

文章编号: 1000-8055(2022)09-1886-10

doi: 10.13224/j.cnki.jasp.20210409

天然气氧化特性的实验与数值计算

田雨师¹, 曾文¹, 陈潇潇¹, 胡二江², 刘靖², 马宏宇³

(1. 沈阳航空航天大学 航空发动机学院, 沈阳 110136;

2. 西安交通大学 能源与动力工程学院 动力工程多相流国家重点实验室, 西安 710049;

3. 中国航发沈阳发动机研究所, 沈阳 110015)

摘 要: 在流动管反应器中对压力为 0.1 MPa、温度范围为 500~1 850 K、当量比分别为 0.5、1.0 与 3.5 的工况条件下天然气(90% 甲烷/7% 乙烷/3% 丙烷, 体积分数)的氧化过程进行了实验测试。同时, 通过全局敏感性分析方法, 构建了天然气的简化反应动力学机理(38 组分和 149 反应), 并对天然气的氧化特性进行了数值计算。结果表明: 随着当量比增大, 燃料发生氧化反应的起始温度与终止温度逐渐升高, CO 生成与消耗完全对应的反应温度逐渐升高, NO 的生成量逐渐降低。天然气的简化反应机理可以很好地预测天然气氧化过程中主要组分摩尔分数随温度变化的整体趋势; 但是在 C_3H_8 、 C_2H_2 、NO、 NO_2 的起始反应温度或摩尔分数峰值的预测上与相应实验值存在差异。

关 键 词: 天然气; 氧化特性; 流动管反应器; 简化反应机理; 全局敏感性分析

中图分类号: V231.2; TK401

文献标志码: A

Experiment and simulation on oxidation characteristics of natural gas

TIAN Yushi¹, ZENG Wen¹, CHEN Xiaoxiao¹, HU Erjiang²,

LIU Jing², MA Hongyu³

(1. School of Aero-engine,

Shenyang Aerospace University, Shenyang 110136, China;

2. State Key Laboratory of Multiphase Flow in Power Engineering,

School of Energy and Power Engineering,

Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

3. Shenyang Engine Research Institute,

Aero Engine Corporation of China, Shenyang 110015, China)

Abstract: The oxidation of natural gas (90% methane/7% ethane/3% propane, volume fraction) was experimentally tested in the flow reactor under the conditions of the pressure of 0.1 MPa, the temperature range of 550—1 850 K, the equivalence ratios of 0.5, 1.0 and 3.5. Meanwhile, through the global sensitivity analysis, the reduced reaction kinetic mechanism of the natural gas (including 38 species and 149 reactions) was established, and the oxidation characteristics of the natural gas were simulated. The results showed that, with the increase of equivalent

收稿日期: 2021-08-01

基金项目: 国家科技重大专项(2017-III-0006-0031)

作者简介: 田雨师(1996—), 女, 硕士生, 主要从事碳氢燃料基础燃烧特性研究。

通信作者: 曾文(1977—), 男, 教授, 博士, 主要从事发动机先进燃烧技术研究。E-mail: zengwen928@sohu.com

引用格式: 田雨师, 曾文, 陈潇潇, 等. 天然气氧化特性的实验与数值计算[J]. 航空动力学报, 2022, 37(9): 1886-1895. TIAN Yushi, ZENG Wen, CHEN Xiaoxiao, et al. Experiment and simulation on oxidation characteristics of natural gas[J]. Journal of Aerospace Power, 2022, 37(9): 1886-1895.

ratio, the starting and ending temperatures of fuel oxidation reaction gradually rose, the reaction temperature of CO generation and complete consumption raised, and the production of NO reduced. The reduced reaction mechanism of the natural gas had a good prediction of the variational trends of the mole fractions of the main species with temperature during the oxidation of the natural gas. However, there existed still some deviations in the prediction of the starting reaction temperature or the peak mole fractions of some species, such as C_3H_8 , C_2H_2 , NO and NO_2 .

Key words: natural gas; oxidation characteristics; flow reactor;
reduced reaction mechanism; global sensitivity analysis

天然气输运方便,污染小,目前广泛应用于轻型与重型燃气轮机中。天然气燃烧过程中产生的主要污染物是 NO_x 、CO和UHC(未燃碳氢化合物),从燃烧反应动力学原理上看,控制 NO_x 污染物生成量的途径有控制燃烧区燃烧反应温度、降低反应区氧/氮浓度、缩短氮-氧混合物在高温区的驻留时间、控制火焰锋面前的当量比、控制燃料的低温反应等。但是,控制CO、UHC等污染物生成量的途径却要提高燃烧区燃烧反应温度、提高反应区氧浓度、延长反应流体在高温区的驻留时间。因此,控制 NO_x 污染物和控制CO、UHC等污染物生成量在燃烧反应动力学原理上是相互矛盾的^[1-6]。国内外学者在研究燃气轮机低污染燃烧组织方法时,都是综合考虑各主要影响因素,在各参数间寻找可接受的平衡点,使燃烧室的综合性能满足要求。Almeida等^[2]对两级旋流燃烧室内的污染物生成规律进行了研究,分析了全局当量比、燃料喷射雷诺数和旋流器叶片角度对污染物(CO、UHC、 NO_x)排放的影响。结果表明,较高的旋流器角度和较小的雷诺数可以增强二级燃烧室内的回流强度,可以减小CO和UHC的排放,但是 NO_x 排放会增加;在当量比增加时,CO和UHC排放减少, NO_x 排放量增加。Jarpala等^[7]实验研究了非预混旋流燃烧器在不同旋流强度条件下的温度场分布、火焰动力学特性和污染物排放。研究结果表明,旋流强度会影响燃烧稳定区的大小和热释放率,进而影响污染物的生成与排放水平,较强的旋流不仅可以增强已燃气体的反向流动,有助于火焰的稳定,还能够增强空气与燃料之间的掺混,有助于降低 NO_x 排放。我国由于针对天然气燃气轮机开展的低 NO_x 排放燃烧技术研究起步较晚,对小尺寸高容积热负荷燃烧室的严苛尺寸限制带来的巨大挑战认识不足,致使我国的天然气燃气轮机没有低排放燃烧技术可用^[8]。因此,针对目前还没有有效掌握的天然气燃气轮

