

甲烷层流和湍流预混火焰 OH* 和 CH* 的化学发光特性

刘 瑶, 谭建国*, 高政旺

国防科技大学空天科学学院, 湖南 长沙 410073

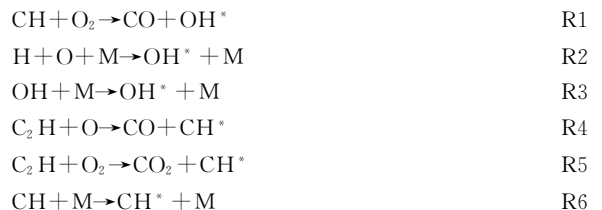
摘 要 化学发光能够对火焰结构和燃烧过程进行良好的表征, 但利用化学发光对湍流火焰进行测量的研究相对较少。为了更深入地研究和发展湍流燃烧理论, 设计了伴燃射流燃烧器, 通过 ICCD 相机和相应滤光片获取了 OH* 和 CH* 的化学发光图像, 对甲烷/空气层流和湍流预混火焰的化学发光特性进行了研究, 并利用分布高度、峰值位置、强反应区占比、峰值等参数对不同速度和当量比时的 OH* 和 CH* 进行表征。结果表明, 层流时 OH* 和 CH* 的分布明显不同, 而湍流的混合作用导致二者的分布范围趋向一致。随着当量比增大, 不同速度下 OH* 和 CH* 的分布高度都呈单调递增趋势, 但湍流的增长趋势要相对平缓; 峰值位置的变化趋势与分布高度几乎一致, 间接表明 OH* 和 CH* 的主导生成反应不变。强反应区占比在层流和湍流状态下的表现完全相反: 从贫燃到富燃, 层流中由大于 0.1 降低到 0.05 以下, 而湍流中则由 0.05 上升到 0.1 以上, 表明湍流对贫燃时的燃烧反应起抑制作用, 在富燃时反而起促进作用。另外, OH* 和 CH* 的峰值变化可以对火焰的流动状态进行判断, 且 CH* 尤为明显: 随当量比增加, 如果峰值先升后降, 则可以认为火焰为层流状态; 如果峰值单调递增, 则是湍流状态。以速度和当量比为自变量, 以 OH* 和 CH* 的峰值比为因变量, 提出了不同速度条件下利用化学发光对当量比进行定量表征的统一关系式, 解决了不同速度时需要分别进行拟合的问题, 对后续的化学发光燃烧诊断研究具有重要意义。

关键词 化学发光; 激发态自由基; 湍流火焰; 燃烧诊断

中图分类号: O433.5 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2020)04-1018-05

引 言

燃烧中的化学发光, 是指受化学反应激发而产生的激发态自由基, 向基态跃迁时辐射出特定频率光子的现象。在甲烷火焰中, 激发态自由基主要辐射波长为 308 nm(OH*) 和 431 nm(CH*)。OH* 的形成主要有 R1—R3 三条途径, Gaydon 等^[1]提出碳氢火焰中 R1 是产生 OH* 的主要化学途径; 氢气火焰中 OH* 的产生途径则主要为三体碰撞反应 R2^[2]。何磊等^[3]发现, OH* 在甲烷扩散火焰中有两个分布区, 分别由 R1 和 R2 产生, 且氧化剂中 O₂ 含量低时(如空气), R1 是主要途径; 含量高时, R2 起主导作用。另外, 火焰温度高于 2 800 K 时, 热激发反应 R3 成为主导途径^[4]。对于 CH*, R4 一般被认为是主导反应^[5-6]。Elsamra 等^[7]研究表明, 在贫燃的高温火焰中, R5 的贡献更大, 并一定程度上抑制了 R4 反应的进行。在 CH* 的生成中热激发途径 R6 也同样存在^[8]。



