

柴油机 SCR 催化剂载体结构参数优化

龚金科 张福杰* 鄂加强 刘恒语 杜佳 陈韬 江俊豪

(湖南大学汽车车身先进设计制造国家重点实验室,长沙 410082)

摘要 提出一种柴油机选择催化还原(SCR)催化剂载体结构参数优化的设计方法,根据车用柴油机排量,将 SCR 催化剂载体分为 4 类,选取载体体积、长度、目数、壁厚和涂层厚 5 个结构参数为设计变量,以高 NO_x 转化率及低压力损失为优化目标,利用拉丁超立方实验设计选择样本点进行数值模拟,在构建的 Kriging 近似模型基础上,对载体结构参数采用改进的非支配排序遗传算法 NSGA-II(non-dominated sorting genetic algorithm-II)进行优化设计。结果表明:Kriging 近似模型的拟合精度较高,结合 NSGA-II 算法对 SCR 催化剂载体结构参数进行优化是可行的、有效的,不同排量下的优化结果均能够较好地满足设计要求。

关键词 柴油机 SCR 催化剂载体 结构参数优化 Kriging 模型 NSGA-II 算法

中图分类号 TK421.5 **文献标识码** A **文章编号** 1673-9108(2012)12-4573-06

Optimization on structural parameters of diesel SCR catalytic reactor

Gong Jinke Zhang Fujie E Jiaqiang Liu Hengyu Du Jia Chen Tao Jiang Junhao

(State Key Laboratory of Advanced Design and Manufacturing for Vehicle Body, Hunan University, Changsha 410082, China)

Abstract The optimal design method of structural parameters for diesel urea-SCR was proposed. According to the differences of diesel engine displacement, the urea-selective catalytic reactor can be divided into four subclasses. Taking high conversion ratio of NO_x and small pressure loss as the optimization goal, with monolith volume, length, cell per square inch, wall thickness and washcoat thickness as design variables, Latin Hypercube method was used to carry out sampling of parameters. The obtained samples were analyzed with numerical simulation. On this basis, the optimization was solved by NSGA-II (non-dominated sorting genetic algorithm-II), using Kriging model as the approximate model. The results show that the Kriging model has high fitting accuracy, demonstrate the efficiency and applicability of the optimal design method. The optimization results of different diesel engine displacement show that the method can obtain structural parameters which meet design requirements.

Key words diesel selective catalytic reduction; catalytic reactor; optimization of structural parameters; Kriging model; NSGA-II algorithm

在目前研究开发的柴油机 NO_x 后处理方法中,以尿素-SCR(urea-selective catalytic reduction)最为成熟,能在柴油机排气富氧且流量、温度和组分多变的反应环境下有效降低 NO_x 排放。欧洲重型汽车协会宣布将采用 Urea-SCR 技术作为达到欧 IV 以上排放法规的技术路线^[1]。SCR 系统反应器是一种催化转化器,反应器载体为柱状蜂窝多孔道整体^[2],是 SCR 后处理器的骨架部件,催化剂均涂敷在载体上。我国对柴油机 Urea-SCR 技术也进行了大量的研究,催化剂载体的开发是最重要的研究内容之一。

柴油机 SCR 催化剂载体的设计要求是:在满足一定过滤效率及限制条件的前提下,获得尽可能低的气流阻力^[3]。目前各国的研究主要集中在结构参数对催化剂性能的影响。Santos 等^[4]及 Enrico

Tronconi 等^[5]通过将催化剂载体仿真结果与实验结果进行对比,得到载体长度及壁厚对 NO_x 转化率的影响,Dhanushkodi 等^[6]对催化剂模型进行仿真,分析了载体体积对 NO_x 转化率的影响,王谦等^[7]分析了不同涂层量下载体壁厚与压力损失的关系。

NO_x 转化率和压力损失往往存在相互矛盾和相互制约的关系,以往对催化剂载体结构参数的确定

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51276056,51176045);湖南省自然科学基金资助项目(10JJ6080);湖南大学汽车车身先进设计制造国家重点实验室自主课题(61075002)