机燃烧室内污染物生成机理与抑制方法开展天然气氧化特性研究,获得天然气氧化过程中主要组分与污染物的生成特性,将为阐明燃烧室内主要特征区域污染物生成路径,获得污染物综合抑制方法提供理论基础与技术支持。

目前,碳氢燃料氧化特性的实验测试装置主要有流动管反应器^[9-10]和射流搅拌器^[11-14]。相对于射流搅拌器,流动管反应器可以达到更高的实验温度,且可获得碳氢燃料氧化过程中 NO_x 的生成特性。郑玮琳等^[15]在射流搅拌器中对甲烷在不同工况条件下的低温氧化特性进行了实验测试,获得了不同当量比、氧气体积分数、 CO_2 与 H_2O 含摩尔分数下甲烷低温氧化过程中主要组分浓度随温度的变化趋势。殷阁媛^[16]利用射流搅拌器结合气相色谱和取样分析技术,获得了2,4,4-三甲基-1-戊烯低温氧化过程中燃料及重要中间产物浓度随温度的变化趋势,优化了该燃料的化学反应动力学模型,并采用该化学反应动力学模型对该燃料的低温氧化特性进行了数值计算。Liu等^[17]在射流搅拌器中对RP-3航空煤油与其模型燃料的低温氧化特性进行了实验测试,获得了当量比为2.0、初始压力为0.1 MPa条件下RP-3航空煤油与其模型燃料低温氧化过程中主要组分浓度随温度的变化趋势。Curran等^[18]在流动管反应器中对正庚烷的氧化过程进行了实验测试,获得了不同工况条件下正庚烷氧化过程中主要组分浓度随温度的变化趋势,并与数值计算结果进行了对比分析。Bakali等^[19]在射流搅拌器中对天然气的氧化特性进行了实验测试,天然气主要为甲烷/乙烷混合气。同时,构建了天然气的详细化学反应机理,并对比分析了天然气氧化特性的数值计算与实验测试结果。Hunter等^[20]在流动管反应器对乙烷在当量比为0.2、压力分别为300、600 kPa和1 000 kPa条件下的氧化过程进行了实验测试,获得了 H_2 、CO、 CO_2 、 CH_4 、 C_2H_6 等组分的浓度变化趋势,并构

建了乙烷氧化的详细化学动力学模型。目前,碳氢燃料在射流搅拌器中的低温氧化特性的实验测试开展较多,在流动管反应器中的氧化特性的实验测试开展较少;同时,天然气在流动管反应器中的氧化特性的实验测试鲜有报道。

本文在流动管反应器中对当量比分别为 0.5、1.0、3.5,温度范围为 500~1 850 K,压力为 0.1 MPa 条件下天然气(90% 甲烷/7% 乙烷/3% 丙烷,体积分数)的氧化特性进行实验测试,获得了天然气氧化过程中多种重要中间组分以及主要污染物摩尔分数随温度的变化趋势;同时,基于全局敏感性分析方法,构建了天然气的化学反应简化机理,并采用该反应机理完成了天然气氧化特性的数值计算,并与相应实验数据进行了对比分析。

1 实验装置

流动管反应器实验系统如图 1 所示,主要包括进气系统、加热系统、流动管反应器和检测系统。流动管反应器如图 2 所示,长为 100 cm、直径

为 48 mm 的管体,材料为刚玉(Al_2O_3),可耐温高达 2 000 K,并能有效减少壁面反应和催化反应。

天然气、氧气和氮气由氮气稀释,气体流速由美国 MKS 质量流量控制计精确控制,气体在进入反应器前混合均匀,混合气从流动管反应器一端进入,整个管体内部保持定压的实验条件。

滞留时间随温度改变发生变化,滞留时间与温度的关系为

$$\tau = V \left(v \frac{T}{298.15} \right)^{-1} \quad (1)$$

式中 τ 为滞留时间(s); v 为标况下的流量(m^3/s); V 为实验段体积(m^3); T 为流动管反应器温度(K)。

加热系统包括预加热系统和实验段加热。对反应段之前的管路利用加热带和温度控制器进行预加热,可以减小反应段内的温度梯度。在反应段后的管路设定同样的温度,避免剩余反应物和产物在管道内液化,使测得的产物摩尔分数偏小,同时防止堵塞气相色谱仪(GC)进样口。反应段

