

分类号_____

密级_____

U D C_____

编号_____

厦门大学

博士后研究工作报告

烟草干燥与热解燃烧过程及卷烟燃烧的数值模拟

李巧灵

工作完成日期

2013年6月

报告提交日期

2013年6月

厦 门 大 学 （ 福 建 ）

2013年6月

中文题目：烟草干燥与热解燃烧过程及卷烟燃烧的数值模拟

英文题目：Study on the Drying, Pyrolysis and Combustion Process of Tobacco and Numerical Simulation of a Burning Cigarette

博 士 后 姓 名：李 巧 灵

流动站（一级学科）名称：厦门大学化学系

专 业（二级学科）名称：

合 作 教 授：陈 晓 东

研究工作起始时间 2011 年 7 月 7 日

研究工作期满时间 2013 年 6 月 15 日

厦门大学博士后研究报告著作权使用声明

本人完全了解厦门大学有关保留、使用博士后研究报告的规定。厦门大学有权保留并向国家主管部门或其指定机构送交该报告的纸质版和电子版，有权将该报告用于非赢利目的的少量复制并允许该报告进入学校图书馆被查阅，有权将该报告的内容编入有关数据库进行检索，有权将博士后研究报告的标题和摘要汇编出版。保密的博士后研究报告在解密后适用本规定。

本研究报告属于： 1、保密()， 2、不保密()

纸本在 年解密后适用本授权书；

电子版在 年解密后适用本授权书。

(请在以上相应括号内打“ ”)

作者签名： 日期： 年 月 日

导师签名： 日期： 年 月 日

目 录

摘 要	A
Abstract	C
第一章 绪论	1
1.1 本课题研究的背景和意义	1
1.2 烟草干燥工艺	2
1.3 烟草热解和燃烧特性	4
1.4 卷烟燃烧数学模型	6
1.5 本文的研究目的和实验方案	8
烟草干燥对烟叶成分以及热解燃烧特性的影响	10
2.1 实验材料与设备	10
2.1.1 材料	10
2.1.2 处理与分析	11
2.1.3 烟丝的热解和燃烧特性及常规化学成分分析	12
2.1.4 烟丝表面结构 SEM 表征	13
2.2 结果与讨论	13
2.2.1 烟丝在烘箱干燥方式下的受热情况和质量损失情况	13
2.2.2 不同温度下干燥后烟丝的燃烧与热解特性研究	14
2.2.3 不同温度下干燥后烟丝的常规化学成分分析	17
2.2.4 不同预处理过程对烟叶成分的影响	18
2.2.5 不同预处理过程对烟丝热解和燃烧特性的影响	19
2.2.6 不同预处理过程对烟丝表面结构的影响——SEM 电镜表征	21
2.3 小结	23
第三章 烟草热解燃烧动力学研究	24
3.1 实验材料与设备	24

3.1.1 材料.....	24
3.1.2 处理与分析.....	25
3.2 结果与讨论.....	25
3.2.1 烟草热解燃烧动力学模型的建立.....	25
3.2.2 烟草在有无催化剂 2%O ₂ -98%N ₂ 气氛下的热重实验.....	26
3.2.3 不同升温速率条件下的烟草热解反应动力学模型.....	29
3.3 小结.....	35
第四章 卷烟燃烧的数值模拟.....	36
4.1 实验部分.....	36
4.1.1 热重实验.....	36
4.1.2 温度验证实验.....	36
4.2 结果与讨论.....	37
4.2.1 热重实验结果分析.....	37
4.2.2 卷烟燃烧数学模型的建立.....	39
4.2.2.1 水分蒸发模型.....	39
4.2.2.2 热解模型.....	39
4.2.2.3 燃烧模型.....	40
4.2.2.4 质量传递方程.....	40
4.2.2.5 能量方程.....	42
4.2.2.6 动量方程.....	42
4.2.3 数值求解.....	43
4.2.4 卷烟燃烧内部温度场分布.....	43
4.2.5 卷烟燃烧内部浓度场分布.....	45
4.2.6 卷烟燃烧内部水蒸气冷凝模型的建立.....	47
4.2.6.1 水蒸气冷凝模型的建立.....	47
4.2.6.2 水蒸气冷凝模型的验证实验.....	48
4.2.6.3 水蒸气冷凝模拟结果.....	49
4.3 小结.....	50