当量比 φ 是燃烧过程中的重要参数, 在预混火焰中利用 OH* 和 CH* 的峰值比来对其进行表征已有了不少研究^[9-10], Hardalupas 等的工作^[11-12]尤为突出, 他们通过不同机理的数值模拟表明 OH* 和 CH* 的浓度比 φ 与始终保持单调关系。但是, 大部分研究都是围绕层流火焰来进行, 且未研究速度的影响, 关于湍流火焰中化学发光特性的研究还相对较少。

以甲烷/空气射流预混火焰为研究对象, 分析了不同射流速度(u)时, 火焰分别处于层流和湍流状态时 OH* 和 CH* 的化学发光特性, 考察了对二者辐射分布的影响, 得到了火焰流动状态的判断依据, 提出了考虑利用 u 的化学发光定量表征 φ 的关系式, 为后续湍流火焰的化学发光研究提供

收稿日期: 2019-03-22, 修订日期: 2019-07-18

基金项目: 国家自然科学基金项目(91441121, 11272351)资助

作者简介: 刘 瑶, 1995 年生, 国防科技大学空天科学学院硕士研究生 e-mail: 17667179477@163.com

* 通讯联系人 e-mail: jianguantan@nudt.edu.cn

有效的参考。

1 实验部分

1.1 燃烧系统和实验工况

设计的伴燃射流燃烧器如图 1 所示, 主要由内预混腔、外预混腔、中心射流喷嘴、平面伴燃炉盘、稳流阻火隔板及其他零配件构成。为防止冷空气的掺混, 在射流喷嘴周围布置多孔平面炉盘, 产生稳定的平面火焰构造高温区域, 以维持射流火焰的稳定燃烧。射流喷嘴出口直径为 1.5 mm, 入口直径为 4 mm, 且出口平面比平面炉盘高 1 mm, 以减小伴燃火焰对中心火焰的影响。内外预混腔高度分别为 170 和 150 mm, 整体尺寸较大, 可以使燃料与氧化剂充分混合, 同时保证预混燃气的充足供应。

实验以甲烷为燃料, 空气为氧化剂, 组成两组预混气分别通入内、外预混腔, 流经稳流阻火隔板消除不均匀性后, 再分别通向射流喷嘴和平面炉盘, 点火后即形成中心射流火焰和伴燃平面火焰。为尽可能减少影响, 伴燃平面火焰条件保持不变, 出口速度为 $0.1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 当量比 φ 为 0.9。射流火焰包括层流和湍流两种状态, 考察 φ 和 Re 对化学发光的影响, 典型实验工况如表 1 所示, SLM 代表标况下的 $\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ 。甲烷临界 Re 在 3 000 左右^[13], 认为工况 1—8 为层流, 工况 9—16 为湍流状态。 φ 和射流雷诺数 Re 分别由式(1)和式(2)得到

$$\varphi = \frac{(A/F)_s}{A/F} = 9.52 \frac{V_{\text{CH}_4}}{V_{\text{air}}} \quad (1)$$

