



CSTAM 2012-B03-0115

# 甲烷高压富氧燃烧层流扩散火焰的数值研究

覃建果，魏小林，郭啸峰，李腾，高佳佳

中国科学院力学研究所高温气体动力学国家重点实验室

第七届全国流体力学学术会议

2012年11月12—14日 广西·桂林

# 甲烷高压富氧燃烧层流扩散火焰的数值研究<sup>1)</sup>

覃建果, 魏小林<sup>2)</sup>, 郭啸峰, 李腾, 高佳佳

(中国科学院力学研究所, 北京海淀区 100190)

**摘要** 本文对 1-40 atm 压力范围内 CH<sub>4</sub> 富氧燃烧层流同轴射流扩散火焰进行了数值研究, 研究对象包含 3 种火焰: Flame 1 为 CH<sub>4</sub>/空气, Flame 2 为 CH<sub>4</sub>/70%N<sub>2</sub> 和 30%O<sub>2</sub>, Flame 3 为 CH<sub>4</sub>/70%CO<sub>2</sub> 和 30%O<sub>2</sub>, 其中氧化剂中的组分含量采用质量分数来表示。计算模型采用了基于 GRI 3.0 的骨干反应机理, 该机理包含 26 种组分和 163 个不可逆反应, 同时模型还考虑了 CH<sub>4</sub>、H<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub>、CO 的辐射换热损失。计算结果与文献中已有实验结果吻合良好, 能够准确预测高压富氧情况下的火焰温度、轮廓以及 NO 排放指数。相对于 Flame 1 这种常规 CH<sub>4</sub>/空气燃烧, Flame 2 和 3 两种富氧燃烧方式会使燃烧温度升高, 火焰长度变短。Flame 2 中 NO 的生成量大大增加, 绝大部分 NO 是通过热力型 NO 途径形成, NO 排放指数随压力的提高而增大。基元反应  $H+CO_2 \rightleftharpoons OH+CO$  使得 Flame 3 近燃烧器喷口处的 CO 浓度大大增加。提高压力, 火焰温度先升高后降低, 其中在 5 atm 前温度升高速率最快。当压力大于 30 atm 后, Flame 1 和 2 的温度开始降低。而对于 Flame 3, 温度降低所对应的压力约为 20 atm。随着压力的提高, 火焰半径逐渐变小, 火焰长度先增加后逐渐减小。提高环境压力促使火焰的卷吸能力增加, 使 CH<sub>4</sub> 的燃烧速率增大。

**关键词** 甲烷; 富氧燃烧; 高压燃烧; NO<sub>x</sub>; 骨干反应机理

## 引言

随着能源危机以及温室效应问题愈演愈烈, 提高燃烧效率和减少污染物排放成为研究热点, 富氧燃烧被认为是解决这一问题的最有发展前景的技术之一。与以空气作为氧化剂的常规燃烧相比, 富氧燃烧使用的氧化剂中氧气浓度高达 21-100%。氧化剂中惰性气体 N<sub>2</sub> 含量的减少使得火焰燃烧温度升高, 燃烧效率显著提高。常压下的富氧燃烧技术在工业上得到了较广泛的应用, 例如, 在玻璃制造行业, 利用纯氧燃烧代替常规空气燃烧不仅提高了产品质量和产量, 还能使燃料消耗量减少 15-50%, NO<sub>x</sub> 排放量减少 50-90%<sup>[1]</sup>。富氧燃烧技术被广泛应用于各种燃料, 例如煤<sup>[2,3]</sup>, 天然气<sup>[4]</sup>以及生物质燃料<sup>[5]</sup>。富氧燃烧除了能够提高热效率外, 还能提高火焰稳定性, 减少烟气体积。富氧燃烧对污染物排放的影响主要取决于氧化剂中的氧气浓度, 火焰温度提高会使热力型 NO<sub>x</sub> 生成量提高; 另一方面, 当富氧程度足够高时, 氧化剂中的 N<sub>2</sub> 含量很低则会使 NO<sub>x</sub> 生成量减

少。例如, 采用纯氧与烟气再循环的煤粉燃烧技术(即 O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 燃烧技术)理论上可以完全避免热力型 NO<sub>x</sub> 的形成, 使得烟气中的 NO<sub>x</sub> 主要来自于染料型 NO<sub>x</sub>, 从而使 NO<sub>x</sub> 排放大大减小, 同时最终排烟中 CO<sub>2</sub> 浓度高达 90%以上, 这样大大降低了 CO<sub>2</sub> 的分离成本。富氧燃烧技术还能够减小点火延迟以及预混燃烧周期, 因此其在燃气轮机、内燃机等高压条件下的应用也开始受到人们的关注, 但其对烟尘颗粒、CO、NO<sub>x</sub> 排放等可能有负面影响<sup>[6]</sup>。本文基于以上背景, 研究高压条件下的富氧燃烧对火焰结构以及污染物排放特性的影响。

以往对富氧燃烧的研究主要针对常压下的对冲扩散火焰, 数值计算采用的都是一维模型。Sung 和 Law<sup>[7]</sup>对 CH<sub>4</sub>/富氧空气对冲扩散火焰中 NO 生成机理进行了一维数值计算, 结果表明随着氧化剂中 O<sub>2</sub> 浓度的提高, 热力型 NO 成为主要的 NO 形成途径, 而快速型 NO 成为主要的 NO 还原途径。Beltrame 等人<sup>[8]</sup>对 CH<sub>4</sub>/富氧空气和 C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>/富氧空气对冲扩散火焰进行了实验和数值研究, 实验测量了火焰的 NO 和碳烟

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

2) Email: xlwei@imech.ac.cn

含量, 其计算模型采用包含 C6 机理的详细反应机理, 同时还包含辐射模型和碳烟模型, 实验和数值计算表明氧气浓度显著影响火焰结构以及火焰最高温度。Naik 和 Laurendeau 等人<sup>[9-11]</sup>利用激光诱导荧光技术测量了 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> 对冲扩散火焰中 NO 含量, 测量值与包含 C6 机理、辐射模型和碳烟模型的数值计算结果吻合良好。还有一些富氧燃烧的实验以及数值计算是在预混对冲或者部分预混对冲扩散火焰中进行的。例如, Qin 等人<sup>[12]</sup>进行的预混对冲实验以及数值计算表明富氧燃烧能拓展燃料的贫燃可燃极限, 使燃料能在更低的温度下稳定燃烧, 从而减少 NO<sub>x</sub> 生成量。

对富氧燃烧进行多维数值模拟的研究非常少。尽管此前已经有许多层流同轴射流扩散火焰的二维数值研究, 例如 Smooke<sup>[13]</sup>以及 Ju 和 Niioka<sup>[14]</sup>都曾对层流同轴射流扩散火焰中 NO<sub>x</sub> 特性进行过数值研究, 但是这些研究所使用的氧化剂都是空气而没有涉及到富氧的情况。根据 Bennett 等人<sup>[15]</sup>的调研, 气体燃料富氧同轴射流燃烧的研究全都仅限于实验。例如, Ditaranto 等人<sup>[16]</sup>研究过天然气的湍流富氧燃烧。Sunderland 等人<sup>[17]</sup>运用 CCD 相机研究了 C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> 富氧燃烧的火焰形态。Bennett 等人可能是首次采用详细反应机理 (GRI 2.11<sup>[18]</sup>和 GRI 3.0<sup>[19]</sup>) 对 CH<sub>4</sub>/富氧空气同轴射流扩散火焰进行多维数值研究的人, 其研究结果表明富氧燃烧使火焰温度升高, 火焰变短, NO 生成量大大增加并且绝大部分 NO 来源于热力型 NO, Bennett 等人的数值计算结果与实验测量值十分吻合。继 Bennett 等人的研究之后, Bhadraiah 和 Raghavan<sup>[20]</sup>也进行了 CH<sub>4</sub>/富氧空气同轴射流扩散火焰的二维数值研究, 与 Bennett 等人的研究相似, Bhadraiah 和 Raghavan 的计算模型考虑了 CH<sub>4</sub>、CO、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O 的辐射损失, 但采用的是基于 GRI 3.0 的骨干反应机理以及 2 步和 4 步总包反应机理, 他们根据计算结果的对比得出的结论是 2 步总包反应机理能够比较合理和经济的预测富氧燃烧, 但是该总包机理无法预测 NO 等污染物的排放。Bennett 和 Bhadraiah 等人的数值计算均没有考虑富氧燃烧中碳烟的影响, 除了他们的研究之外, 作者没