收稿日期:2011-10-14; **修订日期:**2012-02-09

作者简介:龚金科(1954-),男,教授,博士生导师,主要研究方向:发动机排放污染与控制。E-mail:gongjinke@126.com

* 通讯联系人, E-mail:zhfujie@126.com

主要通过仿真分析及实验进行,缺乏对载体结构参数的系统优化,因此很难兼顾催化器的 NO_x 转化效率和压力损失。本文在拉丁超立方样本点基础上建立了 Kriging 近似模型,采用 NSGA-II 算法对 SCR 催化器载体结构参数进行了系统优化。

1 催化器载体结构参数优化问题描述

1.1 SCR 催化器载体的规格划分

目前我国不同车型匹配的柴油机按排量(VL)划分,小型车主要采用 2 L 以下柴油机,额定转速范围 2 600 ~ 3 000 r/min;轻型车主要采用 3 ~ 4 L 柴油机,额定转速范围 2 400 ~ 4 000 r/min;中型载货汽车和客车用柴油机主要采用 7 ~ 8 L 机型,额定转速范围 2 800 ~ 3 000 r/min;重型汽车一般采用 10 ~ 20 L 柴油机,额定转速范围 2 100 ~ 2 900 r/min^[8]。

上述 4 类车用柴油机排气流量的上限(排气温度 $T=673\text{ K}$)分别为 0.2、0.4、0.54 和 1.2 m^3/s ,根据以上柴油机排气流量范围,可以将催化器载体划分为 4 种规格,本文将对 4 种规格催化器载体结构参数进行优化。

1.2 设计变量及目标函数

在 SCR 催化器载体参数中,载体体积(V),载体长度(L),目数(N),壁厚(δ_w),涂层厚(δ_c),如图 1 所示,它们不仅决定了载体的外形尺寸,也会影响到载体的整体性能,因此将它们作为设计变量。此外,催化器载体还必须满足强度、热应力及制造工艺要求。各公司生产的催化器载体结构参数范围大致为:体积 3 ~ 32 L(约为发动机排量的 2 ~ 3 倍),长度 50 ~ 450 mm,常用目数规格有 200、300、400 和 600,壁厚 0.1 ~ 0.3 mm,涂层厚 0.01 ~ 0.12 mm。

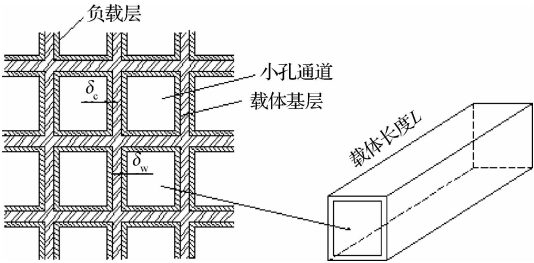


图 1 SCR 催化器截面通道示意图
Fig. 1 Schematic view of cross section of SCR catalytic reactor

催化器载体优化的目标为:较高的 NO_x 转化率和较低的压力损失。下面以排量为 7 ~ 8 L、额定转

速范围 2 800 ~ 3 000 r/min 和排气流量上限为 0.54 m^3/s 的中型载货汽车和客车用柴油机为例,说明 SCR 催化器载体结构参数优化设计的步骤与过程。目标函数可以表示如下:

$$\begin{cases} \max \eta(V, L, N, \delta_w, \delta_c) \\ \min \Delta P(V, L, N, \delta_w, \delta_c) \\ 3 \leq V \leq 32 \\ 50 \leq L \leq 450 \\ 200 \leq N \leq 600 \\ 0.1 \leq \delta_w \leq 0.3 \\ 0.01 \leq \delta_c \leq 0.12 \end{cases} \quad (1)$$

式中: η 为 NO_x 转化率, ΔP 为压力损失。

2 催化器载体结构参数优化设计的步骤与过程

本文对柴油机 SCR 催化器载体结构参数的优化设计,主要是通过拉丁超立方实验设计确定初始样本,在构建的 Kriging 近似数学模型基础上,对催化器载体结构参数采用 NSGA-II 方法进行优化处理。优化流程如图 2 所示。

