

微尺度催化燃烧器中扩散“火焰街”的数值模拟研究

叶修斌¹, 康鑫²

(1. 武汉理工大学 船海与能源动力工程学院, 湖北 武汉 430063; 2. 武汉理工大学 土木工程与建筑学院, 湖北 武汉 430070)

摘要: 针对三维 Y 型微通道内的非预混催化燃烧, 选择 GRI-Mech 3.0 气相反应机理与 Deutschmann 表面催化机理开展了数值模拟研究, 分析铂催化剂涂覆位置、催化剂涂覆面积等因素对通道内特殊“火焰街”现象的影响。结果表明: 通道内壁面涂覆一定面积的铂催化剂可以显著改善燃烧器性能, 提升其甲烷转换率以及燃烧效率; 相较于内壁面催化剂全涂覆或通道后段局部涂覆的情况, 当催化剂仅涂覆于通道前段局部时, 甲烷转化率与燃烧效率的提升幅度达到最大, 分别为 3.5% 与 7%。

关键词: 微尺度燃烧; 扩散火焰; 催化反应; 火焰街

中图分类号: TK221 文献标识码: A DOI:10.16146/j.cnki.rndlgc.2022.09.017

[引用本文格式] 叶修斌, 康鑫. 微尺度催化燃烧器中扩散“火焰街”的数值模拟研究[J]. 热能动力工程, 2022, 37(9): 136-142. YE Xiu-bin, KANG Xin. Numerical simulation study on diffusion "Flame-street" in a micro-scale catalytic reactor [J]. Journal of Engineering for Thermal Energy and Power, 2022, 37(9): 136-142.

Numerical Simulation Study on Diffusion "Flame-street" in a Micro-scale Catalytic Reactor

YE Xiu-bin¹, KANG Xin²

(1. School of Naval Architecture, Ocean and Energy Power Engineering, Wuhan University of Technology, Wuhan, China, Post Code: 430063; 2. School of Civil Engineering and Architecture, Wuhan University of Technology, Wuhan, China, Post Code: 430070)

Abstract: Aiming at non-premixed catalytic combustion in a three-dimensional Y-shape microchannel, the numerical simulation study was carried out by using GRI-Mech 3.0 gas-phase reaction mechanism and Deutschmann surface catalytic kinetics. The effects of Pt catalyst coating positions, areas, etc. on the characteristics of the unique combustion phenomenon "flame-street" in the channel were analyzed. The results show that the burner performance in terms of the methane conversion rate and combustion efficiency, can be significantly improved by coating a certain area of Pt catalyst on the inner walls of channel. In addition, when the catalyst is partially coated on the front portion of the channel walls, the enhancement of the methane conversion rate and combustion efficiency can reach their maximum values by 3.5% and 7%, respectively, which are better than the conditions of fully-coated or partially rear-coated walls.

Key words: micro-combustion, diffusion-flame, catalytic reaction, flame-street

收稿日期: 2021-09-11; 修订日期: 2021-12-12

基金项目: 国家自然科学基金(51806158)

Fund-supported Project: National Natural Science Foundation of China (51806158)

作者简介: 叶修斌(1995-), 男, 江西上饶人, 武汉理工大学硕士研究生。

通讯作者: 康鑫(1984-), 男, 湖南长沙人, 武汉理工大学副教授。

引言

近二十年来,在微动力系统的概念提出之后,各种微小型便携式能量设备和空间飞行器研究有了极大发展,氢气及烷烃类燃料在微尺度下的燃烧(燃烧器特征尺度与火焰厚度相当,处于毫米量级)引起了人们的关注^[1-2]。相较于宏观尺度,微尺度下的燃烧出现了许多问题^[3],如由于表体比增加而加剧的散热损失,气体停留时间减少导致的反应不充分等。这些问题均可能降低火焰稳定性,使火焰更容易淬熄。为解决上述问题,研究人员提出了很多方法和措施,如采用过焓燃烧^[4]、多孔介质燃烧^[5]及改进燃烧室结构^[6-7]等来提高微尺度燃烧的稳定性 and 效率。

