

氢气/氧气/稀释气混合气高温高压下 层流燃烧速度的测量

吕鑫, 胡二江, 彭成, 孟鑫, 黄佐华

(西安交通大学 动力工程多相流国家重点实验室, 西安 710049)

摘 要: 利用定容燃烧弹和高速纹影摄像系统,研究了高温高压条件下,不同稀释气和稀释系数对氢气/氧气/稀释气混合气层流燃烧速度的影响,获得了当量比为0.6~4.0,初始压力为0.1~0.5 MPa,稀释系数为4~8的氢气/氧气/稀释气混合气的层流燃烧速度,并对其进行了数值模拟。实验和模拟均发现,在当量比小于1.0和大于3.0的范围内,层流燃烧速度均随初始压力升高而降低。而在当量比为1.0~3.0范围内,层流燃烧速度随初始压力升高呈现非单调变化的规律。通过敏感性分析发现三体反应(R15)在氮气作为稀释气的时候是抑制反应,而在氩气和氦气作为稀释气时是促进反应,主要是由于各稀释气热物性不同引起的。在当量比为1.0~3.0范围内,层流燃烧速度随初始压力升高呈现的非单调变化主要是链分支反应R1和链终止反应R15相互竞争的结果。

关 键 词: 氢气; 稀释气; 层流燃烧速度; 非单调变化; 敏感性分析

中图分类号: V231.21

文献标志码: A

Measurements on laminar burning velocities of hydrogen/oxygen/ diluent at elevated pressure and temperature

LÜ Xin, HU Erjiang, PENG Cheng, MENG Xin, HUANG Zuohua

(State Key Laboratory of Multiphase Flow in Power Engineering,
Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: The effects of different diluents and dilution ratios on laminar burning velocities of hydrogen/oxygen/diluents mixtures were studied at elevated pressures and temperatures with a constant volume combustion chamber and a high-speed schlieren system. Both experimental and numerical laminar burning velocities of hydrogen/oxygen/diluents mixture were obtained at equivalence ratios of 0.6—4.0, initial pressures of 0.1—0.5 MPa, and dilution ratios of 4—8. The results showed that the laminar burning velocity varied non-monotonically with the increase of the initial pressures and equivalence ratios among 1.0—3.0, and the laminar burning velocity decreased with the increase of initial pressure when the equivalence ratio was less than 1.0 or more than 3.0. Through sensitivity analysis of elemental reaction, three-body reaction (R15) was found to restrain reaction in nitrogen diluted mixture, and promote reaction in both argon and helium diluted mixtures, mainly due to dif-

收稿日期: 2015-03-24

基金项目: 国家自然科学基金(91441118)

作者简介: 吕鑫(1994—),男,硕士生,主要从事层流燃烧研究。

通讯作者: 胡二江(1983—),男,副教授,博士,主要从事层流火焰动力学研究。

引用格式: 吕鑫,胡二江,彭成,等. 氢气/氧气/稀释气混合气高温高压下层流燃烧速度的测量[J]. 航空动力学报,2017,32(7): 1599-1604. LÜ Xin, HU Erjiang, PENG Cheng, et al. Measurements on laminar burning velocities of hydrogen/oxygen/diluents at elevated pressure and temperature[J]. Journal of Aerospace Power, 2017, 32(7): 1599-1604.

ferent thermal physics properties of different diluents. When the equivalence ratios were within the ranges of 1.0—3.0, the non-monotonic change of laminar burning velocities with the increase of initial pressures was mainly due to the competition between chain-branching reaction R1 and chain-terminating reaction R15.

Key words: hydrogen; dilution; laminar burning velocity; non-monotonic change; sensitivity analysis

氢气(H₂)作为清洁能源,在氢氧火箭^[1]、微型涡轮发动机^[2]、超燃冲压发动机^[3]等诸多领域都有应用。随着制氢技术和储氢系统的日渐成熟,以及低 NO_x 排放的氢气燃烧系统的不断改进和研制,氢气在航空技术将有越来越多的应用。

层流燃烧速度是一个表征燃料燃烧特性的重要参数。它不仅是计算火焰厚度、全局反应活化能,以及反应级数等火焰不稳定性的输入参数,还是研究湍流燃烧的基础,很多湍流火焰的研究都是基于对层流火焰的进一步深入理解而提出的。

