

扩散火焰中燃料种类对碳烟演变过程的影响

吴建, 陈玲红*, 周剑武, 张健夫, 吴学成, 岑可法

浙江大学能源清洁利用国家重点实验室, 浙江 杭州 310027

摘要 采用激光诱导炽光和激光诱导荧光技术研究了燃料种类对碳烟演变过程的影响。以 CH_4 、 C_2H_4 、 C_3H_8 的扩散火焰为研究对象, 测量了碳烟的体积分数、粒径、颗粒数浓度以及多环芳烃相对浓度的二维分布。结果表明: CH_4 、 C_2H_4 、 C_3H_8 火焰的碳转化因子分别为 0.0058、0.144、0.043; 碳烟颗粒的平均粒径为 9.2、20.8、14.7 nm, 对应的颗粒数浓度分别为 6.9×10^{21} 、 8.7×10^{21} 、 $7.8 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$; 对于含有较多碳原子或不饱和键的燃料, 碳烟和环芳烃的生成演变过程更为迅速; 比表面增长速率和生长时间的综合变化导致 C_2H_4 火焰中碳烟颗粒的粒径最大, C_3H_8 次之, CH_4 最小。

关键词 光谱学; 燃烧诊断; 激光诱导炽光; 碳烟; 激光诱导荧光; 多环芳烃; 增长速率

中图分类号 O433

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0411001

Effects of Fuel Types on Soot Evolution in Diffusion Flames

Wu Jian, Chen Linghong*, Zhou Jianwu, Zhang Jianfu, Wu Xuecheng, Cen Kefa

State Key Laboratory of Clean Energy Utilization, Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310027, China

Abstract The effects of fuel types on the soot evolution are studied using laser-induced incandescence (LII) and laser-induced fluorescence (LIF) technologies. The diffusion flames from methane, ethylene and propane are selected as research objectives, and the two-dimensional distributions of volume fraction, primary particle size, and particle number concentration of soot as well as the relative concentration of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) are measured. The measurement results show that the carbon conversion factors in methane, ethylene and propane flames are 0.0058, 0.144 and 0.043; the average particle sizes of soot are 9.2, 20.8 and 14.7 nm, and the corresponding particle number concentrations are 6.9×10^{21} , 8.7×10^{21} and $7.8 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$, respectively. It is found that the PAH and soot formation are fast in the flame for the fuel with the unsaturated bond or more carbon atoms. The comprehensive changes in both specific surface growth rate and growth time for the soot result in the largest soot particle size in ethylene flame and followed by the propane flame and methane flame.

Key words spectroscopy; combustion diagnostics; laser-induced incandescence; soot; laser-induced fluorescence; polycyclic aromatic hydrocarbon; growth rate

OCIS codes 120.1740; 280.2470; 290.6815; 300.2530

1 引言

碳烟是碳氢燃料不完全燃烧的主要产物之一, 也是大气污染中雾霾的重要组成部分^[1-2]。为了控制碳烟的排放, 深入理解和掌握燃烧过程中碳烟的演变规律至关重要。虽然已有大量针对碳烟演变规律的研究, 但不同燃烧条件下碳烟的成核、生长以及氧化机制尚不明确^[3]。

已有研究证实了燃料分子结构对碳烟生成规律的影响较大。Smyth 等^[4]对 CH_4 、 C_2H_4 、 C_3H_8 三种燃料的扩散火焰进行测量后认为, 当三种燃料的碳流量相同时, C_2H_4 火焰中产生的碳烟的体积分数最高, C_3H_8 次之, CH_4 最低。在类似的对比实验中, Furuhashi 等^[5]也发现 C_3H_8 火焰比 CH_4 火焰中碳烟的体积分数高。Hwang 等^[6-8]发现, 将一定浓度的 C_2H_6 、 C_3H_8 与 C_2H_4 掺混, 会导致火

收稿日期: 2018-11-01; 修回日期: 2018-11-22; 录用日期: 2018-12-25

基金项目: 国家重点研发计划(2018YFB0605200)、国家自然科学基金(51206144)、国家自然科学基金创新研究群体科学基金(51621005)、高等学校学科创新引智计划项目(B08026)

* E-mail: chenlh@zju.edu.cn

焰中多环芳烃(PAH)和碳烟的体积分数升高。结合模拟计算,Hwang发现烯烃在燃烧过程中会产生较多的 C_2H_2 ,烷烃在燃烧过程中会产生较多的 CH_3 和 C_3H_3 ,而这些产物均是碳烟及其前体物PAH形成过程中的重要反应物^[9]。由此可见,燃料结构的不同会导致碳烟前体物的浓度以及对应的化学反应途径发生变化,继而引起碳烟体积分数的变化。上述研究工作阐释了燃料分子结构对碳烟及其前体物生成的影响,但由于测量手段的限制,大部分工作仅关注碳烟体积分数的变化,未能针对碳烟的成核、生长以及氧化等演变过程进行深入分析。碳烟的体积分数与其尺寸以及颗粒的数浓度密切相关,碳烟的成核会引起颗粒数的变化,而碳烟的生长则会引起颗粒尺寸的变化,因此有必要对碳烟体积分数、颗粒尺寸以及颗粒数浓度等参数进行二维表征。