有在其他文献中找到其他关于富氧燃烧的多维数值模拟。

对于本文研究的高压富氧同轴射流扩散火焰的多维数值模拟, 作者还没有在文献中发现相关研究报道。此前已经有很多关于高压燃烧的实验以及数值计算研究, 例如 Miller 和 Maahs<sup>[21]</sup>进行了 CH<sub>4</sub>/空气的同轴射流燃烧实验, 研究了高压下 CH<sub>4</sub> 火焰形态以及 NO<sub>x</sub> 生成特性。Marc 和 Gülder 等人<sup>[22-29]</sup>主要通过实验和数值计算研究高压对碳烟的影响, 他们的数值计算采用的化学反应模型基于 GRI 3.0, 但是去掉了涉及到 NO<sub>x</sub> 形成的组分和基元反应 (除了 N<sub>2</sub>), 并加入了碳烟机理, 模型同时还考虑了主要气体产物和碳烟的辐射损失, 他们的研究结果表明碳烟含量随着压力的升高而增大。B. Higgins<sup>[30]</sup>等人研究了 CH<sub>4</sub>/空气贫燃料预混燃烧的 OH、CH 化学发光强度随当量比以及压力的变化规律。Yasuhisa Ichikawa<sup>[31]</sup>等人研究了合成气湍流预混高压燃烧的火焰结构以及辐射特性。这些高压燃烧研究所采用的氧化剂同样还是空气, 尽管 Gülder 等人也进行过 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> 的高压燃烧实验<sup>[29]</sup>, 但是并没有与之相对应的数值计算。

从上述的文献调研可以看出, 高压富氧燃烧偏向于实验, 缺少相应的多维数值研究。因此, 进行高压富氧燃烧多维数值模拟, 研究高压富氧对火焰结构以及 NO、CO 等污染物排放特性的影响具有重要的意义。

## 1 数值计算模型

### 1.1 问题描述

数值计算的对象是一个同轴射流燃烧器, 燃烧器内套管的出口直径为 3 mm, 外套管内径为 25.4 mm, 内外套管中都放置了烧结金属以使气流出口速度达到均匀分布。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。为了使火焰稳定, 外套管上还套了一个内径也是 25.4 mm 的石英玻璃管。更详细的设备说明可以在 Gülder 等人<sup>[22-29]</sup>的研究中找到。在所研究的压力范围内, CH<sub>4</sub> 和氧化剂的进口质量流量分别保持在 0.5 mg/s 和 0.4 g/s, 温度为 300 K。表 1 列出了常压下三种火焰的组成成分、质量流量、平均速

度、雷诺数和弗劳德数。此处，弗劳德数定义为：

$$Fr = \frac{U^2}{gd} = \frac{16m^2}{\pi^2 gd^5 \rho^2} = \frac{16m^2 R^2 T^2}{\pi^2 d^5 P^2 g} \quad (1)$$

其中  $\rho$  为燃料密度， $U$  为燃料出口平均速度， $d$  为燃烧器直径， $m$  为燃料质量流率， $R$  为气体常数， $T$  为燃料温度， $g$  为重力加速度， $P$  为压力。从表中可以看出常压下的三种火焰的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，三

种火焰在所研究的压力范围内均处于层流状态。常压下，三种火焰中  $\text{CH}_4$  的弗劳德数都小于 1，氧化剂的弗劳德数也接近于 1，由于  $Fr \propto P^{-2}$ ，弗劳德数随着压力的提高而迅速降低至远小于 1，因此高压下三种火焰均为浮力控制型。

本文采用商用软件 FLUENT<sup>[32]</sup>来进行燃烧的数值计算，以研究高压富氧对火焰结构以及污染物排放的影响。

表 1 三种火焰在 P=1 atm, T=300 K 下的参数特性

Flame	Stream	Mass flow rate (g/s)	Average velocity (cm/s)	Re	Fr
1	inner jet	CH4	0.00055	11.93	20.99
	outer jet	AIR	0.4	68.83	962.88
2	inner jet	CH4	0.00055	11.93	20.99
	outer jet	30%O2,70%N2	0.4	68.49	912.20
3	inner jet	CH4	0.00055	11.93	20.99
	outer jet	30%O2,70%CO2	0.4	50.22	1083.24

## 1.2 辐射模型

Flame 3 的氧化剂中  $\text{CO}_2$  含量非常高，而  $\text{CO}_2$  的辐射能力非常大，Amato<sup>[33]</sup>指出较高的  $\text{CO}_2$  含量会使燃料通过吸收燃烧产物的辐射能而使气流获得额外的预热，从而提高火焰速度和燃料的可燃极限。因此，为了保证数值模拟的准确性，需要考虑产物中  $\text{CH}_4$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{CO}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$  这些多原子以及结构不对称的双原子气体组分的辐射损失。本文采用 Barlow 等人<sup>[34]</sup>提出的基于光学薄假设的辐射模型来考虑气体辐射，该方法中组分的辐射损失采用下式进行计算：

$$\dot{Q} = 4\sigma(T^4 - T_b^4) \sum_i p_i a_{pi} \quad (2)$$

其中  $\sigma = 5.669 \times 10^{-8} \text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K}^4)$ ，为斯特潘-玻尔兹曼常数。 $T$  为当地火焰温度， $T_b$  为环境温度。 $p_i$  为组分  $i$  的分压，单位为  $\text{atm}$ 。 $a_{pi}$  为组分  $i$  的普朗克平均吸收系数，其值为温度的函数，本文中  $\text{CH}_4$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{CO}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$  的普朗克平均吸收系数计算公式详见文献<sup>[34]</sup>。在 FLUENT 中这些组分的辐射损失作为一个源项通过编写 UDF 添加到能量方程中。

## 1.3 化学反应机理

Bennett 等人<sup>[15]</sup>采用的 GRI 3.0 机理包含 53 种组分，325 个基元反应，采用如此庞大的详细化学反应机理进行燃烧数值模拟需要花费很长的计算时间。在保证精度的前提下，本文采

用基于 GRI 3.0 的骨干机理。Lu Tianfeng<sup>[35]</sup>通过对 GRI 3.0 机理的简化得出了在很大压力范围内都和详细反应机理吻合良好的骨干机理和简化机理，其不包含  $\text{NO}_x$  机理的骨干机理包含 30 种组分，184 个可逆基元反应。当考虑  $\text{NO}_x$  的化学反应时，加入了 N、NH、NNH、NO、HNO 和 HCN 这 6 种组分及其涉及到的基元反应，因此最终的骨干机理包含了 36 种组分，222 个可逆基元反应。尽管 Lu Tianfeng 已经对 GRI 3.0 进行了较大的简化，但是该骨干机理仍然比较庞大。本文采用的骨干机理在此基础上通过关联度法和主成分分析法对其进行进一步的简化，去掉其中的  $\text{C}_2\text{H}_2$ 、 $\text{C}_2\text{H}_3$ 、 $\text{C}_2\text{H}_4$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5$ 、 $\text{C}_2\text{H}_6$ 、 $\text{CH}_2\text{CHO}$ 、 $\text{CH}_2\text{CO}$ 、 $\text{HCCO}$ 、 $\text{C}$  和  $\text{CH}_3\text{OH}$  十种组分，最终得出包含 26 种组分和 163 个不可逆基元反应的骨干机理。由于简化机理的过程并非本文重点以及篇幅限制，机理简化的详细过程不再赘述。

为了验证此骨干机理的准确性，本文对 Bennett 等人研究的工况也进行了计算，该工况中燃烧器内套管中的燃料射流为 35% $\text{N}_2$  和 65% $\text{CH}_4$  的混合气体，体积流量为 6.04  $\text{cm}^3/\text{s}$ ，外套管为  $\text{O}_2$ ，体积流量为 975  $\text{cm}^3/\text{s}$ 。详细的燃烧器尺寸参数、计算区域和网格划分参见文献<sup>[15]</sup>，计算结果对比如图 1 所示。