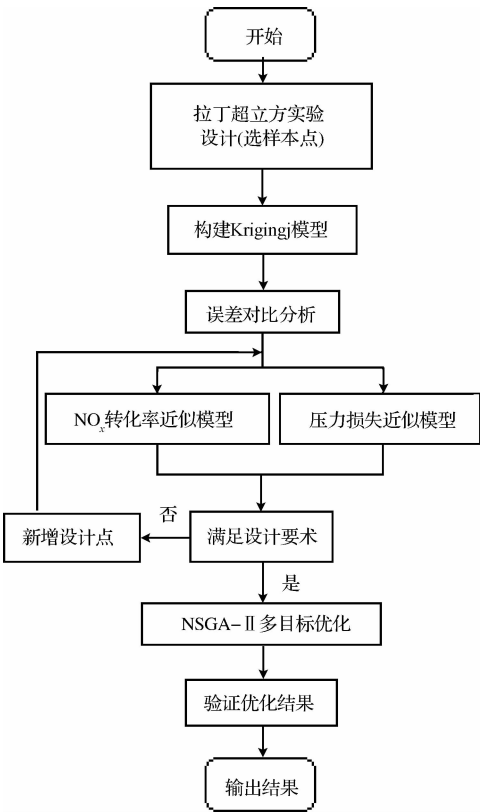


图 2 催化器载体结构参数优化流程图
Fig. 2 Optimization flow chart of catalytic reactor's structural parameters

2.1 拉丁超立方实验设计

在整个设计空间选取有限数量的样本点,使之尽可能反映设计空间的特性,即称为实验设计^[9]。在各种实验设计技术中,拉丁超立方抽样法是一种对抽样分布全面分层,再从每层中随机取值的方法,它能够以较少的样本点反映整个设计空间的特性,是一种有效的样本缩减技术,具有效率高、均衡性能好的优点, Timothy 通过 6 个工程算例的 7905 个 Kriging 模型验证了 Kriging 方法可以用来有效地建立近似模型,并且验证了用拉丁超立方进行实验设计是较优的^[10]。

柴油机 SCR 催化器载体的 5 个结构参数,确定最小样本容量为 21^[11],在各结构参数的设计域内进行拉丁超立方抽样,将 21 组样本点应用于 SCR 模型^[12]进行仿真计算,实验设计所得样本点及对应的 NO_x 转化率和压力损失响应值的计算结果见表 1。

表 1 拉丁超立方实验设计样本点及仿真计算结果

Table 1 Sampling points obtained by Latin Hypercube & simulation results

实验号	设计变量					计算结果	
	<i>V</i> (L)	<i>L</i> (mm)	<i>N</i>	δ_w (mm)	δ_c (mm)	η_{NO_x} (%)	ΔP (kPa)
1	3.6	290	600	0.215	0.03	75.884	36.072
2	21	50	200	0.255	0.1	90.507	0.067
3	15	420	300	0.235	0.035	91.054	7.566
4	8.4	440	400	0.23	0.015	86.382	18.564
5	12.6	410	200	0.125	0.105	83.681	5.185
6	16.8	280	300	0.145	0.085	92.348	3.168
7	7.2	350	400	0.19	0.0475	83.402	15.339
8	17.4	120	600	0.26	0.0325	96.614	1.934
9	9	250	200	0.18	0.07	76.85	2.616
10	24	200	600	0.24	0.0725	96.917	5.462
11	15.6	320	600	0.195	0.055	95.922	13.102
12	12	300	600	0.295	0.04	93.788	21.603
13	25.2	110	300	0.22	0.0825	94.965	0.424
14	6.6	210	300	0.285	0.02	76.611	4.65
15	21.6	340	200	0.245	0.05	91.929	2.17
16	23.4	170	400	0.115	0.0525	96.318	0.92
17	13.8	230	400	0.2	0.045	92.295	3.711
18	13.2	330	400	0.15	0.0775	91.89	8.33
19	9.6	220	400	0.205	0.01	88.092	3.77
20	20.4	270	600	0.11	0.1075	97.331	8.14
21	7.8	390	300	0.12	0.0175	81.509	7.696