激光诱导炽光(LII)技术作为一种具有非干扰、高时空分辨率等优点的光学诊断技术,已被广泛运用在燃烧过程和大气环境中的碳烟测量^[10-11]。该技术的原理是通过高能脉冲激光加热碳烟,使其从火焰温度(~ 2000 K)上升至升华温度(~ 4000 K)附近,当加热结束后,碳烟颗粒的升华、与周围环境的对流换热以及热辐射导致其温度逐渐降低。通过测量辐射信号的峰值和衰减速率可对碳烟的体积分数和粒径进行表征^[12]。通过与采样观测的结果进行对比,李红梅等^[13]发现基于LII技术测量的结果能很好地反映火焰中碳烟的粒径变化趋势。联合激光诱导荧光(LIF)技术对火焰中PAH的测量,Liu等^[14]深入研究了正丁醇和2,5-二甲基咪喃添加在柴油替代燃料中对PAH和碳烟体积分数、粒径的影响。利用LII技术获得的碳烟的二维体积分数、粒径、颗粒数浓度等信息,Oh等^[15]分析了丙烷扩散火焰氧化剂侧氧气浓度和成分的变化对碳烟成核、生长过程的影响。由此可见,采用LII技术对火焰中的碳烟进行多参数的二维表征,能够实现对碳烟演变过程的深入研究。

本文以 CH_4 、 C_2H_4 、 C_3H_8 的空气扩散火焰为研究对象,联合LII和LIF技术测量了碳烟的二维体积分数(f_v)、粒径(d_p)、颗粒数浓度(n_p)以及PAH的相对浓度分布。测量结果揭示了三种火焰中各参数的变化规律,并基于彼此之间的关系,从碳烟演变过程的角度深入阐释了不同燃料对碳烟生成的影响机制。

2 实验方法

2.1 碳烟的体积分数及粒径

在LII实验中,碳烟颗粒经高能脉冲激光加热后,通过升华、与周围环境的对流以及辐射换热,温度逐渐降低至初始温度^[16]。该传热传质过程为

$$\frac{dU}{dt} = Q_{\text{abs}} - Q_{\text{sub}} - Q_{\text{con}} - Q_{\text{rad}}, \quad (1)$$

式中: $\frac{dU}{dt}$ 为碳烟颗粒热力学能的变化; Q_{abs} 为碳烟颗粒吸收的激光能量; Q_{sub} 、 Q_{con} 、 Q_{rad} 分别为碳烟颗粒在冷却过程中升华、与周围环境导热、热辐射所导致的热损失。由Melton^[17]理论分析可知,峰值LII信号(S_{LII})与碳烟体积分数(f_v)成正比,即 $S_{\text{LII}} = C_{\text{cal}} f_v$,其中的 C_{cal} 为标定系数,可以通过消光法确定^[18]。

激光脉冲加热结束后,当颗粒的冷却主要受对流换热控制时,冷却速率与颗粒的比表面积成正比,因此可通过对对流换热过程的表征来计算颗粒的粒径^[12]。对于常压火焰中的碳烟,由于其努森数大于10,对流换热过程处于自由分子流区域^[16],碳烟的粒径(d_p)可通过(2)式求解^[19]:

$$d_p = C \frac{\tau_\lambda}{\sqrt{T_g}} \times \left[\ln(T_{\text{h-max}} - T_g) - \ln \left(\frac{T_{\text{h-max}}}{1 + \frac{\lambda_{\text{det}} k}{hc} T_{\text{h-max}}} - T_g \right) \right]^{-1}, \quad (2)$$

其中,

$$C = \frac{3\alpha_T p_g}{N_p \rho_s c_s} \left(\frac{R}{2\pi W_g} \right)^{0.5} \left(\frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} \right) \left(\frac{N_p}{k_h} \right)^{2/D_h}, \quad (3)$$

式中: C 为颗粒和燃烧气体产物的热物性参数; τ_λ 为LII信号的衰减特征时间,可通过在不同延迟时间捕捉得到的LII信号进行计算; $T_{\text{h-max}}$ 为对流换热区域的最高温度; T_g 为火焰温度,在热平衡假设下,该数值等于碳烟颗粒未被激光加热前的温度; λ_{det} 为探测波长; h 、 c 、 k 分别为普朗克常数、光速和玻尔兹曼常数。其中, C 主要包括热适应系数 α_T 、环境压力 p_g 、团聚体中基元体碳烟的个数 N_p 、颗粒密度 ρ_s 、比热容 c_s 、气体通用常数 R 、燃烧气体产物的摩尔质量 W_g 、比热容比 γ 以及团聚体分型表征参数 k_h 和 D_h 。各参数取值分别为: $\alpha_T = 0.25$, $p_g = 1.013 \times 10^5$ Pa, $\rho_s = 1900$ kg/m³, $c_s = 2100$ J·kg⁻¹·K⁻¹, $R = 8.3145$, $W_g =$

0.0287 kg/mol, $\gamma = 1.3$ 。 k_h 和 D_h 是 α_T 的函数^[20]。为了方便求解计算,可假设 $T_{h,max} = 3600$ K, $N_p = 20$, 它们引入的粒径计算误差分别不超过 4% 和 7%^[19]。在粒径测量的基础上,结合碳烟体积分数的测量结果,依据 $n_p = 6f_v / (\pi d_p^3)$ 可计算得到颗粒的数浓度(n_p)。