式中, $(A/F)_s$ 为化学当量空燃比, A/F 为实际空燃比, V_{CH_4} 为甲烷体积流量, V_{air} 为空气体积流量。

$$Re = \frac{\rho u d}{\mu} \quad (2)$$

式中, ρ 为预混气密度, d 为射流喷嘴出口直径, μ 为动力粘度。

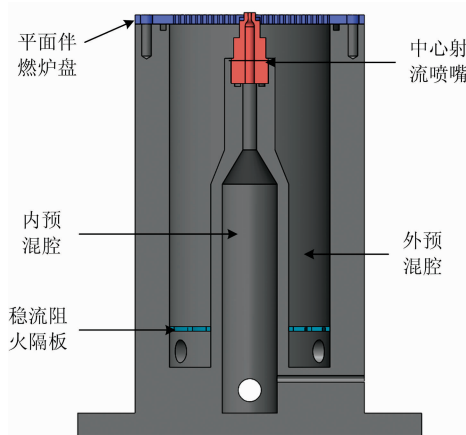


图 1 伴燃射流燃烧器示意图

Fig. 1 Schematic of the piloted jet burner

1.2 化学发光测量

获取火焰化学发光的测量系统, 主要由两台 ICCD 相机、镜头、滤波片、计算机和相应控制装置组成, 如图 2。实验

表 1 实验工况

Table 1 Operating conditions

工况	$u/$ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	$V_{\text{CH}_4}/$ SLM	$V_{\text{air}}/$ SLM	φ	Re
1	25	0.14	2.29	0.6	1 997
2	25	0.19	2.26	0.8	2 003
3	25	0.23	2.23	1.0	2 009
4	25	0.28	2.19	1.2	2 014
5	35	0.20	3.21	0.6	2 959
6	35	0.26	3.16	0.8	2 967
7	35	0.33	3.11	1.0	2 975
8	35	0.39	3.07	1.2	2 982
9	45	0.26	4.11	0.6	3 908
10	45	0.34	4.05	0.8	3 918
11	45	0.42	3.99	1.0	3 928
12	45	0.49	3.93	1.2	3 937
13	55	0.32	5.05	0.6	4 895
14	55	0.42	4.97	0.8	4 907
15	55	0.51	4.90	1.0	4 920
16	55	0.61	4.82	1.2	4 932

时, 两台 ICCD 相机对称放置, 分别对 OH^* 和 CH^* 进行拍摄, 曝光时间设定为 2 ms, 增益值为 800。对于 OH^* , 在紫外镜头前加装中心波长为 310nm 的滤波片 (Edmund Optics, 型号 34980); 对于 CH^* , 加装中心波长为 430 nm 的滤波片 (Edmund Optics, 型号 65198)。图像分辨率为 $2\,060 \times 2\,056$, 像素点大小为 $54.3 \mu\text{m}$ 。

拍摄时, 先点燃平面火焰采集背景图像, 再点燃中心火焰获得完整图像, 而后减去背景并进行中值滤波处理, 即可消除伴燃火焰的影响, 得到中心射流火焰的化学发光图像。对每种工况拍摄 100 幅图像, 利用 Matlab 对其灰度值取平均值, 以得到时均的火焰形态进行分析。

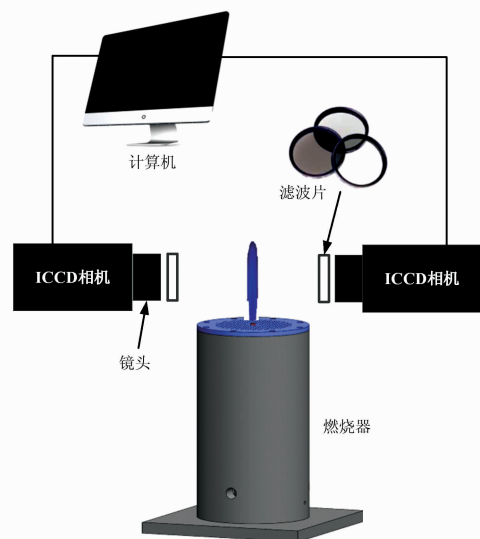


图 2 化学发光测量系统

Fig. 2 Chemiluminescence measurement system

2 结果和讨论

2.1 OH^{*} 和 CH^{*} 的分布特征

通过检测火焰中自由基的辐射区域,可以确定化学反应区的位置,进而对火焰结构进行表征。图 3(a)和(b)分别为工况 4 和工况 12 时,OH^{*} 和 CH^{*} 的化学发光图像。层流时,OH^{*} 的整体分布要明显高于 CH^{*},核心反应区集中于火焰下游,峰值位置接近于火焰高度;CH^{*} 则主要分布于火焰的中下游,峰值大于 OH^{*},且核心反应区域也明显大于 OH^{*}。湍流时,由于混合的增强,二者高度都有明显增长,但差距明显缩小,分布趋向于近似。