注:*V*为体积;*L*为长度;*N*为目数; δ_w 为壁厚; δ_c 为涂层厚; η_{NO_x} 为 NO_x 转化率; ΔP 为压力损失。

2.2 Kriging 模型的建立

近似模型是指在不降低计算精度情况下构造的一个计算量小、计算周期短,但计算结果与数值分析或物理实验结果相近的数学模型。Kriging 模型构建的近似面可以覆盖所有的样本点,是一种估计方差最小的无偏估计模型,近似面质量非常高^[13],因此在本文中采用 Kriging 模型来构建近似面。

Kriging 方法是建立在变异函数理论分析基础上,对有限区域内的区域化变量取值进行无偏最优估计的一种空间局部内插法^[14]。Kriging 模型包含两部分:多项式和随机分布项,针对工程应用中常用的 Kriging 模型的响应值与自变量之间的数学关系式^[15]为:

$$y(x) = f(x) + z(x) \tag{2}$$

式中: $y(x)$ 是待拟合的响应函数, $f(x)$ 为已知的多项式函数提供了设计空间的全局近似模型,一般情况下,可取为常数 β , $Z(x)$ 是一个随机过程,服从正态分布 $N(0, \sigma^2)$,但是协方差非零,在全局模型的基础上创建了局部偏差。

Kriging 模型建立后,要另取样本点验证模型的精度,主要是考察近似模型是否在其它点能够具有比较好的预测能力,一般可用最大相对误差和均方根误差来验证^[16]。均方根误差评估的表达式为:

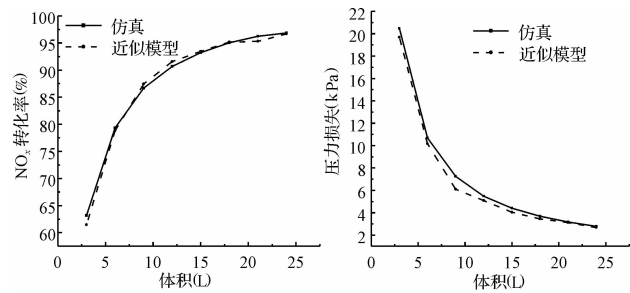
$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{k} \sum_{i=1}^k \varepsilon_i^2} \tag{3}$$

式中: κ 为额外预测点的个数; ε_i 为在第 i 个预测点的误差。

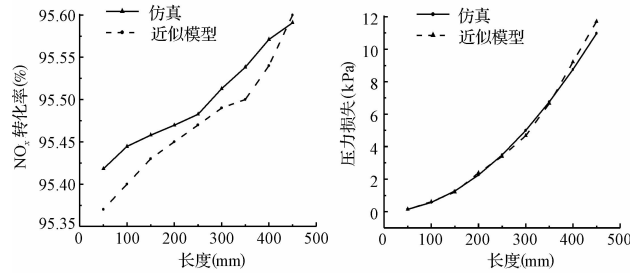
根据表 1 中的 21 个实验设计点建立了 kriging 近似模型,控制单个结构参数,其他结构参数在设计域内取中间值,对 NO_x 转化率及压力损失进行计算,仿真模型和 Kriging 近似模型的计算结果对比情况如图 3 所示。

由图 3 可以看出;优化目标随各结构参数变化曲线在峰值、变化趋势及整体形状等方面,Kriging 近似模型和仿真模型计算结果吻合较好。为进一步检验近似模型的拟合精度,选取任意的 15 个实验点与仿真计算进行对比,NO_x 转化率及压力损失相对误差结果分别如图 4 和图 5 所示。

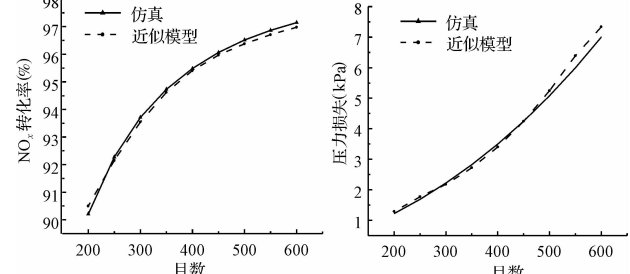
由图 4 和图 5 可以看出,采用近似模型与直接仿真计算得到的 NO_x 转化率和压力损失的最大相对误差分别为 0.839% 和 3.41%。并且根据式(3)计算的均方根误差分别为 0.041 和 0.086,故所建立的 Kriging 模型有较好的近似精度,采用此近似模型来代替直接的仿真计算是可行的。



