

燃料稀释对富氧空气/甲烷扩散火焰中氮氧化物生成的影响

赵黛青¹, 冯耀勋¹, 刘庆才¹, 山下博史²

(1. 中国科学院广州能源研究所, 广东 广州 510640;

2. 名古屋大学大学院工学研究科, 日本 名古屋 464-8603)

摘要: 本研究的目的是揭示富氧燃烧过程中的氮氧化物生成机理, 针对富氧火焰特性探讨 NO_x 抑制机制机理。文中以对向流扩散火焰为对象, 利用详细的基元反应动力学模型研究了燃料稀释对富氧空气/甲烷扩散火焰中氮氧化物生成的影响, 稀释剂为 N₂ 或 CO₂。结果表明, 随着燃料中稀释组分浓度的变化, 火焰结构和 NO 生成的决定机理显著变化; 同时发现, 随稀释剂 CO₂ 浓度增大, NO 的排放指数 EI_{NO} (Emission Index of NO) 单调减少, 随稀释剂 N₂ 稀释时 EI_{NO} 存在最大值。

关键词: 对向流扩散火焰; 燃料稀释; 氮氧化物

中图分类号: TK411.7 文献标识码: A

1 前言

富氧燃烧由于大大降低了空气中惰性气体氮气的含量使得燃烧效率显著提高, 具有火焰温度高、烟气热损失小、烟量减少等优点, 是一项具有良好开发前景的高效节能技术^[1-3]。然而, 富氧燃烧的火焰温度提高也促进了氮氧化物的生成, 在环境排放指标日趋严格的现状下, 没有相应的 NO_x 抑制技术, 这将会制约富氧燃烧技术的推广。

在富氧燃烧的研究方面, 国内已有富氧燃烧在节能降耗方面的应用性报道, 由文献可知用 27% 的富氧助燃可以节能 30%~50%^[4]。Beltrame 等人对对向流富氧扩散火焰中的氮氧化物和煤烟的生成做了研究^[5], 指出高温火焰中, 快速型 NO 生成机理对总的 NO_x 生成的贡献可能为负。Zhao 等人考虑详细基元反应模型解析了甲烷/富氧对向流扩散火焰, 计算中空气侧的氧浓度范围 10%~99%, 结果表明, 火焰结构随着氧浓度增加变化很大, 氧浓度增大后, NO 生成的决定机制由快速型转变为热力型, NO

生成大量增加^[6]。

本研究的目的是为揭示富氧燃烧过程中的氮氧化物生成机理, 针对富氧火焰特性探讨 NO_x 抑制机制, 开发有效的抑制技术提供理论依据。本文结合实际燃烧过程中有可能采用多级燃烧及烟气再循环等方式组织 NO_x 燃烧场的现状, 用数值方法考察了燃烧甲烷用 N₂ 或 CO₂ 稀释条件下的富氧扩散燃烧火焰结构和氮氧化物生成之间的关系, 分析了快速型 NO 和热力型 NO 对总 NO 的贡献份额和 NO 排放指数 EI_{NO} 进行定量分析。

2 分析模型和数值计算方法

图 1 为二维平面坐标中的对向流扩散火焰模型简图。两无限大喷射平面间的间距 L 为 15 mm, 燃料从左喷射平面, 富氧空气从右射流平面对向喷出。本计算中

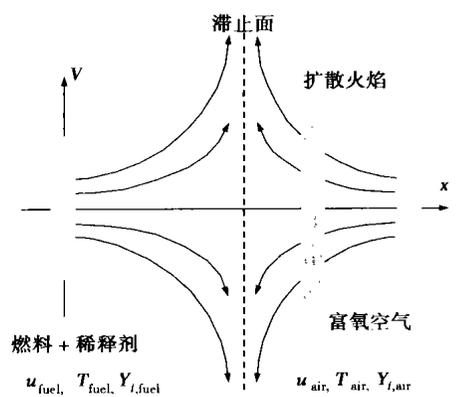


图 1 对向流扩散火焰理论模型

燃料和氧化剂的喷出条件为 $u_{fuel} = u_{air} = 1.0 \text{ m/s}$, $T_{fuel} = T_{air} = 300 \text{ K}$, 此时的速度梯度 (strain rate) $(u_{fuel} + u_{air})/L$ 为 133.3 s^{-1} , 在这种条件下甲烷/普通空气火焰中 NO 的形成基本上由快速型机理决定。燃料为

收稿日期: 2003-09-23; 修订日期: 2004-02-12

基金项目: 中国科学院“百人计划”项目; 广东省自然科学基金(032703)

