

DOI:10.3969/j.issn.1003-5060.2023.06.004

老化态 Pd/Rh 基三元催化器的起燃及 次生污染物生成特性研究

王朝元, 钱叶剑, 孟 顺, 位晓飞, 谢兆辉, 潘 涛

(合肥工业大学 汽车与交通工程学院, 安徽 合肥 230009)

摘 要:为探究天然气发动机三元催化器(three-way catalytic converter, TWC)长期使用后起燃特性及次生污染物生成特性的变化规律,文章建立当量比燃烧的天然气发动机 Pd/Rh 基催化器的表面反应机理模型,利用试验数据验证模型的准确性,研究贵金属分散度对 CH₄、CO、NO 排放物起燃特性以及次生污染物 NH₃、N₂O 生成规律的影响。结果表明:相较于新鲜催化器,老化催化器虽然仍能实现对气体排放物的有效转化,但是随着贵金属分散度的降低,CH₄、CO、NO 的起燃温度明显增加,起燃特性变差;贵金属分散度还会影响次生污染物的生成规律,分散度增加时,催化剂表面对污染物气体的吸附能力增强,增加了次生污染物的消耗,次生污染物的生成有所减少。

关键词:天然气发动机;老化;贵金属分散度;起燃性能;次生污染物

中图分类号:TK411.5 **文献标志码:**A **文章编号:**1003-5060(2023)06-0738-06

Study on the characteristics of ignition and secondary pollutants generation of aged Pd/Rh three-way catalytic converter

WANG Zhaoyuan, QIAN Yejian, MENG Shun, WEI Xiaofei, XIE Zhaohui, PAN Tao

(School of Automobile and Traffic Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China)

Abstract:In order to explore the influence of long-term use on the ignition and secondary pollutants generation of the three-way catalytic converter(TWC) for a stoichiometric natural gas engine, a surface reaction mechanism model of Pd/Rh catalytic converter in natural gas engine with equivalent ratio combustion was established, and the accuracy of the model was verified by experimental data. The influence of precious metal dispersion on the ignition characteristics of CH₄, CO and NO emissions and the generation of secondary pollutants NH₃ and N₂O was studied. The results show that, compared with the fresh catalytic converter, although the aged catalytic converter can still achieve effective conversion of gas emissions, the ignition temperatures of CH₄, CO and NO increase obviously and the characteristics of ignition become worse with the decrease of precious metal dispersion. The dispersion of precious metal can affect the generation rule of secondary pollutants, with the increase of dispersion, the adsorption capacity of the catalyst surface to pollutant gas enhances, which can effectively increase the consumption of secondary pollutants and reduce the generation of secondary pollutants.

Key words:natural gas engine; aged state; precious metal dispersion; ignition characteristic; secondary pollutant

收稿日期:2021-09-11;修回日期:2021-12-07

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51676062)

作者简介:王朝元(1995—),男,黑龙江大庆人,合肥工业大学硕士生;

钱叶剑(1977—),男,安徽池州人,博士,合肥工业大学教授,博士生导师,通信作者, E-mail:qianyejian@163.com.

国六排放法规不但提高了排放污染物限值要求,还加严了老化系数,补充了加法老化因子,这对三元催化器(three-way catalytic converter, TWC)的可靠性和耐久性能提出了更高要求^[1]。另外,国六排放法规采用新的测试循环,规定了天然气发动机后处理系统次生污染物 NH₃ 的排放限值,要求其质量分数不超过 1.00×10^{-5} 。