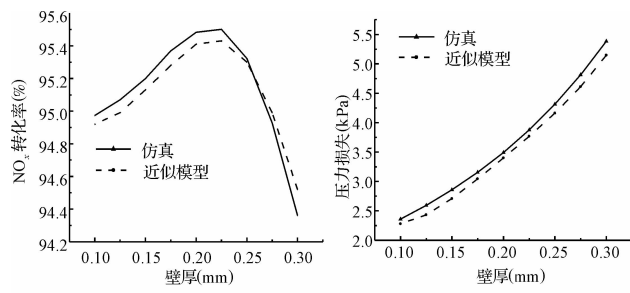
(a) 体积对NO_x转化率及压力损失的影响



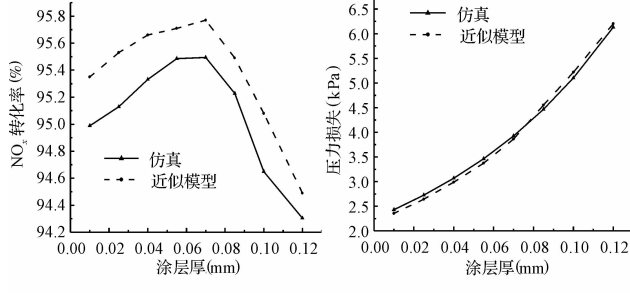
(b) 长度对NO_x转化率及压力损失的影响



(c) 目数对NO_x转化率及压力损失的影响



(d) 壁厚对NO_x转化率及压力损失的影响



(e) 涂层厚对NO_x转化率及压力损失的影响

图 3 仿真模型与 Kriging 近似模型计算结果对比图

Fig. 3 Comparison of computational results between simulation model and Kriging model

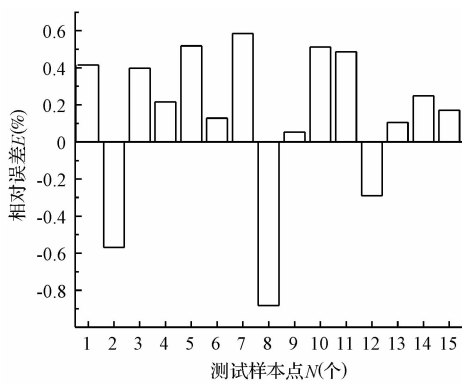


图 4 NO_x 转化率误差分布

Fig. 4 Error distribution of NO_x conversion

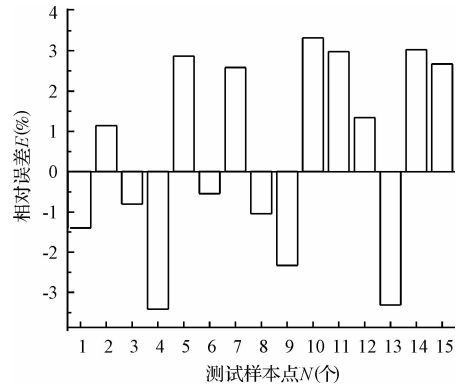


图 5 压力损失误差分布

Fig. 5 Error distribution of pressure loss

2.3 基于 NSGA-II 的 SCR 催化剂载体结构参数优化

在多目标优化中,由于目标之间相互冲突,很难找到一个真正意义上的最优解,而存在一系列解,其特点为至少存在一个目标优于其他所有的解,这样的解称之为非支配解或 Pareto 解,这些解的集合即为 Pareto 最优解集。

