

# CO<sub>2</sub>和 N<sub>2</sub>惰化条件下合成气可燃下限实验研究

尚融雪, 万 嵩, 杨红霞, 李 刚

(东北大学 资源与土木工程学院, 辽宁 沈阳 110819)

**摘 要:** 利用自主搭建的可燃极限实验系统,对含有 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 的合成气可燃下限进行实验研究,并对 Le Chatelier 公式进行校核.结果表明,合成气可燃下限随含氢量的增加而降低,由于反应控制机理的影响效应,少量氢气的加入对混合物可燃下限具有显著影响;合成气可燃下限随 N<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 比例的增加近似线性升高,而 CO<sub>2</sub> 较强的热效应及化学效应使其对混合物可燃下限的影响更显著;由于 Le Chatelier 在推导过程中对化学反应作用的简化及忽视,使其对含氢量较低及惰化比例较高的合成气可燃下限的预测准确性较差,且计算结果不能区分不同惰性气体对合成气可燃下限的影响差异.

**关 键 词:** 合成气;可燃下限;含氢量;CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 稀释;Le Chatelier 公式

中图分类号: TQ 086

文献标志码: A

文章编号: 1005-3026(2019)08-1191-06

## Experimental Study on Lower Flammability Limits of CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> Diluted Syngas

SHANG Rong-xue, WAN Song, YANG Hong-xia, LI Gang

(School of Resources & Civil Engineering, Northeastern University, Shenyang 110819, China. Corresponding author: SHANG Rong-xue, E-mail: rongxue.shang@foxmail.com)

**Abstract:** The lower flammability limits of syngas/air mixtures with CO<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> inert dilution were experimentally studied under atmospheric conditions via a self-developed closed cylindrical stainless steel vessel. The experimental data were used to validate the performance of the Le Chatelier's Rule. The experimental results showed that, the lower flammability limit of fuels mixtures decreases with the increase of H<sub>2</sub> fraction. A small amount of H<sub>2</sub> in the fuels presents the significant effect on the lower flammability limit of mixtures due to the variation of the controlled mechanism of the reaction. The lower flammability limits of mixtures almost linearly increases with an increase in inert dilution ratio. CO<sub>2</sub> has a stronger inert effect than N<sub>2</sub> due to CO<sub>2</sub>'s stronger thermal and chemical kinetic effect in reducing the flame temperature and radical concentrations. The prediction by Le Chatelier's Rule has great discrepancy against the experimental results when H<sub>2</sub> fraction is small or with the high presence of inert species in the mixture. Moreover, the different inter effect between CO<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> on the lower flammability limit cannot be calculated using Le Chatelier's Rule.

**Key words:** syngas; lower flammability limit; hydrogen fraction; CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> inert dilution; Le Chatelier's Rule

煤气化合成气(syngas)目前被认为是一种典型的清洁替代能源.合成气主要组分为 H<sub>2</sub> 和 CO,由于原料种类及气化技术差异,含有少量 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 等惰性组分,可广泛应用于各类燃气锅炉、燃气轮机燃烧设备<sup>[1]</sup>.合成气作为组分

复杂多变的富氢燃料,其较大的含氢量变化范围及不同的惰化组分均使合成气的燃烧爆炸特性更为复杂.为了在合成气生产利用过程中预防和控制火灾和爆炸事故,以及安全设计和运行合成气燃烧设备,研究合成气基本燃烧特性具有十分重

