

甲烷/空气高压燃烧层流扩散火焰碳烟形成的数值模拟¹⁾

覃建果, 魏小林²⁾, 郭啸峰, 李腾

(中国科学院力学研究所, 北京 100190)

摘要: 本文利用修正后的 Moss-Brookes 模型对 5~40 atm 范围内的 CH₄/空气层流同轴射流扩散火焰进行了数值模拟。计算模型采用基于 GRI3.0 的骨干反应机理, 同时模型还考虑了 CH₄、H₂O、CO₂、CO 以及碳烟的辐射损失。考虑碳烟的形成后, 火焰温度比仅考虑气体辐射时低, C₂H₂ 摩尔分数减少, 火焰长度有所增加。碳烟体积分数随着压力的提高而增大。压力的提高使成核速率、表面生长速率以及氧化速率都有所增大。燃料中的碳转化为碳烟的百分比与压力成指数关系, 这种关系随着压力的提高而逐渐减弱。

关键词: 甲烷, 高压燃烧, 碳烟, 数值模拟

引言

碳烟的形成是一个非常重要的问题。发动机、燃气轮机中出现碳烟可能会造成壁面超温, 严重时还会引起碳烟颗粒冲击和积碳腐蚀零部件, 此外还存在燃烧效率降低、环境污染和影响人类健康等问题^[1]; 而锅炉炉膛中的碳烟能够强化燃气与水冷壁间的辐射换热, 在轮胎、橡胶产业中则要人为增加碳烟的形成^[2]。因此, 碳烟的存在有利有弊, 加深对碳烟形成、消耗的认识有助于控制有害碳烟的排放、提高燃烧效率。

以往对碳烟形成的研究主要针对常压下的对冲扩散火焰, 但为了提高热效率、减小设备体积, 很多燃烧器都是在增压条件下工作, 而关于压力对碳烟形成影响的研究还比较少。已有的实验研究主要有: Miller 和 Maahs^[3]进行了 CH₄/空气的同轴射流燃烧实验, 研究了高压下 CH₄ 火焰形态、NO_x 和碳烟生成特性。Flower 和 Bowman^[4,5]利用激光消光法测量 C₂H₄/空气在 1~10 atm 压力范围内燃烧时的碳烟生成特性。Thomson、Joo 和 Gülder 等人^[6-13]主要通过多波长发射光谱法测量 CH₄、C₂H₄ 和 C₃H₈ 等各种燃料高压燃烧时火焰中的碳烟体积分数以及温度分布。Darabkhani 和 Zhang 等人^[14]则研究 CH₄、C₂H₄ 和 C₃H₈ 等燃料在高压下的燃烧稳定性以及碳烟生成特性。

扩散火焰中碳烟的形成和燃尽过程非常复杂, 目前还没有被研究透彻, 因此还没有适用于不同燃料和不同工作条件的通用碳烟模型^[15]。虽然目前已有的一些描述碳烟形成的详细反应机理^[16], 但受到计算能力的限制, 将这些碳烟详细反应机理用于模拟多维火焰还不太现实。此外, 用来描述碳烟形成的详细化学反应的速率常数几乎没有可用的测量数据。另一方面, 半经验公式模型利用简单模型求解碳烟成核、生长与氧化的速率方程, 模型中的各种常数需要根据实验来确定。Liu^[17]以及 Charest^[18,19]等人采用半经验公式模型来研究压力对碳烟形成的影响规律, 他们的数值计算采用的化学反应模型基于 GRI3.0^[20], 但是去掉了涉及到 NO_x 形成的组分和基元反应 (除了 N₂), 并加入了碳烟总包机理, 模型同时还考虑了主要气体产物和碳烟的辐射损失。随着半经验模型的发展, 其模拟性能正逐步得到提高。本文将采用 Fluent 中的 Moss-Brookes 模型来对 CH₄/空气高压燃烧时的碳烟形成特性进行数值研究。

1 数值计算模型

数值计算的对象是一个同轴射流燃烧器, 为了便于验证计算结果, 该燃烧器的设计尺寸与 Joo 和 Gülder 等人^[6-13]研究中所用的燃烧器相同。燃烧器如图 2-1 所示, 燃料管的出口直径为 3 mm, 外套管内径为 25.4 mm, 内外套管中都放置烧结金属以使气流出口速度均匀分布, 燃料管出口设计为扩张喷嘴的形式以降低

1) 基金资助项目 (国家自然科学基金项目 No.51006115, No.50976122, No.91130028)

2) Email: xlwei@imech.ac.cn

出口处的回流。为了使火焰稳定，外套管上还放置了一个内径也是 25.4 mm 的石英玻璃管。该同轴射流燃烧器放置在一个压力容器内，可以在很大的压力范围内进行实验研究，本文研究的压力范围为 5~40 atm。

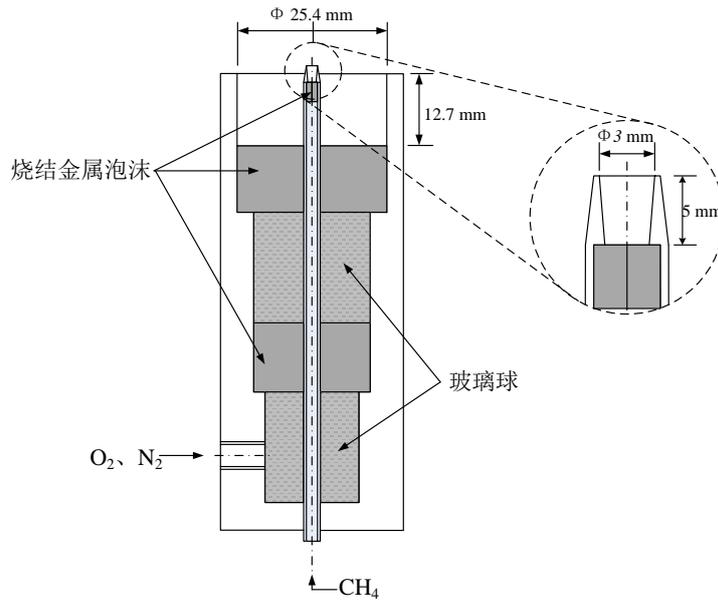


图 1 同轴射流扩散火焰燃烧器示意图

在所研究的压力范围内， CH_4 和空气的进口质量流量分别保持在 0.55 mg/s 和 0.4 g/s，温度为 300 K。由于燃料和氧化剂出口速度都很低，随着压力的提高，燃料出口速度和雷诺数会进一步降低。因此，火焰在所研究的压力范围内均处于层流状态。

1.1 计算区域、网格和边界条件

对于本文研究的同轴射流燃烧器，其二维计算区域如图 2 所示。计算区域沿径向长度为 12.7 mm，沿轴向长度为 25 mm。与 Charest 等人^[18,19]采用的方法相同，本文的计算区域向燃料出口上游延伸 5 mm，将燃料管和外套管包含在计算区域内，这样可以考虑到燃料的预热效应并且得出较合理的燃料出口速度分布。燃烧器上方的玻璃管内壁作为计算边界，燃烧器燃料管出口用一个简化的几何形状来进行模拟，其管壁厚度为 0.5 mm。