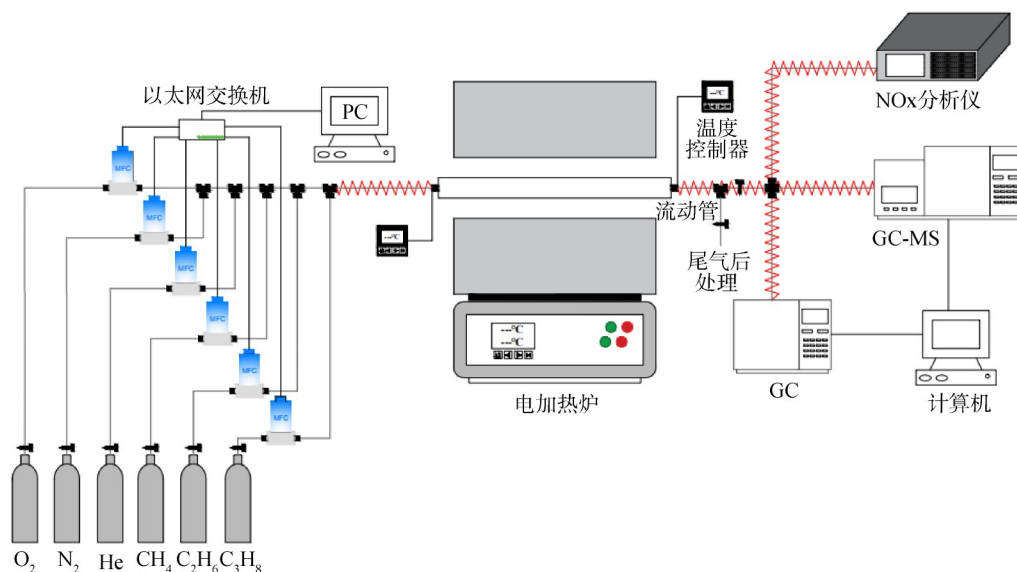


图 1 实验系统布置图

Fig.1 Schematic diagram of the experimental facility



图 2 流动管反应器实图

Fig.2 Picture of the flow reactor

的温度由高温管式气氛炉控制,该电炉可以稳定提供从 298~1 900 K 的温度环境,并且能够长时间保持稳定的温度。

检测系统主要由 GC 和气质联用仪 (GC-MS) 配合组成,氧化产物通过不锈钢管连接到 GC 入口与六通阀相连,氦气作为载气,通过切换六通阀使样品进入 GC 中,利用检测器进行定性定量分析。两台 GC 分别装备有氢火焰离子检测器 (FID) 和热导检测器 (TCD) 来进行采样和分析。CO、CO₂、H₂ 等无机物通过毛细色谱柱 (PLOT-Q) 配合 TCD 检测, H₂O 通过填充柱 (porapak N) 配合 TCD 检测, C₁~C₄ 轻烃化合物通过毛细色谱柱 (PLOT-Q) 配合 FID 检测, C₅~C₈ 化合物通过毛细色谱柱 (HP-5) 配合 FID 检测, NO、NO₂ 则通过氮氧化物分析仪检测。为保证实验的可靠性和重复性,同工况条件下每个实验点至少采样 3 次。FID 和 TCD 的检测极限分别是 0.1 mg/L 和 10 mg/L, 各组分摩尔分数测量误差为 ±8%。

2 反应动力学模型

本文采用的天然气详细反应机理为 Aramco Mechanism 2.0, 该机理包含 493 组分和 2 716 反应。Metcalf 等^[21]基于最新的实验和理论工作构建了 C₁~C₂ 碳氢燃料和含氧燃料的详细反应机理, 形成 Aramco Mechanism 1.0。Keromnes 等^[22]和 Burke 等^[11]分别对氢气和甲醇子机理进行了更新, 进一步改善了该机理的预测性能。Burke 等^[11]、Zhou 等^[23]和 Li 等^[24]向该机理加入丙烯、异丁烯和 1-丁烯子反应机理, 形成了 Aramco Mechanism 2.0。虽然 Zhou 等^[25]在 Aramco Mechanism 2.0 的基础上加入了 1,3-丁二烯的子机理形成了 Aramco Mechanism 3.0, 但是考虑到本文中天然气的主要成分为甲烷、乙烷和丙烷, 并且 Aramco Mechanism 3.0 无法计算丙烷燃料, 因此本文选择 Aramco Mechanism 2.0 作天然气的化学反应详细机理。通过宽工况范围条件下实验和预测结果的对比分析表明, Aramco Mechanism 2.0 可以很好地预测甲烷、乙烷以及甲烷/乙烷混合物的着火延迟时间、层流燃烧速度和氧化过程中的主要组分摩尔分数变化趋势。

敏感性分析是一种进行详细反应机理简化的有效方法。以往大量的研究已经表明, 使用敏感性分析可以获得结构紧凑、性能可靠的简化机理。

但是敏感性分析的计算量较大, 通常需要和其他方法耦合使用以降低计算量。另外, 以往的敏感性分析仅针对单个组分和反应进行, 无法捕捉组分或反应之间的耦合关系。为了解决该问题, 本文使用 Morris 方法^[26]执行全局敏感性分析以识别反应或组分之间的耦合关系。

在 Morris 方法中, 将标准化后的反应速率常数 x_i 离散为 $(0, 1/(p-1), 2/(p-1), \dots, 1)$, 其中 p 为一个小的偶数, 本文设置为 6。随后, 随机生成一组 x , 并计算简化目标的预测值 Y 。随后, 将 x 中的每个元素一个接一个地增加 Δ , $\Delta = 1/(p-1)$, 并再次计算简化目标的预测值 Y 。第 i 个元素 x_i 对第 j 个简化目标 Y_j 的初始影响为

$$d_{ij}(x) = \frac{Y(x_1, x_2, \dots, x_i + \Delta, x_{i+1}, \dots, x_n) - Y_j(x)}{\Delta} \quad (2)$$

经过 r 次运算, 可获得平均效果

$$\bar{d}_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^r |d_{ij}^l|}{r} \quad (3)$$

和方差

$$\sigma_{ij}^2 = \frac{r \sum_{l=1}^r (d_{ij}^l)^2 - \left(\sum_{l=1}^r d_{ij}^l \right)^2}{r(r-1)} \quad (4)$$