氢气/氧气反应体系不仅能为纯氢气燃烧提供基本化学反应机理信息,还是所有碳氢燃料和含氧燃料的中间产物,氢气/氧气反应机理构成了几乎所有碳氢化合物反应机理的一个重要子集^[4]。因此对氢气层流燃烧速度的研究不仅是掺氢气体燃料(如甲烷掺氢^[5]、丙烷掺氢^[6])以及合成气^[7]等燃料研究的基础,更是研究大分子燃料(如汽油^[8]、柴油^[9]、航空煤油^[10]等)燃烧的基础。

Tse 等^[11]和 Burke 等^[12]研究过氢气分别在常温和低温下利用氩气(Ar)、氦气(He)、氮气(N₂)作为稀释气的层流燃烧速度,但不同稀释气对高温高压下氢气层流燃烧速度影响的研究较少。本文通过利用高速纹影摄像系统结合定容燃烧弹测量了不同当量比和初始压力下的氢气层流燃烧速度,研究了不同稀释气和稀释系数对氢气层流燃烧速度的影响。

1 实验装置和方法

1.1 实验装置

如图 1 所示,实验装置主要由定容燃烧弹、配气系统、点火系统、高速纹影摄像系统、温度控制系统和压力信号采集系统等组成。

实验过程中需要先将定容燃烧弹利用加热带加热到预设温度,并通过真空泵将定容燃烧弹抽成真空,然后按照氢气、氧气、稀释气的顺序通过配气系统依次充入定容燃烧弹并到达分压。经过 5~10 min 的充分混合,混合气的分布和温度都达

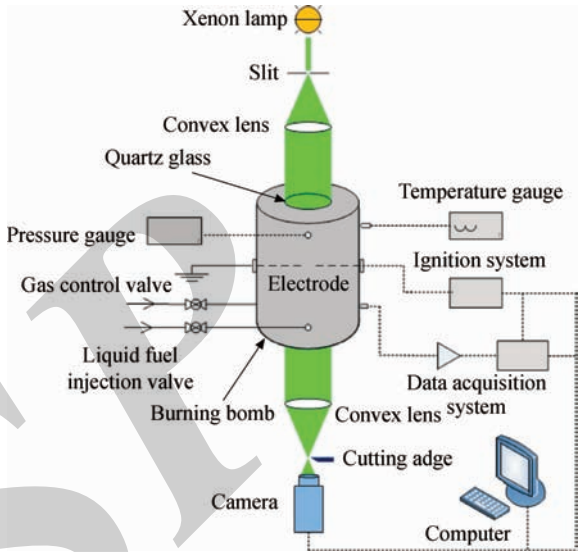


图 1 实验装置系统简图

Fig. 1 Schematic diagram of experimental system

到了一个稳定的状态,利用点火电极将混合气引燃,同时通过高速纹影系统记录混合气火焰传播的过程,火焰发展过程的纹影图片如图 2 所示,图中 t 为点火后时间, r_u 为火焰半径。实验中所用氢气、氧气、氦气、氩气、氮气的纯度都在 99.95% 以上。

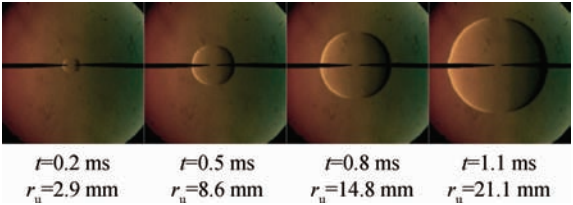


图 2 火焰发展过程纹影图片

Fig. 2 Schlieren pictures of developing flames

层流燃烧速度受压力、温度、当量比、燃料种类和点火能量等诸多因素影响,只能在很小的一段范围内进行测量。在火焰半径小于 25 mm 的范围内,未燃气的参数变化很微弱。根据 Huang 等^[13]对天然气、氢气等燃料层流燃烧速度的相关研究发现,点火能量对火焰速度的影响只作用于火焰半径小于 6 mm 的范围内。本文中火焰半径测量选取为 7~25 mm。