在众多多目标优化算法中,改进的非支配排序遗传算法(NSGA-II)是一种基于快速非劣性排序的改进型多目标遗传算法。它采用了小生境竞争法,成功地避免了遗传算法局部收敛的问题^[17]。该算法在降低计算量和采取保存优秀个体策略两个方面作了改进,与其他同类算法相比的突出特点是解的分布空间范围广而且分布均匀^[18]。

本文采用 NSGA-II 算法作为优化程序的框架。参数设置为:种群规模为 100 代,杂交概率为 0.8,变异概率为 0.05,进化代数 200 代;得到该多目标优化问题的非支配解前沿面即 Pareto 前沿面见图 6。

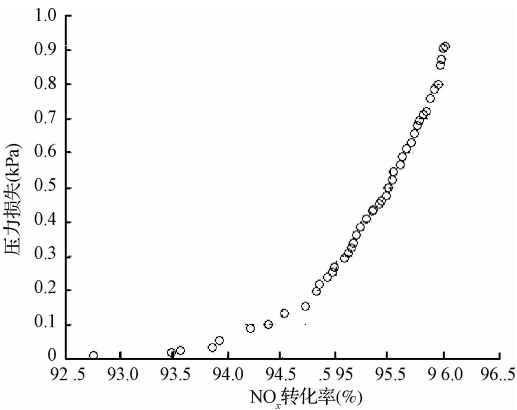


图 6 NO_x 转化率及压力损失的 Pareto 前沿

Fig.6 Pareto fronts of NO_x conversion & pressure loss

由图 6 可以看出,最优解中压力损失较小且均不足 1 kPa,对发动机性能影响较小,因此,选择 NO_x 转化率较大点作为最优解,圆整后为 $V=20\text{ L}$, $L=146\text{ mm}$, $N=400$, $\delta_w=0.1017\text{ mm}$, $\delta_c=0.0766\text{ m}$ 。将优化后的结构参数进行仿真计算。表 2 给出了 Kriging 模型的优化结果与仿真计算结果。经计算,二者关于 NO_x 转化率的计算结果相对误差为 -0.3346% ,压力损失相对误差为 0.04129% 。结果表明,2 种计算结果的相对误差很小,再一次说明了 Kriging 模型具有较高的预测精度。

表 2 Kriging 模型优化结果及仿真计算结果

Table 2 Computational results of Kriging model & simulation model

优化目标	仿真计算值	近似模型计算值
NO _x 转化率 (%)	95.5304	95.85
压力损失 (kPa)	0.908175	0.9078

按照上述原理与方法,可以计算出排量分别为小于 2 L、3~4 L 及 10~20 L 的小型车,轻型车及重型车在排气流量上限分别为 0.2、0.4 和 1.2 m³/s 时较优的柴油机 SCR 催化器载体结构参数。最终优化结果如表 3 所示。

表 3 SCR 催化器载体结构参数优化结果

Table 3 Optimization result of SCR catalytic reactor

V_L (L)	V (L)	L (mm)	N	δ_w (mm)	δ_c (mm)	η_{NO_x} (%)	ΔP (kPa)
<2	5.5	62	600	0.1922	0.0555	95.343	0.539
3~4	11.6	95	600	0.1278	0.0508	95.479	0.818
7~8	20	146	400	0.1017	0.0766	95.53	0.908
10~20	41.5	173	400	0.1102	0.0817	95.13	1.467

注: V_L 为发动机排量; V 为体积; L 为长度; N 为目数; δ_w 为壁厚; δ_c 为涂层厚; η_{NO_x} 为 NO_x 转化率; ΔP 为压力损失。

3 结 论

根据不同车型柴油机排气流量的不同,把 SCR 催化器载体划分为 4 种规格。在此基础上,探讨了一种基于近似模型的柴油机 SCR 催化器载体结构参数优化的设计方法。

(1) 基于拉丁超立方试验设计,建立的 Kriging 近似模型精度较高,可以较好地替代真实的仿真过程。

(2) 采用改进的非支配排序遗传算法计算得出的优化结果经仿真验证能较好地满足设计要求。

(3) 同样的方法应用于不同排量的柴油机,优化结果的仿真计算表明,均能得到较高的 NO_x 转化率及较低的压力损失。

因此,采用 Kriging 近似模型及 NSGA-II 算法,对 SCR 催化器载体结构参数进行优化是可行、有效的,可节约大量的计算资源和时间,为结构设计提供一定的工程指导。

