

氨气/氢气/氮气-空气预混火焰中热释放区和预热区厚度表征与测量

代鸿超^{1,2}, 蔡骁¹, Thibault F. GUIBERTI², 王金华¹, 黄佐华¹

(1. 西安交通大学动力工程多相流国家重点实验室, 710049, 西安;

2. 阿卜杜拉国王科技大学清洁能源研究平台, 23955, 沙特阿拉伯图沃)

摘要: 针对氢氨火焰热释放区和预热区的表征方法尚不清楚的问题, 采用 CHEMKIN 软件的一维传播火焰模拟方法并结合 NH 与 NH₃ 的激光诱导荧光诊断实验测量结果, 对氨气/氢气/氮气-空气预混火焰中火焰结构的潜在标记物进行了探究。系统比较了不同氨气裂解比、当量比下多种标记物对热释放率空间分布、热释放区厚度和预热区厚度的表征效果。结果表明: 在贫燃条件下, NH 的归一化浓度与热释放率分布的空间相关性较好, NH₂、NO 的归一化浓度乘积在所有工况下均与热释放率轮廓保持良好的相关性; NH 的归一化浓度可靠表征了热释放率轮廓的峰值位置, NH₂、NO 的归一化浓度乘积能更好地表征热释放区厚度; 使用归一化浓度加和的局部极小值位置可标记预热区前沿, NH₃、NH 的归一化浓度之和在各种工况下能表征约 30% 的预热区厚度, 而 NH₃、NO 的归一化浓度之和能表征高达 60% 的预热区厚度, NH 和 NH₃ 的激光诱导荧光诊断结果进一步验证了这些标记物的实验可行性。结合实验结果与模拟修正结果, NH 的归一化浓度可用于计算热释放区, NH₃、NH 的归一化浓度之和能够准确计算热释放区和预热区的厚度。研究结果可为氢氨湍流火焰结构表征提供参考。

关键词: 氨气; 预混火焰; 热释放区; 预热区

中图分类号: TK91 **文献标志码:** A

DOI: 10.7652/xjtuxb202505017 **文章编号:** 0253-987X(2025)05-0178-11

Characterization and Measurement of Heat Release Zone and Preheat Zone Thicknesses in Ammonia/Hydrogen/Nitrogen-Air Premixed Flames

DAI Hongchao^{1,2}, CAI Xiao¹, Thibault F. GUIBERTI², WANG Jinhua¹, HUANG Zuohua¹

(1. State Key Laboratory of Multiphase Flow in Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

2. Clean Energy Research Platform, King Abdullah University of Science and Technology, Thuwal 23955, Saudi Arabia)

Abstract: Addressing the unclear characterization methods for the heat release zone and preheat zone of hydrogen-ammonia flames, a one-dimensional propagating flame simulation approach using CHEMKIN software is employed, in conjunction with experimental measurements from laser-induced fluorescence diagnostics of NH and NH₃, to investigate potential markers for flame structure in ammonia/hydrogen/nitrogen-air mixtures. A systematic comparison is conducted to evaluate the effectiveness of various markers in characterizing the spatial distribution of the heat

收稿日期: 2024-09-16。 作者简介: 代鸿超(1997—), 男, 博士生; 蔡骁(通信作者), 男, 副教授, 硕士生导师。 基金

项目: 国家自然科学基金资助项目(52106183); 国家重大科技专项资助项目(J2019-III-0013-0056); 航空发动机及燃气轮机基础科学中心资助项目(P2022-C-II-004-001)。