2.2 PAH 的相对浓度

PAH 通常被认为碳烟的前体物。碳烟在成核后的生长过程中,除了脱氢加乙炔(HACA)的反应途径外,PAH 与碳烟表面的活性位点发生反应也被认为是碳烟生长的重要途径之一^[3]。测量 PAH 在火焰中的分布有助于深入分析碳烟的演变过程。Bejaoui 等^[21]指出大部分种类的 PAH 均能被 266 nm 波长的激光激发出荧光,因此实验采用 266 nm 波长的激光进行 PAH-LIF 的测量。Desgroux 等^[22]指出,LIF 信号强度与被激发的 PAH 的具体成分、浓度、温度以及碰撞淬灭有关。目前定量研究 PAH 较为困难,因此本研究通过测量 PAH-LIF 的信号强度对 PAH 的相对浓度进行表征。

3 实验工况及装置

3.1 燃烧实验工况

实验所用燃烧器主要由直径为 11.1 mm 和 101.6 mm 的同心管组成,其中内管通燃料气体,外

管通空气。在内外管之间,放置有蜂窝陶瓷片和直径为 3 mm 的小玻璃珠,目的是获得均匀的空气气流,保证火焰的稳定性。采用质量流量计(Alicat Scientific, Inc., 美国)控制燃料气体和伴流空气的流量,其中空气流量为 43 L/min, CH_4 、 C_2H_4 、 C_3H_8 的流量分别为 0.291, 0.146, 0.097 L/min。该设定条件可保证三种燃料气体的碳流量均为 2.6 mg/s。采用数码单反相机(DSLR)拍摄该设置下不同燃料的扩散火焰,结果如图 1 所示。

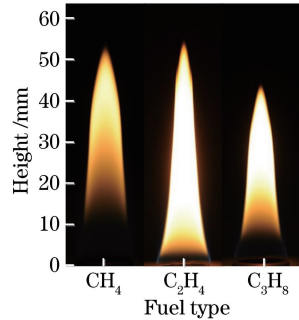


图 1 三种燃料的扩散火焰图

Fig. 1 Pictures of diffusion flame of three kinds of fuels

3.2 实验装置

如图 2 所示,实验系统主要由激光光源、燃烧平台以及光电探测器三部分组成,其中,光电探测器主要包括 DSLR 和像增强相机(ICCD)。

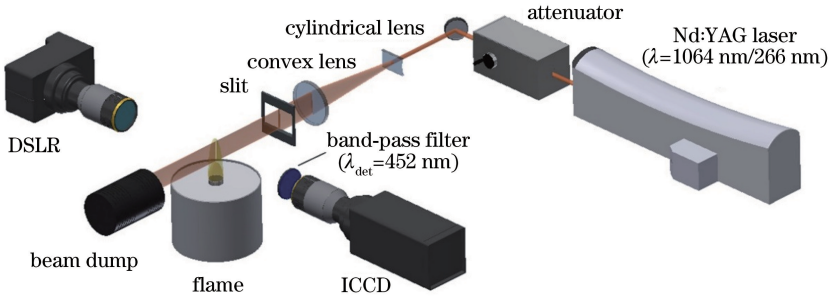


图 2 实验装置示意图

Fig. 2 Schematic of experimental setup

在 LII 实验中,采用 Nd:YAG 激光器(Brilliant B, Quantel, 法国)输出波长为 1064 nm、频率为 10 Hz 的脉冲激光,激光脉宽约为 10 ns,单脉冲最高能量约为 800 mJ。结合能量衰减器控制光束能量,采用柱面凹透镜(焦距 $f = -25$ mm)和平面凸透镜(焦距 $f = 500$ mm)将光束扩展为片光。通过狭缝截取片光中间部分激光能量密度较为均匀的区域,最终在燃烧器轴心处形成高度约为 70 mm,厚度为 400 μ m 的激光片光。在竖直方向上,片光能量密度的平均偏差为 15%。片光在穿过火焰时,由于

碳烟的吸收作用,能量密度有所衰减。为了确保火焰两侧的信号强度不受激光能量密度的影响,依据 Chen 等^[23]的能量曲线测量结果,选择激光能量密度为 0.4 J/cm²。在 LIF 实验中,采用 Nd:YAG 激光器经四倍频后输出波长为 266 nm 的激光,其他部分与 LII 实验装置相同,所用的激光脉冲能量为 7 mJ。该能量能激发得到较高强度的 PAH-LIF 信号,同时又能避免碳烟 LII 信号的出现。

实验采用 ICCD(PI-MAX4:1024i, Princeton Instruments, 美国)结合 Nikon 紫外成像镜头

(105-mm $f/4.5$ UV Nikkor, Nikon, 日本)实现 LII 和 LIF 信号的采集。为了减小火焰背景辐射和激光散射光的影响,在相机前放置中心波长为 450 nm 的带宽滤光片(半峰全宽为 40 nm)。在 LII 和 LIF 测量过程中,ICCD 门宽分别设置为 20 ns 和 10 ns,累积 100 次,以提高测量结果的信噪比。同步控制 ICCD 的快门和激光脉冲,在激光脉冲达到峰值时,开启 ICCD 快门捕捉 LIF 信号和峰值 LII 信号。利用 ICCD 采集激光脉冲峰值延迟 100 ns 和 300 ns 的 LII 信号,由此可计算得到火焰二维 LII 信号的衰减特征时间(τ_λ)分布,再结合(2)式就可以计算得到火焰中碳烟的二维粒径分布。