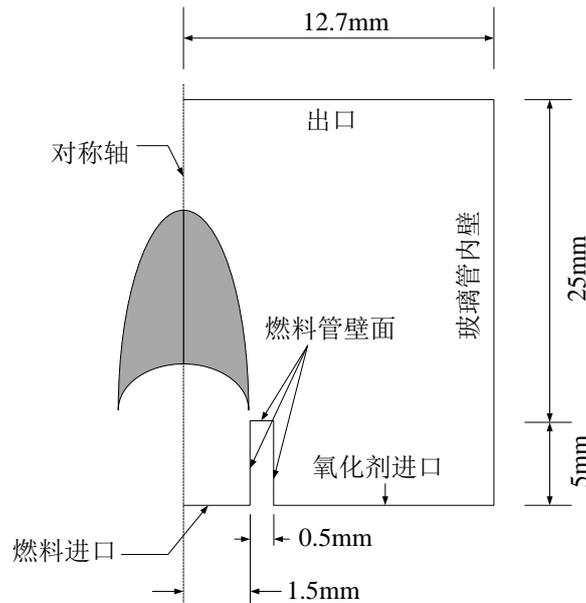


图 2 计算模型示意图

计算区域同时采用了结构化的均匀网格和非均匀网格。在 $r=0$ 和 $r=1.5$ mm 之间的径向方向上均匀分布 40 个网格点，即网格长度固定为 0.0375 mm；0.5 mm 厚的管壁上均匀分布 10 个网格点，即网格长度固定为 0.05 mm；在 $r=2$ 和 $r=12.7$ mm 之间的径向方向上网格逐渐变粗，该区间上分布了 50 个网格点；在 $z=-5$ 至 $z=0$ mm 的轴向方向上，均匀分布了 50 个网格点，即网格长度固定为 0.1 mm；燃烧器燃料管出口 $z=0$ 至下游 $z=10$ mm 的轴向方向上，均匀分布了 150 个网格点，即网格长度固定为 0.067 mm；从 $z=10$ 到下游 $z=25$ mm 网格逐渐变粗，该区间上分布了 150 个网格点。整个计算区域共计 35000 个网格，若对网格进行进一步加密，计算结果变化不大，因此在所有的计算中都采用了此网格。

燃料进口和氧化剂进口的边界条件均设为质量入口，计算区域的右边界同样设置为对流换热壁面边界条件，而左边界设为对称轴，上边界设置为出流边界条件。Joo 等人^[6-13]的在实验过程中测量得出的燃料管出口处的壁面温度与环境的温度差可达 100 K，而且热传导随着压力的提高而增强，他们认为火焰与管壁的热传导对火焰温度以及碳烟浓度具有重要的影响作用。本文采用等温壁面作为燃料管壁面的边界条件，具体的做法是将燃料管壁面温度设置为 400 K。

1.2 Moss-Brookes 模型的修正

在半经验碳烟模型中常常需要对各速率参数进行调整，以使模拟结果与实验更加符合。例如，Moss 等人^[21]利用 Moss-Brookes 模型模拟煤油燃烧的碳烟形成时，通过增加碳烟前体物和将氧化速率系数设置为 1，得到了与实验符合较好的结果。Pang 等人^[22]在模拟发动机中的碳烟形成时则调整了活化温度，并将氧化速率系数设置为 5。本文研究的是 CH_4 /空气高压燃烧时的碳烟形成，Fluent 中的 Moss-Brookes 模型采用的默认参数来自于 Brookes 和 Moss^[23]的研究，这些参数是根据 3 atm 范围以内的实验结果拟合得出的，并不适用于本文研究的高压工况。Liu 等人^[17]研究的正是 CH_4 /空气高压燃烧时的碳烟形成，其采用的半经验模型参数得出的结果与实验结果较吻合，Charest^[19]和 Cuoci^[24]等人都曾采用过 Liu 提出的参数。对于成核速率，本文采用 Liu 提出的活化温度以及成核速率常数，对于表面生长速率则需做进一步修正。Fluent 碳烟氧化模型中 OH 的氧化速率常数取自 Fenimore 和 Jones^[25]， O_2 的氧化速率常数取自 Lee^[26]。Liu 和 Charest 采用的 OH 氧化参数与 Fluent 一致，而 O_2 的氧化参数取自 Nagle 和 Strickland^[27]。由于 Fluent 中没有提供 Nagle-Strickland 模型，因此采用 Lee 模型加以代替。最后计算时 Fluent 采用的参数详见表 1。

表 1 碳烟成核、聚合、表面生长和氧化反应的参数

成核参数	聚合参数	表面生长参数	OH 的氧化参数	O_2 的氧化参数
$M_p=8400$	$C_p=1$	$C_y=2500$		$C_{oxd}=1$
$C_a=2.857$	$\rho_{soot}=1900$	$T_y=10064$	$C_{\omega,1}=105.8125$	$C_{\omega,2}=8903.51$
$T_a=16103$			$\eta_{coll}=0.2$	$T_{\omega,2}=19778$

1.3 辐射模型

本文采用 Barlow 等人^[28]提出的基于光学薄假设的辐射模型来考虑气体辐射，但需要对平均普朗克吸收系数进行相应的修改。此时除了考虑 CH_4 、 CO 、 CO_2 和 H_2O 的辐射损失外，还需加入碳烟辐射损失。这些组分的辐射损失作为源项，通过编写 UDF 添加到能量方程中。辐射损失的计算公式如下式所示：

$$a = a_{f_v,soot} f_v + \sum_i P_i a_{P_i} \quad (1)$$

其中，

$a_{f_v,soot}$ ：碳烟的平均普朗克吸收系数，采用下式进行计算^[29]，

$$a_{f_v,soot} = 1232.4 \rho_{soot} \left[1 + 0.00048(T - 2000) \right] \quad (2)$$

f_v ：碳烟体积分数

σ ：斯特潘-玻尔兹曼常数， $\sigma = 5.669 \times 10^{-8} \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K}^4)$

T ：火焰温度，K

T_b : 环境温度, K

P_i : 组分 i 的分压, atm

a_{P_i} : 组分 i 的平均普朗克吸收系数, 其值为温度的函数。

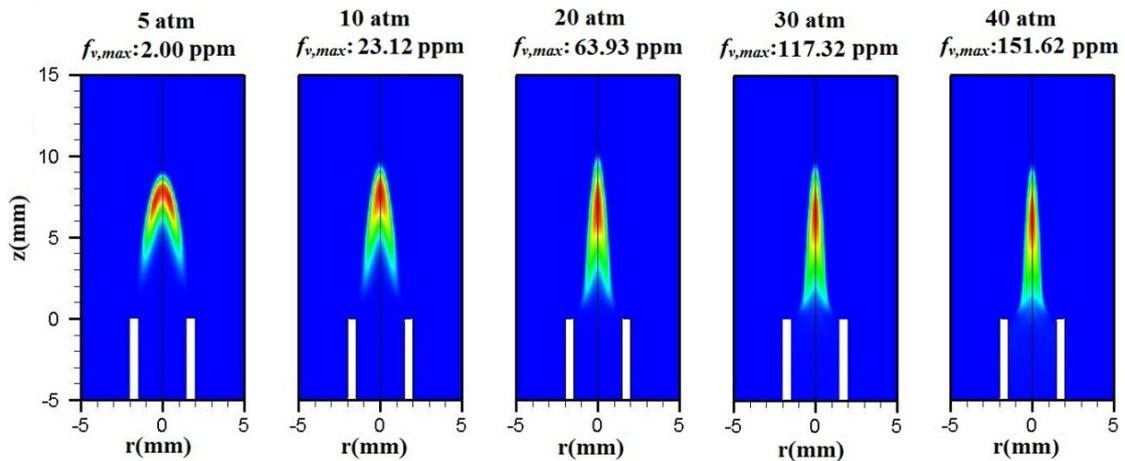
1.4 化学反应机理

本文采用 Lu Tianfeng^[30]简化出的基于 GRI3.0 的骨干反应机理来对化学反应进行模拟。该机理由去掉了 C_3H_8 、 C_3H_7 、 C_2H 、 CH_3CHO 以及 $HCCOH$ 以及除了 N_2 外的所有含氮组分, 包含 30 种组分、184 个可逆基元反应。由于的模拟对象为层流扩散火焰, 因此选择层流有限速率模型来对化学反应进行模拟。