式中 $\bar{d}_{ij}$ 越大表明第 i 个元素的扰动对第 j 个简化目标预测值的影响越大, σ_{ij} 越大说明第 i 个元素与第 j 个简化目标的预测值存在更强的非线性关系或者第 i 个元素与其他元素存在更强的耦合关系。为了降低计算量, 本文以组分为目标进行简化。对于所有包含第 i 个组分的反应:

$$x_i = x_n^i, \quad n = 1, 2, \dots, m_i \quad (5)$$

式中 m_i 为包含第 i 个组分的反应数目。为了公平对待所有的组分, 所有反应的不确定范围均设置为 2。

第 i 个元素的移除对第 j 个简化目标预测值的影响由敏感性系数计算

$$S_{ij} = \frac{|Y_{i,j} - Y_j|}{Y_j} \quad (6)$$

式中 $Y_{i,j}$ 表示移除第 i 个组分的简化反应机理对第 j 个简化目标的预测值, Y_j 表示详细反应机理对第 j 个简化目标的预测值。 S_{ij} 越大表明移除第 i 个组分对第 j 个简化目标预测值的影响越大。

每个组分的重要性由下式决定:

$$\xi_j = \min \left[\min(\text{rank } S_{ij}), \min(\text{rank } \sigma_{ij}) \right] \quad (7)$$

式中 S_{ij} 或 σ_{ij} 越大, 排序越小。基于 ξ_j , 从大到小逐渐删除组分, 并计算相对误差, 保证相对误差不超过 10%, 获得最终的简化反应机理。相对误差由下式计算:

$$e_r = \max \left(\frac{|Y'_i - Y_i|}{Y_i} \right) \quad (8)$$

以前的研究发现, 压力和当量比对最终简化反应机理的影响较小, 而温度明显影响最终简化反应机理的规模。因此, 当前的简化目标包括温度范围为 900~1 200 K、压力为 0.1 MPa、当量比为 1.0 工况下天然气氧化过程中燃料、CO、CO₂、H₂O、C₂H₄ 和 CH₂O 的组分摩尔分数随温度的变化趋势以及温度范围为 900~1 500 K、压力为 2 MPa、当量比为 1.0 工况下天然气的着火延迟时间。为了降低计算量, 首先对甲烷的详细反应机理进行简化; 随后, 对乙烷的详细反应机理进行简化, 且在简化过程中保持甲烷简化反应机理不变。由于天然气中丙烷的体积分数较低, 仅为 3%, 为降低简化反应机理规模, 未将丙烷作为简化目标。另外, 针对着火延迟时间和组分摩尔分数获得的简化反应机理无法预测层流燃烧速度。为改善简化反应机理对层流燃烧速度的预测精度, 以层流

燃烧速度为目标进行敏感性分析, 识别重要组分, 并包含在最终的简化反应机理中。

通过上述简化过程, 获得最终的天然气简化反应机理, 包含 38 种组分和 149 个反应。

3 结果与分析

在流动管反应器中测量了压力为 0.1 MPa、当量比分别为 0.5、1.0 和 3.5、温度范围为 500~1 850 K 条件下天然气氧化过程中主要组分的摩尔分数。同时, 分别采用天然气的详细反应机理和本文构建的简化反应机理, 利用 Chemkin-pro 软件中的 PFR(plug flow reactor)模块对天然气的氧化特性进行数值计算, 并与相应实验数据进行了对比分析。

不同当量比下天然气中各组分、O₂、N₂ 与 He 的摩尔分数如表 1 所示。当量比为 3.5 时, 由于高温下天然气会进行剧烈的裂解反应产生大量碳粉, 从而导致实验管路严重堵塞, 因此, 当量比为 3.5 时, 本文只进行了温度 1 400 K 以下的天然气氧化特性的实验测试。

流动管反应器内温度曲线如图 3 所示, 各当量比下天然气氧化过程中主要组分的摩尔分数随温度的变化趋势如图 4、图 5 与图 6 所示。

表 1 实验工况及气体组成

Table 1 Experiment conditions and gas compositions

当量比	摩尔分数					
	CH ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₈	O ₂	N ₂	He
0.5	0.040 5	0.003 15	0.001 35	0.197 550	0.743 183	0.014 267
1.0	0.040 5	0.003 15	0.001 35	0.098 775	0.371 592	0.484 633
3.5	0.040 5	0.003 15	0.001 35	0.028 221	0.106 169	0.820 610