另一方面,由于燃烧器尺寸的显著减小,气体与固体壁面的耦合传热得到极大增强,带来微尺度下的各种独特的火焰现象。对于预混燃烧,较为典型的有圆管和平行平板通道中的反复熄火与着火(FREI)^[8]、弱火焰(Weak Flame)^[9]以及三维径向通道中各种稳态和非稳态的火焰形态^[10]。扩散燃烧,作为另一种燃烧模式,因其能有效地抑制火焰的闪回现象,因此更符合实际的安全操作。“火焰街”(Flame-Street)作为微尺度扩散燃烧中一种奇异的火焰形态,Miesse等人^[11-14]在实验中首次发现。在该现象中,微通道中的火焰分裂成若干个沿流动方向依次排列的小火焰团。XU等人^[15]在介观尺度的扩散燃烧器中也观测到了该现象。最近,KANG等人^[16-17]使用开源CFD工具OpenFOAM对甲烷/氧气扩散“火焰街”进行了详细的数值模拟,深入剖析了流场与火焰相互作用、各离散火焰微团的热化学结构,并研究了各参数(壁面温度、进口流速和全局当量比)对火焰形态的影响。研究^[17]发现,由于在各火焰团后部存在局部熄灭现象,使得燃烧器效率较低。

鉴于文献中关于催化反应促进微尺度燃烧稳定性有着广泛报道^[18-21],本文结合催化燃烧技术,使用数值模拟方法研究催化反应的引入对“火焰街”形态的影响,并通过分析燃烧效率及甲烷转化率等参数来研究其是否对燃烧器性能有一定的改进

作用。

1 数值计算模型

1.1 物理模型

燃烧器Y形通道三维物理模型如图1所示^[11-13],图中横纵坐标表示模型的物理尺寸。所模拟的扩散通道呈Y型(除进口外),主体部分尺寸为32.5 mm(长度)×5 mm(宽度)×0.75 mm(高度)。两进口宽度均为5 mm,分别通入甲烷和氧气,随后在通道内相互扩散、混合及反应。燃烧后的气体由右侧出口流出。

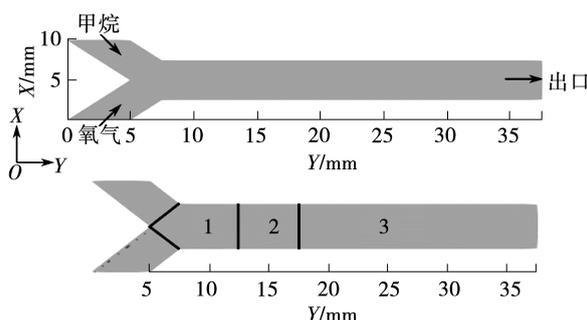


图1 燃烧器中剖面 and 催化剂段分布位置

Fig. 1 Sliced central-plane of the combustor and the positions of the catalyst segments

依据通道内3段离散火焰微团(无催化纯气相反应)的位置,在内壁面上将催化剂涂覆位置分成3段,催化段1,2,3面积分别为31.25,25和100 mm²。根据催化剂的具体布置情况,共设置了5种工况:工况1,纯气相反应基准工况;工况2,催化剂局部涂覆在2+3处;工况3,催化剂全涂覆在1+2+3处;工况4,催化剂局部涂覆在部位3处;工况5,催化剂局部涂覆在部位1处。

1.2 计算方法

采用商用CFD软件FLUENT 16.0对微通道内CH₄/O₂火焰进行稳态数值计算,求解连续性、动量、能量和组分方程。采用二阶迎风格式对微分方程组进行离散,并采用SIMPLE算法处理速度-压力耦合问题。

在燃烧器入口处,CH₄和O₂分别以0.3和0.6 m/s的均匀速度分布(实验中的典型速度条件^[11-13])进入通道,气体进口温度统一设置为300 K。燃烧器壁面为无滑移条件,并设置定壁温为800 K。