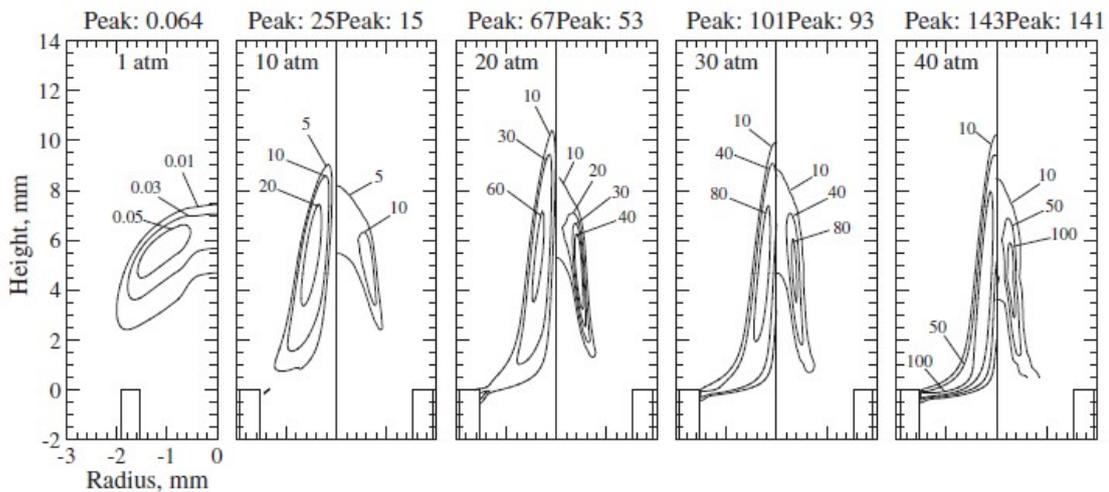
2 结果与讨论

2.1 碳烟体积分数

图 3(a)给出的是模型预测的碳烟体积分数分布云图, 图 3(b)则是 Charest^[19]的模拟结果以及 Joo^[9]的实验结果。可以看出碳烟的形成区域会随着压力的提高而逐渐向轴线靠拢。如果根据碳烟体积分数的轮廓来判断火焰长度, 则本文修正后的模型预测的火焰平均长度约为 10 mm, 在 5~20 atm 范围内火焰长度随着压力的提高而变长, 超过 20 atm 后火焰长度开始降低。从图 3(b)可以看出 Charest 预测的火焰长度约为 11 mm, Joo 的实验结果显示火焰长度约为 9 mm。



(a)



(b)

图 3 模型预测以及实验测量的碳烟体积分数分布。(a)本文模型预测结果, (b)取自文献[19], 为 Charest^[19]的模拟结果 (左) 以及 Joo^[9]的实验结果 (右)

虽然修正后的 Moss-Brookes 模型都能够较准确的预测碳烟体积分数的最大值, 整个碳烟的形成区域也与 Joo^[9]的实验测量结果比较接近, 而且还能够准确预测碳烟的形成区域随着压力的提高而向燃料管出口移动的趋势。但对比图 3(a)和(b)还是能够发现本文预测结果与实验测量结果存在一些较大的区别。

本文预测的碳烟主要集中在火焰顶部居中位置, 而 Joo^[9]的实验测量结果显示碳烟围绕火焰轴线成明显的环状分布。也就是说, 实验测量出的碳烟体积分数在火焰中部以上的截面中也还应存在比较明显的双峰分布, 而本文预测出的碳烟体积分数在火焰中部以上后基本为单峰分布, 这一特点可以从图 4 中碳烟体积分数在不同高度处的径向分布更直观的表现出来。从图 4(a)中可以看出在 10 atm 范围内, 模型还是能够较准确预测碳烟体积分数在火焰底部和中部位置成双峰分布, 而且波峰位置与实验测量出的波峰位置也比较接近, 只是模型预测的峰值稍微偏小, 而在靠近火焰轴线处的碳烟体积分数普遍偏高; 模型预测出的碳烟体积分数在火焰中部以上还在继续增大, 其最大值出现在火焰顶部附近, 而实验测量结果显示最大值在火焰中部附近。当压力进一步提高到 20 atm 以上时, 情况并没有得到改善, 此时火焰底部及中部的碳烟体积分数峰值仍然比实验测量值稍微偏低, 火焰轴线处存在更多的碳烟, 而且此时模型预测的碳烟体积分数在火焰中部位置已接近于单峰分布, 这与实验值差别更大。随着压力的提高, 峰值位置向轴线处移动, 这与实验测量结果是一致的。尽管 Liu^[17]和 Charest^[19]的模型预测出的碳烟体积分数同样存在比实验值偏高的问题, 但他们能预测出碳烟的形成区域呈环状分布, 这与实验更加吻合。本文的模型而前两者的差异在于 O₂ 氧化模型采用了 Lee 模型^[26], 这可能是造成上述现象的原因。

值得注意的是, Charest^[19]的模型中燃料管管壁采用绝热壁面条件, 压力达到 20 atm 后燃料管中也开始出现碳烟, 进一步提高压力, 燃料管中的碳烟体积分数持续增大。这个现象在 Joo^[9]的实验以及 Liu^[17]的数值计算结果中是不曾出现的。由于 Liu 和本文的模型中均在燃料管处采用等温壁面的边界条件, 因此可以确定绝热壁面条件是造成这一现象的主要原因, 由此也验证了火焰与管壁辐射换热对火焰温度以及碳烟形成的重要影响。