要的意义,其中可燃极限是最重要的研究内容之一。

可燃极限又称火焰传播极限或爆炸极限等,是定量表征燃料能否发生火灾、爆炸的极限浓度值,是评价燃料火灾、爆炸危险性的重要参数之一<sup>[2]</sup>。燃料可燃极限的准确测量及预测对其火灾、爆炸事故的有效预防和控制十分关键。燃料组分的变化会显著影响燃烧反应的热力学、化学动力学以及质量输运过程,进而改变燃料可燃极限及其影响机制。从 20 世纪 20 年代开始,国内外学者先后提出了标准极限管法、球形传播火焰法以及对冲火焰法等实验测量方法,并对单组分燃料的可燃极限开展了大量研究<sup>[3-4]</sup>。Wierzba 等<sup>[5]</sup>使用可燃极限管测试法对不同混合比例的多组分燃料的可燃极限进行实验测试,研究发现燃料可燃极限范围随着 H<sub>2</sub> 组分的增加显著变宽。Li 等<sup>[6]</sup>使用对冲火焰法对 10 种典型工业合成气的可燃下限进行测量,得到了类似结论。Wang 等<sup>[7]</sup>对 N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 惰化条件下多组分混合气体的可燃极限进行研究,并对比分析了不同惰性气体的作用。燃料可燃极限的大量实验研究为实际工程应用提供了丰富的数据基础,但实验数据库很难覆盖全部的实际应用工况。为此,国内外学者展开了对燃料可燃极限计算模型的研究<sup>[8]</sup>。Le Chatelier 等<sup>[9]</sup>最早基于实验提出了一种能够简单预测多组分燃料可燃极限的 Le Chatelier 公式,该方法目前仍被学者广泛应用,但存在争议。Wierzba 等<sup>[5]</sup>发现,当初始温度较低或混合物中 H<sub>2</sub> 含量较低时,实验结果与 Le Chatelie 公式计算结果吻合较好;Schoor 等<sup>[10]</sup>发现,H<sub>2</sub> 和 CO 的相互作用使 Le Chatelie 公式预测结果准确性显著下降。

综合前人研究成果不难发现,虽然学者们已经开展了不同燃料可燃极限的研究,但对于多组分燃料,尤其针对组分复杂多变的合成气燃料,关于可燃极限随组分比例的变化规律的系统研究仍十分有限。此外,多组分合成气可燃极限有效数据的缺乏也限制了 Le Chatelier 公式等经典模型及其他可燃极限混合模型适用性的校核及发展。为此,本文参照 EN 1839:2012<sup>[11]</sup>改进搭建了多组分可燃气可燃极限实验测试系统,对含有 0% ~ 40% (体积分数) CO<sub>2</sub> 及 N<sub>2</sub> 惰性气体的 H<sub>2</sub>/CO/空气混合物可燃下限进行实验研究,其中合成气含氢量  $X_{H_2}$  为 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1, 初始温度  $T_0 = 300\text{ K}$ , 初始压力  $p_0 = 0.1\text{ MPa}$ , 对比分析 N<sub>2</sub> 及 CO<sub>2</sub> 对混合物可燃下限的影响。此外,利用获得

的实验数据校核 Le Chatelier 公式在不同含氢量及不同惰化条件下的适用性。

# 1 实验装置和实验方法

## 1.1 实验装置结构及原理

参照 EN 1839:2012<sup>[11]</sup>搭建的多组分混合气可燃下限实验测试系统主要由配气系统、抗爆罐体、点火系统、动态数据采集系统等组成。

抗爆罐为容积 8 L 的圆柱形不锈钢结构罐体,抗爆压力为 2.5 MPa。罐体顶端连接数显压力表及压力传感器,用于测量并记录罐体内压力变化。罐体单侧设置 30 mm 厚的耐压钢化玻璃观察窗,便于观测爆炸产生的火焰及其传播。该实验装置采用熔丝式点火系统,熔丝为直径 0.2 mm 的镍铬合金丝,熔点为 1 400 ℃。点火系统主要由搭接熔丝的不锈钢电极、隔离变压器及控制开关组成。熔丝式点火电极置于观察窗相对侧,与抗爆罐体之间使用螺纹及 O 型圈紧固密封,并嵌入陶瓷及丙烯酸酯高温胶确保电极与罐体之间的绝缘密封;隔离变压器输入电压为 220 V,输出电压选用 36 V (AC)。配气系统主要由真空泵、精密数字真空表、压力表等组成。动态数据采集系统由英国 Gensors 压力传感器 (0 ~ 2.5 MPa) 及计算机组成,用于实验过程中记录抗爆罐体内的变化。