TWC 通常使用 Pd、Rh 等贵金属作为活性成分,在高温热老化后,贵金属微观结构的变化会使 TWC 活性明显降低,催化性能下降^[2]。文献[3]指出水热老化会使负载型催化剂的载体和贵金属同时烧结,导致比表面积降低、颗粒尺寸增大,贵金属分散度随之降低;文献[4]发现分散度降低会劣化 TWC 的催化性能,排放物的转换效率下降,起燃温度增加;文献[5]发现催化剂样品在 700 °C 老化 5 h 后,表面会发生物理变化,虽然分散度仅降低约 0.1%,但 CO 和 CH₄ 的起燃温度上升;文献[6]发现 Rh/ZrO₂ 催化剂在 1 050 °C 老化 12 h 后,Rh 分散度下降约 35.8%,NO 和 CO 的起燃温度上升约 30 °C。

贵金属分散度的变化决定了贵金属吸附污染物气体分子的能力以及表面反应时贵金属表面结合位点的数量。次生污染物的生成和消耗与贵金属的吸附能力、活性位点的数量密切相关,因此催化剂老化还会影响次生污染物排放量。文献[7]研究了不同排气温度下新鲜态和老化态 TWC 次生污染物 NH₃ 的生成选择性,与新鲜态相比,排气温度在 300~500 °C 区间老化态的 NH₃ 生成形成选择性更高。

综上所述,当前研究多集中于催化剂老化对起燃特性的影响,很少涉及不同老化工况对 TWC 起燃特性的研究,现有研究也很少关注老化对次生污染物 N₂O 生成规律的影响。

因此,本文建立 Pd/Rh 基($\rho_{Pd} : \rho_{Rh} = 5 : 1$)催化剂催化反应机理模型,利用实验数据验证模型的准确性,理论研究贵金属分散度(0.003 4~0.173 4)对 TWC 起燃特性以及次生污染物 NH₃、N₂O 生成规律的影响,研究结论对提高 TWC 系统的抗老化性能、降低次生污染物排放量具有重要意义。

1 反应计算模型的建立及验证

1.1 反应模型参数

催化剂计算模型主要包括入口气体属性设置模块、催化剂参数设置模块、出口气体属性设置模

块、表面催化反应参数模块、数据输出模块、运行设置模块等。入口气体经过催化剂样品时,在其孔内部发生表面反应,使污染物的浓度显著下降。

模型遵循质量守恒方程、动量守恒方程、能量守恒方程和物质瞬态守恒方程。忽略传热损失,只考虑温度沿轴向变化,反应过程中仅考虑涂层和层流之间的传热传质,不考虑涂层中的扩散作用。新鲜态和老化态样品的氧化因数采用默认数值。

催化器尺寸及催化剂参数见表 1 所列。

表 1 催化剂样品参数

参数	数值
载体长度/m	0.153
载体面积/m ²	0.008 775
空速/h ⁻¹	40 000
孔密度/cpsi	600
离散化长度/mm	3
壁厚/mm	0.076 2
贵金属负载/(g·L ⁻¹)	1.69
金属分散度	0.003 4~0.173 4
涂层厚度/mm	0.03
温度/K	373~1 073
外传热系数/(W·m ⁻² ·K ⁻¹)	40

1.2 反应机理

天然气发动机排放物(主要为 CH₄、CO、NO)的消除主要依靠 CH₄ 和 CO 的氧化反应以及 NO 的还原反应,本文采用本课题组内建立的 Pd/Rh 基催化反应机理。

1.3 反应动力学方程

排气各组分的转化效率主要由化学反应速率决定。反应速率常数使用阿伦尼乌斯速率公式表示,具体表达式为:

$$K_i = A_i T^{\beta_i} \exp\left(-\frac{E_i}{RT}\right) \quad (1)$$

催化剂样品老化后,H₂ 氧化的反应速率常数发生变动,表达式为:

$$K = A \left(1 + \frac{A_s - A_s^f}{A_s^f} \xi\right) T^{\beta} \exp\left(-\frac{E_i}{RT}\right) \quad (2)$$

其中: A_i 为反应 i 的指前因子; β_i 为反应 i 的温度指数,通常取 0; E_i 为反应 i 的活化能; R 为理想气体常数, $R = 8.314 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$; T 为反应温度; A_s^f 为新鲜样品活性表面积; A_s 为老化样品活性表面积; ξ 为表观孔隙比。