作者简介: 赵黛青(1958-), 女, 江苏南京人, 广州能源所研究员。

甲烷, 稀释剂为氮气和二氧化碳, 氧化剂由氮气和氧气组成, 由文献[6] 可知在甲烷/富氧空气对向流扩散火焰中当氧气的质量分率 $Y_{O_2, air} = 0.8$ 时, NO 的生成量最大, 因此在本研究中取氧气的质量分率 $Y_{O_2, air}$ 为 0.8, 燃料中稀释剂 i 的浓度用 $Y_{i, fuel}$ 表示。

对向流的流场作为二维势流处理, 假设相似解可以应用于对向流火焰的温度场和浓度场^[7~8], 组分的守恒方程和能量守恒方程可表达如下:

$$\rho \frac{\partial Y_i}{\partial t} + \rho u \frac{\partial Y_i}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x}(\rho Y_i V_i) - w_i = 0 \quad (1)$$

$i = 1, \dots, N$

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho c_p \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \sum_{i=1}^n \rho Y_i c_{p,i} V_i \frac{\partial T}{\partial x} + \sum_{i=1}^n w_i h_i = 0 \quad (2)$$

式中: ρ —密度; u — x 方向速度; T —温度, c_p —定压比热; λ —热传导系数, 而 Y_i, V_i, h_i 和 w_i 分别表示组分 i 的质量份数、扩散速度、比焓和质量生成率。组分守恒方程忽略 Soret 和压力扩散的影响。在能量守恒方程中忽略 Dufour 效应、辐射和粘性耗散。不同温度下组分的热力学性质由 CHEMKIN 数据库计算得到^[9], 传递系数采用了 Smooke 的简化模型^[10]。

守恒方程组采用有限容积法进行离散, 计算区域划分为 201 个网格节点。对流项采用了上风差分格式, 时间项采用一级隐式格式, 时间步长为 $1 \mu s$, 采用超松弛迭代法计算。燃烧计算使用了 GRI-MECH3.0^[11] 基元反应动力学模型, 它考虑了 53 种物质和包括氮氧化物生成在内的 325 组基元反应。

为了定量研究火焰的热释率和质量生成率, 本文参考 Takeno 等人的 NO 排放量计算方法^[12], 使用了单位火焰面积的热释率 $q_{sum} (GJ/m^2)$ 、质量生成率 $w_{i, sum} (kg/m^2)$ 和排放指数 EI_{NO} :

$$q_{sum} = \int_0^L q dx, \quad w_{i, sum} = \int_0^L w_i dx$$

$$EI_{NO} = \frac{w_{NO}}{w_{CH_4}} = \int_0^L w_{NO} dx / \int_0^L w_{CH_4} dx$$

其中: q —局部热释率, w_i —局部的组分质量生成率。

3 结果分析

3.1 火焰结构

图 2 表示纯甲烷、60% 氮气稀释甲烷和 90% 氮气稀释甲烷条件下的火焰温度分布和热释率分布, 图中 sp' 表示停滞面(stagnation plane)的位置。图 3 表示上述火焰中主要组分的浓度分布, 图中 '1st' 和 '2nd' 分别表示热释率两个峰值的位置。富氧火焰存在两个热释率峰值, 即存在两个反应区, 甲烷和氧气完全消耗掉的左侧峰值定义为火焰面(见图 3)。

纯甲烷燃烧时, 热释率两个峰值之间温度高且分布平坦。 $Y_{N_2, fuel} = 0.6$ 时, 反应减弱, 热释率的两个峰值都减少, 但是第一个峰值变化很少, 高温区域变窄。 $Y_{N_2, fuel} = 0.9$ 时, 两个热释率峰值都大大减少, 第二个峰值几乎消失。加入 CO_2 稀释时火焰结构的变化趋势是类似的。

图 4(a) 和 (b) 表示了稀释物浓度对最高火焰温度和总热释率的影响。由于参与反应的氧浓度不变, 两种稀释物的添加对总的热释率的影响是基本一致的, 但在加入同样浓度的稀释物时, CO_2 稀释的最高火焰温度比 N_2 稀释的最高火焰温度要低, 这主要由于 CO_2 的比热值比 N_2 的比热值大, 且 CO_2 是燃烧反应的最终生成物, 对燃烧反应会起到抑制作用。从图 4 可见, 最高火焰温度约在 $Y_{i, fuel} \leq 0.6$ 时, 下降较慢, 之后下降速度变快。总的热释率的变化有着相同的趋势, 这与第二个发热峰的减小和消失是对应的。