本文研究稀释气的稀释系数对混合气层流燃

烧特性的影响,因此定义稀释系数 D 为稀释气与氧气体积的之比

$$D = \frac{V_{\text{diluent}}}{V_{\text{O}_2}} \tag{1}$$

式中 D 为稀释系数; V_{diluent} 为稀释气的体积(m^3); V_{O_2} 为氧气的体积(m^3)。

本文研究了初始压力、当量比、稀释气种类、稀释系数对氢气/氧气/稀释气混合气的层流燃烧速度的影响。混合气的初始温度 $T_u=373\text{ K}$, 氢气/氧气/稀释气混合气的实验初始压力 $p_u=0.3\text{ MPa}$, 稀释气分别为氩气、氦气、氮气, 稀释系数 D 分别为 4, 6, 8。研究层流燃烧速度随当量比和初始压力变化的实验, 初始压力 p_u 分别为 0.1, 0.3, 0.5 MPa, 稀释系数 $D=7$ 。

1.2 数据处理方法

层流火焰传播速度和层流燃烧速度主要区别在于层流火焰传播速度是带拉伸的已燃气火焰传播速度,而层流燃烧速度则是无拉伸的未燃气火焰传播速度。利用高速纹影系统获得的图片,通过图片中火焰半径和电极点火后时间的关系可以得到带拉伸层流火焰传播速度 S_n

$$S_n = \frac{dr_u}{dt} \tag{2}$$

根据 Frankel 等^[14] 和 Chen^[15] 提出的非线性方法,可以得到

$$S_n = S_b - \frac{2S_bL_b}{r_u} \tag{3}$$

式中 S_b 为无拉伸已燃气火焰传播速度(m/s); L_b 为已燃混合气马赫斯坦长度(m)。

利用计算的 L_b 和 S_n 的即可计算出 S_b 。根据火焰前锋面处的反应物和生成物的质量守恒,可以得到

$$S_u = \frac{\rho_b}{\rho_u} S_b \tag{4}$$

式中 ρ_u 为已燃气密度(kg/m^3); ρ_b 为未燃气密度(kg/m^3); S_u 为未燃气无拉伸层流燃烧速度(m/s)。

本文对层流燃烧速率的模拟采用的是 CHEMKIN II 中的 PREMIX 模块。本文中的模拟考虑了热扩散的影响,求解曲线和求解梯度的可适应网格控制都设定为 0.01,以获得较精确的收敛值,最终网格数都在 1000 左右。氢气的化学反应动力学机理选择了 Burke 等人^[16] 提出的机理,该机理于 2012 年提出,包含 13 个物种和 27 个反应,是对 2004 年 Li 等人^[17] 提出的的机理的优化和修正。

2 实验结果与分析

2.1 层流燃烧速度

为了研究稀释气种类和稀释系数对氢气层流燃烧速度影响,开展了分别用氩气、氮气和氦气作为稀释气,稀释系数 D 分别为 4, 6, 8 的实验。图 3 给出了实验测得的层流燃烧速度和利用 Burke 机理计算得到的计算值,可以看到实验值和计算值吻合得较好。由于当 $D=4$ 时,氩气和氮气的火焰面在半径很小的时候就出现细胞状结构,导致层流燃烧速度无法测量。从图中可以看出,氢气层流燃烧速度在使用氦气作为稀释气的时候,层流燃烧速度最快,在使用氮气作为稀释气的时候,层流燃烧速度最慢。同时,层流燃烧速度随稀释系数增加而降低。由于使用氦气作为稀释气, $D=6$ 和 $D=8$ 时火焰面一直没有出现细胞状结构,所以本文中对当量比(ϕ)和初始压力对层流燃烧速度影响的实验选择了以氦气作为稀释气, $D=7$ 的工况。

图 4 给出了以氦气作为稀释气,稀释系数 $D=7$,初始温度 $T_u=373\text{ K}$ 时的混合气层流燃烧速度的实验值和模拟值。从图中可以看出,大部分工况下实验值与计算值的吻合得较好,只有在当量比大于 3.0 之后,实验值略低于计算值。实验值和模拟值的规律一致,3 种初始压力条件下的层流燃烧速度出现了交叉现象。在当量比小于 1.0 和大于 3.0 的时候,层流燃烧速度随着初始压力升高而降低,而当当量比在 1.0 和 3.0 之间时,层流燃烧速度随初始压力的升高呈现非单调的变化规律。以下通过化学反应动力学分析的方法进行合理的解释。