出口边界条件为压力出口,给定压力为一个大气压。由于整个燃烧室结构比较规则,因此使用 ICFM 软件选择结构化网格对计算流体域进行划分,网格尺寸为 0.1 mm,网格数量为 21 万。采用的气相化学反应机理为 GRI-Mech 3.0,由于考虑甲烷在纯氧环境中燃烧,因此在机理中去除了与氮相关的基元反应与所有组分。修正后的反应机理包括 36 种组分和 219 种基元反应^[20,22-23]。

由于国内外缺乏催化“火焰街”的相关实验数据,为验证计算模型的准确性,首先在当量比 1.0、甲烷流量 100 mL/min 的无催化反应工况下,进行了模拟与实验火焰的对比,如图 2 所示。从图 2 中可以看出,实验中观测到的离散火焰微团现象在数值模拟结果中得到了较准确的重现。特别是在实验和模拟中,分离的火焰段相对于混合层呈不对称形状,“月牙”状火焰有一个“钩”指向氧气侧,证明了该模拟工具能够捕捉到微扩散“火焰街”的关键特征。在考虑催化反应时,直接使用 Deutschmann 等人^[24]提出的 CH₄/Pt 表面化学反应机理。该机理已得到实验验证,并广泛应用于微催化燃烧的模拟中^[25-26]。因此,可以认为本研 究 所 得 到 的 数 值 计 算 结 果 具 有 较 高 的 准 确 性。

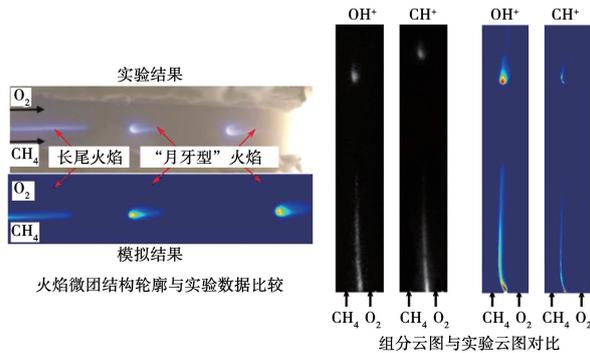


图 2 数值模拟与实验火焰^[14]对比

Fig. 2 Simulated flames vs. experimental flames^[14]

2 结果与分析

2.1 催化反应对“火焰街”形态的影响

首先,对无催化基准工况 1 和催化剂局部涂覆工况 2 进行了对比。图 3 为燃烧室中心截面($z = 0.375$ mm)温度及 OH⁺, CO 和 CO₂ 质量分数云图。可以发现,在引入催化反应后“火焰街”形态发生了

显著变化,通道内火焰微团个数从无催化反应基准工况时的 3 个减少到 2 个。同时,通道内第 1 个锚定火焰的长度有所增加,其燃烧温度也大幅提高,火焰最高温度(也为通道内最高温度值)从 2 149 K 升高到 2 346 K,说明燃烧强度得到了显著提升。

从图 3 的 OH⁺, CO₂ 及 CO 组分质量分数云图中也可以看出这一变化趋势,加入催化反应后通道内自由基 OH⁺ 及反应中间产物 CO 的质量分数最大值分别从 0.014 和 0.135 提高至 0.018 和 0.21。燃烧产物 CO₂ 质量分数整体水平在通道内也有所提高,揭示出表面催化剂的引入使得燃烧反应更加完全。