的趋势, 这与第二个发热峰的减小和消失是对应的。

3.2 NO 生成

在 GRI-Mech3.0 甲烷的燃烧反应动力学模型中, 根据 NO 生成机理的分类, 热力学型 NO 的生成反应为三个基元反应:

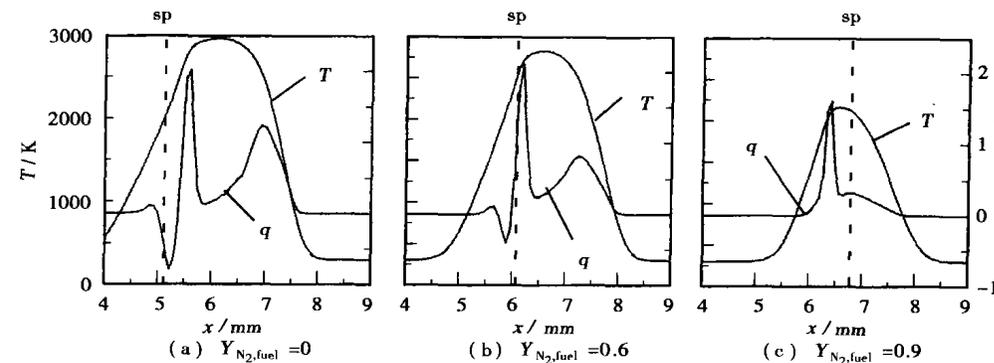


图 2 N_2 稀释对温度、热释率分布以及停滞面位置的影响

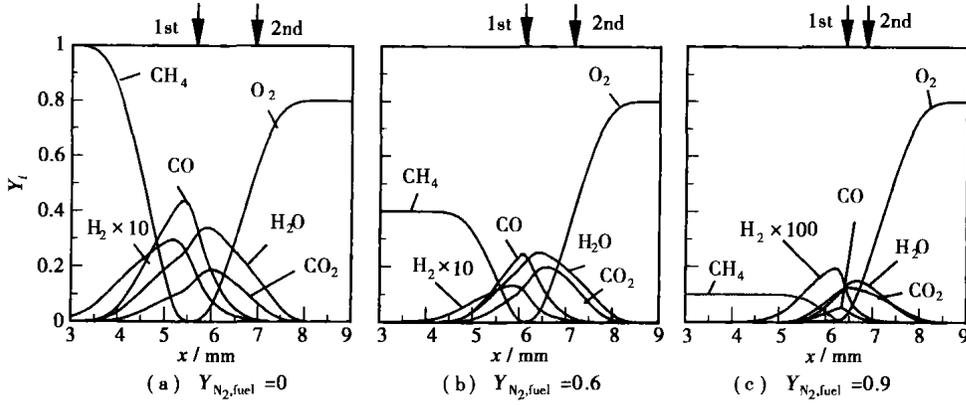
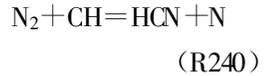


图 3 N₂ 稀释对主要成份质量分布的影响

反应如下:



式中的编号为 GRI-Mech3.0 中基元反应序号。

由文献[6]可知, 甲烷高温富氧燃烧时对应于释热率分布的两个峰值, 火焰中存在两个 NO 生成区, 火焰面附近的生成由快速型机理控制, 氧化剂侧的 NO 生成由热力型机理控制。

以 $Y_{N_2, fuel} = 0.2$ 条件为例, 对 NO 形成重要的基元反应的 NO 质量生成速率分布示于图 5, 两个 NO 生成区域控制机理显著不同, 图中的主要反应为:

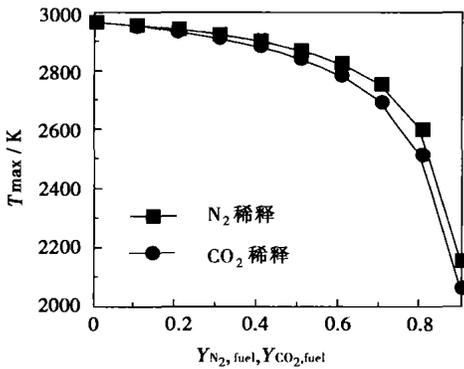


图 4(a) 稀释剂浓度对最高火焰温度的影响

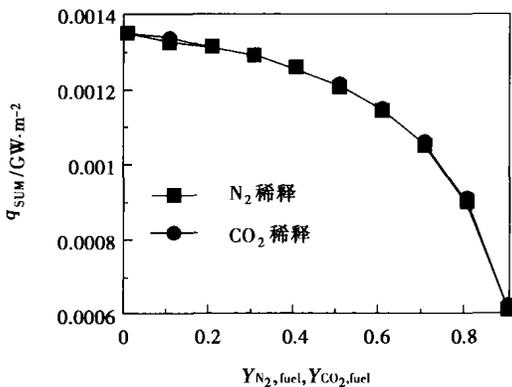


图 4(b) 稀释剂浓度对总的释热率的影响

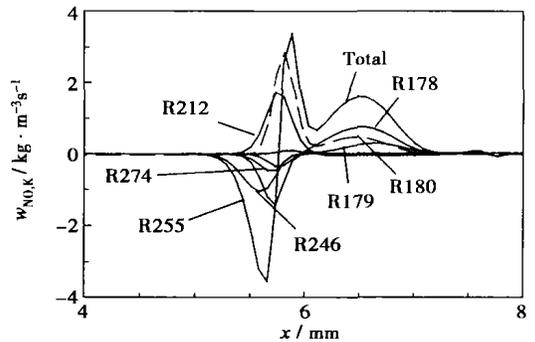


图 5 重要基元反应的 NO 质量生成率分布 ($Y_{N_2, fuel} = 0.2$)

由图可见, 在右侧的 NO 生成区处是由热力型的三个基元反应贡献的。

图 6(a)、(b) 表示稀释物 N₂ 浓度为 0.2, 0.9 条件下的 NO 质量分率和 NO 质量生成率分布。结果表明, 在 $Y_{N_2, fuel} = 0.2$ 时, NO 质量生成率有两个峰值, 火焰面附近的 NO 生成与消失是典型的快速型 NO 生成特点, 由图可见快速型 NO 生成的净贡献为负, 总的 NO 生成来自热力型机理, 在 $Y_{N_2, fuel} = 0.9$ 时, NO 生成减少, 质量生成率的两个峰值减少, 热力型 NO 生成的第二个峰值几乎完全消失。