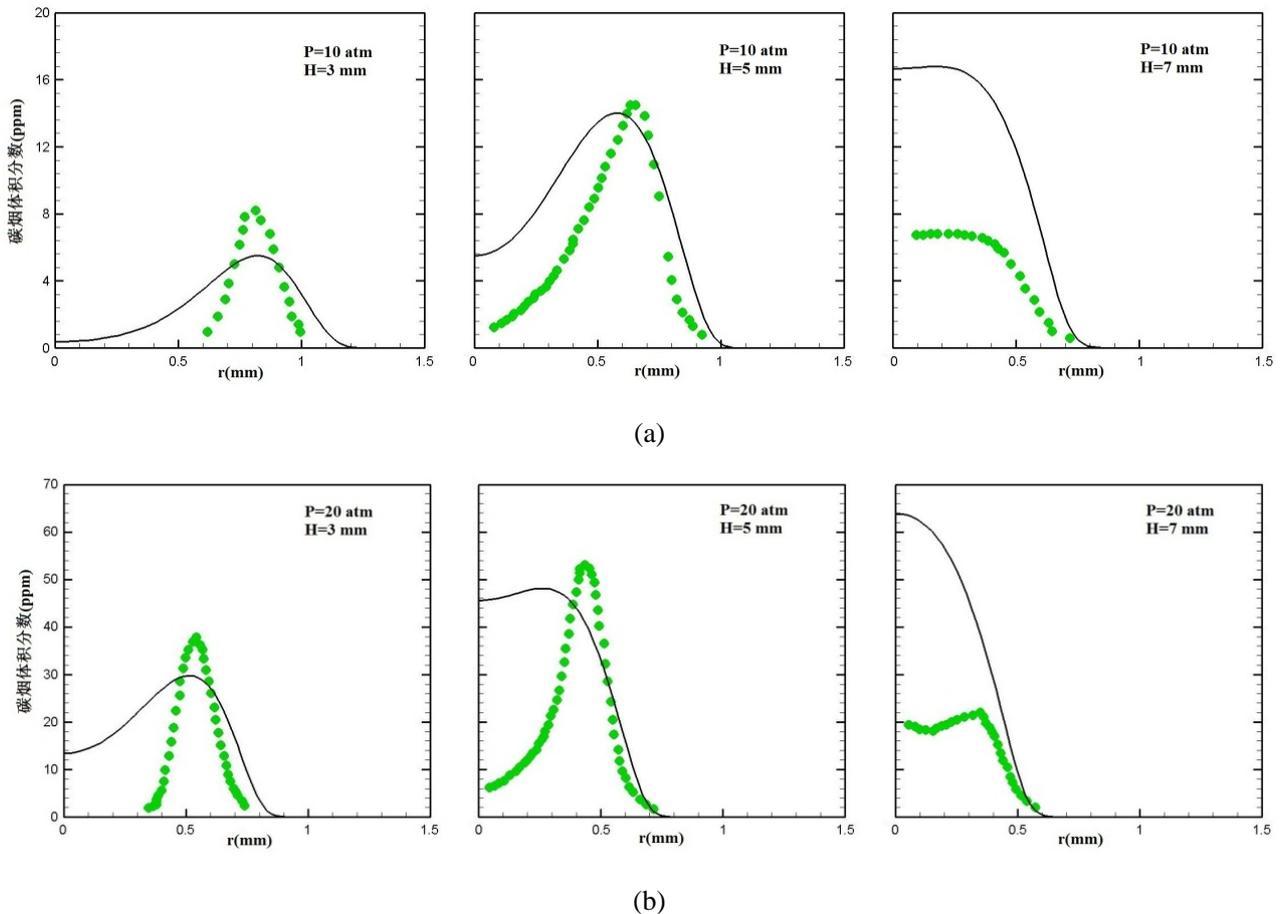


图 4 模型预测与实验测量的碳烟体积分数的径向分布。实线为模型预测结果, 实心圆点为 Joo^[9]的实验测量结果

从碳烟的平均直径 d_p 沿火焰高度的变化也能看出模型预测的碳烟体积分数分布特点, 如图 5 所示。在 5~10 atm 范围内, d_p 随着压力的提高而快速增大, 这是由于提高压力使火焰中的碳烟体积分数增大。对于 5 atm 和 10 atm 两种环境压力, 最大 d_p 值对应的火焰高度分别约为 8.5 mm、9 mm, 而火焰总长度在 10 mm 左右, 这说明模型预测出的碳烟主要集中在了火焰的顶部。20~40 atm 范围内的最大碳烟直径基本上与 10 atm 时相同, 说明此时压力对碳烟的影响作用减小了。然而此时 d_p 沿火焰高度的变化规律发生了很大的改变。对于 20 atm, 最大 d_p 值对应的火焰高度约为 9.5 mm, 但 d_p 在 7~9.5 mm 的火焰高度之间变化非常缓慢, 说明此时碳烟集中的区域已经开始向燃料管出口延伸。30 atm 时, d_p 已经不存在明显的峰值, 此时 d_p 在 3~6 mm 的火焰高度区间几乎不变, 6 mm 之后 d_p 开始减小。40 atm 时, d_p 在 2.5 mm 处达到了最大值, 而后开始缓慢减小。碳烟的平均直径在 20~40 atm 范围内的变化规律说明压力的提高使碳烟集中区域从火焰的顶部一直延伸到了靠近燃料管出口的火焰底部。

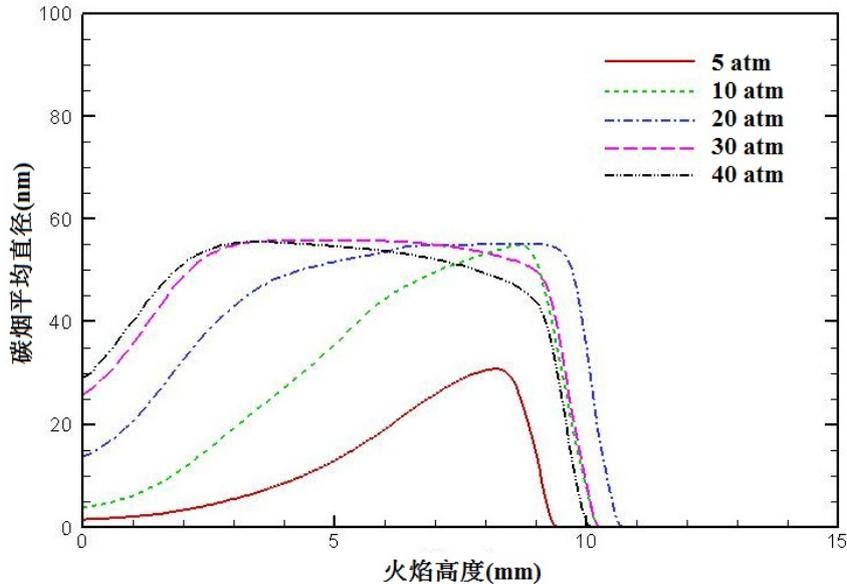


图 5 碳烟平均直径沿火焰高度的变化

2.2 碳的转化率

采用碳的转化率来研究碳烟生成特性与压力的关系, 碳的转化率定义为燃料中所有的碳转化为火焰中的碳烟的百分比^[9]。火焰中不同高度处的碳烟流量可用下式进行计算:

$$\dot{m}_{soot}(z) = 2\pi\rho_{soot} \int f_v(r, z) v_z(z) r dr \quad (3)$$

其中,

$f_v(r, z)$: 火焰在高度 z 处的碳烟体积分数

$v_z(z)$: z 处的火焰轴线速度

在 Thomson^[6]和 Joo^[9]的实验中 $v_z(z)$ 都采用经验公式来近似, 即 $v_z(z) = \sqrt{2az}$, a 为火焰加速度, 取为 25 m/s^2 。本文采用模型计算出的轴线速度来对 $v_z(z)$ 赋值, 这样更能保证速度的准确性。于是, 碳转化率便可定义为:

$$\eta_s = \frac{\dot{m}_{soot}}{\dot{m}_c} \quad (4)$$

其中, \dot{m}_c 为燃料管出口处碳的质量流量, 对于本文 CH_4 质量流量恒为 0.55 mg/s , 则燃料管出口处碳的质量流量为 0.4125 mg/s 。

图 6 给出了不同压力下碳的转化率随火焰高度的变化规律。可以看出随着压力的提高, 燃料中的碳开始转化为碳烟的起始位置向燃料管出口延伸。压力大于 30 atm 后, CH_4 刚离开管口便有一部分开始转变为碳烟。表面生长使碳的转化率随着火焰高度的增加而逐渐增大, 而且这一增长速度随着压力的提高而加快。

这说明压力的提高使成核速率以及表面生长速率都有所增大。转化率在火焰的某一高度处达到极大值，然后碳烟在 OH 和 O₂ 的氧化作用下被转化为 CO，于是转化率开始快速降低直至完全被氧化。图中不同压力下的最大转化率对应的火焰高度依次约为 6.5 mm、6.0 mm、5.5 mm、5 mm 和 4.5 mm，这说明随着压力的提高，碳烟的氧化速度逐渐增大，于是转化率在较低火焰高度处便已经出现拐点。需要说明的是模型预测碳的转化率极大值在火焰中部附近，而碳烟体积分数极大值在火焰顶部附近出现，这从侧面说明只根据碳烟体积分数来判断碳烟的形成是不科学的。