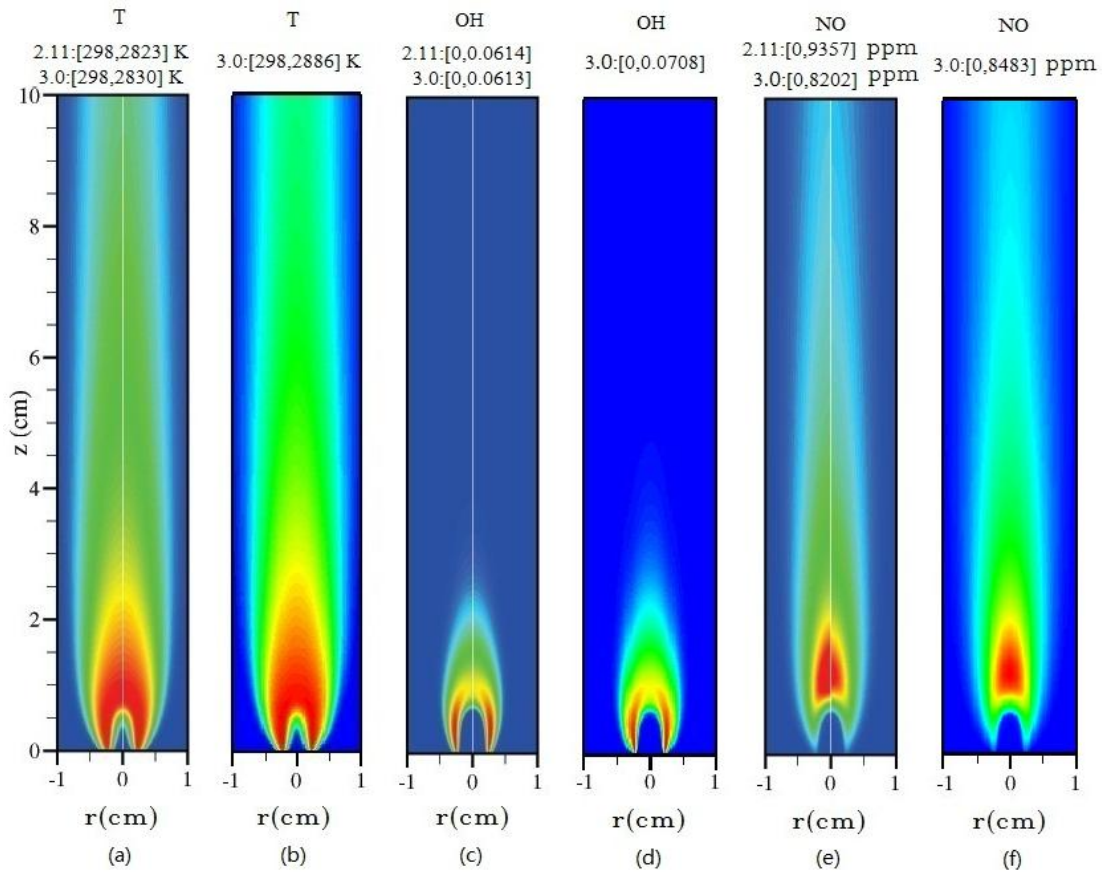
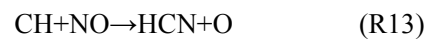


图 1 采用 GRI 2.11、GRI 3.0 和本文的骨干机理计算所得结果的对比。图 1(a)、(c)和(e)源自于 Bennett 等人<sup>[13]</sup>,分别对应于火焰温度、OH 和 NO 摩尔分数分布云图,其中左边区域为 GRI 2.11 的计算结果,右边区域为 GRI 3.0 的计算结果。图 1(b)、(d)和(f)为本文的骨干机理计算所得结果。

从图 1(a)和(b)可以看出该骨干机理计算得到的火焰温度比采用 GRI 2.11 以及 GRI 3.0 计算所得温度高 60 K 左右。这 60 K 的温度偏差不全是因为反应机理的不同造成的,边界条件的不同是形成这种偏差的主要原因。Bennett 等人根据实验数据给定燃料出口温度和速度分布,这种边界条件的取法实际上已经考虑了火焰与燃料内套管之间的辐射换热。而本文为了简化计算,在燃料出口壁面处采用绝热边界条件和平均速度入口,这样完全没有考虑火焰对燃料内套管的辐射损失,因此计算出来的火焰温度要比 Bennett 等人的偏高。

从图 1(e)和(f)中可以看出该骨干机理计算得到 NO 摩尔分数最大值比 GRI 3.0 的计算值几乎相等,仅比后者高约 3%。这一方面是由于该骨干机理计算出的温度比 Bennett 等人的稍高,另一方面是由于骨干机理只包含了热力型 NO 机理以及绝大部分快速型 NO 机理。并

且 Sung 和 Law 在文献[7]中指出在富氧燃烧中快速型 NO 对 NO 生成起负作用,是主要的 NO 还原路径。这些主要还原基元反应如下(为了便于对比,下述基元反应的标号与文献[7]保持一致):



Sung 和 Law 强调了 R11 对造成 NO 负生成率起重要作用,然而如前所述, HCCO 这一组分已经在机理简化过程中剔除了,即该骨干机理中的快速型 NO 机理不包含 R11,由此造成了该骨干机理的快速型 NO 途径对 NO 的还原作用相对于 GRI 3.0 来说要小。上述三个原因使得该骨干机理计算得出的 NO 摩尔数分数最大值要比 GRI 3.0 的计算值稍高。值得指出的是, NO 反应机理的加入对火焰温度和结构

等的影响非常小，根据研究问题的不同，NO 反应机理的复杂程度可以不同，Sung 和 Law 的研究表明热力型机理在富氧燃烧中起主要作用，该骨干机理添加的 NO 反应包含了热力型 NO 机理以及大部分的快速型 NO 机理，对于本文研究高压富氧对 NO 排放的影响来说已经足够了。

从图 1(a)-(f)中可以看出骨干机理计算得出的火焰轮廓以及其他组分的摩尔分数分布与 GRI 3.0 和 GRI 2.11 的计算值都很吻合。因此，本文采用的骨干机理具有较高的准确性，可用于高压富氧燃烧的数值模拟。

#### 1.4 计算区域、网格和边界条件

对于本文研究的同轴燃烧器，其二维计算区域如图 2 所示，图中同时还给出了相应的边界条件。计算区域沿径向长度为 12.7 mm，沿轴向长度为 25 mm。与 Marc 等人<sup>[22]</sup>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，将内套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。Marc 等人在计算过程中不考虑玻璃管对火焰的影响，他们将计算区域沿径向延伸至玻璃管壁之外以提高数值计算的稳定性，即计算区域径向长度为 20 mm，他们认为火焰离玻璃管壁足够远，这种改变不会影响火焰周围的流场。本文同样不考虑玻璃管对火焰的影响，但与 Marc 等人的处理方法稍微不同，本文的计算区域仅沿径向计算至玻璃管壁并将管壁设置为壁面边界条件。燃烧器内套管用一个简化的几何形状来进行模拟，其管壁厚度为 0.5 mm。

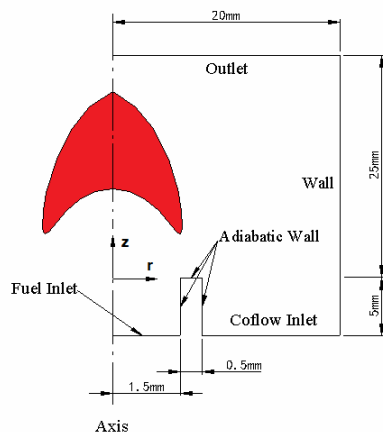


图2 计算区域以及边界条件

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；燃烧器内套管出口  $z=0$  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；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。

由于内外套管中都放置了烧结金属，因此燃料进口和氧化剂进口的边界条件设置为速度进口，此时该速度为气流的平均速度。燃烧器内套管设置为绝热壁面，Marc 等人在文献<sup>[22]</sup>中详细论述选择该边界条件的理由。计算区域的右边界同样设置为壁面边界条件，而左边界设为对称轴，上边界设置为出流边界条件。