4 实验结果与分析

4.1 碳烟体积分数及 PAH-LIF 分布

Bejaoui 等^[21]认为,在扩散火焰中,PAH 和碳烟分布在火焰的不同高度处。根据 Lemaire 等^[24]对扩散火焰的测量结果可知,图 3 中分布在火焰上方的为碳烟的 LII 信号,下方的为 PAH 的 LIF 信号。PAH 和碳烟的分布规律类似,均是开始形成于火焰的两翼,至一定高度后,才在火焰中部出现。在 CH_4 火焰中,PAH-LIF 信号的峰值出现在靠近火焰上方的中部区域,且强度远高于火焰侧翼;在 C_2H_4 火焰中,PAH-LIF 信号的峰值虽然也出现在火焰中部,但与侧翼的最高值相仿;在 C_3H_8 火焰中,PAH-LIF 信号的峰值分布规律与 CH_4 火焰正好相反。

由于三种扩散火焰的高度有所差异,故采用归一化火焰高度(z/L_f , z 为火焰的不同高度位置, L_f

为火焰的整体高度)表征燃料种类对 PAH 和碳烟生成规律的影响。由图 4 可以看出:在 CH_4 火焰中,当 $z/L_f < 0.2$ 时,未观测到明显的 LIF 信号,该区域主要为燃料区;当 $z/L_f = 0.2 \sim 0.8$ 时,可观察到明显的 LIF 信号,且当 $z/L_f = 0.65$ 时,信号强度达到峰值;当 $z/L_f > 0.65$ 时,LIF 的信号强度逐渐减弱,碳烟的 LII 信号在 $z/L_f = 0.7$ 时开始出现,并在 $z/L_f = 0.85$ 时达到峰值。该结果表明:随着火焰高度增加,燃料逐渐热解为 PAH,且 PAH 的浓度逐渐增加,在 PAH 达到峰值浓度时,碳烟开始生成;随着碳烟体积分数逐渐增大,PAH 的浓度逐渐减小,且在碳烟体积分数达到峰值位置处,PAH 的浓度减小至 0;随着火焰高度进一步增加,由于氧化作用,碳烟的体积分数逐渐降低至 0。在 C_2H_4 和 C_3H_8 火焰中,也发现了类似的演变规律。该演变规律证实了 PAH 与碳烟的成核以及生长密切相关。需要注意的是,在 C_3H_8 火焰中,PAH-LIF 信号主要位于 $z/L_f = 0.1 \sim 0.7$ 的区间,并在 $z/L_f = 0.5$ 时达到峰值,碳烟的 LII 信号主要位于 $z/L_f = 0.55 \sim 1$ 的区间,并在 $z/L_f = 0.75$ 时达到峰值。上述结果证实了 Furuhata 等^[5]的实验结论,即:对于碳原子数较多的碳氢燃料,燃料与 PAH 以及碳烟之间的演变过程更迅速。但在 C_2H_4 火焰中,PAH-LIF 信号主要位于 $z/L_f = 0 \sim 0.6$ 的区间,并在 $z/L_f = 0.35$ 时达到峰值,碳烟的 LII 信号主要位于 $z/L_f = 0.4 \sim 1$ 的区间,并在 $z/L_f = 0.65$ 时达到峰值。这一实验结果表明,碳氢燃料分子中碳碳键的连接方式对两者的演变规律影响更大。

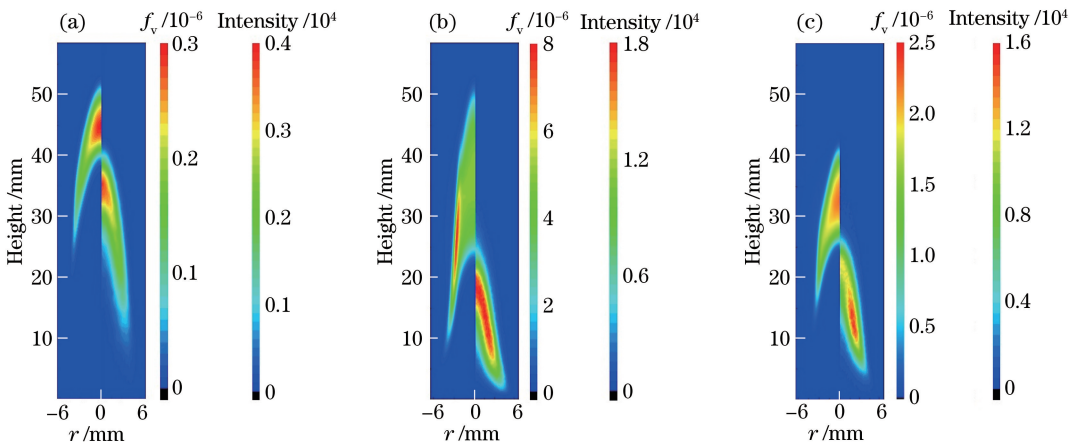


图 3 碳烟体积分数和 PAH-LIF 强度的二维分布。(a) CH_4 扩散火焰;(b) C_2H_4 扩散火焰;(c) C_3H_8 扩散火焰

Fig. 3 Two-dimensional distributions of soot volume fraction (left) and PAH-LIF intensity (right).