快速型 NO 指燃料中的碳氢化合物在燃料浓度较高的区域时所产生的烃类与燃烧中 N₂ 分子发生反应, 形成 CN、HCN, 继续氧化而成为 NO。其起始

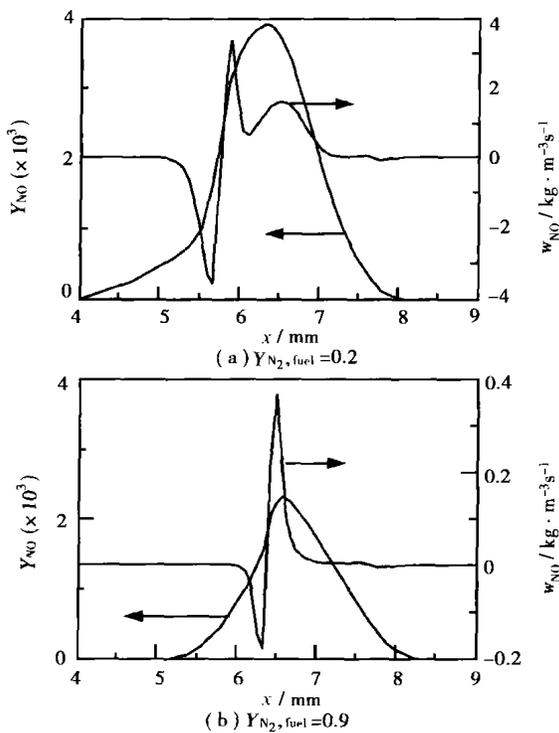


图 6 不同稀释剂浓度下的 NO 浓度分布和 NO 质量生成率分布

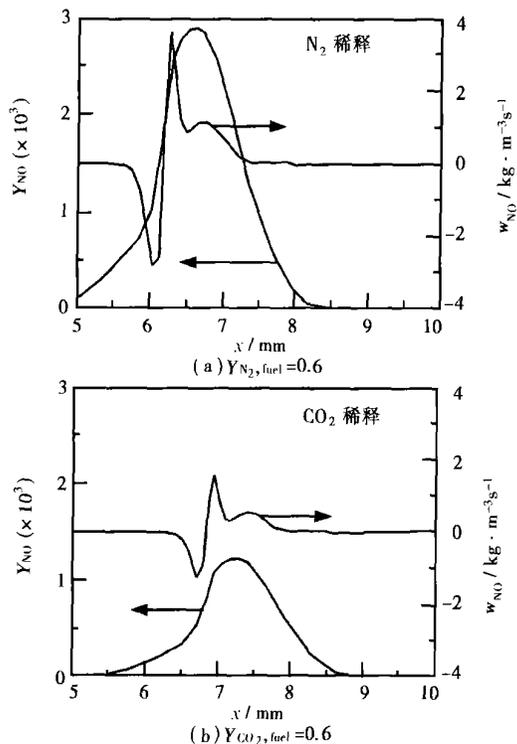


图 7 不同稀释剂种类下的 NO 浓度分布和 NO 质量生成率分布

的 NO 质量分率和 NO 质量生成率分布, 虽然稀释浓度一样, 但在 N₂ 稀释条件下的 NO 生成明显大于 CO₂, 理由分析为较 N₂ 稀释, CO₂ 稀释时火焰温度降低, 其次是用 N₂ 稀释燃料时, 提高了生成 NO 反应的反应物浓度, 在较高的温度下, N₂ 浓度的增大促进了 NO 的生成。

3.3 NO 的排放量和排放指数 EI_{NO}

为了定量考察燃料稀释对 NO 生成的影响, 稀释剂浓度和单位火焰面积的 NO 生成量的关系归纳为图 8(a)、(b), 其中热力型 NO 和快速型 NO 的计算方法如下:

$$W_{\text{Thermal, NO}} = 2W_{\text{NO, 178}}$$

$$W_{\text{Prompt, NO}} = W_{\text{Total NO}} - W_{\text{Thermal NO}}$$

其中: $W_{\text{NO, 178}}$ 是 R178 号基元反应的 NO 质量生成率。这个计算方法依据是由于热力型的 NO 是 R178、R179、R180 这三个反应产生的, 而从图 9 中可知 R179 和 R180 的 NO 生成速率刚好等于 R178 的 NO 生成速率。