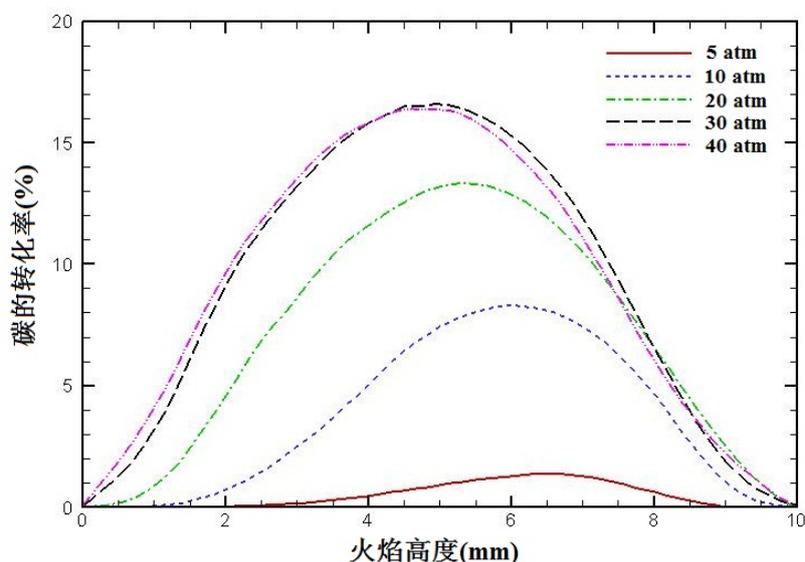


图 6 碳的转化率随火焰高度的变化规律

为了更进一步研究压力对碳烟形成速率的影响规律，可分析不同压力下成核速率、表面生长速率以及氧化速率沿火焰轴线的分布，如图 7 所示。对比不同压力下各个速率曲线的变化规律，可以发现：提高压力确实使成核速率、表面生长速率以及氧化速率增大，而且碳烟成核、生长和氧化的范围扩大。这是由于提高压力使火焰截面减小、组分浓度梯度增大。此外，提到提高压力使火焰的卷吸能力也有所增强^[19]。这都使化学反应速率加快，从而造成碳烟体积分数随着压力的提高而逐渐增大。注意到 40 atm 时的氧化速率比 30 atm 时要小一些，这可能是因为火焰温度降低了的原因。

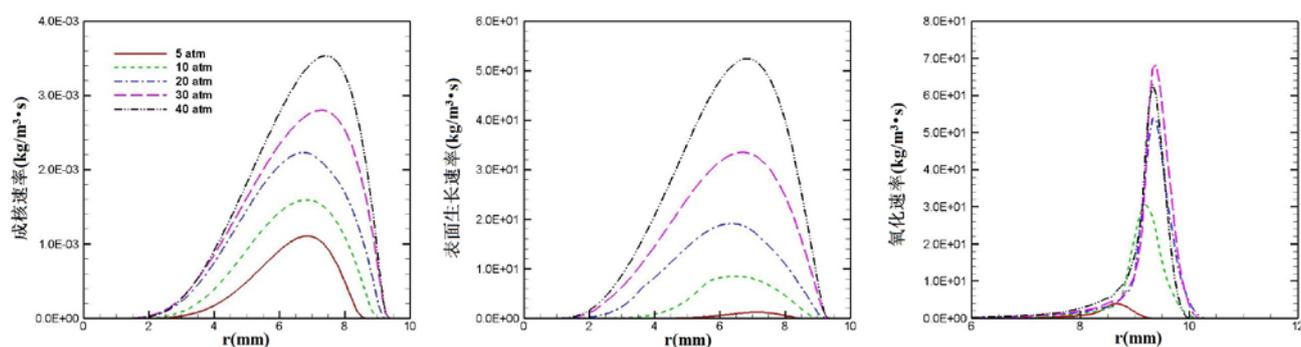


图 7 压力对碳烟在火焰轴线处的成核、表面生长以及氧化速率的影响

取图 7 中的碳转化率的极大值来研究其与压力的关系，如图 8 所示，图中还给出了 Thomson^[6]和 Joo^[9]的实验结果。从图中可以看出修正后的 Moss-Brookes 模型能够准确的预测碳转化率的变化趋势，但模型预测的最大碳转化率要比实验值大。若将最大碳转化率表示成压力的指数函数形式，即 $\eta_{s,max} \propto P^n$ ，则从图中拟合直线的斜率可以看出这种指数关系随着压力提高而逐渐减弱。在 5~20 atm 范围内，最大碳转化率随着压力的提高而迅速增大，即 $\eta_{s,max} \propto P^{1.68}$ ，这与 Charest^[19]的数值计算结果是一致的，但 Thomson 和

Joo 的实验显示 $\eta_{s,max} \propto P^{1.0}$ 。压力大于 20 atm 时，模型预测的 $\eta_{s,max}$ 与压力的关系与 Joo 的实验结果一致，即 $\eta_{s,max} \propto P^{0.33}$ 。而 Thomson 的实验结果仅为 $\eta_{s,max} \propto P^{0.1}$ ，这是由于其质量流量计在压力超过 20 atm 后 CH_4 流量减小。值得指出的是，Thomson 和 Joo 的实验中均采用经验公式来近似计算火焰轴线速度 $v_z(z)$ ，这样会导致计算出的碳转化率偏小。

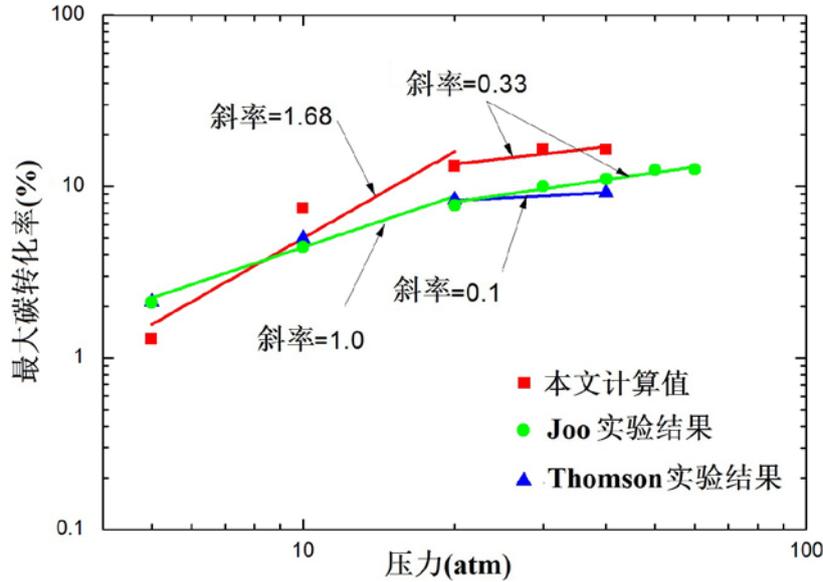


图 8 最大碳转化率与压力的关系。实线为拟合结果，■代表本文计算结果，●代表 Joo^[9]的实验结果，▲代表 Thomson^[6]的实验结果

2.3 火焰温度

为了研究碳烟对火焰温度的影响，本文对考虑碳烟和忽略碳烟两种情况都进行了计算，结果如图 9 所示。由于 5 atm 时的碳烟含量还很小，两者的温度分布几乎没有什么区别。但是当压力提高到 10 atm 后，考虑碳烟之后的火焰温度比仅考虑气体辐射时低，而且随着压力的提高，温度差越来越大，在 40 atm 时两者的温差已经达到了 33 K。此外，两者火焰最高温度随着压力的变化规律也有所不同，考虑碳烟使火焰最高温度在压力超过 20 atm 后就开始降低，而忽略碳烟时该压力为 30 atm。注意到考虑了碳烟的作用之后，随着压力的提高，火焰最高温度向燃料管出口移动，这个现象在仅考虑气体辐射作用时是不存在的。这些都说明在高压条件下的碳烟辐射损失非常重要，忽略其作用将带来较大误差。