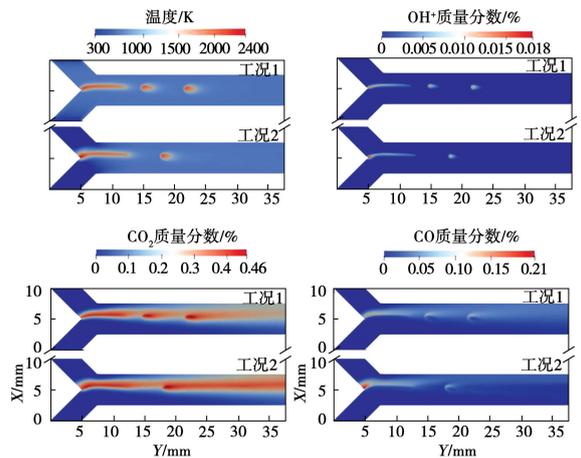


图 3 工况 1 和工况 2 燃烧室剖面($z = 0.375$ mm)温度分布及 OH⁺, CO₂ 和 CO 质量分数分布云图

Fig. 3 Contours of temperature, OH⁺, CO₂ and CO mass fractions on the plane ($z = 0.375$ mm) in the case I and II

图 4 为 OH⁺, CO₂, CO 质量分数在燃烧室中心截面($z = 0.375$ mm)中心线和近壁面($z = 0.749$ mm)中心线上的分布曲线,箭头表示的是工况 2 催化剂涂覆的起始位置。与前述分析一致,由于催化反应的加入促进了整个通道内的燃烧强度,OH⁺ 质量分数峰值在中心截面和近壁面上相较于无催化基准工况均有明显上升。从 CO 的质量分数曲线可以看出,加入催化反应之后在燃烧器入口附近由于燃料氧化剂快速反应产生了大量的 CO,但随后又被快速地消耗,在燃烧器出口处剩余更少。因此,燃烧产物 CO₂ 在催化反应时除了体现出较高质量分数峰值之外,其在燃烧器出口附近也呈现出较高的水平

(更多的CO转化为CO₂)。另外,对比CO₂在中心截面和近壁面处的分布可以发现,其在近壁面处有着更高的浓度。主要原因是由于壁面催化反应对CO₂分布有着重要贡献(反应CO(s)+O(s)→CO₂(s)+Pt(s)),吸附反应消耗了一部分壁面附近的CO,也通过解吸附自由基加快壁面附近气相反应的速率,消耗更多的CO组分,使得CO₂在催化区域的近壁面大量生成后,又沿着壁面向通道上游无催化区继续扩散,导致近壁面较通道中心截面始终维持较高的CO₂质量分数水平。

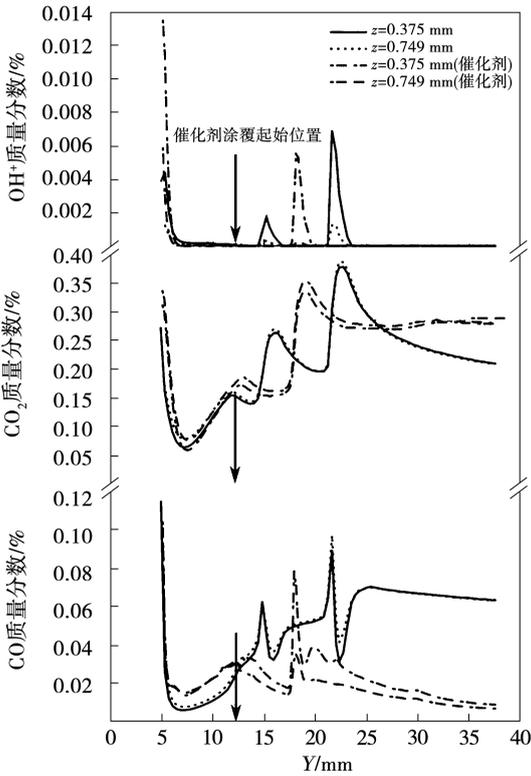


图4 燃烧室中心截面(z=0.375 mm)和近壁面(z=0.749 mm)中心线OH⁺,CO₂和CO质量分数曲线

Fig.4 Profiles of OH⁺,CO₂and CO mass fractions along the center plane(z=0.375 mm)and near the inner walls(z=0.749 mm)