氢气层流燃烧速度与初始压力和当量比的关系可以通过以下拟合曲线进行拟合

$$S_u = S_u(\phi) \left(\frac{p_u}{p_0} \right) f(\phi) \tag{5}$$

式中 $S_u(\phi)$ 为参考层流燃烧速度(m/s); p_0 为参考初始压力; $f(\phi)$ 为压力因子。其中 $p_0=0.1\text{ MPa}$, 令 $p_u=p_0$, 则有 $S_u=S_u(\phi)$, 对 $p_u=0.1\text{ MPa}$ 的实验值拟合即可得到

$$S_u = -2.089 + 8.682\phi - 4.312\phi^2 + 0.829\phi^3 - 0.057\phi^4 \tag{6}$$

将 $S_u(\phi)$ 代回公式(5),通过对 $p_u=0.3\text{ MPa}$ 和 $p_u=0.5\text{ MPa}$ 的实验值拟合即可得到

$$f(\phi) = -0.223 + 0.390\phi - 0.176\phi^2 + 0.022\phi^3 \tag{7}$$

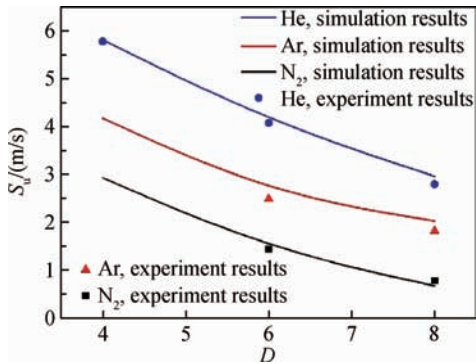


图 3 不同稀释气和稀释系数混合气层流燃烧速度
($T_u=373\text{ K}$, $p_u=0.3\text{ MPa}$, $\phi=1.0$)

Fig. 3 Laminar burning velocities of mixtures of different diluents and dilution ratios
($T_u=373\text{ K}$, $p_u=0.3\text{ MPa}$, $\phi=1.0$)

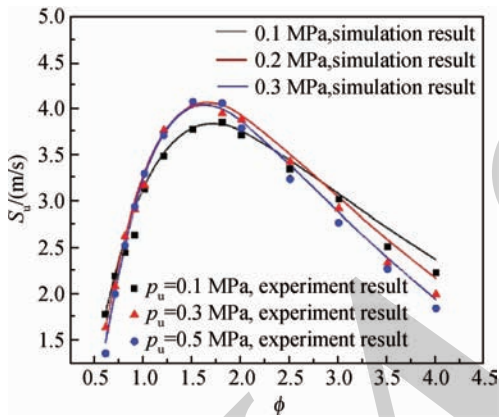


图 4 不同当量比和初始压力下混合气层流燃烧速度
($T_u=373\text{ K}$, $D=7$)

Fig. 4 Laminar burning velocities of mixtures of different equivalence ratios and initial pressures
($T_u=373\text{ K}$, $D=7$)

如图 5 所示,实验值和拟合曲线吻合得很好,在当量比较高的情况下,拟合曲线比计算值更接

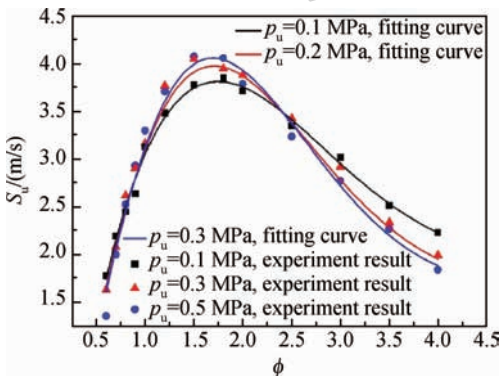


图 5 层流燃烧速度实验值与拟合曲线
Fig. 5 Experimental results and fitted curves of laminar burning velocities