反应速率表达式为:

$$\omega_1 = K_i C F_m \theta_i \quad (3)$$

其中: C 为反应物浓度乘积; θ_i 为覆盖率表达式, 指参与反应的载体材料的覆盖程度; F_m ($m=1, 2, 3$) 为阻聚项。

$$F_1(X, T_s) = T_s (1 + K_{a,1} X_{CO}^{0.2} + K_{a,2} X_{HC}^{0.7} + K_{a,3} X_{NO}^{0.7})^2 \quad (4)$$

$$F_2(X, T_s) = T_s (1 + K_{a,4} X_{CO} + K_{a,5} X_{HC} + K_{a,6} X_{NO}^{0.7})^2 \quad (5)$$

$$F_3(X, T_s) = T_s (1 + K_{a,1} X_{CO}^{0.2} + K_{a,2} X_{HC}^{0.7} + K_{a,3} X_{NO}^{0.7})^2 (1 + K_{a,7} X_{O_2}) \quad (6)$$

其中: X_{CO} 、 X_{HC} 、 X_{NO} 、 X_{O_2} 分别表示 CO、HC、NO、 O_2 的体积分数; $K_{a,j}$ 为速率系数, 对应公式中 $K_{a,1} \sim K_{a,7}$; T_s 为催化剂均温。阻聚项表达式 (4)~(6) 中 $K_{a,j}$ 求解所需动力学参数见表 2 所列, 其中 $A = \ln A^1$ 。

表 2 阻聚项动力学参数

序号	A^1	β	$E/(\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1})$
1	2.00	0	-12.75
2	6.80	0	-3.00
3	4.50	0	-9.90
4	5.77	0	-12.75
5	6.80	0	-3.00
6	4.50	0	-9.90
7	11.00	0	0

1.4 模型验证

本文利用文献[8]的实验数据和模拟数据来验证所建模型的准确性。

新鲜态催化剂和老化态催化剂对排放物转化效率的变化规律如图 1 所示, 其中 NMOG 代表非甲烷碳氢化合物。

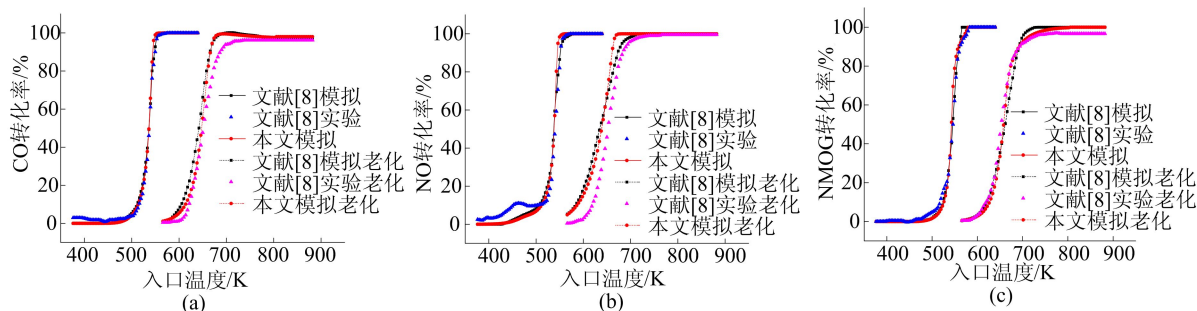


图 1 组合 Pd/Rh 催化剂新鲜/老化状态下模拟验证

从图 1 可以看出, 本文所建模型的计算值与文献[8]的研究结果很接近。虽然文献[8]中的总包反应机理忽略了一些影响较小的反应, 使得计算值与实验结果之间存在一定偏差, 但此偏差很小, 不会影响研究结论的准确性。因此, 可以利用构建的模型开展后续研究。