## 1.2 实验方法

本实验采用分压法配置不同含氢量及不同惰化气体惰化比例的合成气/空气混合物。其中氧化剂为干燥的压缩空气,合成气由高纯 H<sub>2</sub> 及 CO 配制而成, H<sub>2</sub> 纯度大于 99.99%, CO 纯度大于 99.5%; 惰性气体 CO<sub>2</sub> 及 N<sub>2</sub> 纯度均大于 99.9%。定义 H<sub>2</sub>/CO 燃料中氢气的比例  $X_{H_2}$  以及混合物中 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 的惰化比例  $X_{CO_2}$ ,  $X_{N_2}$  如式 (1) 及式 (2) 所示。

$$X_{H_2} = \frac{x_{H_2}}{x_{H_2} + x_{CO}}; \tag{1}$$

$$\left. \begin{aligned} X_{CO_2} &= \frac{x_{CO_2}}{x_{H_2} + x_{CO} + x_{CO_2}}, \\ X_{N_2} &= \frac{x_{N_2}}{x_{H_2} + x_{CO} + x_{N_2}}. \end{aligned} \right\} \tag{2}$$

式中:  $x_{H_2}$ ,  $x_{CO}$  分别为 H<sub>2</sub> 及 CO 的摩尔分数;  $x_{CO_2}$ ,  $x_{N_2}$  为惰性组分中 CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> 的摩尔分数。

本实验的误差主要来自配气过程,为减小误差,整个配气过程要求尽量缓慢,准确控制并调节阀门,减缓混气室内的浓度变化,并静置 5 min,待

不同组分气体充分混合,使最大误差不超过 2% .

本实验利用动态数据采集系统记录抗爆罐体内的爆炸压力超压曲线,参照 EN 1839:2012<sup>[11]</sup> 及实验经验,当爆炸超压超过初始压力 5% 时认为爆炸发生. 本实验完成配气后容器内初始压力均为 0.1 MPa,若实验记录超压超过 0.005 MPa,认为发生了爆炸,反之则爆炸未发生. 测试爆炸下限时,如果混合物发生爆炸,需进一步降低混合物中可燃组分的体积分数(≤10%),直至连续测试 10 次未发生爆炸为止. 此外,为减小实验偶然性误差,在测得的可燃极限处将进行 3 次重复实验.

## 2 结果与讨论

### 2.1 含氢量对合成气可燃下限的影响

使用搭建的多组分混合气可燃下限(LFL)实验测试系统测量常温常压条件下不同含氢量( $X_{H_2}$ )的 H<sub>2</sub>/CO/空气混合物可燃下限. 图 1 给出了  $X_{H_2}=0 \sim 1$  的 H<sub>2</sub>/CO/空气混合物可燃下限实验结果及文献中其他学者<sup>[5,10]</sup>在相近工况条件下的实验数据.

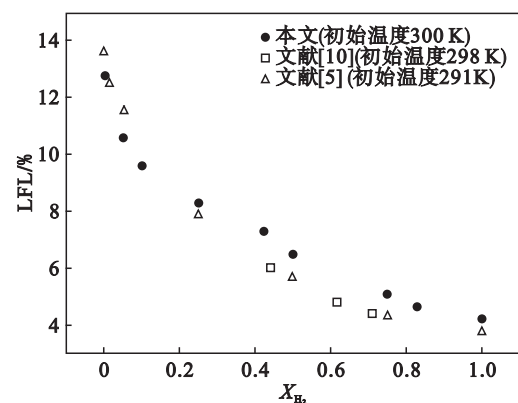


图 1 合成气可燃下限随含氢量的变化  
Fig. 1 Experimental lower flammability limit of syngas with different  $X_{H_2}$

从图中可知,H<sub>2</sub>/CO/空气混合物可燃下限随含氢量的增加而不断降低,且少量氢气( $X_{H_2} \leq 0.25$ )的加入,对混合物的可燃下限影响更显著. 当含氢量由 0 增加到 0.25 时,混合气的可燃下限从 12.77% 降至 8.28%,而当含氢量从 0.75 增加到 1 时,合成气可燃下限仅从 5.09% 降至 4.22%. 通过与其他文献数据<sup>[5,10]</sup>对比可知,本文获得的混合物可燃下限随含氢量变化趋势与文献实验结果吻合较好,但仍存在较小偏差,主要是由于实验初始温度及实验测试容器差异造成的.