第五章 总结与展望.....	51
参考文献.....	54
博士期间发表论文及专利.....	59
致 谢.....	60
作者简介.....	61

厦门大学博硕士论文摘要库

Content

Abstract in Chinese	A
Abstract in English.....	C
Chapter 1 Introduction.....	1
1.1 Background and signification of this project.....	1
1.2 Tobacco drying technology	2
1.3 Tobacco pyrolysis and combustion properities	4
1.4 Numerical simulation of burning cigarette	6
1.6 Objectives and experiment scheme of this thesis.....	8
Chapter 2 Study on the effect of tobacco drying to the composition , pyrolysis and combustion properities	10
2.1 Main equipments and materials.....	10
2.1.1 Materials	10
2.1.2 Treatment and analysis	11
2.1.3 Tobacco pyrolysis and combustion and the composition analysis	12
2.1.4 The surface of the tobacco-SEM characterization.....	13
2.2 Results and discussion.....	13
2.2.1 Heating and weight loss under the oven drying.....	13
2.2.2 Tobacco pyrolysis and combustion properities under different drying temperatures	14
2.2.3 The changes of tobacco compostion under different drying temperatures	17
2.2.4 The changes of tobacco compostion under different preatments.....	18
2.2.5 Tobacco pyrolysis and combustion properities under different preatments	19
2.2.6 The changes of the tobacco surface under different drying temperatures	

-SEM characterization	21
2.3 Summary	23
Chapter 3 Kinetic study of the tobacco pyrolysis and combustion .	24
3.1 Main equipments and materials.....	24
3.1.1 Materials	24
3.1.2 Treatment and analysis	25
3.2 Results and discussion.....	25
3.2.1 Tobacco pyrolysis and combustion model.....	25
3.2.2 TGA test of the tobacco with and without catalyst in 2%O ₂ -98%N ₂ atmosphere	26
3.2.3 Tobacco pyrolysis and combustion model under different heating rate	29
3.3 Summary	35
Chapter 4 Numerical simulation of a burning cigarette	36
4.1 Experiments	36
4.1.1 TGA test.....	36
4.2 Results and discussion.....	37
4.2.1 TGA results analysis	37
4.2.2 Setting up a burning cigarette model	39
4.2.2.1 Water evaporation model	39
4.2.2.2 Pyrolysis model	39
4.2.2.3 Combustion model	40
4.2.2.4 Mass transport equation	40
4.2.2.5 Energy equation.....	42
4.2.2.6 Momentum equation	42
4.2.3 Numerical solution.....	43
4.2.4 Temperature distribution of a burning cigarette	43
4.2.5 Conceration distribution of a burning cigarette	45
4.2.6 Water vapor condensation model.....	47

4.2.6.1 Setting up a water evaporation model	47
4.2.6.2 Verified experiments and results	48
4.2.6.3 Simulating results	49
4.3 Summary	50
Chapter 5 Ending words.....	51
References	54
List of publications and patents	59
Acknowledgement	60
Author brief introduction.....	61

厦门大学博硕士学位论文摘要

摘要

吸烟与健康是烟草行业在前进过程中面临的主要挑战之一,系统而深入地研究烟草干燥工艺与热解燃烧特性,探究烟气中有害成份的形成过程以及各种变量对烟气组份分布的影响,并建立卷烟燃烧数学模型。通过模型模拟各变量对卷烟燃烧内部温度场分布、浓度场分布和卷烟烟气中主要有害成分释放量的影响。以卷烟减害为目的,根据卷烟燃烧模型反馈的信息,为烟草的干燥工艺、低危害卷烟的配方设计以及卷烟辅材料开发设计提供科学依据,这也是烟草行业从经验研究上升到理论研究的必然趋势。

本项目主要包括三方面的内容:烟草干燥工艺优化、烟草热解燃烧特性研究,以及卷烟燃烧数学模型的建立。具体研究内容如下:

- (1) 在实验室水平建立烟草烘箱干燥实验平台,研究了不同的干燥温度以及不同前处理过程(水洗、碱洗和酸洗)对烟叶成分以及热解燃烧特性的影响。结果表明,当烘箱干燥温度达到 150℃ 以上,烟草中大量的糖分发生分解并转化生成新的更难分解的物质;预处理过程会造成烟草中钾、总植物碱、水溶性总糖、还原糖含量有不同程度的降低,并最终影响烟草的热解燃烧行为。
- (2) 建立了烟草热解燃烧的基本动力学模型,模型的模拟结果和实验结果拟合较好,并通过有无催化条件下热重实验以及动力学参数的对比,从动力学的角度说明了该催化剂可阻碍半纤维素,纤维素和木质素的热解反应,并促进焦炭的氧化反应,因此可以有效降低卷烟烟气中的 CO。对基本的烟草热解燃烧反应动力学模型进行修正,已达到模拟多种升温速率条件下(25、50、75、100、125、150、175、200 °C/min)的转化率变化,这将为卷烟燃烧数学模型提供更为合适的烟草热解燃烧反应动力学方程。
- (3) 运用 Fluent 软件模拟了卷烟阴燃过程中不同时刻的温度场分布,烟气中氧气、一氧化碳、二氧化碳和水蒸气的浓度分布,热解前驱体的变化,升温速率以及水蒸气的传递等,并将模拟得到的卷烟阴燃线性燃烧速度和卷烟内部最高温度值与实验值进行了对比。模拟结果与实验结果拟合较好,从一定程度上说明了该模型的合理性。本模型还考虑了在水蒸气向后传递的过程中,由于燃烧锥后端温度较低,水蒸气会发生冷凝。研究了冷凝对水

份的影响,展示了水份的变化,证明了卷烟燃烧过程中冷凝对水份产生了较大影响。

关键词：

烟草干燥；烟草前处理；烟叶成分分析；热解燃烧特性；烟草动力学研究；卷烟燃烧的数值模拟

本课题得到福建中烟工业公司的资助。

厦门大学博硕士论文摘要库

Abstract

The relationship between smoking and healthy continues to pose a great challenge to tobacco industry. Studying on the tobacco drying process, pyrolysis and combustion reaction, and harmful constituents forming mechanism is very important for tobacco industry development. Setting up a cigarette burning model to simulate the temperature distribution, concentration distribution and the yield of harmful component in smoke could provide a good platform to further investigate the effects of cigarette combustion and also supply the necessary information for the improvement of technological conditions and cigarette formulating.

This project includes three aspects: tobacco drying process optimization, kinetic study of tobacco pyrolysis and combustion, and Numerical Simulation of a Burning Cigarette. The main results obtained are as follows:

(1) In order to establish the effect of tobacco drying and pretreatment (water washing, acid washing and alkali washing) on the tobacco composition and subsequent pyrolysis and combustion properties, oven drying methods were applied. The results showed that the high temperature drying in oven (at 150 and 170 °C) led to the considerable reduction of sugar, while producing new components that are harder to decompose; pretreatment could reduce the amount of K, nicotine, total sugar in tobacco composition and affect the tobacco pyrolysis and combustion behavior.

(2) A basic kinetic model of tobacco pyrolysis and combustion reactions was set up, the model predictions and the experimental results are in good agreements in both cases with and without the catalyst. The kinetic parameters of tobacco with and without this catalyst were compared. After the addition of the catalyst, the activation energies for the pyrolysis reactions of hemicellulose, cellulose and lignin were found to increase but the activation energies for char combustion reactions were found to decrease, indicating that the catalyst impedes the tobacco pyrolysis but promotes the tobacco combustion as a result of the decrease of CO content in the cigarette burning process. In further, a revised kinetic model was proposed, which could simulate the relationship between conversion and temperature at different heating rates (25, 50, 75,

100, 125, 150, 175 and 200 /min), which will supply more suitable kinetic parameters for the following cigarette burning model.

(3) A 2D mathematical model of cigarette burning is described, which not only includes the water evaporation, tobacco pyrolysis and oxidation reactions happening in the burning process, but also the mass, heat and momentum transfers are involved. The information about the temperature-time profiles, the concentrations of O₂, CO, CO₂ and water vapor in the mainstream can be obtained from the model. The numerical results show a good agreement with the experimental data on the burning rate and the maximum temperature. This model firstly considers that the water vapor will condense when it transports backward, because the temperature is lower than it in combustion cone. The influence of condensation on water content is studied. The change of water content is found, and the effect of condensation on water content is proved.