2.2 各工况下的燃烧性能

催化剂活性位密度相同时,催化面面积和催化面位置对燃烧器燃料(甲烷)转化率和燃烧效率有着重要影响。

甲烷转化率θ定义为:

$$\theta = \frac{\dot{m}_{in,CH_4} - \dot{m}_{out,CH_4}}{\dot{m}_{in,CH_4}} \quad (1)$$

式中: \dot{m}_{in,CH_4} 和 \dot{m}_{out,CH_4} —燃烧器进口与出口处的甲烷质量流量,kg/s。

燃烧效率η为:

$$\eta = \frac{\int_V HRR dV}{\dot{m}_{in,CH_4} \cdot LHV_{CH_4}} \quad (2)$$

式中:HRR—热释放率,W/m³;V—燃烧器体积(沿全计算区域积分),m³;LHV_{CH₄}—甲烷的低热值,J/kg。

图5为各工况下的甲烷转化率θ和燃烧效率η。从工况1,2,4的对比可以看出,燃烧器内表面涂覆适当面积的Pt催化剂,可以在一定程度上提高甲烷转化率θ。然而,对于催化剂全涂覆的情况(工况3),由于催化反应在此时阻碍了甲烷转化(表面催化反应的生成物对气相反应呈现抑制作用),该工况的甲烷转化率反而下降,只有41.16%,甚至低于无催化基准工况的水平。因此,θ值与催化剂涂覆面积呈现出非单调关系。对于燃烧效率η,引入催化反应的工况均比无催化基准工况有显著提升。其中,工况2燃烧效率达到了40.25%,比工况1的η值(33.25%)提升了21%。同样,催化剂全涂覆工况3的η值在工况2~工况4中处于最低水平,说明燃烧效率与催化剂涂覆面积也为非单调关系。

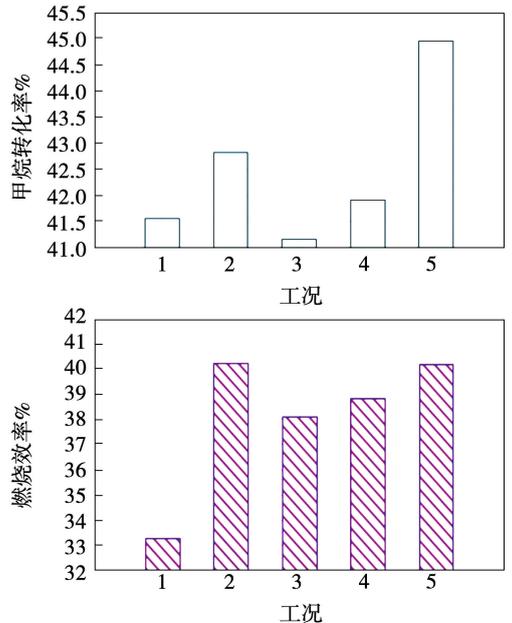


图5 催化剂不同涂覆方式对甲烷转化率和燃烧效率的影响

Fig.5 Effect of coating positions of catalyst on the methane conversion rate and combustion efficiency

此外,当催化剂被涂覆在燃烧器前段部位时(工况5),其甲烷转化率达到最大,接近45%;燃烧效率也与工况2的数值相当,较大幅度领先其它工况。

图6为5种工况的OH⁺在中心截面的云图,揭示出各工况甲烷转化率 θ 和燃烧效率 η 差异的原因。对比有/无催化剂涂覆情况时(工况1~工况4),尽管工况1的通道内火焰微团个数(2个)较后者(3个)少,但由于催化反应对燃烧热释放也有很大促进作用,在气相-催化反应的相互促进作用下,燃烧器燃烧效率得到大幅提升。当催化剂涂覆面积增加时(工况1→工况4→工况2),通道进口处锚定火焰的长度首先增加,说明燃烧强度提升;但当进一步增加催化剂面积至全涂覆时(工况2→工况3),该锚定火焰长度在表面催化反应的抑制作用下显著减小,燃烧强度反而降低。当催化剂移至燃烧器前段部位布置时(工况5),通道内“火焰街”形态又发生了很大变化,火焰微团个数增加到4个,因此甲烷转化率(接近45%)和燃烧效率(40.25%)达到各工况中的最优水平。