对于 H<sub>2</sub>/CO/空气混合物,在可燃下限附近,

当有少量氢气加入时,终止反应  $H + O_2 (+M) = HO_2 (+M)$  以及  $H + OH + M = H_2O + M$ ,对 H<sub>2</sub>/CO/空气混合物预混火焰质量燃烧速率最为敏感<sup>[12]</sup>. 此时由于反应中自由基 OH 及自由基 H 的浓度远低于 CO 浓度,因此自由基 OH 及 H 的浓度是控制反应进程快慢的关键. 对于自由基 OH 的主要氧化反应  $OH + H_2 = H + H_2O$ ,在含氢量较小时对燃烧起抑制作用,当 OH 被氧化反应  $OH + H_2 = H + H_2O$  大量消耗后,反应  $CO + OH = CO_2 + H$  对火焰的影响便会相应减弱,导致整个燃烧反应减慢. 对于火焰中的自由基 H,主要参与反应  $H + O_2 = O + OH$ , $HO_2 + H = OH + OH$  以及  $CO + OH = CO_2 + H$ ,在消耗与重新生成的循环过程中促进了 CO 的氧化过程. 随着混合物中氢气的继续加入,CO 浓度不断减小,氧化反应  $CO + OH = CO_2 + H$  对火焰的整体敏感性显著降低. 当含氢量达到 0.75 时,终止反应  $H + OH + M = H_2O + M$  对 H<sub>2</sub>/CO/空气预混火焰的质量燃烧速率则起到最主要的抑制作用.

### 2.2 含有 N<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 的合成气可燃下限

根据前人研究可知,混合物中惰性组分的加入会降低反应物浓度,降低反应温度,改变火焰峰面质量输运过程,或参与化学反应等,从热效应、扩散效应及化学动力学效应等方面显著影响火焰的传播、熄灭及可燃极限<sup>[13-14]</sup>. 图 2 给出了常温常压条件下含有不同 CO<sub>2</sub>,N<sub>2</sub> 惰化比例的合成气/空气的可燃下限.

由图 2 可知,在相同惰化比例条件下,CO<sub>2</sub> 对混合气体可燃下限的惰化影响与 N<sub>2</sub> 相似. 相同的 CO<sub>2</sub>,N<sub>2</sub> 惰化比例条件下,合成气可燃下限均随含氢量的增加而降低,且与未含有惰性组分混合物的可燃下限的实验结果相似,少量氢气( $X_{H_2} \leq 0.25$ )的加入对混合物可燃下限的影响更显著. 在 CO<sub>2</sub> 惰化比例为 0.2 的条件下,当含氢量从 0 增加到 0.25 时,合成气/空气混合物可燃下限从 17.08% 下降至 11.5%;当含氢量从 0.75 增加到 1 时,混合物可燃下限从 7.03% 下降至 6.02%. 相同含氢量下,合成气/空气混合物可燃下限均随 CO<sub>2</sub> 及 N<sub>2</sub> 惰化比例的增加呈近似线性升高的趋势,在实验惰化比例范围内,可燃下限的升高并不显著,特别是在高含氢量的实验工况下;Li 等<sup>[6]</sup>和 Wang 等<sup>[15]</sup>也得到类似的结果.

图 3 给出了不同 CO<sub>2</sub>,N<sub>2</sub> 惰化比例对合成气/空气混合物可燃下限的影响.



