的进口流速增大,反应通道中的最大温差也在增大,在边界温度为523 K,进口流速为0.3 m/s时,最大温差达到4.17 K。

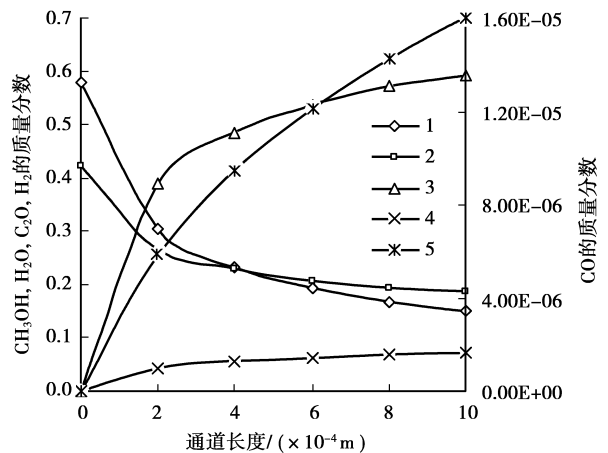


图5 边界条件一定的情况下各组分的质量分数沿着反应通道长度方向的变化

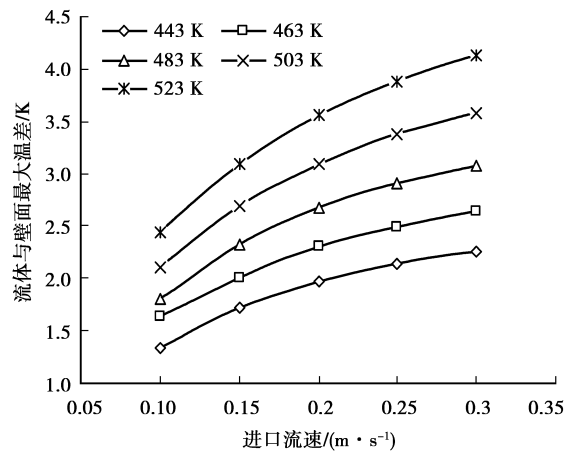


图6 不同边界温度时进口流速对通道内流体与壁面最大温差的影响

上述结果表明:为了提高甲醇出口转化率,可以升高边界温度和减小反应物进口速度,但升高边界温度减小进口流速的同时会造成一氧化碳的出口含量的升高,从而影响到燃料电池的正常工作。因此

在选定反应通道和催化剂的情况下,可以找到合理的边界温度和反应物的进口流速,来使得燃料电池既能够提供足够的能量,又不使得其 Pt 电极中毒。

3 结 论

在假设条件下,建立了针对甲醇重整制氢的双速率动力学平行反应机理的格子演化模型。得出边界温度和反应物的进口流速对甲醇出口转化率,产物中的氢气含量以及一氧化碳含量的影响;在边界条件一定的情况下,探讨了整个化学反应过程,最后得到边界温度和通道内最低温度点的最大温差随边界条件变化的影响。同时可以为反应器的设计及反应条件的设定提供一定的参数依据。该模型的成功应用,进一步验证了 LB 方法模拟化学反应的可行性,同时对模型的改进也具有一定的指导意义。

参考文献:

- [1] SUCCI S, BELLA G, PAOETTI F. Lattice kinetic theory for numerical combustion [J]. *Journal of Scientific Computing*, 1997, 12(4): 395-408.
- [2] FILIPPOVA O, HANEL D. A novel lattice BGK approach for low Mach number combustion [J]. *Journal of Computational Physics*, 2000, 158 (2): 139-160.
- [3] YAMAMOTO L, HE X, DOOLEN G D. Simulation of combustion field with lattice Boltzmann method [J]. *Journal of Statistical Physics*, 2002, 107(1/2): 367-383.
- [4] CHEN S, LIU Z H, ZHANG C, et al. A novel coupled lattice Boltzmann model for low Mach number combustion simulation [J]. *Applied Mathematics and Computation*, 2007, 87(3):1-19.
- [5] 田智威,邹春,刘红绢,等. 格子-Boltzmann 方法模拟层流对冲预混火焰[J]. *燃烧科学与技术*, 2005, 6(11): 539-542.
- TIAN ZHI-WEI, ZHOU CHUN, LIU HONG-JUAN, et al. Simulation of counter-flow laminar premixed flame with lattice Boltzmann method [J]. *Journal of Combustion Science and Technology*, 2005, 6(11): 539-542.
- [6] YU H, LUO L S, GIRIMAJI S S. Scalar mixing and chemical reaction simulations using lattice boltzmann method [J]. *International Journal of Computational Engineering Science*, 2002, 3(1): 73-87.
- [7] 曾建邦,李隆键,崔文智. 微通道中甲醇蒸汽重整反应过程的 LBM 模拟[J]. *顺德职业技术学院学报*, 2007, 5(4): 21-25
- ZENG JIAN-BANG, LI LONG-JIAN, CUI WEN-ZHI. Simulation of the process of methanol steam reforming in the micro channel with Lattice Boltzmann Method [J]. *Journal of Shunde Polytechnic*, 2007, 5 (4): 21-25
- [8] 王锋,辛明道,崔文智,等. 微型燃料重整制氢技术 [J]. *太阳能学报*, 2007, 28(7): 783-792.
- WANG FENG, XIN MIN-DAO, CUI WEN-ZHI, et al. Microscale fuel reforming technology for hydrogen production [J]. *Acta Energy Solaris Sinica*, 2007, 28(7): 783-792.
- [9] 王锋,李隆键,漆波,等. 微型反应器中甲醇水蒸气重整制氢研究 [J]. *西安交通大学学报*, 2008, 42 (4): 509-514.
- WANG FENG, LI LONG-JIAN, QI BO, et al. Methanol steam reforming for hydrogen production in a minireactor [J]. *Journal of Xi'an JiaoTong University*, 2008, 42(4):509-514.
- [10] 邓联锋,王锋,崔文智,等. 微细通道尺寸对甲醇水蒸汽重整反应性能影响 [J]. *化学反应工程与工艺*, 2007, 23(1): 19-23.
- DENG LIAN-FENG, WANG FENG, CUI WEN-ZHI, et al. Effect of microchannel size on performance of methanol steam reforming [J]. *Chemical Reaction Engineering and Technology*, 2007, 23(1): 19-23.
- [11] 袁彪,于新海,王正东,等. 在涂层催化剂上甲醇水蒸气重整的本征动力学研究 [J]. *石油化工*, 2005, 34 (1): 1055-1059
- YUAN BIAO, YU XIN-HAI, WANG ZHENG-DONG, et al. Intrinsic Kinetics of methanol-steam reforming over coating catalyst [J]. *Petrochemical Technology*, 2005, 34(1): 1055-1059.
- [12] PEPPELY B A, AMPHLETT J C, KEARNS L M, et al. Methanol steam reforming on Cu/ZnO/Al₂O₃ part1: the reaction network [J]. *Applied Catalysis A*, 1999, 179(1): 21-29.
- [13] PEPPELY B A, AMPHLETT J C, KEARNS L M, et al. Methanol steam reforming on Cu/ZnO/Al₂O₃ part2: a comprehensive Kinetic model [J]. *Applied Catalysis A*, 1999, 179(1):31-49
- [14] ZANFIR M, GAVRIILIDIS A. Modeling of catalytic plate reactor for dehydrogenation-combustion coupling [J]. *Chemical Engineering Science*, 2001, 56 (8): 2671-2683.
- [15] AGRELL J, BIRGERSSON H, BOUTONNET M. Steam reforming of methanol over a Cu/Zno/Al₂O₃ Catalyst, a Kinetic analysis and strategies for suppression of CO formation [J]. *Journal of Power Sources*, 2002, 106(2): 249-257.

(编辑 陈移峰)