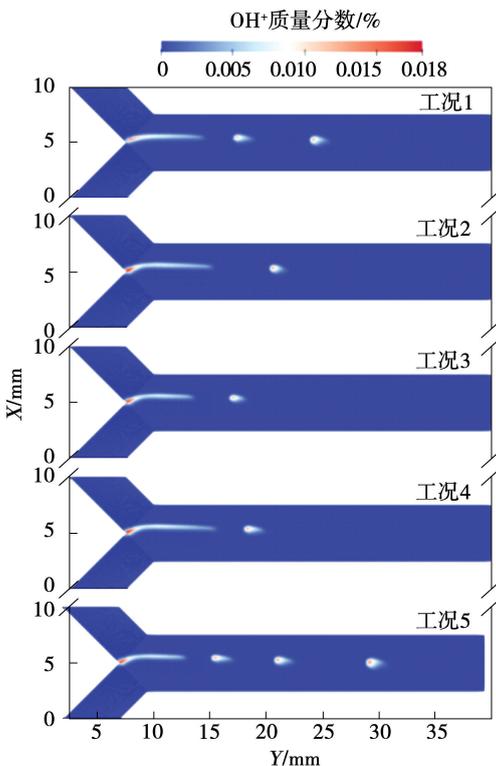


图6 5种工况燃烧室中心截面OH⁺的质量分数分布

Fig.6 Contours of OH⁺ mass fraction on the center plane for the five cases

图7为各工况下OH⁺和CO质量分数在燃烧室中心截面($z=0.375\text{ mm}$)和近壁面($z=0.749\text{ mm}$)中心线的分布。催化剂涂覆工况2~工况4的曲线较为相似,区别仅为OH⁺与CO的峰值相对大小;CO质量分数在燃烧器出口处均处于较低水平($<0.01\%$)。值得注意工况5,出口附近的CO质量分数达到了0.045%左右,甚至超过了工况1(0.032%),这一部分未反应的CO将是今后进一步提高燃烧器效率的重要考虑因素。