2 结果与讨论

根据标定完成的 Pd/Rh 基 ($\rho_{Pd} : \rho_{Rh} = 5 : 1$) 机理, 设置入口相关参数如下: 混合气流量为 895.05 L/min; 入口气体温度以 10 K/min 的升温速率从 373 K 升温至 1 073 K; 主要配气成分及体积分数为 $\varphi(\text{CH}_4) = 1.00 \times 10^{-3}$, $\varphi(\text{CO}) = 4.70 \times 10^{-3}$, $\varphi(\text{NO}) = 8.00 \times 10^{-4}$, $\varphi(\text{H}_2\text{O}) = 10\%$, 其中平衡气为 N_2 ; 根据 λ 的计算公式^[9], 当量比条件下 $\varphi(\text{O}_2) = 3.95 \times 10^{-3}$ 。 λ 的计算公式为:

$$\lambda = \frac{2\varphi(\text{O}_2) + \varphi(\text{NO})}{\varphi(\text{CO}) + (3n+1)\varphi(\text{C}_n\text{H}_{2n+2})} \quad (7)$$

模拟流程采用默认流程, 催化剂老化前、后排放物转化率计算公式为:

$$X_i = \frac{c_{i,f} - c_{i,m}}{c_{i,f}} \times 100\% \quad (8)$$

其中, $c_{i,f}$ 、 $c_{i,m}$ 分别为进、出口对应 i 组分浓度。

起燃特性用起燃温度和完全转化温度表征, 分别指 CH_4 、CO、NO 达到其转化率的 50% 和 90% 对应的气体入口温度, 通过转化率曲线捕捉各排放物气体的 T_{50} 和 T_{90} 。

2.1 贵金属分散度对起燃特性的影响

贵金属分散度是指贵金属在储氧材料表面上的分散程度。老化态催化剂的贵金属分散度大大降低, 贵金属粒子相互堆叠, 部分贵金属无法与气体分子直接接触, 导致排放物转化率下降, 起燃性能变差。

贵金属负载量在 1.69 g/L 时不同分散度对 CH_4 、CO、NO 的 T_{50} 、 T_{90} 影响规律如图 2 所示。

从图 2 可以看出, 随着贵金属分散度的增加, CH_4 、CO、NO 的 T_{50} 、 T_{90} 都有所降低。在分散度为 0.003 4~0.043 4 范围内下降速率最快, 其中 CH_4 的 T_{50} 由 794 K 降至 689 K, T_{90} 由 834 K 降至 739 K; 分散度在大于 0.043 4~0.113 4 范围内, 其值每增加 0.01, CH_4 、CO、NO 的 T_{50} 分别降

低约 5、3、2 K, T_{90} 分别降低约 7、3、4 K; 当分散度大于 0.123 4 时, 分散度对起燃特性的影响逐渐减小。

综上所述, 贵金属分散度是影响 CH_4 、 CO 、 NO 起燃特性的重要因素。分散度在 0.003 4~

0.043 4 范围内时, 增加分散度会明显改善 CH_4 、 CO 、 NO 的起燃特性; 当分散度大于 0.123 4 时, 分散度的增加对起燃特性的影响变小。由此可以看出, 不能一味地通过提高贵金属分散度来提高催化剂的催化能力。