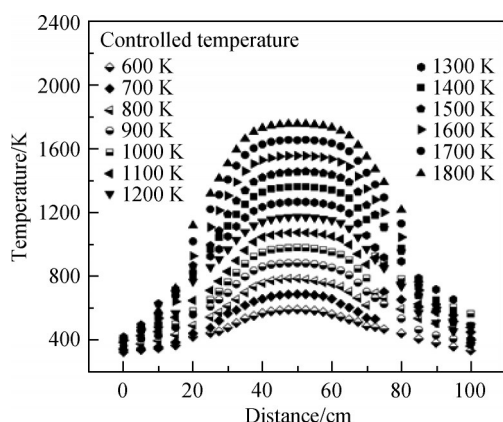
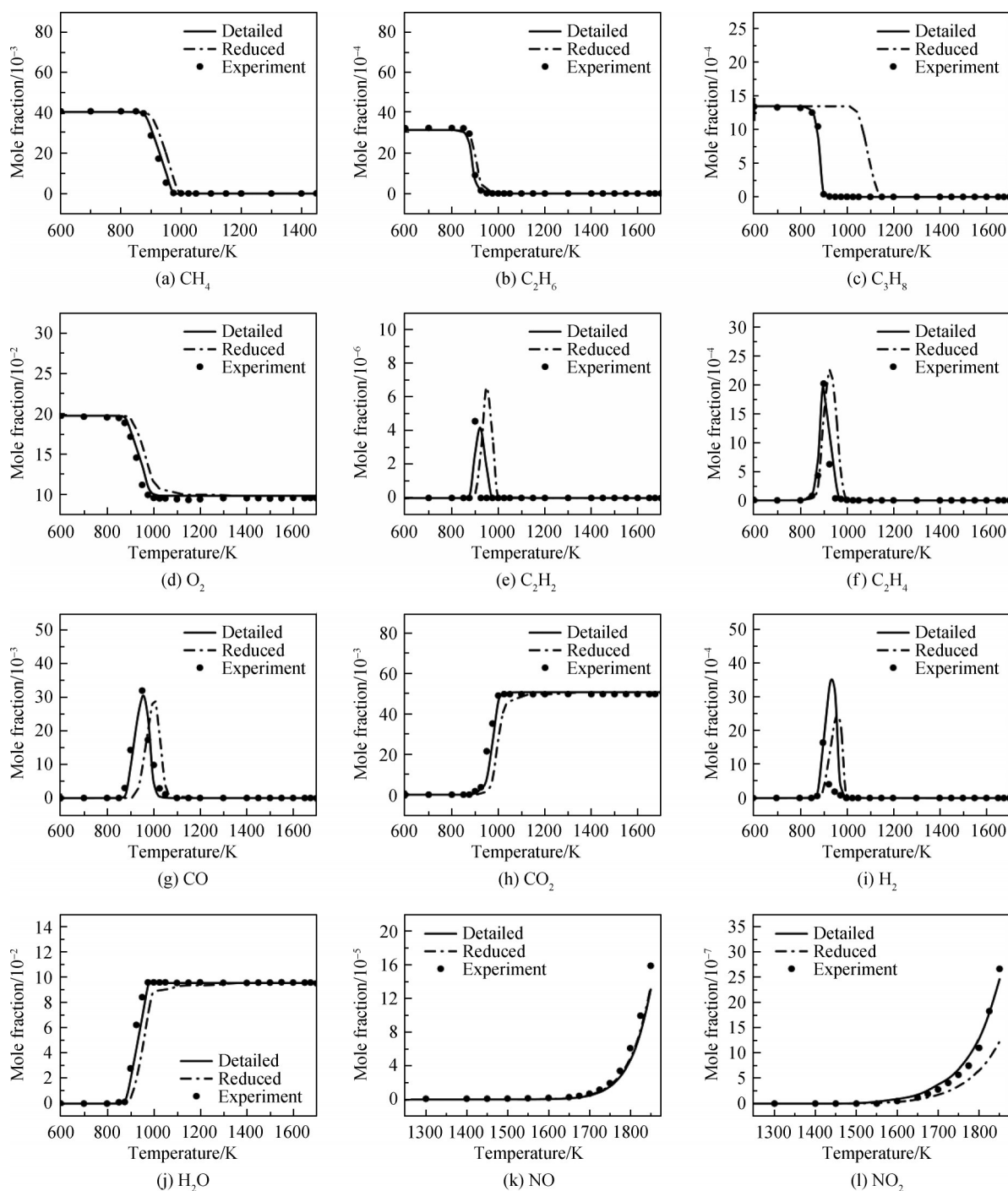


图 3 流动管反应器内的温度分布

Fig.3 Temperature profiles inside the flow reactor

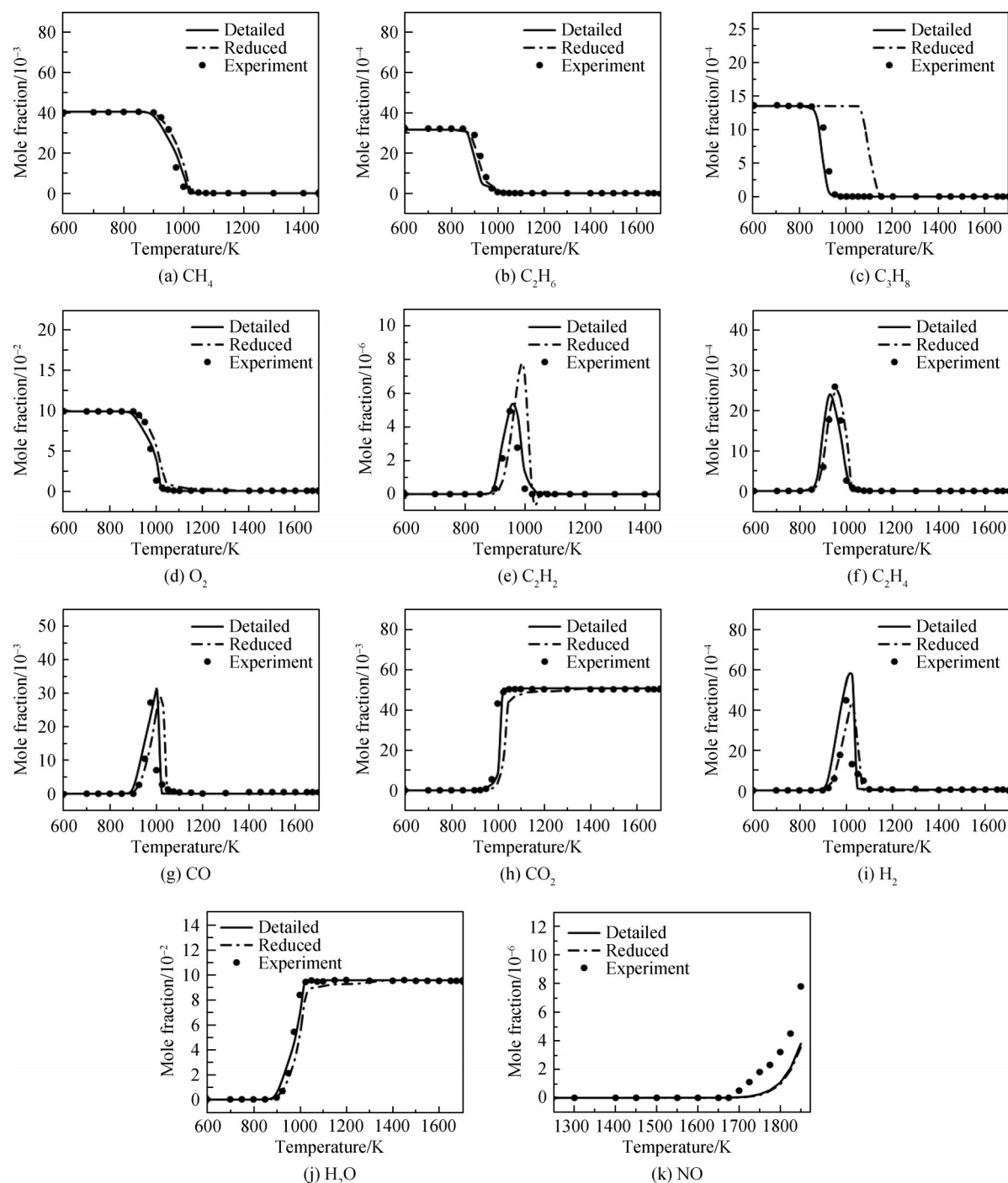
从图 4 可以看出, 当量比 $\phi=0.5$ 时, 燃料(甲烷、乙烷、丙烷)从 850 K 左右开始发生氧化反应, 摩尔分数急剧下降, 在 950 K 左右氧化反应基本完成, 燃料消耗殆尽。随着当量比增大, 如图 5 与图 6 所示, 燃料发生氧化反应的起始温度与终止温度逐渐升高。主要原因是碳氢燃料氧化过程中, 含氧自由基(OH 等)的摩尔分数随当量比的增大而减小、随反应温度的升高而增大; 含氧自由基是碳氢燃料氧化过程中燃料消耗的主要因素, 摩尔分数越高, 碳氢燃料发生氧化反应就会越快, 反应也会更完全; 当量比增大, 含氧自由基摩尔分数降低, 燃料发生氧化反应以及消耗完全所对应