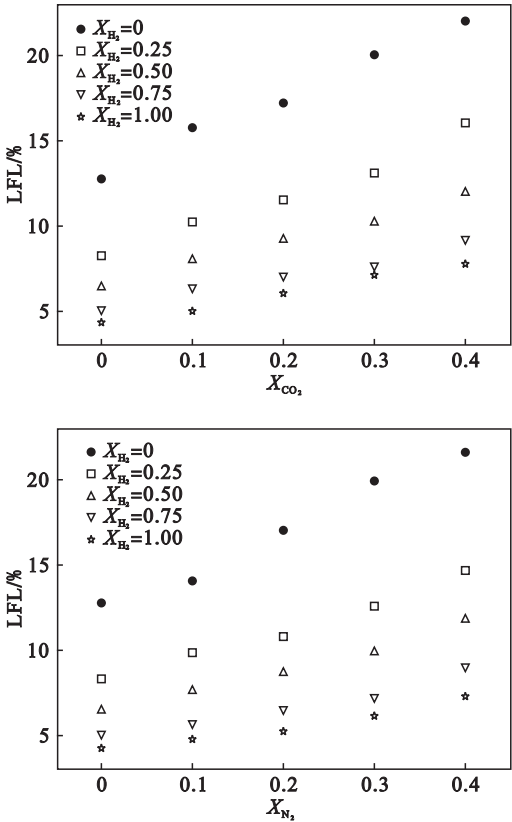


图 2 含有 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 的合成气可燃下限实验数据  
Fig. 2 Experimental lower flammability limit of syngas with CO<sub>2</sub> and N<sub>2</sub>

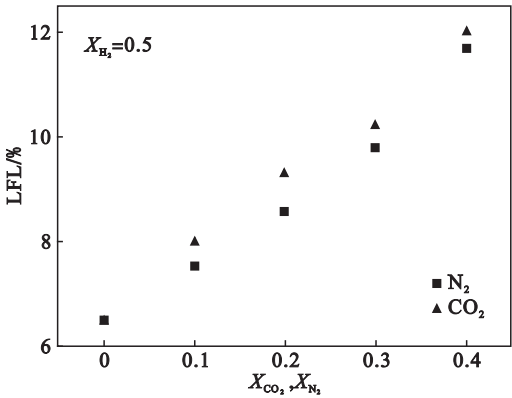


图 3 不同 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 惰化比例条件下的合成气可燃下限  
Fig. 3 Lower flammability limit of syngas at various CO<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> dilution ratios

从图 3 中可以明显看出,在惰化比例相同的条件下,CO<sub>2</sub> 对合成气/空气可燃下限的影响更显著.在含氢量为 0.5 的条件下,当 CO<sub>2</sub> 惰化比例从 0 增加到 0.4 时,混合物可燃下限由 6.48% 上升至 12%;当 N<sub>2</sub> 惰化比例从 0 增加到 0.4 时,混合物可燃下限由 6.48% 上升至 11.69%.当含氢量为 0.25 时,CO<sub>2</sub> 较强的惰化影响更显著,如图 2 所示.

在 N<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 对合成气/空气混合物的影响

作用中,其热力学效应和化学动力学效应的贡献较显著<sup>[13]</sup>.对于 N<sub>2</sub> 惰性组分,由于其本身吸热作用会导致合成气/空气火焰温度整体下降,从而抑制合成气/空气燃烧速率,影响其可燃下限,因此, N<sub>2</sub> 对混合物燃烧速率的抑制作用主要是热力学效应的影响;但 CO<sub>2</sub> 对于合成气/空气燃烧反应的影响不仅表现在其较强的热力学效应方面,同时,CO<sub>2</sub> 会以不同形式参与燃烧化学反应,影响合成气/空气燃烧特性<sup>[14,16]</sup>.在 CO<sub>2</sub> 参与燃烧反应的过程中,可将其整体化学动力学效应影响分为两类.其一是 CO<sub>2</sub> 直接作为反应物参与反应,即直接化学反应效应.通过前文分析可知,对于合成气/空气混合物,自由基 H 及自由基 OH 对燃烧反应具有显著影响.CO 的主氧化反应  $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$  是燃烧过程中最主要的主导反应,CO<sub>2</sub> 的加入会显著抑制此反应的正反应速率,进而影响火焰中自由基 OH 的消耗以及自由基 H 的生成,从而抑制合成气/空气燃烧速率.其二是 CO<sub>2</sub> 会作为“第三体”(M)参与反应,对合成气/空气燃烧造成影响.通过对合成气/空气火焰传播特性的数值计算可知<sup>[13]</sup>,虽然 CO<sub>2</sub> 对合成气/空气混合物的惰化作用同时受热力学效应和化学动力学效应的影响,但 CO<sub>2</sub> 热力学效应的影响占主导作用,其直接化学反应效应及化学三体反应效应对混合物燃烧速率的抑制作用并不显著;随着惰化比例的增加,CO<sub>2</sub> 的热力学效应影响随之增强.