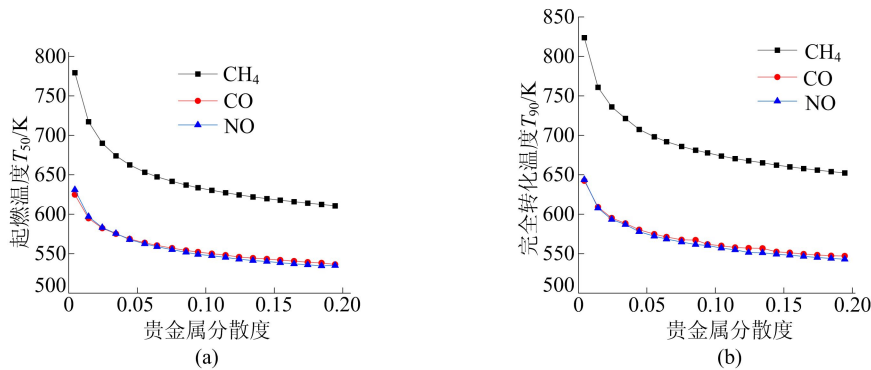


图 2 贵金属分散度对 CH_4 、 CO 、 NO 起燃特性的影响

2.2 贵金属分散度对次生污染物生成的影响

为研究在不同老化程度下次生污染物 NH_3 、 N_2O 的生成规律, 本文选取贵金属分散度为 0.003 4~0.173 4 范围内 2 个等距点进行研究。反应机理中涉及到的次生污染物相关反应见表 3 所列。

表 3 次生污染物相关反应

序号	反应物	生成物
1	$5\text{H}_2 + 2\text{NO}$	$2\text{NH}_3 + 2\text{H}_2\text{O}$
2	$4\text{NH}_3 + 3\text{O}_2$	$2\text{N}_2 + 6\text{H}_2\text{O}$
3	$\text{H}_2 + 2\text{NO}$	$\text{H}_2\text{O} + \text{N}_2\text{O}$
4	$\text{CO} + 2\text{NO}$	$\text{CO}_2 + \text{N}_2\text{O}$
5	$\text{N}_2\text{O} + \text{H}_2$	$\text{H}_2\text{O} + \text{N}_2$
6	$\text{N}_2\text{O} + \text{CO}$	$\text{CO}_2 + \text{N}_2$
7	$\text{CO} + \text{H}_2\text{O}$	$\text{CO}_2 + \text{H}_2$
8	$\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O}$	$\text{CO} + 3\text{H}_2$

一般来说, NH_3 主要来自于 NO-H_2 还原反应, N_2O 主要来自于 $\text{H}_2\text{-NO}$ 和 CO-NO 反应。 $\text{H}_2\text{-NO}$ 反应的活化能低, 因此更易发生。另外, $\text{H}_2\text{-NO}$ 反应基本停止后, CO-NO 反应才能发生。因为入口组分中未设置 H_2 , 所以 H_2 主要来自于水煤气变换 (water-gas shift, WGS) 和蒸汽重整 (steam reforming, SR) 反应^[10-11]。

在 4 种不同贵金属分散度下, 次生污染物 NH_3 、 N_2O 的生成变化规律如图 3 所示。

从图 3a 可以看出: 贵金属分散度在 0.060 1、0.116 7、0.173 4 时, NH_3 在入口温度为 530 K 时开始生成; 当贵金属分散度为 0.003 4 且入口

温度低于 570 K 时, 也没有 NH_3 生成, 入口温度大于 720 K 时, NH_3 摩尔分数迅速增加; 当入口温度在 805 K 后, NH_3 生成量高于其他 3 种贵金属分散度情况。

这是因为: 低温下 Pd、Rh 比表面积的减小会造成排放物吸附不足, 抑制 WGS 和 SR 反应的发生, 导致 H_2 生成量不足, 不能进行 NO-H_2 反应, 无法生成 NH_3 ; 入口温度在 720~805 K 时, 贵金属分散度的降低对排放物吸附的影响减小, WGS 反应速率加快, H_2 生成量增加, 促进了 NO-H_2 反应, NH_3 的消耗速率减慢; 入口温度大于 805 K 时, NH_3 的消耗反应几乎不发生, 净生成量大幅增加。