Keywords:

Tobacco drying; Tobacco pretreatment; Component analysis; Pyrolysis and combustion properties; Kinetic study; Numerical simulation of a burning cigarette

This project was sponsored by China Tobacco Fujian Industrial Corporation.

第一章 绪论

1.1 本课题研究的背景和意义

戒烟不易，禁烟不行。国家爱委会抽烟调查表明：在我国成人人口中，经常吸烟的人总数超过 3.2 亿，总吸烟率为 37.62%；年轻人（无论男女）吸烟率均呈上升趋势，且吸烟年龄提前，每人每日平均吸烟量为 15 支。烟草行业作为国家税收的重要来源，中国的国情要求烟草行业既要降低对群众健康的损害，又要支持国家经济的发展，还要满足消费者的需求。吸烟与健康是烟草行业在前进过程中面临的主要挑战之一。系统而深入地研究烟草干燥工艺与热解燃烧特性，以及卷烟燃烧过程中有害成份的形成过程以及各种变量（包括烟草成分、抽吸参数、烟支结构、卷烟材料、添加剂和加工措施等）对烟气组分分布的影响，并利用数学模型模拟卷烟的燃烧过程，预测在不同条件下有害成分的释放量，解决实验方法不能测定或者难以准确测定的物理过程和相关参数变化后烟气组分分布规律，从而有针对性地改良卷烟质量及吸食安全性，对卷烟生产有重要的指导意义。同时本项目将有助于烟草行业建立有独立知识产权的软件包，逐步实现由模型分析指导实践的境界。

降低卷烟烟气中有害成份的方法目前可分为两种：方法一是采取有效的手段在卷烟燃烧的过程中阻止和减少有害成份的释放量；方法二是在有害成份形成后采用过滤或者吸附，催化等手段达到降焦的目的。目前，烟草行业主要研究了方法二的降焦效果，结果表明有害成份只选择性降低了 10~30%，并且当卷烟的有害成份释放量降低到一定的水平后，由于过滤和吸附作用的无选择性导致卷烟的感官质量会受到很大的影响，这是制约降焦减害技术发展的重要因素之一。而方法一与方法二相比更具有研究优势，因为它是在有害物质产生之前，采取有效的手段创造一个不利于有害成份形成的燃烧环境。因此，系统而深入地研究烟草干燥工艺与热解燃烧特性，以及卷烟燃烧过程中有害成份的形成过程以及各种变量对烟气组份分布的影响，对卷烟燃烧过程和机理做深入分析，并建立卷烟燃烧数学模型，利用模型指导实践，这是方法一达到降焦减害目的的本质要求和关键环节，也是烟草行业从经验研究上升到理论研究的必然趋势。

1.2 烟草干燥工艺

烟草是构成卷烟的基础,表 1 表明了调制烟草中的各种化合物的类别及其含量范围[1]。烟气中有数千种化合物,大约有 1/3 的化合物直接来自烟草,其余则是燃烧过程中发生蒸馏、干馏、热解、合成等一系列复杂反应形成的,矿质元素以各种盐类形式存在于烟草中,虽然不是可燃成分,但在燃烧过程中通过催化作用而影响烟草的燃烧性,其中钾和镁助燃,磷和氯减缓燃烧进程。一般认为烟草本身的化学组成,燃烧状态将直接影响卷烟的烟气成分[2-4]。