2.3 Le Chatelier 公式在合成气可燃下限中的应用及校核

Le Chatelier 公式作为一种预测混合物可燃极限的简单估算方法,目前仍被学者广泛应用及研究.基于实验研究,Burgess 等<sup>[17]</sup>指出,对于大部分处于可燃下限的碳氢化合物/空气混合物,其燃料可燃下限与燃料热值的乘积近似为常数 C:

$$(\text{LFL})_i q_i = C. \tag{1}$$

式中:(LFL)<sub>i</sub> 为第 i 种组分可燃下限;q<sub>i</sub> 为第 i 种组分的热值.

通过估算,不难发现不同燃料在可燃下限处的绝热火焰温度近似相等,约为 1 450 K.基于这个结论,进一步提出混合燃料可燃下限的估算方法:

$$(\text{LFL})_{\text{mix}} q_{\text{mix}} = C, \tag{2}$$

并且,

$$q_{\text{mix}} = \sum_i x_i q_i = \sum_i x_i \frac{C}{(\text{LFL})_i}. \tag{3}$$

由此可得

$$(\text{LFL})_{\text{mix}} = \left[ \sum_i \frac{x_i}{(\text{LFL})_i} \right]^{-1} \quad (4)$$

式中  $x_i$  代表混合物中第  $i$  种组分的摩尔分数. 式 (4) 就是著名的 Le Chatelier 公式<sup>[2]</sup>.

为校核 Le Chatelier 公式对多组分合成气/空气混合物可燃下限的适用性, 图 4 对比了不同 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 惰化比例条件下, 合成气/空气混合物可燃下限实验数据及理论计算结果.

从图 4 中可以看出, 当混合物中不含惰性组分时, Le Chatelier 公式对 H<sub>2</sub>/CO/空气混合物可燃下限的预测结果与实验数据吻合较好. 当混合物中氢气含量较少时, 混合物可燃下限的实验数据稍低于预测值, Wierzba 等<sup>[15]</sup> 同样得到类似的结果. 通过 Le Chatelier 公式的推导可知, 该公式主要基于热力学效应影响, 并假设混合物中各组分之间具有相对独立的反应动力学影响且保持恒定<sup>[9]</sup>. 通过 2.1 节分析可知, 由于合成气各组分之间强烈的化学耦合作用, 混合物中少量 H<sub>2</sub> 的加入会显著影响混合物燃烧反应机理及其可燃极限控制机制, 从而影响 Le Chatelier 预测结果的准确性.

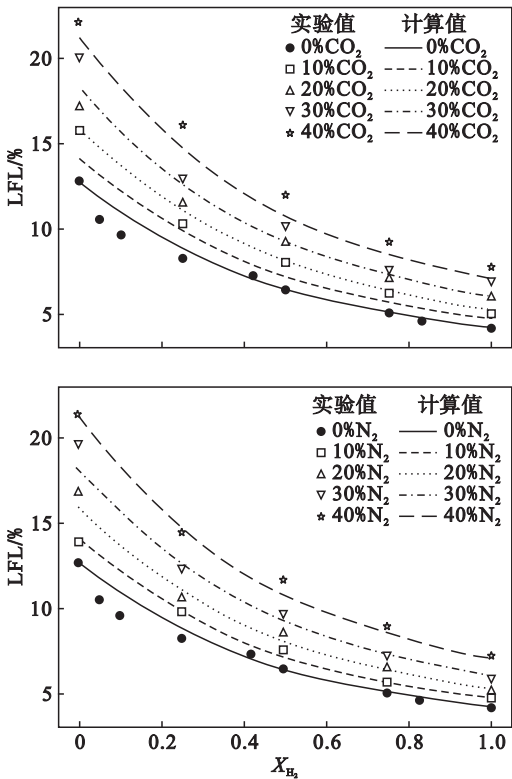


图 4 不同惰化条件下合成气可燃下限实验值与 Le Chatelier 公式计算值

Fig. 4 Experimental data and calculated lower flammability limit of diluted syngas using Le Chatelier's Rule

为了综合对比 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 惰化条件下 Le Chatelier 公式对混合物可燃下限预测的适用性, 图 5 给出了使用 Le Chatelier 公式计算得到的混合物可燃下限与实验数据的偏差, 图中的实线表示实验数据与预测结果完全相等.