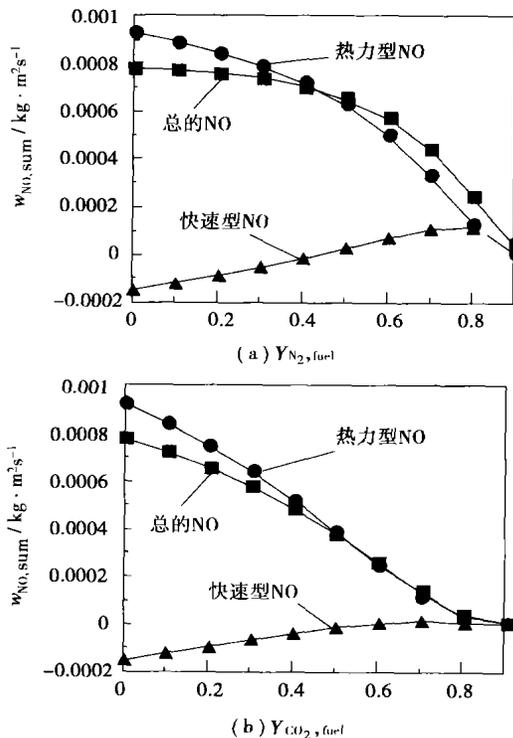


图 8 热力型 NO 机理和快速型 NO 机理对 NO 生成总量的贡献

如图 10 所示, CO₂ 稀释时, 随着稀释物质量浓度的增加, NO 生成总量几乎单调减小。快速型 NO 机理对 NO 生成总量的贡献基本上为负。而 N₂ 稀

图 7(a)、(b)是燃料中 N₂ 和 CO₂ 浓度为 0.6 时

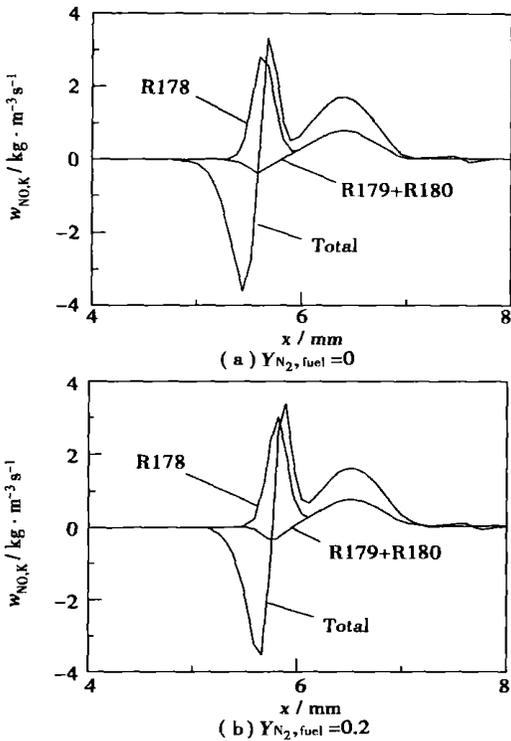


图 9 几个重要基元反应的 NO 质量生成率分布

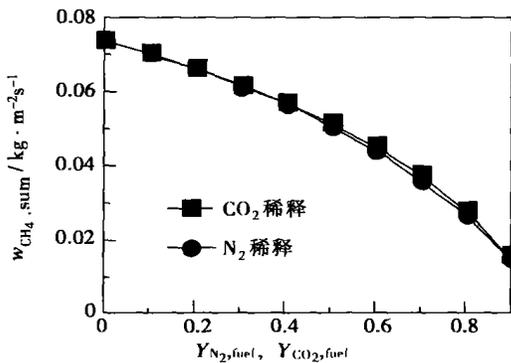


图 10 稀释剂浓度对燃料消耗速率的影响

释时, 稀释剂浓度低于 0.5 时, 热力型 NO 产生量较 CO₂ 稀释时下降慢, $Y_{N_2, fuel} > 0.5$ 以后, 快速型 NO 的产生由负值变化为正值, 对 NO 产生总量形成正贡献, 因此, 加入 N₂ 时的 NO 生成总量的下降趋势比加入 CO₂ 变化趋势变慢。

工业上评价燃烧器的排放特性时, 单位燃料消耗时的 NO 生成量是一个重要的指标, 图 10 表示稀释浓度对燃料消耗速率的影响, 图 11 则为 NO 排放指标随稀释剂浓度的变化, 稀释剂种类对燃料消耗速率(计算 EI_{NO} 的分母)的影响不大, 如上所述, 从图 8 可知, 由于稀释剂种类对 NO 生成量(计算 EI_{NO}

的分子)的影响有很大差异, EI_{NO} 的变化特性是不同的, 加入 CO₂ 时, 随着 $Y_{CO_2, fuel}$ 的增加, EI_{NO} 单调下降; 加入 N₂ 为稀释物时, 稀释燃料并非都能降低 NO 生成, 在 $Y_{N_2, fuel} \leq 0.6$ 时, EI_{NO} 逐渐升高, 达到最大值; $Y_{N_2, fuel} > 0.6$ 以后, EI_{NO} 快速下降。

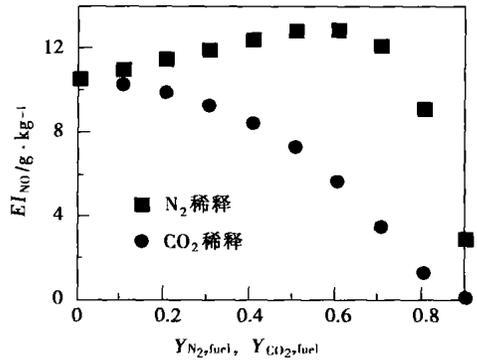


图 11 稀释剂浓度对 NO 排放指数的影响

4 结 论

(1) 随着稀释剂浓度的增加, 燃烧反应逐渐变弱, 火焰温度下降, 在稀释剂质量分率小于 0.7 之前, 温度降低比较缓慢, 然后快速降低。热释率有类似的变化。

(2) 随着稀释物浓度的增加, 高温富氧扩散火焰出现的两个发热峰逐渐减小, 尤其是氧化剂侧的发热峰降低迅速, 火焰的温度分布变窄。

(3) 富氧扩散火焰的 NO 生成主要为热力型机理控制, 随着稀释剂浓度的增加, NO 的生成控制机理发生改变, 尤其是随着氧化剂侧发热峰的减弱至消失, 起因于热力型机理的 NO 生成显著降低。

(4) 用 N₂ 以及 CO₂ 稀释燃料对燃烧特性和 NO 生成的影响是不同的, 加入 CO₂ 时, NO 的排放指数 EI_{NO} 随着 $Y_{CO_2, fuel}$ 的增加而减小。加入 N₂ 时, EI_{NO} 随 $Y_{N_2, fuel}$ 逐渐增加, 至最大值后较快的减小, $Y_{N_2, fuel} > 0.6$ 以后, 才出现降低 NO 生成的效果。

参考文献:

[1] 黄 飞, 林向东, 陈新海, 等. 膜法富氧试验及富氧燃烧[J]. 锅炉技术, 2000, 31(3): 21-23.
 [2] 张科峰. 膜法富氧助燃技术提高加热炉热效率[J]. 化工科技, 2000, 8(6): 39-42.
 [3] 汪全清. 富氧和全氧燃烧的优越性[J]. 中国玻璃, 2000(3): 41-42.