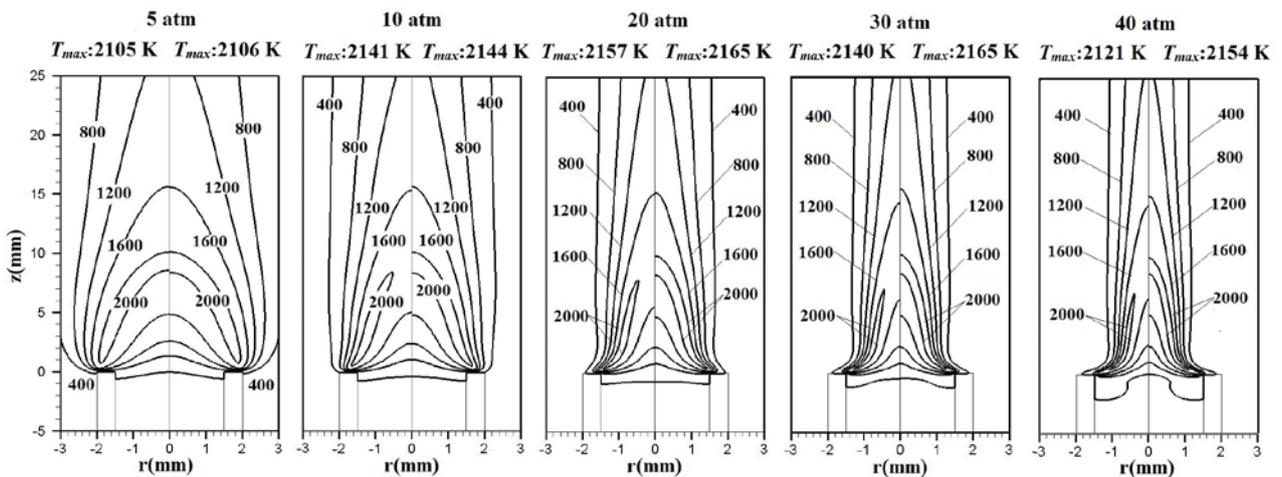


图 9 压力对火焰温度分布的影响。左边为考虑碳烟时得到的计算结果，右边为忽略碳烟时的结果

图 10 为考虑了碳烟之后火焰温度沿径向的分布，图中同时还给出了 Joo^[9]的实验测量结果。Joo 通过火焰发射光谱(SSE)的方法测量火焰温度与碳烟浓度，该方法只能测量火焰中碳烟浓度较大区域处的温度，

因此图中只能给出一部分的火焰温度值。可以看出，随着压力的提高，火焰温度分布向轴线靠拢。实验测量结果显示，同一火焰高度处的火焰温度随着压力的提高而逐渐降低。尽管模型预测出一样的变化规律，但这种降低的趋势并不十分明显。模型预测的温度分布和实验测量结果在 2 mm 和 5 mm 火焰高度处吻合较好，但预测出的温度峰值偏高。而在 8 mm 火焰高度处，虽然预测出的温度峰值与实验吻合得非常好，但峰值所对应的径向位置偏差较大。在靠近轴线时，模型预测的火焰温度普遍比实验测量结果偏小，这是由于模型预测出的碳烟主要集中在了火焰轴线处，而实验测量结果显示碳烟具有明显的环状分布特点，轴线处过多的碳烟辐射损失造成了火焰轴线附近的温度值偏小。此外，随着火焰高度的增加，模型预测的火焰温度峰值逐渐降低，这与实验测量结果刚好相反。从上述模型预测结果与实验结果的对比可以看出，虽然模型预测的火焰温度能在一定程度上与实验测量结果吻合得较好，但是还存在着很多区别，这说明该碳烟模型还存在着一定的误差。

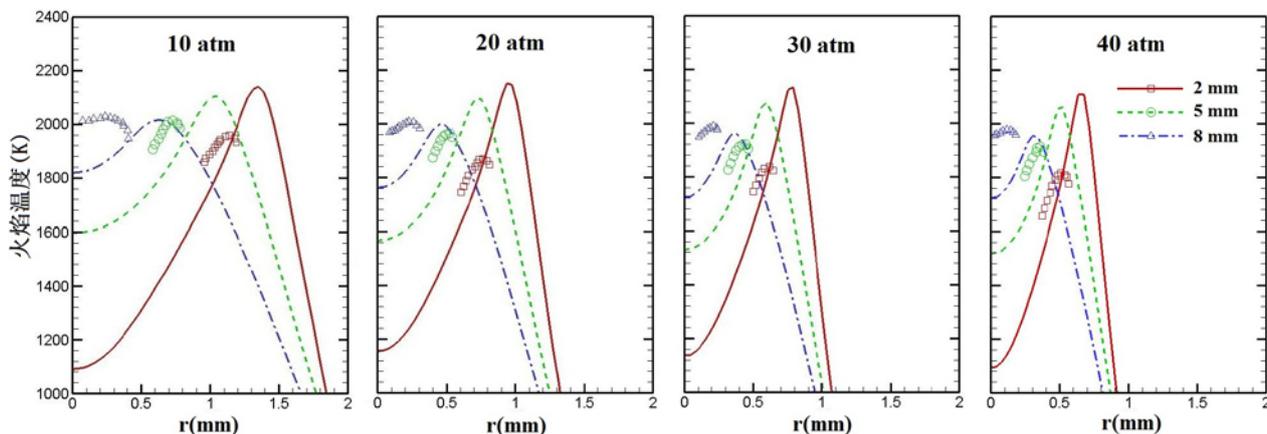


图 10 火焰温度沿径向的分布。曲线为模型预测值，□、○和△为 Joo^[9]的实验测量值

2.4 组分摩尔分数

图 11 为不同压力下的 CH₄ 摩尔分数分布，可以看出模型中考虑碳烟与否对于 CH₄ 的摩尔分数分布影响非常小。压力的提高使得 CH₄ 的消耗速度稍微加快，尽管这种效果并不是非常明显。注意到，压力的提高还会使燃料管中的 CH₄ 热解速度加快。这是由于较多的碳烟集中在火焰底部，碳烟与燃料管内的气体辐射换热加强，造成燃料管中的温度升高。