为便于后续分析,定义轴向峰值 P 、峰值位置 y_p 、分布高度 h 和强反应区占比 s 四个参数。如图 3 所示, y 表示火焰轴向高度, I 为发光强度,白色实线为沿火焰轴向的 OH^{*} 的归一化发光强度分布, y_p 即峰值所在的高度,如式(3),其中 index 代表取相应的坐标值。由于在 P 前后曲线分别单调变化,定义轴向强度沿高度下降为 20% P 时的位置(图中红点)为 h ,如式(4)所示,max 表示取最大值。定义 s 为光强较高的区域占整个发光区的比值,如式(5), n_1 为大于 80% P 的像素点数, n_2 为大于 20% P 的像素点数。

$$y_p = \text{index}(P) \quad (3)$$

$$h = \max(\text{index}(0.2P)) \quad (4)$$

$$s = n_1/n_2 \quad (5)$$

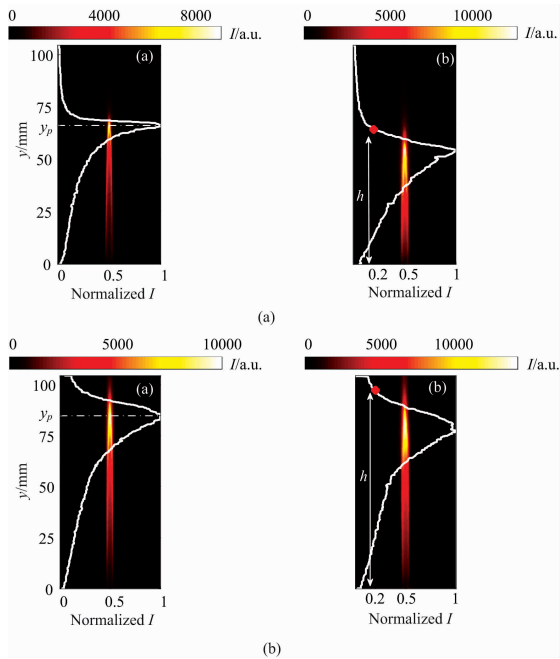


图 3 OH^{*} (I) 和 CH^{*} (II) 分布, y_p 和 h 定义示意图

(a): 层流(工况 4); (b): 湍流(工况 12)

Fig. 3 Distribution of OH^{*} (I) and CH^{*} (II), and definition of the y_p and h

(a): Laminar state(case 4); (b): Turbulent state(case 12)