(下转第 420 页)

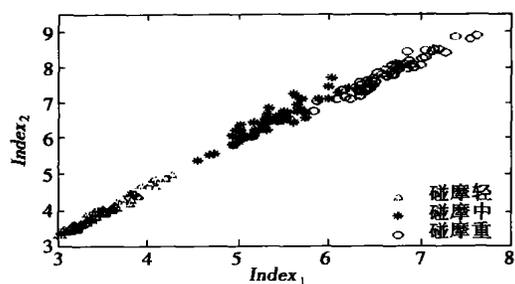


图 5 特征指标描述不同程度碰摩故障示意图

5 结 论

采用试验研究的方法,对电站通风机的多特性诊断技术所涉及的性能监测、非稳态流动和机械振动参数识别问题进行了研究。

(1) 在对 4 种逼近方法综合比较的基础上,采用具备优良逼近特性的 RBF 网络逼近风机无因次性能曲线的参数映射规律,推导出基于参数映射的流量监测模型,在此基础上,实现了对风机性能的监测。这种方法也可适用于轴流风机或其它相似的流体机械。

(2) 通过对 4—73 风机的吸力侧、压力侧旋转失速、进口涡流的频率特性研究,分析了三种非稳态流动的特点,给出了联合特征参数。由于压力侧旋转失速被首次发现存在于 4—73 风机,应引起重视。失速的出现会引起风机的机壳、叶片等和连接管道的非稳态空气动力激振,由于系统参数变化而出现的剧烈振动与现场风机存在的内在联系有待进一步研究。

(3) 将通风机机械振动特征分为谐波特征、能量特征和奇异性特征,采用分频段技术给出了频域

监测指标,采用二进小波变换方法对能量特征和奇异性特征提取进行了研究。上述指标经实验数据检验,可以准确的实现风机机械故障的参数识别。

参考文献:

[1] 侯军虎,王松岭,安连锁,等.基于参数映射的通风机流量全程测量的实验研究[J].中国电机工程学报,2003,23(10):209-214.

[2] HOU JUNHU, WANG SONGLING, AN LIANSUO, et al. Study of on-line performance monitoring for the centrifugal fans based on DCS in power plants[R]. Proceedings of IECEC' 01, Georgia, USA, ASME Press, 2001: 789-793.

[3] 侯军虎,王松岭,安连锁,等.基于神经网络的通风机性能监测组合建模[J].风机技术,2002(3):29-32.

[4] GB/T13466-92,北京:中国标准出版社,1992.

[5] 侯军虎,王松岭,王强,等.电站离心风机性能在线监测的研究及其在DCS中的实现[J].动力工程,2003,23(1):2224-2227.

[6] 徐敏强,张嘉钟,张国斌,等.基于小波变换的旋转机械振动信号数据压缩方法的研究[J].振动工程学报,2000,13(4):531-536.

[7] BERRY J E. How to specify machinery vibration spectral alarm bands [J]. *Sound and Vibration*, 1990, 9: 16-28.

[8] 谭青.风机故障诊断与自动平衡技术研究[D].长沙:中南工业大学,1996.

[9] 崔锦泰.小波分析导论[M].程正兴译.西安:西安交通大学出版社,1995.

[10] 何正嘉,曹艳阳,张周锁.大型机械设备变工况非平稳动态分析与监测诊断关键技术[J].中国机械工程,1999,10(9):978-981.

[11] MALLAT S, HWANG W L. Singularity detection and processing with wavelets [J]. *IEEE Transactions on Information Theory*, 1992, 38(2): 617-643.

[12] 谭善文,秦树人,汤宝平.小波基时频特性及其在分析突变信号中的应用[J].重庆大学学报(自然科学版),2001,24(2):12-17.

(上接第 371 页)

[4] 沈光林.膜法富氧的应用进展[J].现代化工,1997(12):10-12.

[5] BELTRAME A, PORSHNEV P. Soot and NO formation in methane-oxygen enriched diffusion flames [J]. *Combustion and Flame*, 2001, 124: 295-310.

[6] ZHAO D, YAMASHITA H. A numerical study on flame structure and NO_x formation of oxygen-enriched air/methane counterflow diffusion flame [A]. *Proceedings of 3rd International Symposium on Advanced Energy Conversion Systems and Related Technologies* [C], Japan, 2001. 300-308.

[7] TSUJI H. Counterflow diffusion flames [J]. *Prog Ener Combust Sci*, 1992, 8: 93-119.

[8] YAMASHITA H. Numerical study on NO_x production of transitional

fuel jet diffusion flame [J]. *Transactions of the JSME*, 1999, 65: 630-635.

[9] KEE R J, RUPLEY F M, MILELLER J A. CHEMKIN-II: A fortran chemical package for the analysis of gas-phase chemical kinetics [R]. San Diego: Sandia National Lab, Report No. SAND89-8009, 1989.