从图 5 中可以看出, Le Chatelier 公式对惰化条件下的合成气/空气混合物可燃下限预测比较准确, 预测结果与实验数据的误差大部分落在  $\pm 10\%$  误差线以内, 仅有少数几组数据超出图中的误差线范围. 通过对比图 4 中的实验数据可知, 当混合物中含有惰化组分时, Le Chatelier 公式能够较好地预测惰化组分对合成气/空气混合物可燃下限的影响趋势; 但随着混合物中惰化组分比例的增加, Le Chatelier 公式的大部分预测结果低于实验数据. 此外, 由于 Le Chatelier 公式的推导忽视了惰化组分的化学效应, 在计算过程中均将不同的惰性组分视为可燃下限无穷大的可燃气体<sup>[2]</sup>, 并未区分 CO<sub>2</sub> 及 N<sub>2</sub> 不同的惰化影响, 因此, 惰化比例较大时, 实验数据与计算结果之间的显著差异在 CO<sub>2</sub> 惰化条件下更显著. 当 CO<sub>2</sub> 惰化比例达到 0.3 及 0.4 时, 预测结果显著低于实验数据.

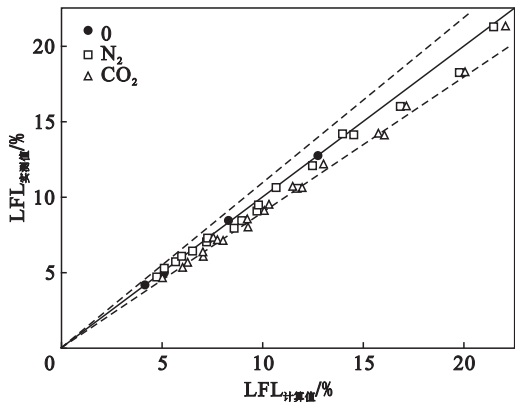


图 5 合成气可燃下限实测值和 Le Chatelier 公式计算值  
Fig. 5 Calculated lower flammability limit of syngas using Le Chatelier's Rule against experimental data

通过对不同惰化条件下合成气/空气混合物预混火焰质量燃烧速率反应敏感性分析可知<sup>[18]</sup>, 当混合物中含有较高比例的 N<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 时, 燃烧的主导反应没有显著变化, 但不同主导反应的相对重要性发生了变化. 其中, 作为自由基 H 的主氧化反应  $\text{H} + \text{O}_2 (+\text{M}) = \text{HO}_2 (+\text{M})$ , 其敏感性系数绝对值随惰化比例的增加显著增大, 特别是当 CO<sub>2</sub> 惰化比例达到 0.4 时, 反应  $\text{H} + \text{O}_2 (+\text{M}) = \text{HO}_2 (+\text{M})$  取代自由基 H 的另一个氧化反应  $\text{H} + \text{OH} + \text{M} = \text{H}_2\text{O} + \text{M}$ , 成为自由基 H 最主要的消耗反应. 由此可知, 当合成气/空气混合气中含

有少量的  $\text{N}_2$  和  $\text{CO}_2$  时,燃烧的主导反应并未发生明显变化,Le Chatelier 公式预测结果误差较小,当混合物中含有较高比例的  $\text{CO}_2$  时,Le Chatelier公式无法描述化学效应的影响,因此其预测结果偏差较大.

### 3 结 论

1)  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{空气}$  的可燃下限随含氢量的增大而下降;由于反应控制机理的影响效应,少量氢气( $X_{\text{H}_2} \leq 0.25$ ) 的加入,对混合物可燃下限影响更显著.