2.2 层流和湍流状态下的不同特性

为较全面地讨论湍流对 OH^{*} 和 CH^{*} 辐射特性的影响,

对不同 u 时 h , y_p , s , P 随 φ 的变化进行了研究(工况 1—工况 16),如图 4 所示,其中实线代表层流时的变化,虚线代表湍流。

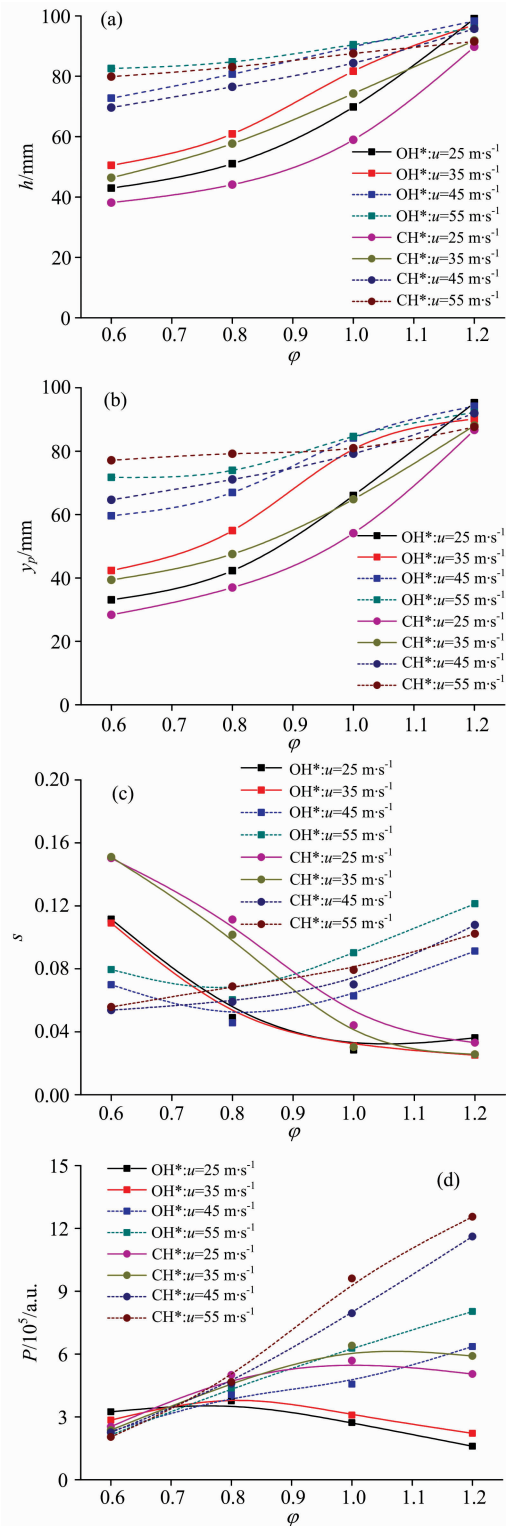


图 4 不同 u 时 OH^{*} 和 CH^{*} 的 h (a), y_p (b), s (c), P (d) 随 φ 的变化

Fig. 4 The h (a), y_p (b), s (c), P (d) of OH^{*} and CH^{*} with increasing φ at different u

图 4(a)展示了不同 u 时 OH^* 和 CH^* 的 h 随 φ 的变化。同一流速下的 OH^* 和 CH^* 的 h 均随 φ 增加而增大；且 CH^* 始终小于 OH^* 。需要指出，层流和湍流状态时， h 的增长趋势明显不同，湍流时相对平缓，且 OH^* 和 CH^* 的分布趋于一致，这与图 3 的结论一致。分析认为是湍流大大增强了流动的混合， φ 对 h 的影响被削弱。

y_p 反映主导反应的位置所在，其随 φ 的变化如图 4(b) 所示。总体而言， y_p 与 h 的变化趋势相同：不同流速时，均随 φ 增大，且湍流时较为平缓。这反映出热激发途径 R3 和 R6 没有产生明显影响， OH^* 和 CH^* 的主导生成反应未发生改变。

由图 4(c)可以看出，层流时 s 随 φ 呈下降趋势，湍流时则呈上升趋势，在 CH^* 的变化中体现得尤为明显。有趣的是，贫燃状态下，无论是 OH^* 还是 CH^* ，层流时的 s 都远大于湍流，富燃时则正好相反。这表明，湍流和燃烧的相互作用使得火焰褶皱、拓宽，从而增大了接触面积和混合程度，对贫燃燃烧反应起抑制作用，而富燃时更多外界空气的卷入则使得反应增强。

同样湍流对轴向峰值 P 的变化也有很大影响。如图 4(d)所示，层流时， OH^* 和 CH^* 的 P 都是先增长后降低，不同之处在于 OH^* 的转折点为 $\varphi=0.8$ ，而 CH^* 为 $\varphi=1.0$ ；而湍流时， P 随 φ 单调递增， CH^* 的变化尤为显著。可以认为 P 随 φ 先增大后减小时火焰为层流，单调递增时火焰为湍流。