从图 3a 还可以看出: 在贵金属分散度为 0.060 1、0.116 7、0.173 4 的 3 种情况中, NH_3 生成曲线的趋势大致相同, 贵金属分散度越低, 生成 NH_3 的总摩尔分数越大。催化剂表面 NO 活性位点随分散度的增大而增加, 分散度最大时, 吸附的 NO 最多。分散度为 0.173 4、入口温度为 570~630 K 时, NO-H_2 反应最快, NH_3 生成量增加, 但此时 NH_3 的消耗量大于生成量, NH_3 净生成量降低; 入口温度为 630~860 K 时, NH_3 的生成量大于消耗量, NH_3 净生成量增加; 入口温度大于 860 K 时, NH_3 生成和消耗的速率基本一致, NH_3 净生成量几乎不变。

从图 3b 可以看出: 贵金属分散度为 0.003 4 时, N_2O 在入口温度 440 K 时开始生成, $\text{H}_2\text{-NO}$ 反应速率随着入口温度的提高而增加; 入口温度

大于 650 K 时, N_2O 的消耗反应开始进行, 直至 850 K 左右反应停止, $CO-NO$ 反应开始进行, N_2O 摩尔分数略有增加。

从图 3b 还可以看出: 在贵金属分散度为 0.060 1、0.116 7、0.173 4 的 3 种情况中, N_2O 生成量首次达到峰值时对应的入口温度随贵金属分散度的增加而降低, 这是由于贵金属分散度较高时, 即使入口温度低, WGS 和 SR 反应也可以生成足量的 H_2 , H_2 可以与吸附在贵金属上的 NO 反应完全; 入口温度为 610~650 K 时, N_2O 摩尔分数略有下降, 这是由于 N_2O-CO 反应会消耗部分 N_2O 。贵金属分散度越高, 有效吸附的 CO 越多, N_2O-CO 反应越剧烈, 消耗的 N_2O 越多; 反应

停止后 N_2O 消耗随之暂停, 而 N_2O-H_2 间的反应继续消耗 N_2O 。3 种情况下 N_2O 的消耗大致相同。 N_2O 摩尔分数再次上升时, $CO-NO$ 反应开始进行, 由于其活化能较高, N_2O 摩尔分数的上升速率较为缓慢。最终, N_2O 与剩余的少量 H_2 和 CO 反应, 造成 3 种情况下 N_2O 摩尔分数均下降。

由此可知, 次生污染物 NH_3 、 N_2O 生成的摩尔分数随入口温度波动明显。贵金属分散度的提高能有效降低次生污染物的生成量, 对 NH_3 生成的抑制更加明显。另外, 贵金属分散度的增加可以使污染物的吸附更加均匀, 使次生污染物的消耗增加, 总体生成量减少。

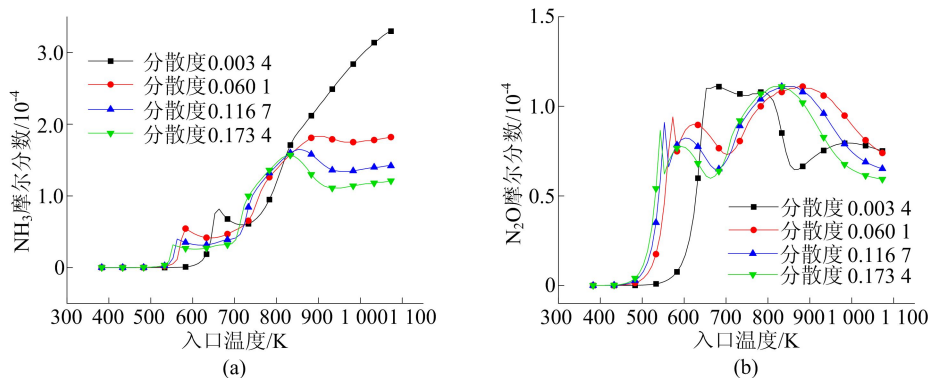


图 3 贵金属分散度对次生污染物 NH_3 、 N_2O 生成的影响

3 结 论

本文基于 Pd/Rh 基 ($\rho_{Pd} : \rho_{Rh} = 5 : 1$) 三元催化剂样品表面反应机理, 结合相关物理参数, 研究了贵金属分散度对 CH_4 、 CO 、 NO 起燃特性以及次生污染物 NH_3 、 N_2O 生成规律的影响, 主要研究结论如下:

(1) 合适的分散度有利于贵金属与污染物气体的接触, 促使污染物气体在较低的入口温度下实现转化。增加贵金属分散度会提高 CH_4 、 CO 、 NO 的起燃特性; CH_4 、 CO 、 NO 的 T_{50} 和 T_{90} 在分散度为 0.003 4~0.043 4 的范围内下降速率快, 分散度大于 0.043 4 时对起燃特性的影响变小。

(2) 贵金属分散度会影响次生污染物 NH_3 、 N_2O 的生成规律。贵金属分散度为 0.003 4 时, 次生污染物 NH_3 、 N_2O 生成加快, 消耗缓慢, 净生成总量增加; 贵金属分散度由 0.060 1 提高至 0.173 4 时, 由于活性位点的增加, 次生污染物的消耗随之增多, 导致次生污染物净生成量明显减小。

[参 考 文 献]

- [1] 邵军, 赵志国. 汽油机国五与国六法规对比研究[J]. 交通节能与环保, 2017, 13(3): 18-21.
- [2] 姚丽鹏, 王成雄, 谭建伟, 等. 热老化对 Pd/Al₂O₃ 选择性催化 NH_3 反应性能的影响[J]. 贵金属, 2020, 41(1): 1-9, 53.
- [3] 林放. 水热老化及硫化对 Zr/Ti 改性的 Pd/CeO₂ 催化剂性能的影响[D]. 天津: 天津大学, 2014.
- [4] 谢京京. Ba 和 Na 改性 Pd/CeO₂ 催化剂水热稳定性与 CO 氧化性能的研究[D]. 天津: 天津大学, 2018.
- [5] MATAM S K, OTAL E H, AGUIRRE M H, et al. Thermal and chemical aging of model three-way catalyst Pd/Al₂O₃ and its impact on the conversion of CNG vehicle exhaust [J]. Catalysis Today, 2012, 184(1): 237-244.
- [6] HUANG T, SHEN M, CHENG G, et al. Possible negative influences of increasing content of cerium on activity and hydrothermal stability of Rh/ceria-zirconia three-way catalysts[J]. Journal of Rare Earths, 2021, 39(7): 797-804.
- [7] WANG C, TAN J, GAVIN H, et al. Ammonia formation over Pd/Rh three-way catalysts during lean-to-rich fluctuations; the effect of the catalyst aging, exhaust temperature, Lambda, and duration in rich conditions[J]. Environmental Science & Technology, 2019, 53(21): 12621-12628.

(下转第 752 页)