2) 合成气/空气混合物可燃下限随  $\text{N}_2$  和  $\text{CO}_2$  惰化比例的增加近似线性升高;与  $\text{N}_2$  相比,由于  $\text{CO}_2$  较强的热力学及化学效应,其对混合物可燃下限的影响更显著.

3) 在实验条件下,Le Chatelier 公式能够较准确地预测合成气/空气混合物可燃下限;但由于该公式在推导过程中对化学反应作用的简化及忽视,使其对含氢量较低及惰化比例较高的合成气可燃下限的预测准确性较差,且计算结果不能区分不同惰性气体对合成气可燃下限的影响差异.

### 参考文献:

[1] Lieuwen T, Yang V, Yetter R. Synthesis gas combustion: fundamentals and applications [M]. [S. l.]: CRC Press, 2009.

[2] Law C K. Combustion physics [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2006.

[3] Miao H, Lu L, Huang Z. Flammability limits of hydrogen-enriched natural gas [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2011, 36(11): 6937 – 6947.

[4] Pizzuti L, Martins C A, Lacava P T. Laminar burning velocity and flammability limits in biogas: a literature review [J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2016, 62: 856 – 865.

[5] Wierzbna I, Kilchyk V. Flammability limits of hydrogen-carbon monoxide mixtures at moderately elevated temperatures [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2001, 26(6): 639 – 643.

[6] Li S, Zhang Y, Qiu X, et al. Effects of inert dilution and preheating temperature on lean flammability limit of syngas [J]. *Energy & Fuels*, 2014, 28(5): 3442 – 3452.

[7] Wang P, Zhao Y, Chen Y, et al. Study on the lower flammability limit of  $\text{H}_2/\text{CO}$  in  $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$  environment [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42(16): 11926 – 11936.

[8] Chen C C, Lai C P, Guo Y C. A novel model for predicting lower flammability limits using quantitative structure activity relationship approach [J]. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries: Part B*, 2017, 49: 240 – 247.

[9] Le Chatelier H, Boudouard O. Limits of flammability of gaseous mixtures [J]. *Bulletin de la Société Chimique de France*, 1898, 19: 483 – 488.

[10] Schoor F V D, Norman F, Vandermeiren K, et al. Flammability limits, limiting oxygen concentration and minimum inert gas/combustible ratio of  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{N}_2/\text{air}$  mixtures [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2009, 34(4): 2069 – 2075.

[11] Determination of explosion limits of gases and vapors: EN1839:2012 [S]. [S. l.]: Standards Policy and Strategy Committee, 2012.

[12] Fu J, Tang C, Jin W, et al. Study on laminar flame speed and flame structure of syngas with varied compositions using OH-PLIF and spectrograph [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2013, 38(3): 1636 – 1643.

[13] Shang R, Zhang Y, Zhu M, et al. Laminar flame speed of  $\text{CO}_2$  and  $\text{N}_2$  diluted  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  flames [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2016, 41(33): 15056 – 15067.

[14] Zhang Y, Shen W F, Zhang H, et al. Effects of inert dilution on the propagation and extinction of lean premixed syngas/air flames [J]. *Fuel*, 2015, 157: 115 – 121.

[15] Wang Z H, Weng W B, He Y, et al. Effect of  $\text{H}_2/\text{CO}$  ratio and  $\text{N}_2/\text{CO}_2$  dilution rate on laminar burning velocity of syngas investigated by direct measurement and simulation [J]. *Fuel*, 2015, 141: 285 – 292.

[16] Hu X, Yu Q, Sun N, et al. Effects of high concentrations of  $\text{CO}_2$  on the lower flammability limits of oxy-methane mixtures [J]. *Energy & Fuels*, 2016, 30(5): 4346 – 4352.

[17] Burgess M J, Wheeler R V. The lower limit of inflammation of mixtures of the paraffin hydrocarbons with air [J]. *Journal of the Chemical Society, Transactions*, 1911, 99: 2013 – 2030.

[18] Shang R, Zhang Y, Zhu M, et al. Semiempirical correlation for predicting laminar flame speed of  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{air}$  flames with  $\text{CO}_2$  and  $\text{N}_2$  dilution [J]. *Energy & Fuels*, 2017, 31(9): 9957 – 9966.