图4 天然气氧化过程中的主要组分摩尔分数随温度的变化趋势($\phi=0.5$)Fig.4 Variation trend of the mole fraction of main species with temperature in the oxidation of nature gas ($\phi=0.5$)

的温度就会升高。

当量比为0.5、1.0时,如图4与图5所示,CO的摩尔分数随温度的变化趋势呈现出峰型结构,随温度的逐步升高,CO的摩尔分数先增大后降低至消耗完全。当量比为3.5时,如图6所示,CO的摩尔分数随温度的变化趋势并没有出现峰型结构;在反应温度为1000 K左右时CO开始生成,到1200 K左右时CO的摩尔分数达到峰值,然后

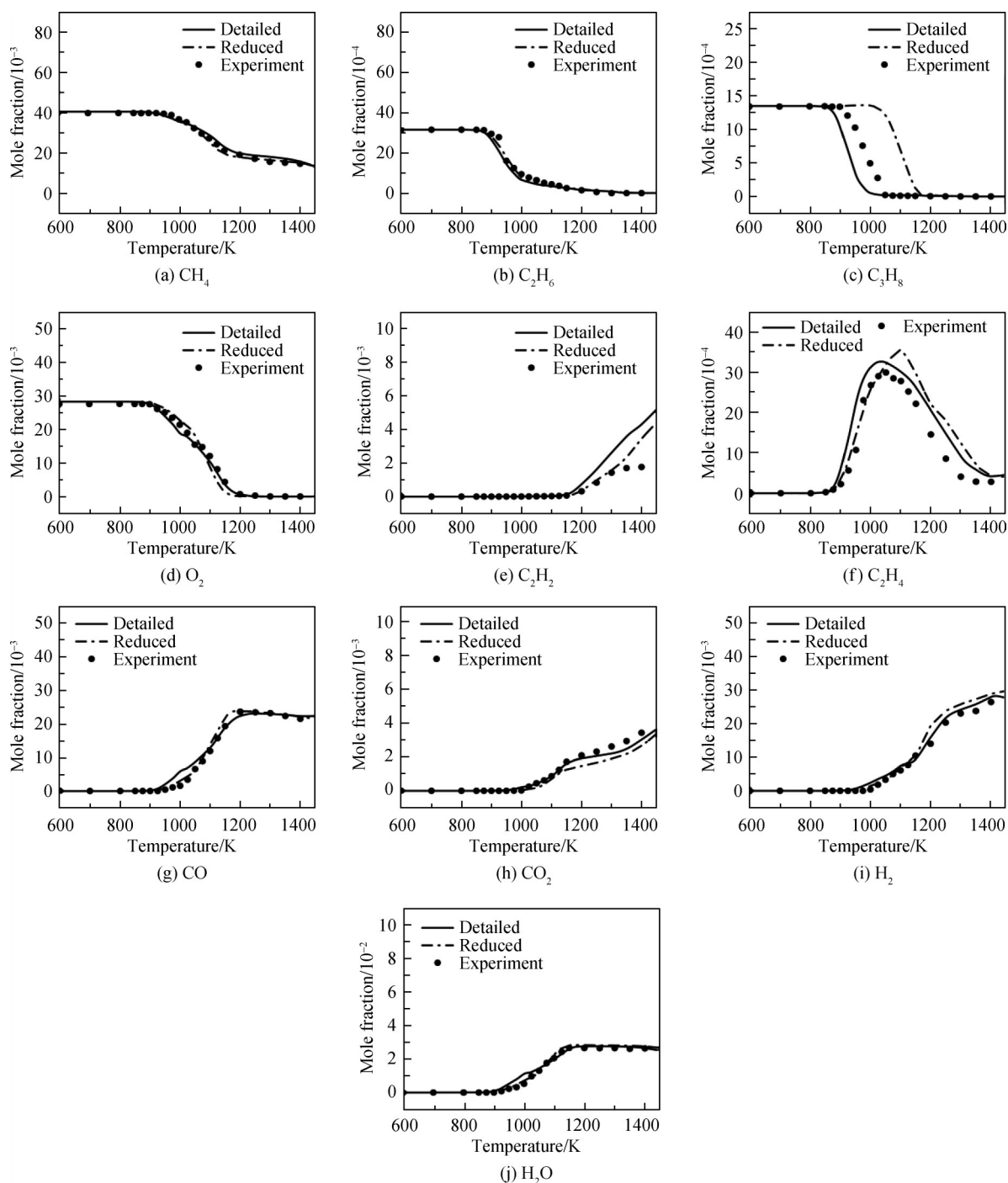
随温度的继续升高,CO的摩尔分数基本稳定,略有降低。当量比为0.5、1.0时,CO₂的摩尔分数随温度的变化趋势基本相似,随着反应温度的升高,在某一反应温度下其摩尔分数急剧升高,当达到峰值后,随反应温度的继续升高基本保持稳定。但是,当量比为3.5时,在反应温度为1000 K左右时开始有CO₂生成,且随着反应温度的继续升高,CO₂的摩尔分数保持持续增加趋势。CO为碳