表 2 展示了主流烟气化学组成,其中主要的有害物质包括:烟气烟碱、一氧化碳、氮氧化物(NO、NO_x)、氨、氰化氢、苯并芘、芳香胺、羰基化合物(甲醛、乙醛、丙酮、丙烯醛、丙醛、巴豆醛、甲基乙基酮、丁醛)、酚类、烟草特有的亚硝酸胺、挥发性有机成分(吡啶、喹啉、1,3-丁二烯、异戊二烯、丙烯腈、苯、甲苯和苯乙烯等)以及一些金属和非金属(Ni、Pb、Cd、Cr、As、Se、Hg)。根据文献,表 3 概括了烟草成分与这些烟气中有害物质之间的关系。烟气中的烟碱主要由烟草烟碱直接转移;一氧化碳 30%由烟草中的有机物热解产生,36%来自烟草的不完全燃烧,其余的由二氧化碳还原而生成;稠环芳烃是烟草中的有机物热解所生成的有机物碎片,经过复杂的高温聚合过程而生成的;烟气中的氨、亚硝酸胺、氮氧化物、芳香胺和氰化氢的主要前体是烟草中的硝酸盐、蛋白质、氨基酸和烟碱等。烟气中的羰基化合物一部分是烟草中醛和酮直接转移的结果,然而大部分来自糖、酯、果胶、纤维素和含氨基化合物的热解;烟气中一元酚主要来自木质素和纤维素的热解,多酚一部分由烟草中的酚类直接转移,另一部分是糖、蛋白质、氨基酸和绿原酸热解的产物。Baker 等[5,6]研究了烟草中的糖含量对烟气中甲醛含量的影响,结果表明烟气中甲醛含量随着烟草中糖含量的增加而增加。Pain 等人[7,8]利用同位素跟踪研究了葡萄糖对烟气中含羰基化合物的生成机理的研究。Czegeny 等[9]研究表明,烟气中的多酚类物质来自邻苯二酚,而在较低的温度条件下(<600℃),对苯二酚的前躯体是绿原酸。

烟草成分是卷烟有害成分释放量的决定因素,也是卷烟质量的物质基础。目前文献中对干燥过程中烟草的热物性[10-17]以及常规成分[18-24]的变化研究相对较多,随干燥条件的加强(如增加干燥的热风温度或延长干燥时间),有的呈减少趋势(如总糖、总氮、总植物碱、氨态氮等),只是减少的程度有所不同;有

的变化不明显(如蛋白质氮);也有的呈现上升趋势(如还原糖、有机酸等)[25]。然而不同的烟草干燥过程所引起的烟草成分以及物理性质的变化对后续卷烟燃烧时烟气成分的影响,则研究得相对较少。一般认为烟草本身的化学组成及其燃烧状态将直接影响卷烟的烟气成分,因此,研究与确定干燥对烟草的热解和燃烧特性以及其与烟气成分的影响,将烟草干燥过程与后续热解和燃烧过程一定量地联系起来,会有助于理解卷烟的燃烧机理。烟草公司要发展具有国内市场特色的烤烟型卷烟,必须重视低焦油卷烟原料的研究,深入探讨烟草中各种化学成分对卷烟烟气变化及卷烟感官质量的影响,为烟草的加工干燥工艺以及低焦油卷烟配方设计提供较科学依据,提高我国卷烟的设计、生产水平和产品质量。

表 1.1 烟草成分

成 分	含量范围(%)	成 分	含量范围(%)
蜡和蜡酯	0.66~1.20	烟碱	0.28~4.00
茄尼醇和酯	0.80~2.00	氨基酸	0.25~3.00
有机酸	3.00~7.67	纤维素和木质素	25.00~28.5
多酚	0.75~5.70	挥发油	0.25~1.00
还原糖	0.80~25.00	蛋白质	1.00~3.00
非还原糖	1.00~5.00	水(游离态和结合态)	11.00~24.00
淀粉和果胶	0.00~8.00	矿质元素	6.00~8.00

表 1.2 主流烟气中的化学成分

空气含量 75.9%		气相含量 19.6%		粒相含量 4.5%	
所含成分	含量(%)	所含成分	含量(%)	所含成分	含量(%)
氮气	62	水分	1.3	水分	0.8
氧气	13	二氧化碳	12.5	烷烃类	0.2
氩气	0.9	一氧化碳	4	萜烯类	0.2
		氢气	0.1	酚类	0.2
		甲烷	0.3	酯类	0.2
		烃类	0.6	烟碱	0.3
		醛类	0.3	其他生物碱	0.1
		酮类	0.2	醇类	0.3
		腈类	0.1	羰基化合物	0.5
		杂环类	0.03	有机酸类	0.6
		甲醇	0.03	叶素类	0.2
		有机酸类	0.02	其他化合物	0.9
		酯类	0.01		
		其他化合物	0.11		

Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to etd@xmu.edu.cn for delivery details.

厦门大学博硕士论文摘要库