(a) Methane diffusion flame; (b) ethylene diffusion flame; (c) propane diffusion flame

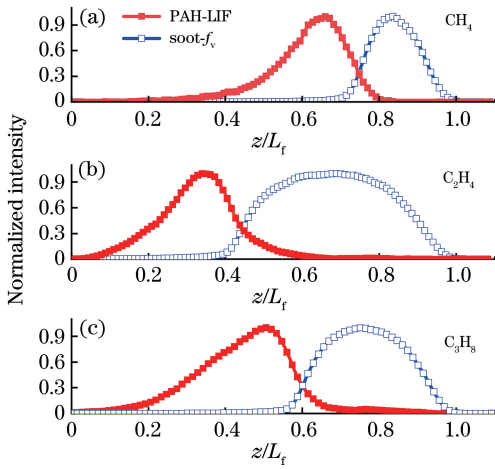


图 4 不同火焰中轴线上 PAH-LIF 归一化强度和碳烟的体积分数。(a) CH₄ 火焰; (b) C₂H₂ 火焰; (c) C₃H₈ 火焰

Fig. 4 Normalized intensity profiles of PAH-LIF and volume fraction of soot along the centerline in various flames. (a) Methane flame; (b) ethylene flame; (c) propane flame

为了定量表征三种燃料中碳烟的生成趋势,参考 Gülder 等^[25]的工作,将燃料中的碳转化为碳烟中碳的比例定义为碳转化因子,即

$$\eta = m_s / m_c, \quad (4)$$

式中: m_c 为燃烧器出口燃料中的碳流量; m_s 为碳烟中的碳流量^[25], 可表示为

$$m_s(z) = v_z(z) \rho_s \int 2\pi f_v(r, z) r dr, \quad (5)$$

式中: v_z 为火焰的轴向速度。三种火焰中的弗劳德数远小于 1, 火焰主要受浮力控制^[26]。Santoro 等^[27]对不同扩散火焰的速度进行测量后发现, 该类同轴扩散火焰的加速度 $a = 25 \text{ m/s}^2$, 火焰的轴向速度可表示为 $v_z = \sqrt{2az}$, 对应的停留时间 $t = \sqrt{2z/a}$ 。碳转化因子与停留时间的关系如图 5 所示。CH₄、C₂H₄、C₃H₈ 三种火焰的峰值碳转化因子分别为 0.0058、0.144、0.043。由曲线上升阶段的斜率可知, C₂H₄ 火焰中碳烟的生长速度最大, C₃H₈ 次之, CH₄ 最小。由于测量手段的限制, 实验过程中无法准确捕捉到碳烟生长的起点(碳烟成核的位置点), 故人为定义当碳转化因子达到峰值的 1/100 时为碳烟生长的起点, 由此可以计算得到三种火焰中的碳烟在质量增长阶段的停留时间分别为 23, 28, 19 ms。

4.2 碳烟颗粒的粒径及数浓度

三种扩散火焰中碳烟的颗粒粒径及颗粒数浓度

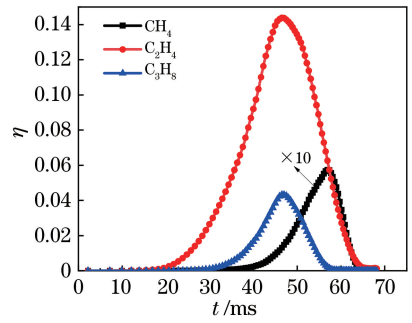


图 5 碳转化因子随停留时间的变化
Fig. 5 Carbon conversion factor as a function of residence time

分布如图 6 所示。C₃H₈ 火焰顶端颗粒的数浓度较大, 这可能是由火焰的波动造成的。与 PAH-LIF 及碳烟体积分数的分布不同, 三种火焰的测量结果均表明, 较大尺寸的碳烟主要分布在火焰边缘, 而颗粒数浓度在火焰中部较高。Smooke 等^[28]通过模拟计算指出, 扩散火焰中碳烟的生成速率在火焰中心附近较高, 而颗粒数浓度是反应碳烟生成速率的关键参数, 因此图 6 中的颗粒数浓度分布证实了该模拟结果。为了表征火焰中碳烟生成的整体情况, 图 7 对不同粒径段内的颗粒数浓度进行了统计。采用对数正态分布函数分别对三种火焰中的统计结果进行拟合, 分析后可知 CH₄、C₂H₄、C₃H₈ 三种扩散火焰中碳烟颗粒的几何平均尺寸分别为 9.2, 20.8, 14.7 nm, 对应的颗粒的数浓度分别为 6.9×10^{21} , 8.7×10^{21} , $7.8 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ 。

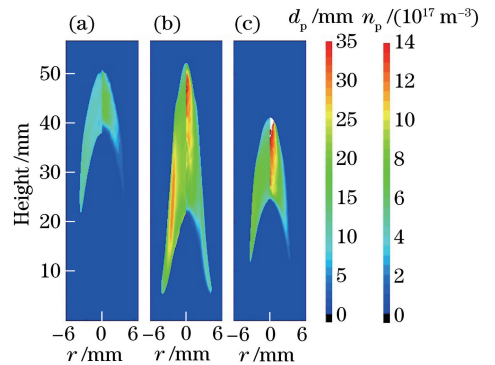


图 6 不同扩散火焰中碳烟颗粒的粒径及数浓度。
(a) CH₄ 火焰; (b) C₂H₄ 火焰; (c) C₃H₈ 火焰

Fig. 6 Particle size and particle number concentration of soot in different diffusion flames. (a) Methane flame; (b) ethylene flame; (c) propane flame