图5 天然气氧化过程中的主要组分摩尔分数随温度的变化趋势($\phi=1.0$)Fig.5 Variation trend of the mole fraction of main species with temperature in the oxidation of nature gas ($\phi=1.0$)

氢燃料氧化过程中的一种主要中间产物,通过燃料裂解反应生成,随后与含氧自由基(OH等)发生消耗反应,生成 CO_2 ;当含氧自由基摩尔分数越高时,其转化为 CO_2 的程度就越彻底。从图4、图5与图6可以看出,随着当量比的增加,含氧自由基摩尔分数降低, CO 生成与消耗完全对应的反应温度就越高,其转化为 CO_2 就越不彻底。

NO_x 主要由 NO 与 NO_2 组成,其中 NO_2 占比

极小。从图4可以看出,当量比为0.5时,当反应温度为1700 K左右时, NO 与 NO_2 开始生成,并随反应温度的升高,其摩尔分数急剧升高。当量比为1.0时,在反应温度为1700 K左右时, NO 开始生成,并随反应温度的升高,其摩尔分数急剧升高,但与当量比为0.5时相比,其摩尔分数峰值急剧降低;同时,整个氧化反应过程中,没有检测到 NO_2 。当量比为3.5时,由于反应温度最高值为

图6 天然气氧化过程中的主要组分摩尔分数随温度的变化趋势($\phi=3.5$)Fig.6 Variation trend of the mole fraction of main species with temperature in the oxidation of nature gas ($\phi=3.5$)

1400 K,因此,NO与NO₂都没有检测到。

从图4与图5可以看出,当量比为0.5与1.0时,采用天然气的详细反应机理计算得到的燃料、O₂、C₂H₂、C₂H₄、CO、CO₂、H₂O等组分的摩尔分数随温度的变化趋势与相应实验值吻合较好;在H₂的摩尔分数随温度的变化趋势预测上,虽然整体趋势基本一致,但摩尔分数峰值的预测存在一定差异。当量比为0.5时,NO的摩尔分数随温度变

化趋势的计算值与实验值吻合较好,但是当量比为1.0时则存在差异。当量比为3.5时,从图6可以看出,采用天然气的详细反应机理计算得到的CH₄、C₂H₆、O₂、C₂H₄、CO、CO₂、H₂、H₂O等组分的摩尔分数随温度的变化趋势与相应实验值吻合较好;但是,在C₃H₈、C₂H₂的摩尔分数随温度的变化趋势预测上则存在一定差异。

采用本文构建的天然气简化反应机理计算得

到的上述各组分的摩尔分数随温度变化的整体趋势与详细反应机理的预测值以及相应实验数据吻合较好;但是,对于 C_3H_8 ,简化反应机理过高预测了其起始反应温度。由于天然气中 C_3H_8 的体积分数较低,为了降低简化反应机理规模,在详细反应机理简化时未以 C_3H_8 为目标进行简化,导致了该误差的出现。同时,简化反应机理在 C_2H_2 、NO(当量比为1.0时)、 NO_2 的预测上与相应实验值也存在差异。在下阶段的工作中,天然气的简化反应机理尚需进一步优化与完善

4 结 论

在流动管反应器中对压力为0.1 MPa、温度范围为500~1 850 K、当量比分别为0.5、1.0和3.5的工况条件下天然气的氧化特性进行了实验测试;同时,构建了天然气的简化反应机理,对天然气的氧化特性进行了数值计算,并与相应实验值进行了对比分析,得到如下结论:

1) 随着当量比增大,燃料发生氧化反应的起始温度与终止温度逐渐升高;CO生成与消耗完全对应的反应温度逐渐升高,其转化为 CO_2 的程度也越低;NO的生成量也逐渐降低。

2) 天然气的简化反应机理包含38个组分和149个反应。

3) 天然气的简化反应机理可以很好地预测天然气氧化过程中主要组分摩尔分数随温度变化的整体趋势;但是,在 C_3H_8 、 C_2H_2 、NO、 NO_2 的起始反应温度或摩尔分数峰值的预测上与相应实验值存在差异。

参考文献:

- [1] BULAT G, JONES W P, MARQUIS A J. NO and CO formation in an industrial gas-turbine combustion chamber using LES with the Eulerian sub-grid PDF method[J]. *Combustion and Flame*, 2014, 161(7):1804-1825.
- [2] ALMEIDA D S, LACAVA P T. Analysis of pollutant emissions in double-stage swirl chamber for gas turbine application[J]. *Energy Procedia*, 2015, 66:117-120.
- [3] LYRA S, CANT R S. Analysis of high pressure premixed flames using equivalent reactor networks for predicting NOx emissions[J]. *Fuel*, 2013, 107(9):261-268.
- [4] STARIK A M, KOZLOV V E, LEBEDEV A B, et al. Application of reactor net models for the simulation of gas-turbine combustor emissions[J]. *International Journal of Sustainable Aviation*, 2014, 1(1):43-57.
- [5] MOHAMED H, TICHA H B, MOHAMED S. Simulation of pollutant emissions from a gas-turbine combustor[J]. *Combustion Science and Technology*, 2004, 176(5/6):819-834.
- [6] FICHET V, KANNICHE M, PLION P, et al. A reactor network model for predicting NOx emissions in gas turbines[J]. *Fuel*, 2010, 89(9):2202-2210.
- [7] JARPALA R, BURLE N A, VOLETI M, et al. Effect of swirl on the flame dynamics and pollutant emissions in an ultra-lean non-premixed model gas turbine burner[J]. *Combustion Science and Technology*, 2017, 189(10):1832-1848.
- [8] 尉曙明, 索建秦. 航空衍生工业燃气轮机双燃料贫燃预混低污染燃烧技术[J]. *航空动力学报*, 2015, 30(9):2049-2057.
WEI Shuming, SUO Jianqin. Aero-derivative industrial gas turbine dual fuel lean premixed low emission combustion technology[J]. *Journal of Aerospace Power*, 2015, 30(9):2049-2057. (in Chinese)
- [9] ABIAN M, GIMENEZ-LOPEZ J, BILBAO R, et al. Effect of different concentration levels of CO_2 and H_2O on the oxidation of CO: experiments and modeling[J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2011, 33(1):317-323.
- [10] ABIAN M, ALZUETA M U, GLARBORG P. Formation of NO from N_2/O_2 mixtures in a flow reactor: toward an accurate prediction of thermal NO[J]. *International Journal of Chemical Kinetics*, 2015, 47(8):518-531.
- [11] BURKE S M, METCALFE W, HERBINET O, et al. An experimental and modeling study of propene oxidation: Part 1 speciation measurements in jet-stirred and flow reactors[J]. *Combustion and Flame*, 2014, 161(11):2765-2784.
- [12] GAO Z H, HU E J, XU Z H, et al. Low to intermediate temperature oxidation studies of dimethoxymethane/*n*-heptane blends in a jet-stirred reactor[J]. *Combustion and Flame*, 2019, 207:20-35.
- [13] BURKE U, METCALFE W K, BURKE S M, et al. A detailed chemical kinetic modeling, ignition delay time and jet-stirred reactor study of methanol oxidation[J]. *Combustion and Flame*, 2016, 165:125-136.
- [14] 高振华. 二甲氧基甲烷/正庚烷混合燃料的宽温度范围实验与反应动力学模型研究[D]. 西安: 西安交通大学, 2020.
GAO Zhenhua. Experimental and kinetic modeling study of dimethoxymethane/*n*-heptane blends in wide temperature range[D]. Xi'an: Xi'an Jiaotong University, 2020. (in Chinese)
- [15] 郑玮琳, 庞历瑶, 张世杰, 等. 组分变化对甲烷氧化特性影响[J]. *航空动力学报*, 2021, 36(1):15-24.
ZHENG Weilin, PANG Liyao, ZHANG Shijie, et al. Effect of composition variance on methane oxidation characteristics[J]. *Journal of Aerospace Power*, 2021, 36(1):15-24. (in Chinese)
- [16] 殷阁媛. 2,4,4-三甲基-1-戊烯基础燃烧特性和化学反应动力学机理研究[D]. 西安: 西安交通大学, 2019.
YIN Geyuan. Comprehensive chemical kinetic modeling study on 2,4,4-trimethyl-1-pentene combustion[D]. Xi'an Jiaotong University, 2019. (in Chinese)
- [17] LIU Y X, YU D, TIAN D X, et al. An experimental and modeling study of oxidation of 1,2,4-trimethylcyclohexane

- with JSR[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2019, 37(1):437-444.
- [18] CURRAN H J, GAFFURI P, PITZ W J, et al. A comprehensive modeling study of *n*-heptane oxidation[J]. Combustion and Flame, 1998, 114(1/2):149-177.
- [19] BAKALI A E, DAGAUT P, PILLIER L, et al. Experimental and modeling study of the oxidation of natural gas in a premixed flame, shock tube, and jet-stirred reactor[J]. Combustion and Flame, 2004, 137(1):109-128.
- [20] HUNTER T B, LITZINGER T A, WANG H, et al. Ethane oxidation at elevated pressures in the intermediate temperature regime: experiments and modeling[J]. Combustion and Flame, 1996, 104(4):505-523.
- [21] METCALFE W K, BURKE S M, AHMED S S, et al. A hierarchical and comparative kinetic modeling study of C_1 - C_2 hydrocarbon and oxygenated fuels[J]. International Journal of Chemical Kinetics, 2013, 45(10):638-675.
- [22] KEROMNES A, METCALFE W K, HEUFER K A, et al. An experimental and detailed chemical kinetic modeling study of hydrogen and syngas mixture oxidation at elevated pressures[J]. Combustion and Flame, 2013, 160(6):995-1011.
- [23] ZHOU C W, LI Y, O'CONNOR E, et al. A comprehensive experimental and modeling study of isobutene oxidation[J]. Combustion and Flame, 2016, 167:353-379.
- [24] LI Y, ZHOU C W, SOMERS K P, et al. The oxidation of 2-butene: a high pressure ignition delay, kinetic modeling study and reactivity comparison with isobutene and 1-butene[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2017, 36(1):403-411.
- [25] ZHOU C W, LI Y, BURKE U, et al. An experimental and chemical kinetic modeling study of 1, 3-butadiene combustion: Ignition delay time and laminar flame speed measurements[J]. Combustion and Flame, 2018, 197:423-438.
- [26] MORRIS M D. Factorial sampling plans for preliminary computational experiments[J]. Technometrics, 1991, 33(2):161-174.

(编辑:陈越)