近实验值,而且在当量比范围为 1.0~3.0 之间也出现了层流燃烧速度的非单调变化趋势。以下通过化学反应动力学分析的方法进行合理的解释。

2.2 敏感性分析

图 6 给出了利用 Burke 机理计算得到的 $D=6$ 时不同稀释气种类的混合气燃烧质量流量敏感性分析。从图中可以看出,对稀释气种类变化最为敏感的是 R1,R4,R16,R17 等反应,氮气稀释的混合气的基元反应有着更大的敏感性系数。其中,基元反应 R1 和 R17 是重要的链分支反应,能够产生大量的活性自由基,这些由链分支反应产生的自由基最后将使整个化学反应过程加快。反应 R16 是链终止反应,它在反应过程中不断消耗自由基 H,降低总体化学反应活性。而 R4 是一个链传播反应,它起到传播自由基的作用。三体反应 R15 的敏感性系数在氮气稀释和氩气、氦气稀释的情况下出现了相反的变化,当氮气和氩气稀释的时候,R15 是促进反应,当氮气稀释的时候,R15 是抑制反应。通过改变机理 thermo 文件中的氮气热物性参数与氩气参数一致,氮气稀释混合气的 R15 则变为了促进反应,同样的将氩气参数改为与氮气一致,氩气稀释的混合气中 R15 也变为了抑制反应。这主要是由于氮气分子双原子分子结构不同于氩气、氩气单原子分子结构而引起的热物性参数不同引起的。

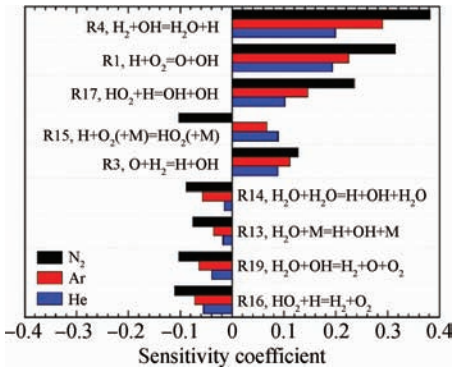


图 6 不同稀释气种类的敏感性分析
($T_u=373\text{ K}$, $p_u=0.3\text{ MPa}$, $\phi=1.0$, $D=6$)
Fig. 6 Sensitivity analysis on different diluents
($T_u=373\text{ K}$, $p_u=0.3\text{ MPa}$, $\phi=1.0$, $D=6$)

如图 3 所示,使用氦气稀释时,不同初始压力下层流燃烧速度随当量比的变化曲线在当量比为 1.0~3.0 之时出现了交叉现象,与通常认为的层流燃烧速度单调地随初始压力上升而降低不一致。层流燃烧速度随初始压力升高而升高的现象

在当量比为 1.5 附近最为明显,故对当量比为 1.5 时不同初始压力下层流燃烧速度进行敏感性分析,如图 7 所示。

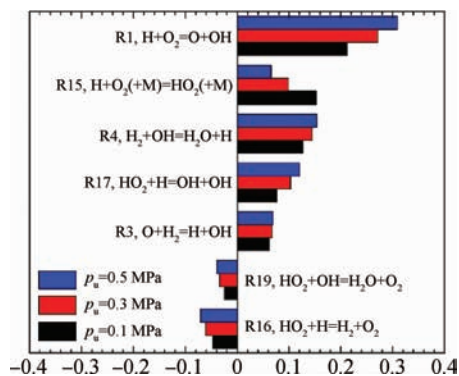


图 7 不同初始压力的敏感性分析 ($T_u = 373 \text{ K}$, $\phi = 1.5$)

Fig. 7 Sensitivity analysis on different initial pressures

($T_u = 373 \text{ K}$, $\phi = 1.5$)