如前文所述，虽然化学发光对当量比的表征已屡见不鲜，但大多数研究对不同的 u 需要分别提出相应的拟合关系式。图 5 展示了不同 u 时 OH^* 和 CH^* 的峰值比 $P_{\text{OH}^*}/P_{\text{CH}^*}$ 随 φ 变化的拟合结果，四条曲线的变化趋势一致，倾斜程度与 u 相关；且不同流速下的变化曲线交于 $(0.766, 0.929)$ 这一点。以 u 和 φ 为自变量，以测得的 $P_{\text{OH}^*}/P_{\text{CH}^*}$ 为因变量，以 $(0.766, 0.929)$ 为固定点，利用非线性最小二乘法得到了相关系数 $R^2=0.98$ 的关系式

$$P_{\text{OH}^*}/P_{\text{CH}^*} = 0.929\exp[(\varphi - 0.766)(0.0497u - 3.68)] \quad (6)$$

将 φ 和 u 代入，利用此式计算的峰值比与测量结果的误差不超过 10%。基于式(6)，可以在 u 已知时，利用化学发光结果预测 φ ；同理，已知 φ 时也可以对 u 进行预测。

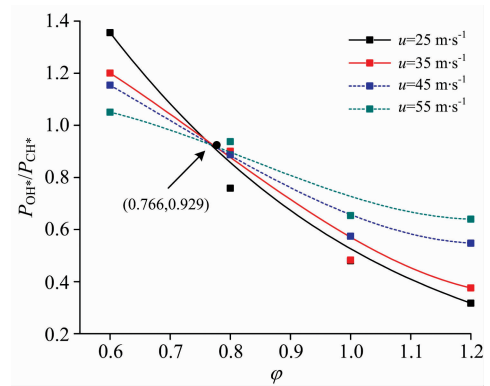


图 5 不同 u 时 $P_{\text{OH}^*}/P_{\text{CH}^*}$ 随 φ 的变化

Fig. 5 $P_{\text{OH}^*}/P_{\text{CH}^*}$ with increasing φ at different u

3 结 论

以甲烷/空气射流预混火焰为研究对象，重点考察了层流和湍流状态下 OH^* 和 CH^* 化学发光的不同特性，对 u 和 φ 的影响进行了讨论。结果表明：

(1) 湍流对混合的增强影响了 OH^* 和 CH^* 的分布形态：层流时， OH^* 的整体分布明显高于 CH^* ，核心反应区集中于火焰下游， y_p 高于 CH^* ； CH^* 则主要分布于火焰的中下游， P 大于 OH^* 。湍流时二者的 h ， y_p ，核心反应区都比较接近。

(2) 湍流的作用削弱了 φ 的影响，随 φ 增大，不同 u 时 OH^* 和 CH^* 的 h 和 y_p 都单调递增，但湍流的增长趋势要比层流的平缓得多。 y_p 与 h 的同步变化一定程度上体现 OH^* 和 CH^* 的主导生成反应保持不变，即未受热激发途径影响。

(3) 湍流对贫燃时的燃烧反应起抑制作用，在富燃时起促进作用：层流和湍流时的 s 随 φ 的变化趋势完全不同，随 φ 增大，层流时 CH^* 的 s 从 0.15 降到 0.05 以下，湍流时则由 0.05 升到 0.1。

(4) 峰值 P 的变化可以用来判断火焰的流动状态： P 随 φ 的增大先增后减，火焰为层流状态；单调递增时则可认为是湍流状态。

(5) 得到了不同 u 时利用 OH^* 和 CH^* 峰值比来表征 φ 的统一关系式。可以利用已知的 u 和 $P_{\text{OH}^*}/P_{\text{CH}^*}$ 预测 φ ，也可以利用 φ 和 $P_{\text{OH}^*}/P_{\text{CH}^*}$ 来判断 u 。但此关系式仅限于本研究的实验工况范围，是否具有普适性还需进一步研究。