4.3 碳烟的演变过程分析

Dworkin 等^[29]指出, 在扩散火焰中, 火焰侧翼碳烟的生长主要受 HACA 反应机制的控制, 而火焰中心区域则主要受 PAH 在碳烟表面的凝并过程控

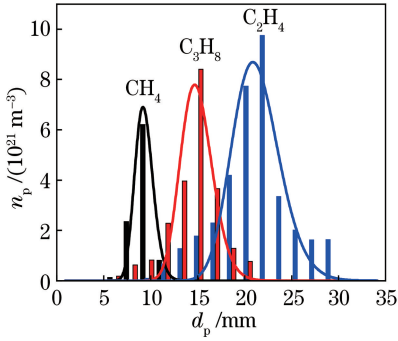


图 7 不同粒径段内的颗粒数浓度

Fig. 7 Particle number concentration in various size ranges

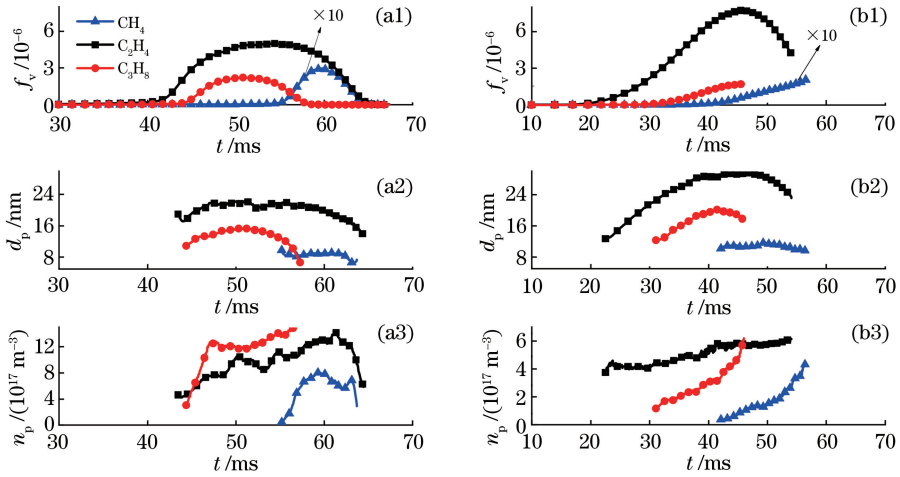


图 8 不同位置处的 f_v 、 d_p 、 n_p 随停留时间的变化规律。(a) 火焰中心；(b) 火焰侧翼

Fig. 8 Variations of f_v , d_p and n_p in different positions with residence time.

(a) Central part of flame; (b) annular part of flame

$$f = \frac{\rho_s}{2} \frac{dd_p}{dt} \quad (6)$$

由于颗粒的密度假设为定值,故比表面增长速率与粒径的变化直接相关。通过对图 8 中粒径的数据采用三次多项式拟合,然后对时间求导就可计算得到比表面增长速率。火焰侧翼碳烟的比表面增长速率如图 9 所示。对比 Megaridis 等^[30]在 C_2H_4 扩散火焰中的测量结果可知,两者基本吻合。由于本实验所用 C_2H_4 流量较小,火焰高度较低,故颗粒生长阶段较文献中的时间更短。相较于 C_2H_4 和 C_3H_8 火焰, CH_4 火焰表现差异较大,这可能是由于 CH_4 火焰中的 LII 信号较弱,碳烟粒径变化曲线的信噪比较差,因此导致后续拟合处理结果出现偏差。

图 10 统计了火焰侧翼和火焰中心处碳烟比表面增长速率的平均值,可见:除 CH_4 外,另两种火焰中心和侧翼处碳烟的平均比表面增长速率基本一

致。对于扩散火焰,其侧翼上每一高度处碳烟体积分数最高的位置可以认为是碳烟的生长轨迹点^[27]。为了对比火焰中心和火焰侧翼碳烟的生长状况,图 8 分别绘制了火焰中心和侧翼处碳烟体积分数、粒径、颗粒数浓度随停留时间的变化规律。由图 3 可知,随着火焰高度增加,碳烟最高体积分数所对应的位置逐渐向火焰中部移动,因此图 8(b)中的曲线只需绘制到一定高度即可。

图 5 的结果表明 C_2H_4 火焰中碳烟的生成量最大,且碳烟的质量增加速率最大。为了深入分析燃料种类对碳烟生成量的影响,此处引入碳烟比表面增长速率 f 进行定量分析。该参数定义为单位面积上碳烟的表面增长速率^[15],即:

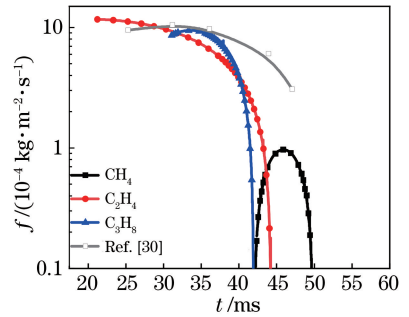


图 9 火焰侧翼碳烟的比表面增长速率

Fig. 9 Specific surface growth rate of soot in annular part of flames

致。由总体平均值(火焰中心和侧翼的整体平均值)可知, C_2H_4 火焰中碳烟的比表面增长速率是 C_3H_8 火焰的 1.04 倍,是 CH_4 火焰的 3.54 倍。由图 5 可知, C_2H_4 火焰中碳烟生长的停留时间最长, CH_4 次之, C_3H_8 最短。虽然 C_2H_4 火焰中碳烟比表面增长

速率的平均值与 C_3H_8 火焰基本相当,但由于 C_3H_8 火焰中碳烟颗粒生长的停留时间较短,所以碳烟颗粒的粒径小于 C_2H_4 火焰中碳烟颗粒的粒径。由于 CH_4 火焰的比表面增长速率远小于另外两种火焰,故而 CH_4 火焰中碳烟颗粒的粒径最小。同时,由于 C_2H_4 、 C_3H_8 、 CH_4 三种火焰中颗粒的表面积 ($n_p \pi d_p^2$) 依次减小,所以碳烟的表面增长速率依次减小。火焰中碳烟总体质量的增加主要是由颗粒表面增长造成的,该结论证实了图 5 中碳烟质量增长速率的变化趋势。综合质量增长速率和质量增长阶段停留时间的变化,可以合理解释三种火焰中碳烟总生成量的差异。

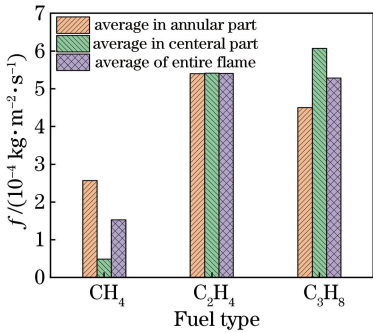


图 10 火焰中心和侧翼碳烟比表面增长速率的平均值以及整体火焰的平均值

Fig. 10 Average specific surface growth rate of soot in the central flame and annular flame as well as the entire flame

5 结 论

采用 LII、LIF 法对 CH_4 、 C_2H_4 、 C_3H_8 三种气体燃料层流扩散火焰中碳烟的二维体积分数、粒径、颗粒数浓度以及 PAH 的相对浓度进行了测量。测量结果证实了 PAH 是碳烟生成的前体物,对于碳原子数较多或含有不饱和键的燃料,PAH 与碳烟之间的演变过程更为迅速,燃料中的碳转化为碳烟的比例更高。按照 C_2H_4 、 C_3H_8 、 CH_4 的顺序,三种火焰中碳烟颗粒的平均粒径和数浓度依次减小,但均表现为火焰侧翼碳烟颗粒的粒径较大,火焰中心的颗粒数浓度较高。基于测量结果可得碳烟的质量增长时间和比表面增长速率,分析后发现,比表面增长速率和碳烟生长时间的综合变化是导致不同燃料燃烧过程中碳烟粒径和质量产生差异的原因。上述测量结果能够为碳烟生成的理论模型提供实验数据支撑,同时该研究证实了激光诊断技术对燃烧过程中碳烟多场多参数测量的可行性,并能基于测量结果深入探究碳烟的演变规律。由于燃烧过程中 PAH

的种类复杂多样,为了深入阐释碳烟的生成机制,可结合激光诊断技术,进一步开展 PAH 的定性定量测量。

参 考 文 献

- [1] Yan M M, Wu J, Shen J D, *et al.* Source apportionment of carbonaceous aerosol based on aethalometer model [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2017, 54(5): 050102.
颜明明, 吴建, 沈建东, 等. 基于黑碳仪模型的含碳气溶胶来源解析 [J]. *激光与光电子学进展*, 2017, 54(5): 050102.
- [2] Xu S, Bai L H, Fan M, *et al.* Optical properties of soot aggregates and mixture particles with water coatings [J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37 (2): 0201002.
徐澍, 白连红, 范萌, 等. 黑碳团簇及具有包覆水层混合态粒子的光学特性 [J]. *光学学报*, 2017, 37(2): 0201002.
- [3] Richter H, Howard J B. Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot: a review of chemical reaction pathways [J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2000, 26(4/5/6): 565-608.
- [4] Smyth K C, Shaddix C R, Everest D A. Aspects of soot dynamics as revealed by measurements of broadband fluorescence and flame luminosity in flickering diffusion flames [J]. *Combustion and Flame*, 1997, 111(3): 185-207.
- [5] Furuhashi T, Kobayashi Y, Hayashida K, *et al.* Behavior of PAHs and PM in a diffusion flame of paraffin fuels [J]. *Fuel*, 2012, 91(1): 16-25.
- [6] Hwang J Y, Lee W, Kang H G, *et al.* Synergistic effect of ethylene - propane mixture on soot formation in laminar diffusion flames [J]. *Combustion and Flame*, 1998, 114(3/4): 370-380.
- [7] Lee S M, Yoon S S, Chung S H. Synergistic effect on soot formation in counterflow diffusion flames of ethylene-propane mixtures with benzene addition [J]. *Combustion and Flame*, 2004, 136(4): 493-500.
- [8] Yoon S S, Lee S M, Chung S H. Effect of mixing methane, ethane, propane, and propene on the synergistic effect of PAH and soot formation in ethylene-base counterflow diffusion flames [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2005, 30 (1): 1417-1424.
- [9] Kailasanathan R K A, Yelverton T L B, Fang T, *et al.* Effect of diluents on soot precursor formation and temperature in ethylene laminar diffusion flames [J]. *Combustion and Flame*, 2013, 160(3): 656-670.