- 115(1);2-7.
- [6] OGATA K, HIROSE T, YAMASHITA S. Effect of particle properties on fluidized powder conveying in a horizontal channel[J]. *Procedia Engineering*, 2015, 102:968-975.
- [7] JOSEPH V R, DELANEY J D. Analysis of optimization experiments [J]. *Journal of Quality Technology*, 2008, 40:282-298.
- [8] MAAZINEJAD B, MOHAMMADNIA O, ALI G A M, et al. Taguchi L9 (34) orthogonal array study based on methylene blue removal by single-walled carbon nanotubes-amine; adsorption optimization using the experimental design method kinetic equilibrium and thermodynamics[J]. *Journal of Molecular Liquids*, 2020, 298:112001.
- [9] LIN C H, HUANG C C. Multiobjective optimization design for a six-phase copper rotor induction motor mounted with a scroll compressor[J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2016, 52(7):1-4.
- [10] SUN X, MO Y, LI J, et al. Study on the energy charging process of a plate-type latent heat thermal energy storage unit and optimization using Taguchi method[J]. *Applied Thermal Engineering*, 2020, 164:114528.
- [11] ZHOKH A A, STRIZHAK P E. Investigation of the time-dependent transitions between the time-fractional and standard diffusion in a hierarchical porous material[J]. *Transport in Porous Media*, 2020, 133(3):497-508.
- [12] KHANJANPOUR M H, JAVADI A A. Optimization of the hydrodynamic performance of a vertical axis tidal (VAT) turbine using CFD-Taguchi approach[J]. *Energy Conversion and Management*, 2020, 222:113235.
- [13] BILIRGEN H, LEVY E, YILMAZ A. Prediction of pneumatic conveying flow phenomena using commercial CFD software[J]. *Powder Technology*, 1998, 95(1):37-41.
- [14] MIAO Z, KUANG S, ZUGHBI H, et al. CFD simulation of dilute-phase pneumatic conveying of powders[J]. *Powder Technology*, 2019, 349:70-83.
- [15] BEHERA N, AGARWAL V K, JONES M G, et al. CFD modeling and analysis of dense phase pneumatic conveying of fine particles including particle size distribution[J]. *Powder Technology*, 2013, 244(4):30-37.
- [16] GAO X, ZHU Y P, LUO Z H. CFD modeling of gas flow in porous medium and catalytic coupling reaction from carbon monoxide to diethyl oxalate in fixed-bed reactors [J]. *Chemical Engineering Science*, 2011, 66(23):6028-6038.
- [17] SHARMA A, THAKUR A, SAHA S K, et al. Thermal-hydraulic characteristics of purge gas in a rectangular packed pebble bed of a fusion reactor using DEM-CFD and porous medium analyses[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2020, 160:111848.
- [18] CANBOLAT A S, BADEMLIOGLU A H, ARSLANOGLU N, et al. Performance optimization of absorption refrigeration systems using Taguchi, ANOVA and grey relational analysis methods[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, 229(20):874-885.
- [19] CHEN Q, ZENG M, ZHANG J, et al. Optimal design of bi-layer interconnector for SOFC based on CFD-Taguchi method[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2010, 35(9):4292-4300.
- [20] SHAJI S, RADHAKRISHNAN V. Analysis of process parameters in surface grinding with graphite as lubricant based on the Taguchi method[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2003, 141(1):51-59.
- [21] 任嘉, 张瑶, 沈正帆. 基于修正 RNG $k-\epsilon$ 模型的叶片泵非设计工况数值模拟[J]. *舰船科学技术*, 2014, 36(10):101-105.
- [22] USTAOGU A, KURSUNCU B, ALPTEKIN M, et al. Performance optimization and parametric evaluation of the cascade vapor compression refrigeration cycle using Taguchi and ANOVA methods[J]. *Applied Thermal Engineering*, 2020, 180:115816.

(责任编辑 闫杏丽)

(上接第 742 页)

- [8] HOLDER R, BOLLIG M, ANDERSON D R, et al. A discussion on transport phenomena and three-way kinetics of monolithic converters [J]. *Chemical Engineering Science*, 2006, 61(24):8010-8027.
- [9] SUNG B N, SUNG B K, BYONG K, et al. Effect of speciated HCs on the performance of modern commercial TWCs [J]. *Catalysis Today*, 2014, 231:3-14.
- [10] NEVALAINEN P, KINNUNEN N M, KIRVESLAHTI A, et al. Formation of NH_3 and N_2O in a modern natural gas three-way catalyst designed for heavy-duty vehicles: the effects of simulated exhaust gas composition and ageing[J]. *Applied Catalysis A: General*, 2018, 552:30-37.
- [11] ADAMS E, SKOGLUNDH M, ELMOE T, et al. Water-gas-shift assisted ammonia formation over Pd/Ce/alumina [J]. *Catalysis Today*, 2018, 307:169-174.

(责任编辑 胡亚敏)