网络出版时间: 2024-12-17

网络出版地址: <https://link.cnki.net/urlid/61.1069.T.20241217.1604.002>

release rate, the thickness of the heat release zone, and the thickness of the preheat zone under different ammonia cracking ratios and equivalence ratios. The results show that under lean combustion conditions, the normalized concentration of NH exhibits a good spatial correlation with the distribution of heat release rate, while the normalized concentration product of NH_2 and NO consistently correlated well with the heat release rate profile across all working conditions. The normalized concentration of NH accurately represented the location of the heat release rate peak, and the normalized concentration product of NH_2 and NO serves as a more effective indicator for the thickness of the heat release zone. The local minimum location of several normalized concentration sums was proposed as markers for the preheat zone leading edge. The normalized concentration sum of NH_3 and NH could represent approximately 30% of the preheat zone thickness, whereas the normalized concentration sum of NH_3 and NO could reach up to 60%. Laser induced fluorescence diagnostic results of NH and NH_3 further confirmed the experimental feasibility of these markers. Combining experimental results with simulation-revised outcomes, the normalized concentration of NH can be utilized for accurate calculation of the heat release zone, while the sum of the normalized concentrations of NH_3 and NH allows for precise determination of the thicknesses of both the heat release zone and the preheat zone. The findings provide useful guidance for flame structure identification in hydrogen-ammonia turbulent flames.

Keywords: ammonia; premixed flames; heat release zone; preheat zone

氨是一种无碳燃料,不仅能量密度高,而且生产运输体系较为成熟,已展现出缓解全球变暖的潜力^[1]。相较于氢气,氨在运输与储存上的经济性更为显著。近年来,有学者针对氨燃烧在燃气轮机、内燃机等设备中进行了实验性应用探索^[1-2]。然而,氨作为燃料仍面临点火难、火焰传播速度慢及高 NO_x 排放等挑战。研究指出,裂解氨气或氨-氢-氮混合燃料,可以有效提升燃烧效率并优化环境适应性^[3-4]。

热释放率是燃烧过程的核心参数,对于精准定位火焰前沿及分析湍流燃烧相互作用、热声振荡、燃烧噪声等现象至关重要。然而,直接测量热释放率需要精确测量温度及多种物种浓度,实验难度较大。因此,开发能有效表征热释放率所在热释放区位置和厚度的代理标记物显得尤为重要。激光诱导荧光(LIF)技术因能实现关键自由基的高时空分辨率在线成像,而广泛应用于燃烧研究中^[5]。在碳氢化合物火焰中,由于 HCO 和 CH 与热释放区具有显著的时空相关性,因此其 LIF 信号常用作热释放区的标记物,但这两个组分较难诊断^[6-7]。Paul 等^[8]通过测量高信噪比的 OH 和 CH_2O 的 LIF 信号,利用其像素乘积 $X(\text{OH}) \times X(\text{CH}_2\text{O})$ ($X(i)$ 代表归一化浓度,即某组分 i 的物质的量浓度除以最大的物质的量浓度),来评估热释放区的位置与厚度,这种方法因适用于瞬态图像的信号测量得到广泛应用。然而,对于

无碳的氢氨燃料,含碳组分标记物难以适用。在 NH_3 -空气预混火焰中,Cheng 等^[9-10]探讨了热释放率与物种浓度的空间分布关系,提出将 $X(\text{NH}_3) \times X(\text{OH})$ 、 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{O})$ 和 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{H})$ 作为热释放区标记物,并进一步提出 $X^{0.86}(\text{NH}_2) \times X^{0.97}(\text{NO})$ 和 $X^{0.77}(\text{NH}_2) \times X^{0.65}(\text{O})$ 可作为更准确的标记物。在 NH_3/CH_4 -空气火焰研究中,Zhu 等^[11]推荐使用 $X(\text{NH})$ 和 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{NO})$ 作为热释放区标记物。针对 NH_3/H_2 -空气预混火焰,Zhang 等^[12]考虑了可实现高信噪比 LIF 成像的组分,推荐使用 $X(\text{NH})$ 、 $X(\text{O})$ 以及 $X(\text{OH})$ 的空间梯度值作为热释放区标记。Xing 等^[13]在一维和二维/三维直接数值模拟(DNS)数据上测试了 $X^{1.53}(\text{NH}_2) \times X^{0.28}(\text{OH})$ 作为热释放区的标记物,并展示了其随时间的稳定性。此外,机器学习技术识别出 $X^{0.952}(\text{NH}) \times X^{0.062}(\text{OH})$ 和 $X^{1.039}(\text{NH}_2) \times X^{0.641}(\text{OH})$ 能够作为有效的替代物^[14]。Hardaya 等^[15]通过一维和二维模拟计算,研究了 $\text{NH}_3/\text{H}_2/\text{N}_2$ -空气预混火焰中 NH、 NH_2 、O 和 H 的表现,发现在 100~2 000 kPa 及 298~600 K 的工况下没有统一的理想标记物。然而,目前尚未有统一的标记物用于表征热释放区及其厚度。这一方面是由于大多数研究基于数值计算开展,其结果的可靠性取决于化学反应动力学模型对火焰结构表征的准确性;另一方面,一些标记物的提出是基于摩尔分数,而实际上激光诱导荧光信号与物种的数密度