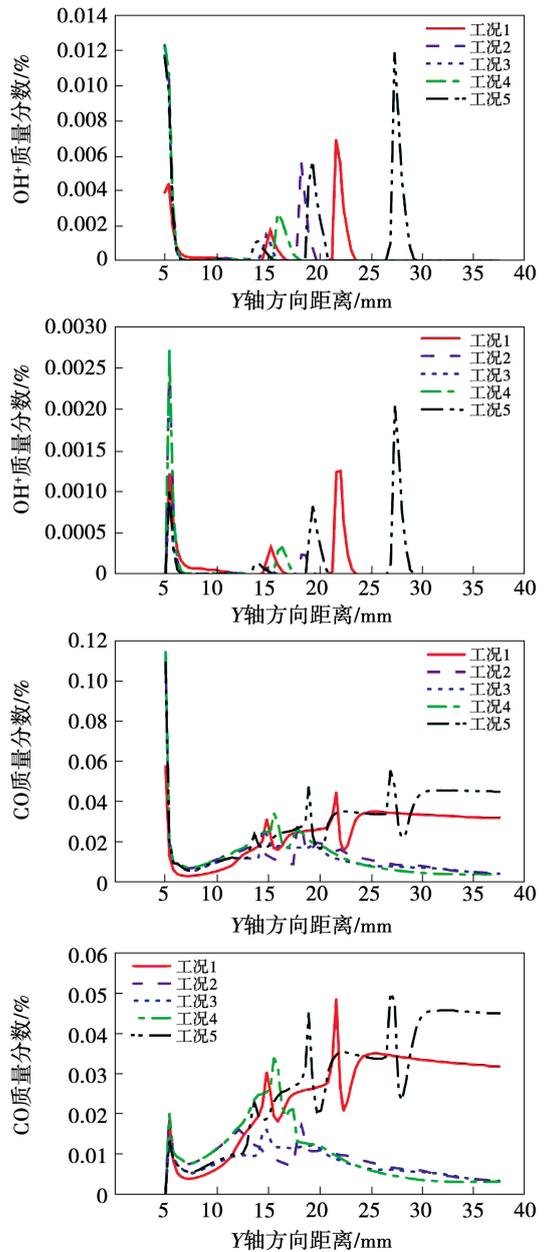


图7 5种工况燃烧室中心截面($z=0.375\text{ mm}$)和近壁面($z=0.749\text{ mm}$)中心线上的OH⁺和CO质量分数曲线

Fig.7 Profiles of the OH⁺ and CO mass fractions on the center plane ($z=0.375\text{ mm}$) and near the inner walls ($z=0.749\text{ mm}$) for the five cases

3 结 论

通过数值模拟方法研究微尺度 Y 型扩散燃烧器中 Pt 催化剂的使用及其在内表面的涂覆方式对“火焰街”形态、燃烧效率的影响,得出结论:

(1) 催化反应使“火焰街”的形态出现显著变化:火焰微团个数由无催化基础工况时的 3 个变为燃烧器后段局部涂覆及全涂覆催化剂时的 2 个,而在前段局部涂覆时达到 4 个火焰微团;

(2) 涂覆催化剂可以改善燃烧器内部燃烧状况,提高甲烷转换率及燃烧效率,最大值分别为 45% 和 40.25% ;

(3) 甲烷转化率和燃烧效率与催化剂涂覆面积呈现出非单调关系,存在一最佳涂覆面积使燃烧器性能达到优化。

参考文献:

- [1] KAISARE N S, VLACHOS D G. A review on microcombustion: fundamentals, devices and applications[J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2012, 38(3): 321–359.
- [2] JU Yi-guang, MARUTA K. Microscale combustion: technology development and fundamental research[J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2011, 37(6): 669–715.
- [3] MARUTA K. Micro and mesoscale combustion[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2011, 33(1): 125–150.
- [4] KIM N I, KATO S, KATAOKA T, et al. Flame stabilization and emission of small Swiss-roll combustors as heaters[J]. Combustion and Flame, 2005, 141(3): 229–240.
- [5] 曹海亮, 张 凯, 张硕果, 等. 多孔介质回热微燃烧器预混燃烧特性研究[J]. 热能动力工程, 2012(2): 207–211.
CAO Hai-liang, ZHANG Kai, ZHANG Shuo-guo, et al. Research on premixed combustion characteristics of porous media regenerative micro-burner[J]. Journal of Engineering for Thermal Energy and Power, 2012(2): 207–211.
- [6] WAN Jian-long, FAN Ai-wu, HONG Yao, et al. Experimental investigation and numerical analysis on the blow-off limits of premixed CH₄/air flames in a mesoscale bluff-body combustor[J]. Energy, 2016, 113: 193–203.
- [7] WAN Jian-long, FAN Ai-wu, LIU Yi, et al. Experimental investigation and numerical analysis on flame stabilization of CH₄/air mixture in a mesoscale channel with wall cavities[J]. Combustion and Flame, 2015, 50(5): 639–642.
- [8] KANG Xin, GOLLAN R J, JACOBS P A, et al. Suppression of instabilities in a premixed methane-air flame in a narrow channel via hydrogen/carbon monoxide addition[J]. Combustion & Flame, 2016, 173: 266–275.
- [9] PIZZA G, MANTZARAS J, BOULOUCHOS K. Dynamics of premixed hydrogen/air flames in microchannels[J]. Combustion and Flame, 2008, 152(3): 433–450.
- [10] FAN Ai-wu, MINAEV S, KUMAR S, et al. Experimental study on flame pattern formation and combustion completeness in a radial microchannel[J]. Journal of Micromechanics & Microengineering, 2007, 17(12): 2398.
- [11] MIESSE C, MASEL R I, SHORT M, et al. Experimental observations of methane-oxygen diffusion flame structure in a sub-millimetre microburner[J]. Combustion Theory and Modelling, 2005, 9(1): 77–92.
- [12] MIESSE C, MASEL R I, SHORT M, et al. Diffusion flame instabilities in a 0.75 mm non-premixed microburner[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2004, 30(2): 2499–2507.
- [13] MIESSE C M, MASEL R I, JENSEN C D, et al. Submillimeter-scale combustion [J]. AIChE Journal, 2004, 50(12): 3206–3214.
- [14] PRAKASH S, ARMISO A D, MASEL R I, et al. Flame dynamics and structure within sub-millimeter combustors[J]. AIChE Journal, 2010, 53(6): 1568–1577.
- [15] XU Bo, JU Yi-guang. Studies on non-premixed flame streets in a mesoscale channel[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2009, 32(1): 1375–1382.
- [16] KANG Xin, SUN Bo-wen, WANG Jian-yong, et al. A numerical investigation on the thermo-chemical structures of methane-oxygen diffusion flame-streets in a microchannel [J]. Combustion and Flame, 2019, 206: 266–281.
- [17] SUN Bo-wen, KANG Xin, WANG Yu. Numerical investigations on the methane-oxygen diffusion flame-street phenomena in a micro-channel: effects of wall temperatures, inflow rates and global equivalence ratios on flame behaviors and combustion performances [J]. Energy, 2020, 207: 118194.
- [18] CHEN Guan-bang, CHEN Chi-heng, WU Chih-yung, et al. Effects of catalytic walls on hydrogen/air combustion inside a micro-tube [J]. Applied Catalysis A General, 2007, 332(1): 89–97.
- [19] PENG Qing-guo, YANG Wen-ming, E Jia-qiang, et al. Experimental investigation on premixed hydrogen/air combustion in varied size combustors inserted with porous medium for thermophoto-