- [10] Michelsen H A. Probing soot formation, chemical and physical evolution, and oxidation: a review of *in situ* diagnostic techniques and needs[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2017, 36(1): 717-735.
- [11] Tang Q L, Zhang P, Liu H F, *et al.* Quantitative measurements of soot volume fractions in diesel engine using laser-induced incandescence method[J]. Acta Physico-Chimica Sinica, 2015, 31(5): 980-988. 唐青龙, 张鹏, 刘海峰, 等. 利用激光诱导炽光法定量测量柴油机缸内燃烧过程碳烟体积分数[J]. 物理化学学报, 2015, 31(5): 980-988.
- [12] Will S, Schraml S, Leipertz A. Two-dimensional soot-particle sizing by time-resolved laser-induced incandescence[J]. Optics Letters, 1995, 20(22): 2342-2344.
- [13] Li H M, He X, Zheng L, *et al.* Study on the measurement of soot particle size by laser induced incandescence [J]. Journal of Engineering Thermophysics, 2013, 34(7): 1389-1392. 李红梅, 何旭, 郑亮, 等. 激光诱导炽光技术用于碳烟粒径测试的研究[J]. 工程热物理学报, 2013, 34(7): 1389-1392.
- [14] Liu H F, Zhang P, Liu X L, *et al.* Laser diagnostics and chemical kinetic analysis of PAHs and soot in co-flow partially premixed flames using diesel surrogate and oxygenated additives of n-butanol and DMF[J]. Combustion and Flame, 2018, 188: 129-141.
- [15] Oh K C, Shin H D. The effect of oxygen and carbon dioxide concentration on soot formation in non-premixed flames[J]. Fuel, 2006, 85(5/6): 615-624.
- [16] Michelsen H A, Liu F, Kock B F, *et al.* Modeling laser-induced incandescence of soot: a summary and comparison of LII models[J]. Applied Physics B, 2007, 87(3): 503-521.
- [17] Melton L A. Soot diagnostics based on laser heating [J]. Applied Optics, 1984, 23(13): 2201-2208.
- [18] Schulz C, Kock B F, Hofmann M, *et al.* Laser-induced incandescence: recent trends and current questions[J]. Applied Physics B, 2006, 83(3): 333-354.
- [19] Wu J, Chen L H, Yan M M, *et al.* Soot particle sizing based on analytical formula derived from laser-induced incandescence decay signals [J]. Applied Physics Letters, 2017, 110(4): 041903.
- [20] Liu F, Yang M, Hill F A, *et al.* Influence of polydisperse distributions of both primary particle and aggregate size on soot temperature in low-fluence LII [J]. Applied Physics B, 2006, 83(3): 383-395.
- [21] Bejaoui S, Mercier X, Desgroux P, *et al.* Laser induced fluorescence spectroscopy of aromatic species produced in atmospheric sooting flames using UV and visible excitation wavelengths [J]. Combustion and Flame, 2014, 161(10): 2479-2491.
- [22] Desgroux P, Mercier X, Thomson K A. Study of the formation of soot and its precursors in flames using optical diagnostics [J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2013, 34(1): 1713-1738.
- [23] Chen L H, Zhou J W, Zheng X J, *et al.* Effects of carbon dioxide addition on the soot particle sizes in an Ethylene/Air flame [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2017, 17(10): 2522-2532.
- [24] Lemaire R, Bejaoui S, Therssen E. Study of soot formation during the combustion of Diesel, rapeseed methyl ester and their surrogates in turbulent spray flames[J]. Fuel, 2013, 107: 147-161.
- [25] Gülder Ö L, Intasopa G, Joo H I, *et al.* Unified behaviour of maximum soot yields of methane, ethane and propane laminar diffusion flames at high pressures[J]. Combustion and Flame, 2011, 158(10): 2037-2044.
- [26] Roper F G. The prediction of laminar jet diffusion flame sizes: part I. Theoretical model [J]. Combustion and Flame, 1977, 29: 219-226.
- [27] Santoro R J, Yeh T T, Horvath J J, *et al.* The transport and growth of soot particles in laminar diffusion flames [J]. Combustion Science and Technology, 1987, 53(2/3): 89-115.
- [28] Smooke M, Long M, Connelly B, *et al.* Soot formation in laminar diffusion flames [J]. Combustion and Flame, 2005, 143(4): 613-628.
- [29] Dworkin S B, Zhang Q G, Thomson M J, *et al.* Application of an enhanced PAH growth model to soot formation in a laminar coflow ethylene/air diffusion flame[J]. Combustion and Flame, 2011, 158(9): 1682-1695.
- [30] Megaridis C M, Dobbins R A. Soot aerosol dynamics in a laminar ethylene diffusion flame[J]. Symposium (International) on Combustion, 1989, 22(1): 353-362.