## 2 结果与讨论

### 2.1 富氧燃烧对火焰的影响

本文选取 Flame 1、2 和 3 在常压下燃烧的工况来讨论富氧对火焰的影响。

#### 2.1.1 火焰形态

图 3、4、5 分别给出了常压下 Flame 1、Flame 2 和 Flame 3 三种火焰的温度、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{O}_2$ 、OH、CO 和 NO 的分布云图。Flame 1、Flame 2 和 Flame 3 都具有相似的火焰形态。 $\text{CH}_4$  在内套管出口不远处便被完全消耗，越往下游  $\text{O}_2$  向火焰的扩散量越大。OH 只出现在高温区域的一小薄层内。对比图 3、4 和 5 可以发现，氧化剂中  $\text{O}_2$  含量增加使得 Flame 2 和 Flame 3 的火焰温度比 Flame 1 高。由于在 2000 K 左右时  $\text{CO}_2$  的比容约是  $\text{N}_2$  的 1.7 倍，造成 Flame 3 的火焰温度比 Flame 2 的低。

图 6 示出了 Flame 1、2 和 3 沿轴线的温度分布以及速度分布。若定义火焰长度为轴线上的最高温度点所对应的纵坐标，则通过图 6 可知 Flame 2 和 Flame 3 的火焰长度都要比 Flame

1 的短，这说明富氧燃烧会使火焰长度变短。另外，观察图 6 中  $z=0$  mm 所对应的 Flame 1、2 和 3 的轴线温度，可以发现气流在流出内套管前便得到了预热。通过对 Flame 1 和 Flame 2

的对比可以发现，Flame 3 的这种预热效应更加明显，原因如上文所述：较高的  $\text{CO}_2$  含量会使反应气流通过吸收燃烧产物的辐射能而使气流获得额外的预热。

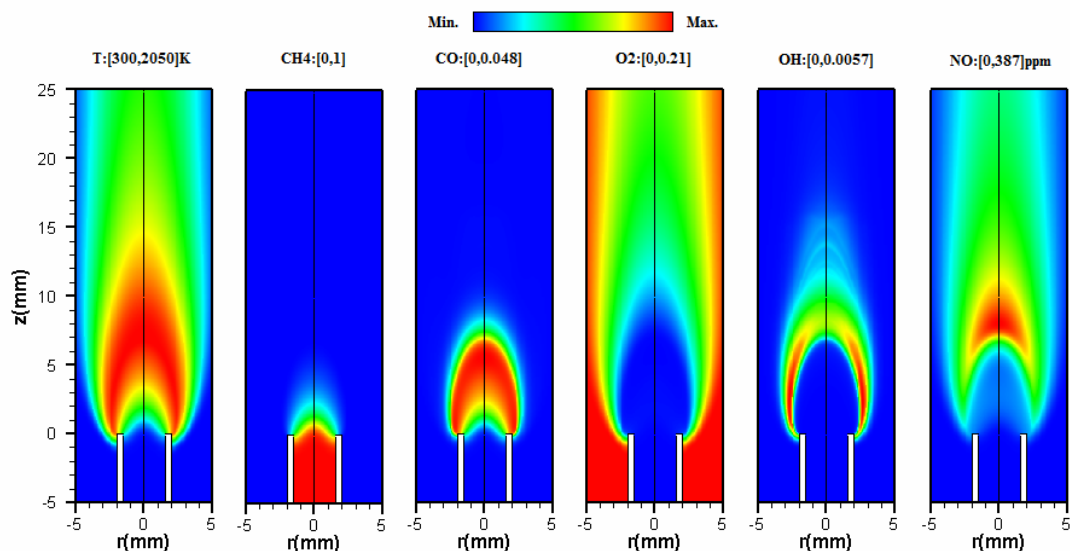


图 3 Flame 1 在常压下的火焰温度以及  $\text{CH}_4$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{O}_2$ 、 $\text{OH}$  和  $\text{NO}$  的摩尔分数分布云图

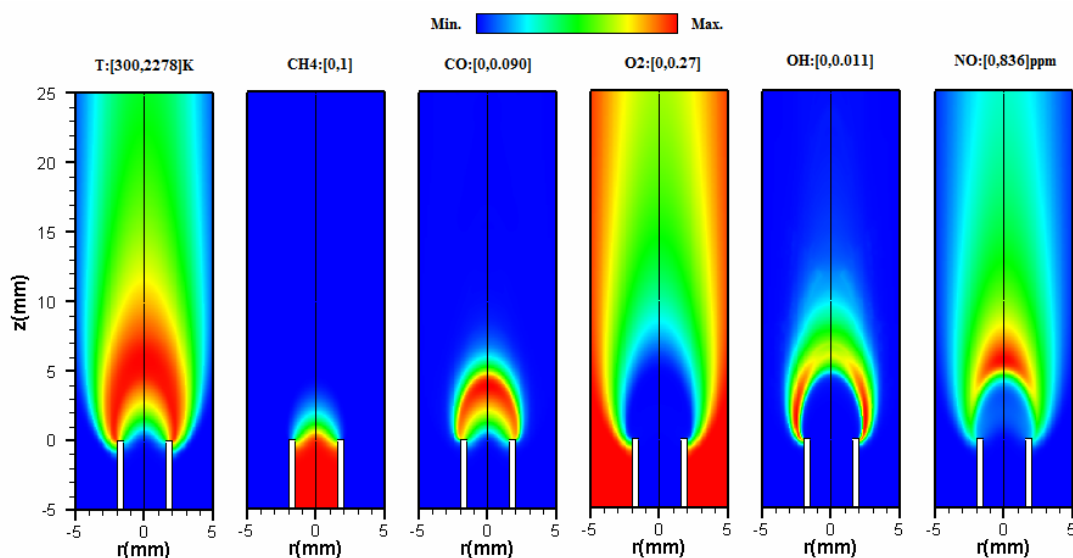


图 4 Flame 2 在常压下的火焰温度以及  $\text{CH}_4$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{O}_2$ 、 $\text{OH}$  和  $\text{NO}$  的摩尔分数分布云图

### 2.1.2 $\text{NO}$ 生成特性

由于 Flame 3 中没有氮元素存在，因此我们只考虑 Flame 1 和 Flame 2 中污染物  $\text{NO}$  的生成特性，Flame 1 和 Flame 2 的  $\text{NO}$  摩尔分数分布云图如图 3、4 所示。通常形成  $\text{NO}$  的机理有四种：热力型、快速型、 $\text{N}_2\text{O}$  中间体型和  $\text{NNH}$  型。热力型  $\text{NO}$  在温度大于 1850 K 时开始变得重要；快速型  $\text{NO}$  主要是碳氢自由基  $\text{CH}_x$  与  $\text{N}_2$

进行反应形成胺或者氰基化合物，然后胺或者氰基化合物进一步转变成中间体最终形成  $\text{NO}$ 。Sung 和 Law 的研究表明在富氧燃烧条件下  $\text{N}_2\text{O}$  中间体型和  $\text{NNH}$  型所产生的  $\text{NO}$  含量非常小，因此本文不予考虑，下文所涉及到的  $\text{NO}$  皆为热力型  $\text{NO}$  或者快速型  $\text{NO}$ 。