或浓度成正比,不能直接反映摩尔分数。

预热区位于高放热反应前,通常是燃料预热但尚未发生化学反应的区域,是火焰面的重要组成部分。在某些情况下,如十二烷-空气火焰中,预热区内可能发生热解等吸热裂解反应。因此,准确表征预热区的厚度有助于深入理解湍流与化学反应之间的相互作用^[16]。在碳氢燃料的湍流火焰中,湍流涡将 CH_2O 等物质从反应区输送至预热区。由于预热区缺乏 H 、 O 和 OH 等必要的反应物, CH_2O 在此区域并不参与反应,因此 CH_2O -LIF 信号常用于表征含碳燃料的预热区^[17]。然而,对于氢氨火焰,目前尚未有报道指出可用于表征预热区厚度的标记物。仅在最近,Fan 等^[18]通过瑞利散射方法测量了 NH_3 -空气预混火焰温度场,设定预热区对应 400~1 300 K 的区域,研究了预热区厚度的增厚特性。文献[19-20]开发了采用单台染料激光器同时识别反应区的 NH 和未燃的 NH_3 的技术,发现这两种组分之间存在间隙,这一间隙可能反映了预热区厚度特征。因此,基于具有成熟诊断技术的 NH 、 NH_3 或 NO 等组分来实现对预热区的表征,能为有效识别预热区提供有效的工具。

本文评估并选取了 Okafor 提出的化学反应动力学模型,通过模拟一维自由传播火焰,研究了在不同裂解比和当量比条件下,氨气/氢气/氮气-空气预混火焰面的结构特征。基于这些模拟结果,提出了能够表征热释放率和预热区的标记物表征。随后,全面评估了标记物在表征热释放率空间分布的相关性以及热释放率峰值位置和热释放区厚度方面的表征效果,也仔细评估了预热区标记物在表征预热区厚度上的准确性。最后,使用 LIF 数据验证这些标记物的实验可行性。

1 研究方案

1.1 模拟方法

采用 CHEMKIN 软件^[21]中的一维自由传播火焰反应器模型进行数值模拟。该模型通常用于计算给定温度和压力条件下的层流火焰速度,但在本文中用于计算火焰面中的热释放率、物种摩尔分数和温度的空间分布。在模拟过程中,忽略热损失的影响,温度直接从能量方程计算得出;为了确保模拟精度,采用多组分传输模型。反应器的长度设置为 10 cm,以提供足够的空间模拟火焰的传播过程。为了保证模拟的稳定性和精度,将计算梯度和曲率参数设置为 0.01。整个模拟过程由大约 1 000 个网格

组成,以确保模拟结果实现网格独立。模拟工况在 101 kPa、300 K 开展,包含氨气裂解比为 20%、40% 和 60% 下,当量比 ϕ 从 0.6~1.5 以 0.1 的间隔变化的条件。需要注意的是,模拟过程采用 NH_3 、 H_2 和 N_2 的混合燃料来代替部分裂解的氨燃料,其中 H_2 与 N_2 的摩尔比固定为 3:1。裂解比 c 为裂解的 NH_3 物质的量占初始 NH_3 物质的量的比,计算公式如下