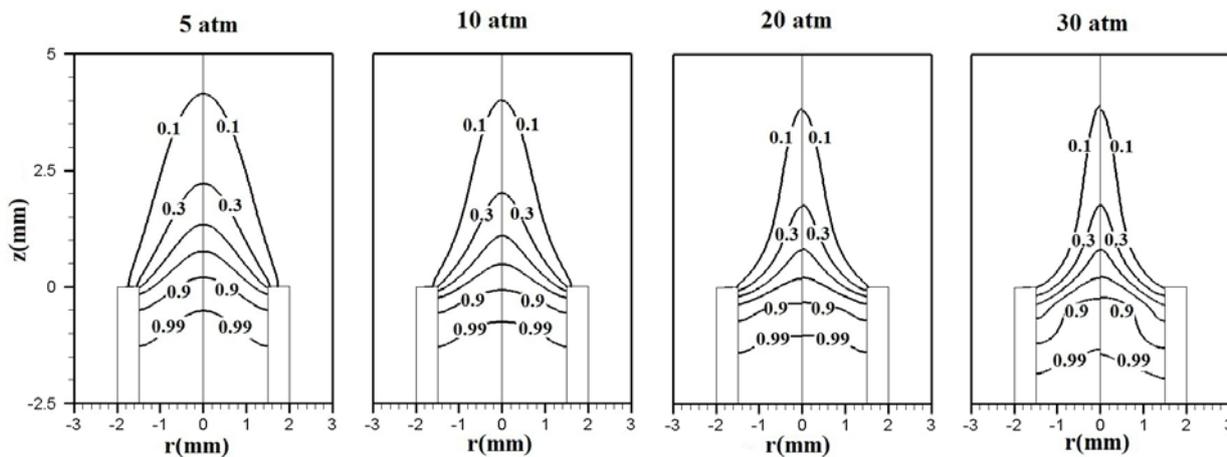


图 11 压力对 CH₄ 摩尔分数分布的影响。左边为考虑碳烟时得到的计算结果，右边忽略碳烟时的结果

相对于 CH₄ 而言，考虑碳烟与否对于 C₂H₂ 的摩尔分数分布影响更大，如图 3-10 所示。在 5 atm 时，C₂H₂ 的摩尔分数分布几乎没有区别。但到了 10 atm 后，碳烟的影响作用开始显现。此时考虑碳烟的形成会造成 C₂H₂ 摩尔分数的减小，这是因为碳烟的形成需要消耗一部分 C₂H₂，而且随着压力的提高，碳烟形成量增大，对 C₂H₂ 的消耗越来越多。因此压力越高，C₂H₂ 的摩尔分数也越小，并且 C₂H₂ 的摩尔分数的最大

值逐渐向火焰底部靠近。另外，考虑碳烟时会造成 C_2H_2 的消耗速度减慢。这一方面是考虑碳烟时火焰温度更低；另一方面可能是 C_2H_2 转化为碳烟的速率比其他消耗 C_2H_2 的气相基元反应速率慢，在与其他基元反应竞争时需要消耗更多的时间来完成化学反应。

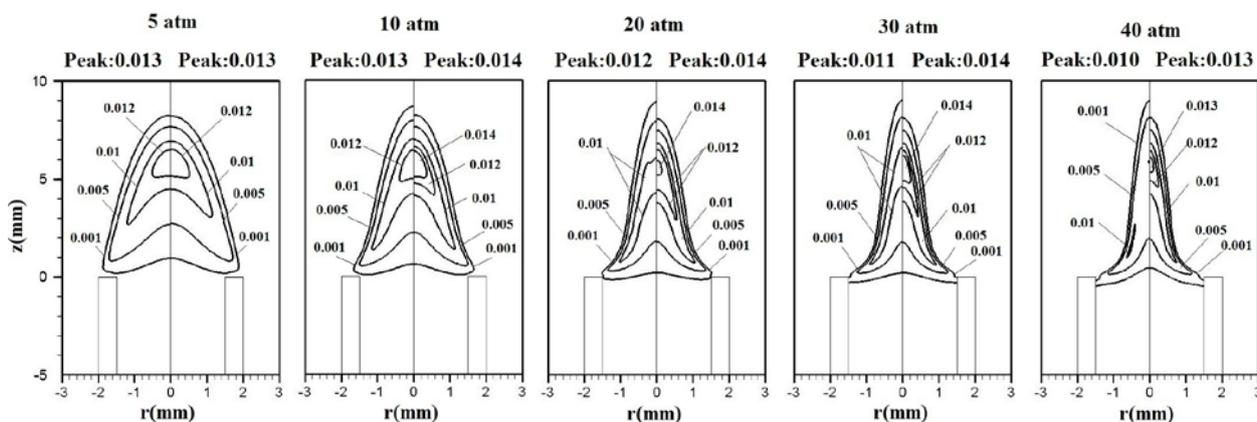


图 12 压力对 C_2H_2 摩尔分数分布的影响。左边为考虑碳烟时得到的计算结果，右边忽略碳烟时的结果

2.5 火焰轮廓

采用混合物分数来考察高压下的火焰轮廓，图 13 给出了考虑碳烟和忽略碳烟两种情况下的化学当量混合物分数分布。忽略碳烟的形成时，在 1~10 atm 范围内，火焰长度随着压力的提高而有所增加，在 5 atm 前火焰长度变化较大。压力大于 10 atm 后火焰长度开始缓慢减小，但是幅值变化很小，可以认为火焰长度基本不受压力的影响。当模型中考虑碳烟的形成时，1~10 atm 的火焰轮廓几乎与忽略碳烟时的一样，但 10 atm 之后碳烟的作用开始变得明显。考虑碳烟的形成时，火焰高度一直到 20 atm 还在继续增大，之后才开始逐渐降低。在考虑碳烟的情况下，20 atm 时的火焰长度将比忽略碳烟时长 1 mm。这也说明了当火焰中的碳烟含量较高时，会对火焰中其它气相组分的质量扩散率以及化学反应速率造成较大的影响。

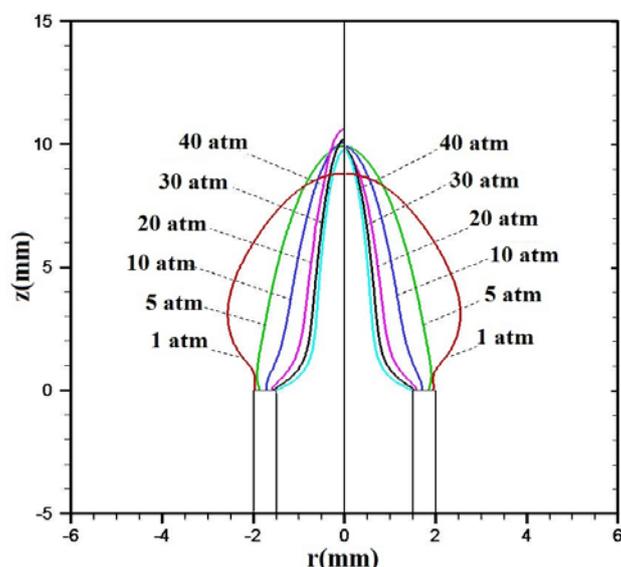


图 13 压力对火焰轮廓的影响。左边为考虑碳烟时得到的计算结果，右边忽略碳烟时的结果

3 结论

本文利用修正后的 Moss-Brookes 模型对 5~40 atm 范围内的 CH_4 /空气层流同轴射流扩散火焰进行了数值计算，计算分为考虑、忽略碳烟作用两种情况，目的是研究碳烟的形成对火焰造成的影响以及碳烟的形成与压力的关系。计算模型采用了基于 GRI 3.0 的骨干反应机理，该机理包含 30 种组分和 184 个可逆基元

反应,同时模型还考虑了 CH_4 、 H_2O 、 CO_2 、 CO 以及碳烟的辐射损失。尽管模型计算出的一些结果与实验测量结果存在着比较大的误差,但修正后的 Moss-Brookes 模型还是能够准确预测火焰中碳烟形成的总体特性以及压力对碳烟形成的影响规律。计算得出以下结论:

- (1) 环境压力对碳烟的形成具有重大的影响,碳烟体积分数随着压力的提高而增大。压力的提高使成核速率、表面生长速率以及氧化速率都有所增大。通过对燃料中的碳转化为碳烟的百分比进行分析,发现最大碳转化率与压力成指数关系,这种关系随着压力的提高而逐渐减弱。在 $5\sim 20\text{ atm}$ 范围内, $\eta_{s,max} \propto P^{1.68}$; 压力大于 20 atm 时, $\eta_{s,max} \propto P^{0.33}$ 。
- (2) 碳烟辐射损失对火焰的温度和组分分布具有很大的影响作用。考虑碳烟的形成之后的火焰温度比仅考虑气体辐射时低, C_2H_2 摩尔分数减小而且消耗速度减慢,同时火焰高度也有所增加。