从图 7 中可以看出,对燃烧过程最敏感的几个基元反应依然是 R1, R4, R16, R17, 但是多了 R15 这个三体反应。随着初始压力的升高,链分支反应 R1 和 R17 的敏感性增加,链传播反应 R4 敏感性增加,而链终止反应 R15 的敏感度降低。R1, R3, R4 构成一个反应圈,每消耗一个 H 生成 3 个 H, 而 R15 联合 R16, R17 则不断消耗 H。R1 和 R15 本身存在对 H 的竞争,从敏感性分析图上可以看出, R1, R3, R4 的敏感性都在增加,而 R15 的敏感性却在减弱,因此在当前工况下,链分支反应 R1 在竞争中应该是占优的,层流燃烧速度会随初始压力升高而增加。胡二江等^[18]在更高压力下对这些反应的敏感性进行了分析,并指出在更高压力下, R15 将变为抑制反应进行,并和链终止反应 $\text{H} + \text{OH} (+\text{M}) = \text{H}_2\text{O} (+\text{M})$ 共同作用使反应总级数随初始压力升高而降低,使化学反应过程变慢。这与在更高初始压力下层流燃烧速度随初始压力升高而降低的现象^[11,19]有相似的地方。R1 和 R15 的反应速率和初始压力的关系如图 8 所示,从图中可以看出两个反应的反应速率都随着初始压力的升高而升高,但 R1 的反应速率始终比 R15 的反应速率更快。由此可以看出在当量比为 1.5 附近, R15 敏感性随初始压力升高而减小的趋势和氢气层流燃烧速度随初始压力升高而增加的现象一致。

值得指出的是, Kuznetsov 等^[19]也提及到这种层流燃烧速度的非线性变化规律,将其归结于 Burke 等^[12]提出的链分支反应向链终止反应的转变,即为 R1 与 R15 之间的反应竞争,从敏感性

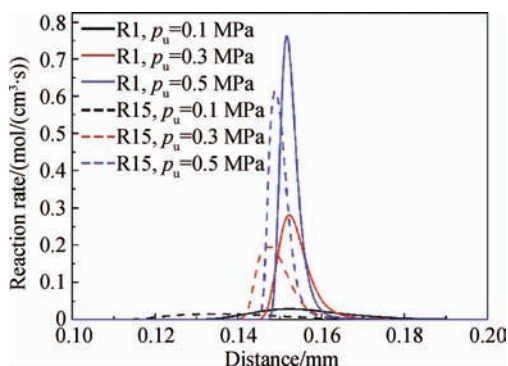


图 8 不同初始压力下 R1 和 R15 反应速率

($T_0 = 373 \text{ K}$, $\phi = 1.5$)

Fig. 8 Reaction rates of R1 and R15 on different initial pressures ($T_0 = 373 \text{ K}$, $\phi = 1.5$)

分析图中也看出了 R1 与 R15 之间此消彼长的现象,进一步验证了这个解释。

3 结 论

三种稀释气稀释的混合气层流燃烧速度按照氮气、氩气、氦气的顺序递增。随着稀释系数增加,层流燃烧速度降低,而且在实验中只有氦气稀释的混合气得到稀释系数 $D=4$ 时的层流燃烧速度。三体反应 R15 在氮气稀释的氛围下是抑制反应,而在氩气和氦气稀释的情况下是促进反应。这是由氮气与氩气、氦气不同的分子结构导致的不同热物性参数引起的。

氢气/氧气/氦气混合气层流燃烧速度峰值出现在当量比为 1.5~1.8 之间。在当量比小于 1.0 和大于 3.0 的时候,层流燃烧速度随初始压力升高而降低,而当量比处于 1.0 和 3.0 之间的时候,层流燃烧速度随初始压力升高而呈现非单调变化的现象,这种现象与 R15 敏感性的变化一致,应该是由 R1 和 R15 对 H 的竞争引起的。

参考文献:

- [1] 刘万龙,刁鹏,王翀,等.小型气氢氧火箭发动机试验系统设计研究[J].航空动力学报,2010,25(7):1646-1652.
LIU Wanlong, DIAO Peng, WANG Chong, et al. Test system design for small H_2/O_2 rocket engine[J]. Journal of Aerospace Power, 2010, 25(7): 1646-1652. (in Chinese)
- [2] 胡国新,王明磊,李艳红,等.过量空气系数对微腔内氢气预混燃烧效率的影响[J].上海交通大学学报,2004,38(7):1177-1180.
HU Guoxin, WANG Minglei, LI Yanhong, et al. Influence of hydrogen-air ratio on combustion efficiency for micro-combustor[J]. Journal of Shanghai Jiao Tong University, 2004, 38(7): 1177-1180. (in Chinese)