[10] SMOOKE M D. Reduced Kinetic Mechanisms and asymptotic approximations for methane-air flames [M]. Germany, Berlin: Springer Verlag, 1991.

[11] GRI. http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/version30/text30.html.

[12] TAKENO T, NISHIOKA M. Conservation and emission indices for flames described by similarity solutions [J]. *Combustion and Flame*, 1993, 92: 465-468.

whole system. **Key words:** solid oxide, fuel cell, gas turbine, combined power generation.

湿度对HAT循环燃烧室旋流扩散燃烧特性的影响= **The Influence of Humidity on the Swirl Diffusion-combustion Characteristics in a Humid Air Turbine (HAT) Cycle Combustor** [刊, 汉] / ZHOU Jian-guang, ZANG Shu-sheng, WENG Shi-lie (College of Mechanical & Power Engineering under the Shanghai Jiaotong University, Shanghai, China, Post Code: 200030) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2004, 19(4). — 363 ~ 366, 391.

A turbulent Reynolds stress model and a laminar small flame model are used to study the influence of humidity on combustion characteristics. A numerical simulation was conducted of a methane diffusion-combustion process in the swirler-equipped combustor of a humid air turbine (HAT) cycle gas turbine. The distribution states of temperature profile, velocity field and NO constituent elements in the combustor are compared for four different air humidity values (0, 100, 200, 300 g/kg [DA]) along with an analysis of the influence of humidity on diffusion combustion characteristics in the HAT cycle combustor. It has been found that moisture addition can lead to a reduction in combustor temperature, a more uniform distribution of temperature and a drastic lowering of NO concentration in the combustor as well as a reduction in the length of a return flow zone. **Key words:** combustor, diffusion combustion, humid air combustion, simulation of combustion.

燃料稀释对富氧空气/甲烷扩散火焰中氮氧化物生成的影响= **Impact of Fuel Dilution on the Formation of NO_x in an Oxygen-rich air/Methane Diffusion Flame** [刊, 汉] / ZHAO Dai-qing, FENG Yao-xun, LIU Qing-cai (Guangzhou Institute of Energy Conversion under the Chinese Academy of Sciences, Guangzhou, China, Post Code: 510070), H Yamashita (Department of Mechanical Informatics & Systems, Graduate School of Engineering, under the Nagoya University, Nagoya, Japan, Post Code: 464-8603) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2004, 19(4). — 367 ~ 371, 420.

The present study is aimed at revealing the NO_x formation mechanism in an oxygen-rich combustion process. NO_x suppression mechanism is also investigated with the oxygen-rich flame characteristics being taken account of. With a counter-flow diffusion flame serving as an object of research the impact of fuel dilution on the NO_x formation in an oxygen-rich air/methane diffusion flame was studied with the help of a fully developed elementary reaction-dynamics model. The diluent being used is N₂ or CO₂. It is found that with the variation of concentration of dilution constituent elements in fuel there emerged a marked change in flame structure and NO formation mechanism. It is also discovered that with an increase in the concentration of diluent CO₂ the emission index of NO decreases monotonically and the latter index may reach a maximum value when N₂ is used as a diluent. **Key words:** counter-flow diffusion flame, fuel dilution, NO_x, numerical analysis.

脉动供燃料燃烧技术及各参数影响研究= **A Study of Combustion Technology Featuring the Pulsating Feed of Fuel and the Influence Exerted by Various Parameters** [刊, 汉] / ZHAO Hai-liang, LI Yan, YOU Chang-fu, et al (National Key Laboratory of Clean Combustion of Coal under the Tsinghua University, Beijing, China, Post Code: 100084) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2004, 19(4). — 372 ~ 375, 415.

A jet-flow diffusion flame based on the adoption of a pulsating fuel-feed combustion mode is investigated. By making use of a direct photographing technique the characteristics and variation mechanism of the flame are observed and analyzed under various operating conditions and parameters. They include: fuel-rich combustion-time share, average Reynolds number and pipe connecting conditions, etc. The impact of various parameters and the flame characteristics under resonant operating conditions are also analyzed. It was found that with the fuel-rich combustion-time share in the range of 70% - 90% the flame would assume a more or less regular fuel-rich and fuel-lean alternative structure with a clearer picture being observed during resonant frequencies. At a duty cycle of 70% - 80% the flame has a maximum length and the alternative structure assumes a most regular form. At a still lower duty cycle of fuel-rich combustion-time share there emerged under a resonant frequency a collapsed mixing and turbulent flow at the root of the flame accompanied by a flame