参 考 文 献

[1] Hesser, Hartmut Lüders, Ruben-Sebastian Henning, et al. SCR Technology for NO_x Reduction: Series Experience and State of Development. DEER Conference. Chicago, 2005

[2] Howitt J. S., Sekella T. C. Flow effects in monolithic honeycomb automotive catalytic converters. SAE Paper, 740244, 1974

[3] 王伟. 汽车催化转化器的数值模拟. 大连: 大连理工大学硕士学位论文, 2011

Wang Wei. Numerical simulation of automotive catalytic converter. Dalian: Master's Degree Thesis of Dalian University of Technology, 2011 (in Chinese)

[4] Santos A., Bahamonde A., Schmid M., et al. Mass transfer influences on the design of selective catalytic reduction (SCR) monolithic reactors. Chemical Engineering and Processing, 1998, 37(2): 117-124

[5] Enrico Tronconi, Alessandra Beretta. The roke of inter-and intra-phase mass transfer in the SCR-DeNO_x reaction over catalysts of different shapes. Catalysis Today, 1999, 52(2-3): 249-258

[6] Dhanushkodi S. R., Mahinpey N., Wilson M. Kinetic and 2D reactor modeling for simulation of the catalytic reduction of NO_x in the monolith honeycomb reactor. Process Safety and Environmen Proection, 2008, 86(4): 303-309

[7] 王谦, 罗晶, 杜建. Urea-SCR 尾气管道布置的优化及催化器的研发. 拖拉机与农用运输车, 2010, 37(3):

- 100-106
Wang Qian, Luo Jing, Du Jian. Optimization of Urea-SCR exhaust pipe layout and catalyst development. Tractor & Farm Transporter, **2010**, 37(3):100-106(in Chinese)
- [8] 宁智,宋波,刘建华. 柴油机用壁流式过滤体结构参数优化. 机械工程学报, **2006**, 42(10):122-126
Ning Zhi, Song Bo, Liu Jianhua. Optimization of ceramic wall flow filter. Journal of Mechanical Engineering, **2006**, 42(10):122-126(in Chinese)
- [9] 刘文卿. 试验设计. 北京:清华大学出版社, **2005**
- [10] Timothy W. S. A Concept Exploration Method for Product Family Design. Atlanta Botanical; Georgia Institute of Technology, **1998**
- [11] Liu W. , Yang Y. Y. Multi-objective optimization of sheet metal forming cess using pareto based genetic algorithm. Journal of Materials Processing Technology, **2008**, 208(1-3):499-506
- [12] Wurzenberger J. C. , Wanker R. Multi-scale SCR modeling, 1D kinetic analysis and 3D system simulation. SAE Paper, 2005-01-0948, **2005**
- [13] Georges Matheron. Principles of geostatistics. Economic Geology, **1963**, 58(8):1246-1266
- [14] 刘克龙,姚卫星,穆雪峰. 基于 Kriging 代理模型的结构形状优化方法研究. 计算力学学报, **2006**, 23(3):344-347
Liu Kelong, Yao Weixing, Mu Xuefeng. A method of structural shape optimization based on Kriging model. Chinese Journal of Computational Mechanics, **2006**, 23(3):344-347(in Chinese)
- [15] Sacks J. , Schiller S. B. , Welch W. J. Design for computer experiments. Technometrics, **1989**, 31(1):41-47
- [16] Yang R. J. Metamodeling development for vehicle frontal impact simulation. Journal of Mechanical Design, **2005**, 127(9):1014-1020
- [17] Deb K. , Pbatap A. , Agarwal S. , et al. A fast and elitist multiobjective genetic algorithm NSGA-II. IEEE Transactions on Evolutionary Computation, **2002**, 6(2):182-197
- [18] Srinivas N. , Deb K. Multiobjective function optimization using nondominated sorting genetic algorithms. Evol. Comput. , **1994**, 2(3):221-248