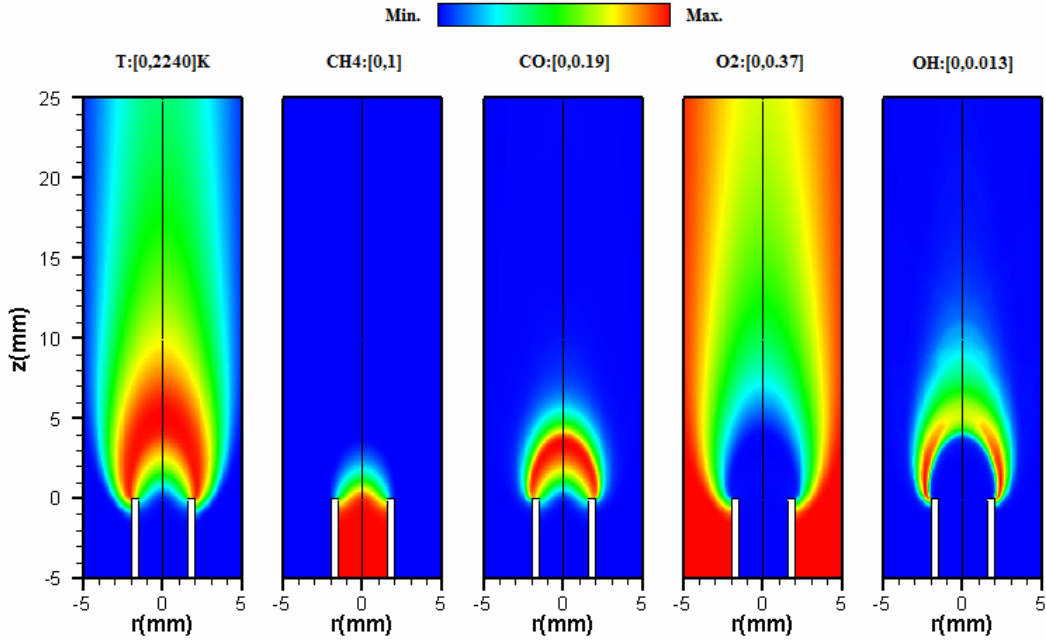


图 5 Flame 3 在常压下的火焰温度以及 CH<sub>4</sub>、CO、O<sub>2</sub> 和 OH 的摩尔分数分布云图

从图 3、4 可以看出 Flame 2 的 NO 摩尔分数最大值是 Flame 1 的 2 倍以上。我们定义  $t_{res}(z) = \int_{z_0}^{z_1} [V_z(0, z')]^{-1} dz'$  为火焰停留时间<sup>[13]</sup>，其中  $V_z(0, z')$  为轴线上点  $(0, z')$  处的轴向速度，其值可以从图 6 中得到， $z_0$ 、 $z_1$  为积分上下限。我们可以取不同位置的停留时间以研究不同的问题，例如取轴线上温度  $T \geq 1850$  K 的区间，火焰在该区间的停留时间  $t_{1850}$  与热力型 NO 的生成量具有很大的关系。对于 Flame 1 和 2，其停留时间  $t_{1850}$  分别为 5.1 ms 和 6.9 ms。由此可见，相对于 Flame 1 而言，Flame 2 不仅火焰温度高，而且燃烧产物在高温区域的停留时间也 longer，由此造成了热力型 NO 生成量的大幅度增大。

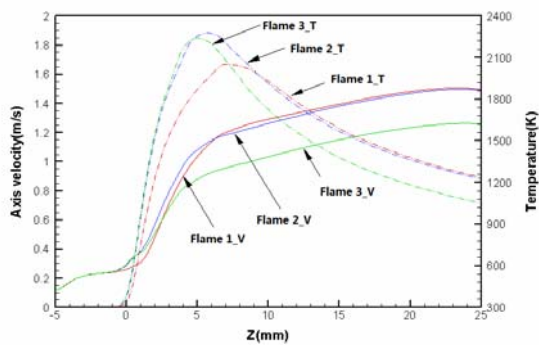


图 6 常压下 Flame 1、2 和 3 沿轴线的温度分布以及速度分布

图 7 给出了 Flame 1 和 Flame 2 的 NO 质量生成率分布云图。从图中可以看出两者的 NO 质量生成率具有相似分布规律，即 NO 的形成与消耗都集中在薄层区域中。在外侧的高温区域，NO 的质量生成率为正（红色代表正值），NO 在此处形成并向两边扩散；尽管 Flame 1 和 Flame 2 的 NO 质量生成率具有相似分布规律，但其中起主要作用的化学反应机理却具有本质的区别。Bennett 等人<sup>[13]</sup>对常压下同轴燃烧器中 CH<sub>4</sub>/空气燃烧进行计算，结果表明利用 GRI 2.11 和 GRI 3.0 计算出的热力型 NO 分别仅占全部 NO 含量的 17.0% 和 5.6%，其余部分主要被快速型 NO 所占据。这意味着对于本文的 Flame 1，快速型 NO 途径在外侧的高温区域（图 7 中 Flame 1 的红色区域）的 NO 形成中占主导地位。Sung 和 Law<sup>[7]</sup>的一维数值计算表明当氧化剂中 O<sub>2</sub> 摩尔分数超过 25% 时，热力型 NO 开始占主导地位。本文的 Flame 2 中 O<sub>2</sub> 质量分数为 30%，因此对于 Flame 2，热力型 NO 在外侧高温区域（图 7 中 Flame 2 的红色区域）的 NO 形成中占主导地位，而且此区域中 Flame 2 的 NO 质量生成率比 Flame 1 的要高。

对于 Flame 1 和 Flame 2，在内套管出口不远处的富燃料区域中，NO 的质量生成率为负（蓝色区域代表负值），说明此处 NO 被还



原。富燃料区存在大量碳氢自由基  $\text{CH}_x$ ，此时  $\text{NO}$  通过快速型  $\text{NO}$  途径被还原，其主要过程为： $\text{NO} + \text{CH}_x \rightarrow \text{HCN} + \text{H}_{x-1}\text{O}$ ，( $x=1,2,3$ )。其中， $x=1,3$  分别对应上述的 R13 和 R14。

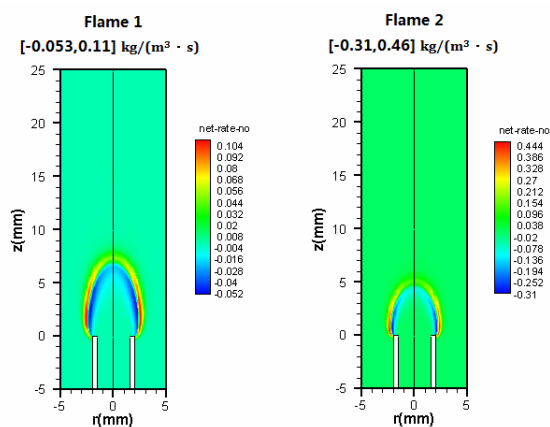


图 7 常压下 Flame 1 和 2 的  $\text{NO}$  质量生成率云图

### 2.1.3 $\text{CO}$ 生成特性

$\text{CO}$  是我们关注的另一个重要的污染物成分，图 3、4 和 5 给出了 Flame 1、2、和 3 的  $\text{CO}$  摩尔分数分布云图。可以发现 Flame 3 的  $\text{CO}$  摩尔分数要比 Flame 1 和 Flame 2 都要高很多。图 8 给出了 Flame 1、2 和 3 的  $\text{CO}$  质量生成率分布云图。从图中可以看出 Flame 1 的  $\text{CO}$  质量生成率最小，富氧燃烧使得 Flame 2 火焰温度升高， $\text{CO}$  质量生成率也随之增大。而 Flame 3 的火焰温度比 Flame 2 的低，但  $\text{CO}$  摩尔分数最大值反而是 Flame 2 的 1.6 倍。这说明将 Flame 2 氧化剂中的  $\text{N}_2$  替换为  $\text{CO}_2$  后， $\text{CH}_4$  在高浓度的  $\text{CO}_2$  环境下的富氧燃烧使得  $\text{CO}$  生成特性发生了很大的改变。

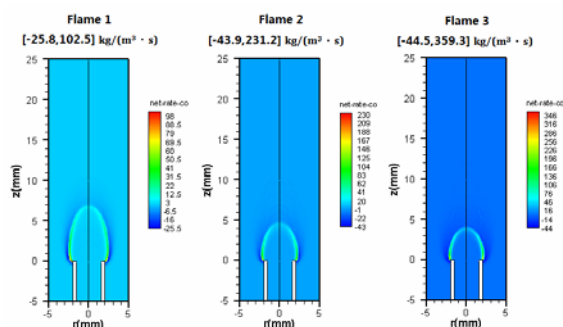


图 8 常压下 Flame 1、2 和 3 的  $\text{CO}$  质量生成率云图

事实上，Glarborg 等人<sup>[36]</sup>利用携带流反应器研究  $\text{CH}_4$  在  $\text{CO}_2$  环境下的富氧燃烧时同样发现了相同的现象。造成  $\text{CO}$  含量很高的原因是