参考文献

- 1 卢晶. 轴对称层流扩散火焰温度和烟黑体积浓度检测方法研究.[博士论文].武汉: 华中科技大学, 2009 (Lu Jing. Study on Measuring Method of Temperature and Soot Volume Fraction in Laminar Co-Flow Axisymmetric Diffusion Flames. [PhD Thesis]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology,2009 (in Chinese))
- 2 Shurupov S V. Some factors that govern particulate carbon formation during pyrolysis of hydrocarbons. Proceedings of the Combustion Institute, 2000, 28:2507-2514
- 3 Miller I M, Maahs H G. High-pressure flame system for pollution studies with results for methane-air diffusion flames, TND-8407, NASA 1977
- 4 Flower W L, Bowman C T. Short Communication. Combustion Science and Technology, 1984, 37:93-97
- 5 Flower W L, Bowman C T. Soot production in axisymmetric laminar diffusion flames at pressures from one to ten atmospheres. Symposium (International) on Combustion, 1988, 21(1):1115-1124
- 6 Thomson K A, Gülder O L, Weckman E J, Fraser R A, Smallwood G J, Snelling D R. Soot concentration and temperature measurements in co-annular, non-premixed CH_4 /air laminar flames at pressures up to 4 MPa. Combustion and Flame, 2005, 140:222-232
- 7 Thomson K A, Snelling D R, Smallwood G J, Liu F. Laser induced incandescence measurements of soot volume fraction and effective particle size in a laminar co-annular non-premixed methane/air flame at pressures between 0.5-4.0 MPa. Appl. Phys. B, 2006, 83:469-475
- 8 Bento D S, Thomson K A, Gülder O L. Soot formation and temperature field structure in laminar propane-air diffusion flames at elevated pressures. Combustion and Flame, 2006, 145:765-78
- 9 Joo H I, Gülder O L. Soot formation and temperature field structure in co-flow laminar methane-air diffusion flames at pressures from 10 to 60 atm. Proceedings of the Combustion Institute, 2009, 32:769-775
- 10 Joo H I, Gülder O L. Soot formation and temperature structure in small methane-oxygen diffusion flames at subcritical and supercritical pressures. Combustion and Flame, 2010, 157: 1194-1201
- 11 Mandatori P M, Gülder O L. Soot formation in laminar ethane diffusion flames at pressures from 0.2 to 3.3 MPa. Proceedings of the Combustion Institute, 2011, 33:577-584
- 12 Joo H I, Gülder O L. Experimental study of soot and temperature field structure of laminar co-flow ethylene-air diffusion flames with nitrogen dilution at elevated pressures. Combustion and Flame, 2011, 158:416-422
- 13 Karatas A E, Gülder O L. Soot formation in high pressure laminar diffusion flames. Progress in Energy and Combustion Science, 2012, 38:818-845
- 14 Darabkhani H G, Bassi J, Huang H W, Zhang Y. Fuel effects on diffusion flames at elevated pressures. Fuel, 2009, 88:264-271
- 15 艾育华. 基于辐射成像的扩散火焰温度和烟黑浓度分布研究.[博士论文].武汉: 华中科技大学, 2006 (Ai Yuhua. Study on Profiles of the Temperature and Soot Concentration by the Radiative Imaging. [PhD Thesis]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology,2006 (in Chinese))
- 16 Frenklach M, Wang H. Detailed Mechanism and Modeling of Soot Particle Formation. Soot formation in combustion: mechanisms and models. Berlin: Springer, 1994.59: 162-190
- 17 Liu F, Thomson K A, Guo H, Smallwood G J. Numerical and experimental study of an axisymmetric co-flow laminar methane-air diffusion flame at pressures between 5 and 40 atmospheres. Combustion and Flame, 2006, 146:456-71
- 18 Charest M R J, Joo H I, Gülder O L, Groth C P T. Experimental and numerical study of soot formation in laminar ethylene diffusion flames at elevated pressures from 10 to 35 atm. Proceedings of the Combustion Institute, 2011, 33:549-557

- 19 Charest M R J, Groth C P T and Gülder O L. Effects of gravity and pressure on laminar coflow methane-air diffusion flames at pressures from 1 to 60 atmospheres. *Combustion and Flame*, 2011, 158:860-875
- 20 Smith G P, Golden D M, Frenklach M, Moriarty N W, Eiteneer B, Goldenberg M, Bowman C T, Hanson R K, Song S, Gardiner W C, Lissianski J V and Qin Z W. http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/
- 21 Moss J B, Perera S A L, Stewart C D, Makida M. Radiation Heat Transfer in Gas Turbine Combustors [C]. In Proceedings 16th International Symposium on Air Breathing Engines, Cleveland, OH, 2003
- 22 Pang K M, Ng H K, Gan S Y. Simulation of temporal and spatial soot evolution in an automotive diesel engine using the Moss-Brookes soot model. *Energy Conversion and Management*, 2012, 58:171-184
- 23 Brookes S J, Moss B. Prediction of Soot and Thermal Radiation in Confined Turbulent Jet Diffusion Flames. *Combustion and Flame*, 1999, 116:486-503.
- 24 Cuoci A, Frassoldati A, Faravelli TE, Ranzi L. Kinetic Modeling of Soot Formation in Turbulent Non-premixed Flames. *Environmental Engineering Science*, 2008, 25(10):1407-1422
- 25 Fenimore C P, Jones G W. Oxidation of soot by hydroxyl radicals. *J. Phys. Chem.*, 1967, 71: 593-597
- 26 Lee K B, Thring M W, Beer J M. On the rate of combustion of soot in a laminar soot flame. *Combustion and Flame*, 1962, 6:137-145
- 27 Nagle J, Strickland-Constable R F. Oxidation of carbon between 1000-2000°C. *Proceedings of the Fifth Conference on Carbon*, Pergamon Press, London, 1962:154-164
- 28 Barlow R S, Karpetis A N, Frank J H and Chen J Y. Scalar Profiles and NO Formation in Laminar Opposed-Flow Partially Premixed Methane/Air Flames. *Combustion and Flame*, 2001, 127:2102-2118
- 29 Sazhin S S, Sazhina E M. The effective-emissivity approximation for the thermal radiation transfer problem. *Fuel*, 1996, 75(14):1646-1654
- 30 Lu T F, Law C K. A criterion based on computational singular perturbation for the identification of quasi steady state species: A reduced mechanism for methane oxidation with NO chemistry. *Combustion and Flame*, 2008, 154 (4):761-774

Numerical Simulation of Soot Formation in Laminar Co-flow Methane/Air Diffusion Flames at Elevated Pressures¹⁾

Qin Jianguo, Wei Xiaolin²⁾, Guo Xiaofeng, Li Teng

(Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract: Numerical study of soot formation in laminar co-flow methane/air diffusion flames between 5 and 40 atmospheres was conducted with a modified Moss-Brookes soot model. Numerical model includes a skeletal mechanism derived from GRI 3.0. An optically thin radiation sub-model has been employed in the simulations to consider the thermal radiation absorption by species such as CH₄, CO₂, CO, H₂O and soot particles. Simulation results show that soot decreases the flame temperatures and acetylene mass fractions, while the flame lengths become a little longer. Nucleation, surface growth and oxidation rate of soot are increased with increasing pressure. Investigations on the percentage of total carbon in the fuel converted to soot are conducted. It is observed that power-law relationship between the maximum carbon conversion factor and pressure are weakened as pressure was increased.

Key words: Methane, High Pressure Combustion, Soot, Numerical Simulation

1) The project was supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51006115, 50976122 and 91130028)

2) E-mail: xlwei@imech.ac.cn