- [3] 刘娟,潘余,刘卫东,等.超燃冲压发动机双凹腔燃烧室氢气燃烧流场分析[J].航空动力学报,2009,24(11):2501-2505.
- LIU Juan,PAN Yu,LIU Weidong,et al. Analysis of the hydrogen combustion field in scramjet dual-cavity combustor[J]. Journal of Aerospace Power,2009,24(11):2501-2505. (in Chinese)
- [4] WESTBROOK C K,DRYER F L. Chemical kinetic modeling of hydrocarbon combustion[J]. Progress in Energy and Combustion Science,1984,10(1):1-57.
- [5] HU E,HUANG Z,HE J,et al. Experimental and numerical study on laminar burning characteristics of premixed methane-hydrogen-air flames[J]. International Journal of Hydrogen Energy,2009,34(11):4876-4888.
- [6] TANG C,HE J,HUANG Z,et al. Measurements of laminar burning velocities and Markstein lengths of propane-hydrogen-air mixtures at elevated pressures and temperatures[J]. International Journal of Hydrogen Energy,2008,33(23):7274-7285.
- [7] 谢永亮,王金华,张猛,等.CO₂和H₂O对合成气层流燃烧速度的影响[J].工程热物理学报,2014,35(6):1248-1251.
- XIE Yongliang,WANG Jinhua,ZHANG Meng,et al. Different effects of CO₂ and H₂O dilution on laminar burning velocities of syngas/air mixture[J]. Journal of Engineering Thermophysics,2014,35(6):1248-1251. (in Chinese)
- [8] Zheng Z L,Liang Z L. Reduced chemical kinetic model of a gasoline surrogate fuel for HCCI combustion[J]. Acta Physico-Chimica Sinica,2015,31(7):1265-1274.
- [9] 周鹏.柴油机燃烧机理及缸内燃烧过程仿真研究[D].哈尔滨:哈尔滨工程大学,2012.
- ZHOU Peng. Research of diesel engine combustion mechanism and combustion process in-cylinder simulation[D]. Harbin:Harbin Engineering University,2012. (in Chinese)
- [10] 曾文,陈潇潇,刘静忱,等.一种航空煤油数值模拟替代燃料的化学反应简化机理[J].航空动力学报,2012,27(3):536-543.
- ZENG Wen,CHEN Xiaoxiao,LIU Jingchen,et al. Reduced chemical reaction mechanism of a surrogate fuel for kerosene[J]. Journal of Aerospace Power,2012,27(3):536-543. (in Chinese)
- [11] TSE S D,ZHU D L,LAW C K. Morphology and burning rates of expanding spherical flames in H₂/O₂/inert mixtures up to 60 atmospheres[J]. Proceedings of the Combustion Institute,2000,28(2):1793-1800.
- [12] BURKE M P,CHAOS M,DRYER F L,et al. Negative pressure dependence of mass burning rates of H₂/CO/O₂/diluent flames at low flame temperatures[J]. Combustion and Flame,2010,157(4):618-631.
- [13] HUANG Z,YONG Z,KE Z,et al. Measurements of laminar burning velocities for natural gas-hydrogen-air mixtures[J]. Combustion and Flame,2006,146(1/2):302-311.
- [14] FRANKEL M L,SIVASHINSKY G I. On quenching of curved flames[J]. Combustion Science and Technology,1984,40(5/6):257-268.
- [15] CHEN Z. On the extraction of laminar flame speed and Markstein length from outwardly propagating spherical flames[J]. Combustion and Flame,2011,158(2):291-300.
- [16] BURKE M P,CHAOS M,JU Y,et al. Comprehensive H₂/O₂ kinetic model for high-pressure combustion[J]. International Journal of Chemical Kinetics,2012,44(7):444-474.
- [17] LI J,ZHAO Z,Andrei K,et al. An updated comprehensive kinetic model of hydrogen combustion[J]. International Journal of Chemical Kinetics,2004,36(10):566-575.
- [18] 胡二江.天然气—氢气混合燃料结合EGR的发动机和预混层流燃烧研究[D].西安:西安交通大学,2010.
- HU Erjiang. Study on engine and premixed laminar combustion fueled with natural gas-hydrogen blends combined with EGR[D]. Xi'an:Xi'an Jiaotong University,2010. (in Chinese)
- [19] KUZNETSOV M,REDLINGER R,BREITUNG W,et al. Laminar burning velocities of hydrogen-oxygen-steam mixtures at elevated temperatures and pressures[J]. Proceedings of the Combustion Institute,2011,33(1):895-903.

(编辑:陈越)