由于  $\text{CO}_2$  不像  $\text{N}_2$  那样作为一种惰性稀释组分，而是参与了反应，其中的主要反应为： $\text{H} + \text{CO}_2 \rightleftharpoons \text{OH} + \text{CO}$ 。Davis 等人<sup>[37]</sup>还指出  $\text{CO}_2$  的第三体效应比  $\text{N}_2$  的高 2.4 倍，这造成复合反应  $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightleftharpoons \text{HO}_2 + \text{M}$  更加强烈。因此， $\text{CH}_4$  在较高浓度的  $\text{CO}_2$  环境下燃烧时，会由于  $\text{CO}_2$  对  $\text{H}$  的消耗而使火焰速度和火焰稳定性降低，同时燃烧器出口处  $\text{CO}$  生成量增大，可能使燃烧器出口腐蚀和结渣的可能性增加，但是  $\text{CO}$  会在下游逐渐被氧化， $\text{CO}$  的排放量不会增加。

## 2.2 高压燃烧对火焰的影响

### 2.2.1 火焰形态

图 9 给出了 Flame 2 在不同压力下的温度分布云图，从图中可以看出提高环境压力会使火焰形态发生很大的变化，其中最直观的便是火焰半径逐渐变小，火焰向中心线靠拢。其原因是压力的提高使得火焰弗劳德数  $Fr$  变小，浮力作用增大，在浮力的作用下火焰向中心线靠拢。从图 9 中还可以看出内套管中被预热的区域随着压力的提高而逐渐向上游移动，这说明随着压力的提高，燃料管内的  $\text{CH}_4$  的预热效果增强。这是由于压力的提高使得火焰的辐射能力增大，向上游传递的辐射能增大，因此预热效果增强。Flame 2 和 Flame 3 也有相似的温度分布云图。

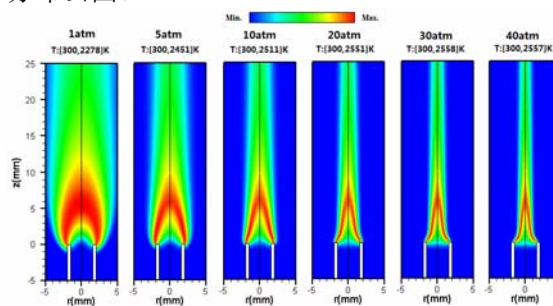


图 9 Flame 2 在不同压力下的温度分布云图

图 10 给出了 Flame 1、2 和 3 的最高火焰温度随压力的变化。由于富氧燃烧的原因，Flame 2 和 3 的最高火焰温度都要比 Flame 1 高。在 1-5 atm 的范围内，火焰最高温度随着压力的提高而迅速增大，这是由于在此范围内化学反应速率随着压力的提高而迅速增大。在 5-20 atm 范围内，压力的提高使得复合反应增

强、辐射损失有所增大，火焰最高温度的增大速率减慢。当压力大于 20 atm 时，Flame 3 的火焰最高温度开始快速降低，从公式 (2) 可以看出高浓度的  $\text{CO}_2$  以及压力的提高使得火焰的辐射损失增大，加上压力提高使得复合反应的增强，两者共同作用下 Flame 2 火焰温度开始降低。由于 Flame 1 和 2 中的  $\text{CO}_2$  含量并不高，因此压力提高到 30 atm 时二者的火焰最高温度还在继续增大，但超过 30 atm 后，辐射损失和复合反应使得二者火焰温度开始降低。

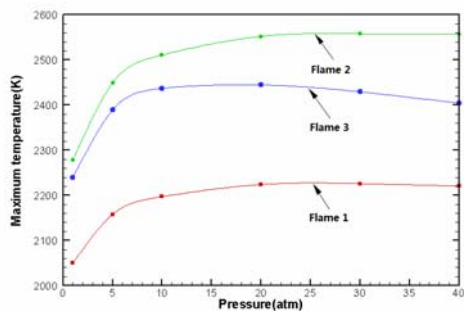


图 10 Flame 1、2 和 3 的火焰最高温度随压力的变化

从火焰温度分布云图中无法准确判断压力提高后火焰轮廓的变化。火焰面处的混合物分数等于化学当量混合物分数，根据这一点我们可以比较准确的判断火焰轮廓。混合物分数可以通过 FLUENT 中的自定义场函数来获得。图 11 给出了 Flame 2 在不同压力下的化学当量混合物分数分布，通过观察可以发现：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。尽管火焰长度的变化趋势与 Marc 和 Gülder 等人<sup>[22-29]</sup>的实验结果一致，但是由于计算所得的火焰长度变化很小，无法排除是否为数值计算误差的影响，加上高压下火焰为浮力控制型，因此可以认为火焰高度基本不受压力的影响。不考虑碳烟的影响是造成火焰长度变化较小的原因之一，加上碳烟机理可能会使火焰长度产生较大的变化，这样与实验结果会更加相符。

图 12 给出了 Flame 1、2 和 3 在不同压力下的轴线速度变化图。1-5 atm 内的轴线速度变化较大，这可能是由于在这个压力范围内火焰从过渡区变化到了浮力控制型，并且在此范围内火焰温度变化较大。压力进一步提高，气流

轴线速度  $V_z$  变化很小。假设燃烧产物为理想气体，随着压力的提高，火焰温度变化不大，则温度变化对燃烧产物密度的影响不大，我们可以假设密度与压力成正比  $\rho \propto P$ 。再假设气流的平均速度等于轴线速度  $V_z$ ，由于  $V_z$  几乎不变，根据质量守恒定律： $\rho V_z A = \rho V_z \pi r^2 = \text{常数}$ ，可得火焰半径  $r \propto P^{-0.5}$ 。尽管上述的第二点假设与实际可能具有较大偏差，但这个假设可以让我们定性了解压力对火焰形态的影响，而且根据这些假设得出的结果与 Gülder 等人<sup>[22-29]</sup>的实验结果一致。

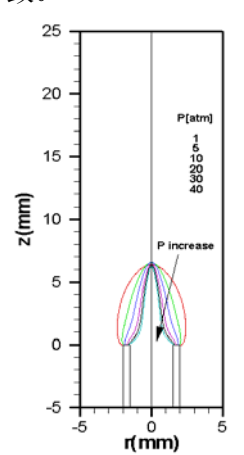


图 11 压力对 Flame 2 化学当量混合物分数分布的影响

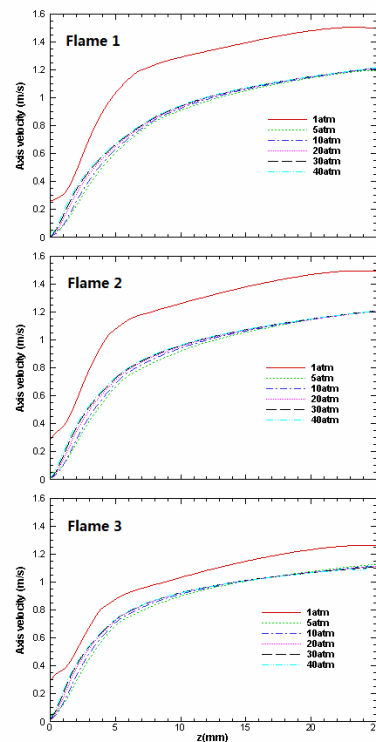


图 12 Flame 1、2 和 3 在不同压力下的轴线速度变化图

### 2.2.2 NO 生成特性

高压条件下的 NO 排放特性同样是本文关注的重点。此处我们采用 NO 排放指数进行分析，NO 排放指数的定义为：

$$EI\_NO = 1000 \int \omega_{NO} dv / \int \omega_{CH_4} dv \quad [gNO/kgCH_4]$$

其中  $\omega_{NO}$  为 NO 单位时间内的质量生成率， $\omega_{CH_4}$  为 CH<sub>4</sub> 单位时间内的质量消耗率。图 13 给出了 Flame 1 和 2 的 NO 排放指数随压力的变化，二者的 NO 排放指数变化规律具有很大的区别。对于 Flame 1，NO 排放指数随压力的提高先增大至最大值，该最大值对应的压力约为 8 atm，继续提高压力，NO 排放指数开始线性减低，从其趋势推测在 50 atm 时将降到与 1 atm 时相等的水平。在 1-8 atm 范围内，NO 排放指数主要取决于 NO 生成速率，提高压力促使 NO 生成率变大，NO 排放指数随之增大。但在更高压力下 NO 排放指数的变化规律出乎我们的意料。Miller 和 Maahs<sup>[21]</sup>在进行 CH<sub>4</sub>/空气的高压同轴射流燃烧实验时得出了相同的变化规律，他们认为比较合理的解释是在较高的压力下 NO 达到了其平衡浓度，该浓度随着压力的提高而降低。解释这一现象还需要做进一步的研究。对于 Flame 2，其 NO 排放指数比 Flame 1 高，且随压力的提高而增大，这意味着这种程度的富氧燃烧会使 NO 排放量增大。