- voltaic system applications [J]. *Energy Conversion and Management*, 2019, 200: 112086.
- [20] WANG Shi-xuan, LI Lin-hong, FAN Ai-wu. Suppression of flame instability by a short catalytic segment on the wall of a micro channel with a prescribed wall temperature profile [J]. *Fuel*, 2018, 234: 1329 – 1336.
- [21] 钟北京, 洪泽恺. 微燃烧器内甲烷催化燃烧的数值模拟 [J]. *热能动力工程*, 2003, 18(6): 584 – 588.
ZHONG Bei-jing, HONG Ze-kai. Numerical simulation of methane catalytic combustion in micro burner [J]. *Journal of Engineering for Thermal Energy and Power*, 2003, 18(6): 584 – 588.
- [22] MACDONALD M A, GOULDIN F C, FISHER E M. Temperature dependence of phosphorus-based flame inhibition [J]. *Combustion and Flame*, 2001, 124(4): 668 – 683.
- [23] WU Long, KOBAYASHI N, LI Zhan-yong, et al. Numerical study of the effects of oxygen concentration and fuel jet velocity on thermal radiation in methane and propane turbulent diffusion flames [J]. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2015, 93(9): 1567 – 1576.
- [24] DEUTSCHMANN O, SCHMIDT R, BEHRENDT F, et al. Numerical modeling of catalytic ignition [C] // *Symposium (International) on Combustion*. Elsevier, 1996, 26(1): 1747 – 1754.
- [25] SUI R, MANTZARAS J. Combustion stability and hetero-/homogeneous chemistry interactions for fuel-lean hydrogen/air mixtures in platinum-coated microchannels [J]. *Combustion and Flame*, 2016, 173(11): 370 – 386.
- [26] MARUTA K, TAKEDA K, AHN J, et al. Extinction limits of catalytic combustion in microchannels [J]. *Mini-Symposium MS10-Numerical Modeling of Microscale Combustion*, 2002, 29(1): 957 – 963.

(丛 敏 编辑)