References

- [1] Gaydon A G. *Flames: Their Structure, Radiation and Temperature*. London: Chapman & Hall, 1979.
- [2] Gutman D, Lutz R, Jacobs N, et al. *Journal of Chemical Physics*, 1967, 47: 5689.
- [3] HE Lei, GONG Yan, GUO Qing-hua, et al(何磊, 龚岩, 郭庆华, 等). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2018, 38(3): 685.
- [4] Kathrotia T, Fikri M, Bozkurt M, et al. *Combustion and Flame*, 2010, 157(7): 1261.
- [5] Hossain A, Nakamura Y. *Combustion and Flame*, 2014, 161(1): 162.
- [6] Sardeshmukh S, Bedard M, Anderson W. *International Journal of Spray and Combustion Dynamics*, 2017, 9(4): 409.
- [7] Elsamra R M I, Vranckx S, Carl S A. *Journal of Chemical Physics*, 2005, 109(45): 10287.
- [8] Leo M D, Savejjev A, Kennedy L A, et al. *Combustion and Flame*, 2007, 149(4): 435.

- [9] Chi C, Janiga G, Zhringer K, et al. Proceedings of the Combustion Institute, 2019, 37(2): 2363.
- [10] Liu H C, Sun B, Cai W W. Optics Communications, 2019, 437(4): 33.
- [11] Panoutsos C S, Hardalupas Y, Taylor A M K P. Combustion and Flame, 2009, 156(2): 273.
- [12] Hardalupas Y, Panoutsos C S, Taylor A. Experiments in Fluids, 2010, 49(4): 883.
- [13] Zhu H, Hu C, Guo Q, et al. Experimental Thermal and Fluid Science, 2019, 102(4): 595.

Chemiluminescence Properties of OH^* and CH^* in Laminar and Turbulent Premixed Methane Flames

LIU Yao, TAN Jian-guo*, GAO Zheng-wang

College of Aerospace Science and Engineering, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China

Abstract Chemiluminescence is an inartificial indicator of flame structure and combustion processes, but the study on the measurement and diagnosis of turbulent flames using chemiluminescence is relatively rare. A piloted jet burner was designed to investigate the chemiluminescence of OH^* and CH^* in laminar and turbulent premixed flames, in order to study and develop the turbulent combustion theory further. Chemiluminescence images of OH^* and CH^* at varying velocities (u), and equivalent ratio (φ) were captured by employing ICCD cameras with filters and characterized by the height (h), the peak position (y_p), the ratio of the intense reaction zone (s), and the peak value (P). Results show that the distribution of OH^* is different from that of CH^* in laminar flames, while the effect of turbulence leads to a similar distribution of the two. With the increase of φ , the h of OH^* and CH^* rises monotonically at different speeds, but the increasing trend of turbulence is relatively gentle. It should be mentioned that the variation trend of y_p is consistent with the h , which indicates the dominant formation reaction of the radicals remains unchanged. The performance of s in the laminar and turbulent state is visibly opposite. From fuel-deficient to fuel-enriched state, the s of laminar flow decreases from 0.1 to 0.05, while that of turbulence increases from 0.05 to 0.1, suggesting that turbulence acts as an inhibitor and an accelerator under fuel-deficient and fuel-enriched state respectively. In addition, it is found that the P of OH^* and CH^* can be used to judge the flow state of flame, and that of CH^* is particularly evident. As φ increases, if the P rises first and then decreases, the flames can be considered as laminar; if it increases monotonically, the flames are turbulent. Taking the u and φ as independent variables and the peak ratio of OH^* and CH^* as dependent variables, a unified formula for quantifying the φ by chemiluminescence under different u is proposed. It solves the problem that it needs to be fitted separately at different u , which is of considerable significance to the subsequent research on combustion diagnosis based on chemiluminescence.

Keywords Chemiluminescence; Excited-state radicals; Turbulent flames; Combustion diagnosis

(Received Mar. 22, 2019; accepted Jul. 18, 2019)

* Corresponding author