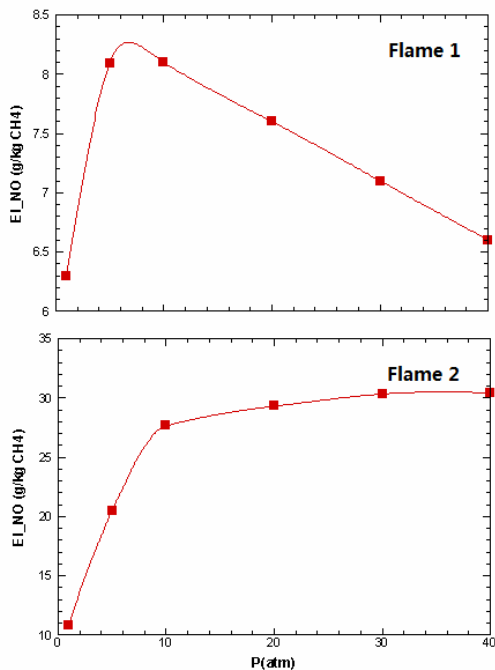


图 12 Flame 1 和 2 的 NO 排放指数随压力的变化

### 2.2.3 压力对流场的影响

如前所述，提高压力使火焰变得细并向轴线靠拢，此时整个计算区域的流场发生了很大的变化。图 16 示出了 Flame 1 在 1 atm 和 20 atm 时的径向速度分布云图。注意到在 1 atm 时中内套管与外套管之间的环形区域内的径向速度皆为正值，仅在内套管出口处的一小区域中存在负的径向速度，这说明 Flame 1 在 1 atm 时中仅有少量的氧化剂被卷入火焰根部以维持 CH<sub>4</sub> 的燃烧，在火焰根部下流，径向速度几乎为 0，几乎不存在气流的卷吸作用。当压力增大到 20 atm 时，尽管径向速度减小，但在内外套管间的环形区域中以及内套管出口至下游很长一段距离内都存在着负的径向速度，这说明更多的 O<sub>2</sub> 被卷入火焰根部，而且在远离燃烧器出口的地方同样存在很强的卷吸作用，这使得 CH<sub>4</sub> 的燃烧速率也随之增大。

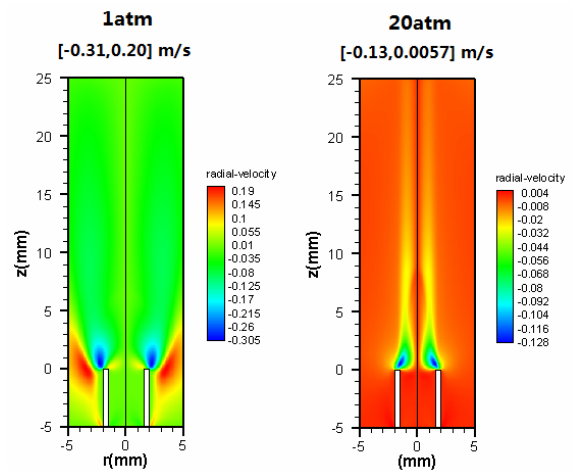


图 13 Flame 1 在 1 atm 和 20 atm 时的径向速度分布云图

## 3 结 论

本文对 1-40 atm 压力范围内 CH<sub>4</sub> 富氧燃烧层流同轴射流扩散火焰进行了数值研究，研究对象包含 3 种火焰，Flame 1 为 CH<sub>4</sub>/空气，Flame 2 为 CH<sub>4</sub>/70%N<sub>2</sub> 和 30%O<sub>2</sub>，Flame 3 为 CH<sub>4</sub>/70%CO<sub>2</sub> 和 30%O<sub>2</sub>，其中氧化剂中的组分含量采用质量分数来表示，CH<sub>4</sub> 和氧化剂的进口质量流量分别保持在 0.5 mg/s 和 0.4 g/s，温度为 300 K。研究的重点为高压富氧对三种火焰的形态以及污染物排放特性的影响。计算模型采用了基于 GRI 3.0 的骨干反应机理，该机理采用关联度法以及主成分分析法对 GRI 3.0 进行简化得出 26 种组分，163 个不可逆反应，

同时模型还考虑了  $\text{CH}_4$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{CO}$  的辐射换热损失。计算结果与文献中已有实验结果吻合良好,能够准确预测高压富氧情况下的火焰温度、轮廓以及  $\text{NO}$  排放指数。计算结果表明:

1) 相对于 Flame 1 这种常规  $\text{CH}_4$ /空气燃烧, Flame 2 和 3 两种富氧燃烧方式会使燃烧温度升高,火焰长度变短;

2) 由于本文 Flame 2 中  $\text{N}_2$  含量相对较高,富氧燃烧引起火焰温度升高造成 Flame 2 中  $\text{NO}$  的生成量大大增加,绝大部分  $\text{NO}$  是通过热力型  $\text{NO}$  途径形成, $\text{NO}$  含量随压力的提高而增大;因此,对于  $\text{N}_2$  含量较高的富氧燃烧,需要合理的组织燃烧以减少  $\text{NO}$  排放。

3) Flame 3 中  $\text{CO}_2$  含量相对较高,在其富氧燃烧过程中基元反应  $\text{H}+\text{CO}_2 \rightleftharpoons \text{OH}+\text{CO}$  使得近燃烧器喷口处的  $\text{CO}$  浓度大大增加,同时  $\text{CO}_2$  对  $\text{H}$  的消耗会使火焰速度和火焰稳定性降低。但是这些  $\text{CO}$  会在下游逐渐被氧化,因此  $\text{CO}$  的排放量不会增加。

4) 环境压力对火焰温度具有很大的影响。提高压力,火焰温度先升高后降低,在 5 atm 前温度升高速率最快。对于 Flame 1 和 2,温度开始降低时所对应的压力约为 30 atm;对于 Flame 3,所对应的压力约为 20 atm。

5) 环境压力对火焰的轮廓具有很大的影响。提高压力,火焰半径变小,火焰长度先增加后逐渐减小。但是火焰长度的这种变化并不明显,无法排除数值误差带来的影响。在本文研究的条件下,可认为火焰长度与压力无关。

6) 火焰的  $\text{NO}$  排放指数随压力的提高而发生显著变化。Flame 1 的  $\text{NO}$  排放指数随压力的提高先增大后减小,最大值对应的压力约为 8 atm。Flame 2 的  $\text{NO}$  排放指数比 Flame 1 高,且随压力的提高而增大。

7) 提高环境压力促使火焰的卷吸能力增加,使  $\text{CH}_4$  的燃烧速率增大。

### 参考文献

[1] Eleazer PB, Slavejkov AG. Clean Firing of Glass Furnaces Through the Use of Oxygen. *Ceramic Engineering and Science Proceedings*.1994,15 (2):159-174

[2] Buhre BJP, Elliott LK, Sheng CD, Gupta RP, Wall TF. Oxy-fuel combustion technology for coal-fired power generation. *Progress in Energy and Combustion Science*.2005,31 (4):283-307

[3] 李森,魏小林,郭啸峰.采用详细化学反应机理研究煤富氧燃烧  $\text{NO}_x$  生成机制.中国工程热物理学会(燃烧学),2011,杭州

[4] Wu K K, Chang Y C, Chen C H, Chen Y D. High-efficiency combustion of natural gas with 21-30% oxygen-enriched air. *Fuel*, 2010,89(9): 2455-2462

[5] Luo SY, Xiao B, Hu ZQ, Liu SM, Guan YW. Experimental study on oxygen-enriched combustion of biomass micro fuel. *Energy*, 2009,34(11): 1880-1884

[6] Poola RB, Sekar R. Reduction of  $\text{NO}_x$  and Particulate Emissions by Using Oxygen-Enriched Combustion Air in a Locomotive Diesel Engine. *Transactions of the ASME*,2003,(125):524-533

[7] Sung CJ, Law CK. Dominant chemistry and physical factors affecting  $\text{NO}$  formation and control in oxy-fuel burning. *Proc. Combust. Inst*, 1998,27 (1):1411-1418

[8] Beltrame A, Porshnev P, Merchan MW, etc. Soot and  $\text{NO}$  Formation in Methane-Oxygen Enriched Diffusion Flames. *Combustion and Flame*,2001,124:295-310

[9] Naik SV and Laurendeau NM. Quantitative laser-saturated fluorescence measurements of nitric oxide in counter-flow diffusion flames under sooting oxy-fuel conditions. *Combustion and Flame*, 2002,129:112-119

[10] Naik SV and Laurendeau NM. Laser-saturated and linear laser-induced fluorescence measurements of nitric oxide in counter-flow diffusion flames under non-sooting oxygen-enriched conditions. *Combust. Sci. Technol*, 2002,174 :1-21

[11] Naik SV and Laurendeau NM, Cooke JA. and Smooke MD. Effect of radiation on nitric oxide concentration under sooting oxy-fuel conditions. *Combustion and Flame*, 2003,134:425-431

[12] Qin W, Ren JY, Egolfopoulos FN, etc. Oxygen composition modulation effects on flame propagation and  $\text{NO}_x$  formation in methane/air premixed flames. *Proc. Combust. Inst*, 2000,28: 1825-1831

[13] Smooke MD, Ern A, Tanoff MA, Valdati BA, etc. Computational and experimental study of  $\text{NO}$  in an axisymmetric laminar diffusion flame. *Proc. Combust. Inst*, 1996 26:2161-2170

[14] Ju Y and Niioka T. Computation of  $\text{NO}_x$  emission of a methane-air diffusion flame in a two dimensional laminar jet with detailed chemistry. *Combust. Theory Model*, 1997,1:243-258

[15] Bennett BAV, Cheng ZX, Pitz RW and Smooke MD. Computational and experimental study of oxygen-enhanced axisymmetric laminar methane flames. *Combustion Theory and Modelling*,2008,12(3):497-527

- [16] Ditaranto M, Sautet JC and Samaniego JM. Structural aspects of coaxial oxy-fuel flames. *Exper. Fluids*, 2001,30:253-26
- [17] Sunderland PB, Krishnan SS and Gore JP. Effects of oxygen enhancement and gravity on normal and inverse laminar jet diffusion flames. *Combustion and Flame*,2004,136:254-256
- [18] Bowman CT, Hanson RK, Davidson DF, Gardiner WC, Lissianski JV, Smith GP, Golden DM, Frenklach M and Goldenberg M. [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/)
- [19] Smith GP, Golden DM, Frenklach M, Moriarty NW., Eiteneer B, Goldenberg M, Bowman CT, Hanson RK, Song S, Gardiner WC, Lissianski JV and Qin ZW [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/)
- [20] Bhadraiah K and Raghavan V. Numerical simulation of laminar co-flow methane–oxygen diffusion flames: effect of chemical kinetic mechanisms. *Combustion Theory and Modelling*, 2010,15(1):23-46
- [21] Miller IM, Maahs HG. High-pressure flame system for pollution studies with results for methane–air diffusion flames, TN D-8407, NASA 1977
- [22] Marc RJC, Clinton PTG and Ömer LG. 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
- [23] Liu F, Thomson KA, Guo H, Smallwood GJ. Numerical and experimental study of an axisymmetric coflow laminar methane–air diffusion flame at pressures between 5 and 40 atmospheres. *Combustion and Flame*, 2006,146:456–71
- [24] Thomson KA, Gulder OL, Weckman EJ, Fraser RA, Smallwood GJ, Snelling DR. Soot concentration and temperature measurements in co-annular, nonpremixed CH<sub>4</sub>/air laminar flames at pressures up to 4 MPa. *Combustion and Flame*, 2005,140:222–232
- [25] Bento DS, Thomson KA, Gulder OL. Soot formation and temperature field structure in laminar propane-air diffusion flames at elevated pressures. *Combustion and Flame*, 2006,145:765–78
- [26] Charest MRJ, Joo HI, Gulder OL, Groth C PT. 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
- [27] Joo HI, Gulder OL. 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.
- [28] Joo HI, Gulder OL. 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
- [29] Joo HI, Gulder OL. Soot formation and temperature structure in small methane–oxygen diffusion flames at subcritical and supercritical pressures. *Combustion and Flame*, 2010, 157 : 1194–1201
- [30] Higgins B, McQuay MQ, Lacas F, Rolon JC, Darabiha N, Candel S. Systematic measurements of OH chemiluminescence for fuel-lean, high-pressure, premixed, laminar flames. *Fuel*, 2001, 80 :67-74
- [31] Yasuhisa Ichikawa, Yuki Otawara, Hideaki Kobayash ,etc. Flame structure and radiation characteristics of CO/H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>/air turbulent premixed flames at high pressure. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2011, 33:1543-1550
- [32] Fluent User Guide, *Fluent 6.3.26*, 2005 [<http://www.fluent.com>]
- [33] Amato A, Hudak B, D'Carlo P, etc. Methane Oxycombustion for Low CO<sub>2</sub> Cycles: Blow off Measurements and Analysis. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power*,2011,133.
- [34] Barlow R S, Karpets AN, Frank J H and Chen JY. Scalar Profiles and NO Formation in Laminar Opposed-Flow Partially Premixed Methane/Air Flames. *Combustion and Flame*, 2001, 127:2102-2118
- [35] Lu TF and Law CK. 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 study of oxygen-enhanced axisymmetric laminar methane flames at high pressures

QIN Jianguo, WEI Xiaolin, GUO Xiaofeng, LI Teng, GAO Jiajia

(Institute of Mechanics, CAS, No.15 Beisihuanxi Road, Beijing 100190, China)

**Abstract:** Numerical study of three axisymmetric laminar co-flow diffusion flames at pressures between 1 and 40 atm was conducted. One flame is a methane/air flame (Flame 1), and the other two are methane/nitrogen-diluted oxygen flame (Flame 2) and methane/carbon dioxide -diluted oxygen flame (Flame 3) respectively. The mass fraction of oxygen in the oxidizer of Flame 2 and Flame 3 are both 30%. The numerical model includes a

skeletal mechanism derived from GRI-Mech 3.0 with 163 reaction steps and 26 species. An optically thin radiation sub-model has been employed in the simulations to consider the thermal radiation absorption by species such as CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, CO and H<sub>2</sub>O. Computational results show good agreement with the experimental results available in literature, which means that the numerical model can be used to predict flame temperature, flame geometry and NO emission index of oxygen-enhanced combustion flames at elevated pressures. As compared to Flame 1, the two oxygen-enhanced combustion flames are shorter and hotter. NO emission index in Flame 2 is much higher than that in Flame 1 and it is shown to be increased monotonically as the pressure increases. The majority of NO in Flame 2 is produced via the thermal route. The reaction step:  $\text{H} + \text{CO}_2 \rightleftharpoons \text{OH} + \text{CO}$  is accounted for the high mole fraction of CO in Flame 3 near the fuel tube exit. Flame temperature increases significantly from 1 to 5 atm, but increases smoothly above 5 atm. Temperature of Flame 1 and Flame 2 decreases when pressure exceeds 30 atm. While as to Flame 2, temperature starts to decrease at 20 atm. Flame radius decreases monotonically as the pressure increases. As the pressure increases, a slight increase in the flame height between 1 and 10 atm, while the predicted flame height starts to drop slightly at higher pressures. Entrainment of oxidizer into the flame intensifies as the pressure increases, which promotes fuel pyrolysis.

**Key words** Methane, Oxygen-Enhanced Combustion, High Pressure Combustion, NO<sub>x</sub>, Skeletal Mechanism