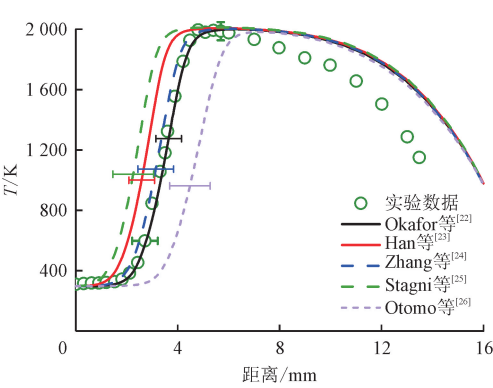
$$c = \frac{n(\text{NH}_3)}{n'(\text{NH}_3)} = \frac{2n(\text{H}_2)}{3n(\text{NH}_3) + 2n(\text{H}_2)} \quad (1)$$

式中: $n(\text{NH}_3)$ 和 $n'(\text{NH}_3)$ 分别为裂解的 NH_3 物质的量和初始的 NH_3 物质的量; $n(\text{H}_2)$ 为开始裂解的燃料混合物中 H_2 物质的量。采用 $\text{NH}_3/\text{H}_2/\text{N}_2$ -空气来等效替代部分裂解 NH_3 -空气混合物是常用的研究方法。在给定的裂解比 c 下,原始 NH_3 中有一部分(比例为 $(1-c)$)保持不变,其余部分按照化学计量生成 H_2 和 N_2 ;而当量比 ϕ 则决定了空气中 O_2 与 NH_3 (及其裂解产物)之间的比例,从而构成了最终用于模拟部分裂解 NH_3 /空气混合物的 $\text{NH}_3/\text{H}_2/\text{N}_2$ /空气混合物。

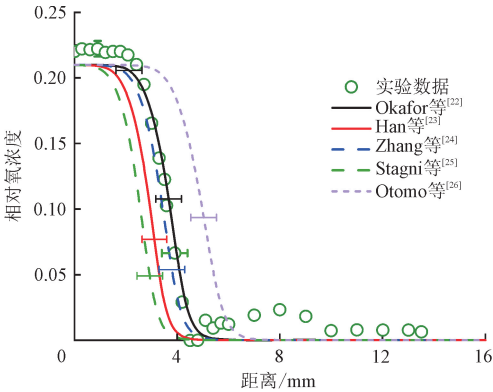
1.2 氨气化学反应动力学模型验证

选择 5 种机理进行比较,分别是 Okafor 等^[22]机理、Han 等^[23]机理、Zhang 等^[24]机理、Stagni 等^[25]机理以及 Otomo 等^[26]机理。这些机理广泛应用于氨气燃烧模拟,并且它们在预测层流火焰速度方面的表现已经得到了充分验证,但对于物种轮廓的空间分布仍然没有开展较好的研究。Brackmann 等^[27]利用不锈钢板作为滞止面稳定了多孔塞燃烧器中的 NH_3 -空气预混火焰,使用 LIF 和旋转相干反斯托克斯拉曼光谱(CARS)技术测量了 OH 、 NO 和 NH 的定量摩尔分数以及温度场和相对氧气浓度,并基于 CHEMKIN 软件中预混燃烧器停滞火焰求解器来模拟带有滞止面的多孔塞燃烧器火焰,评估氨燃烧反应机理在预测物种分布的表现。本研究采用 Brackmann 等^[27]的实验数据来验证反应机理:采用 CHEMKIN 软件的预混燃烧器停滞火焰求解器对不同机理模拟结果进行验证,所有的模拟设置都与 Brackmann 等^[27]的相同。

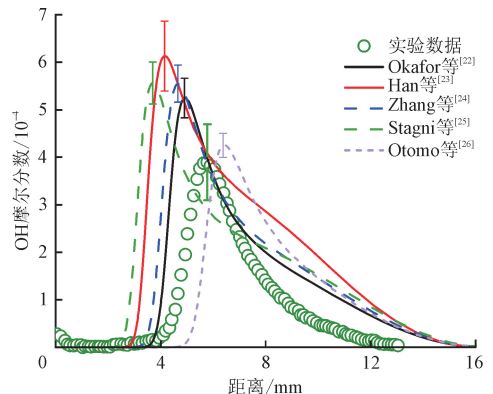
图 1 为当量比 1.2 情况下 NH_3 -空气预混气中,测量和模拟得到的温度(T)、相对氧浓度(即氧气在氧气和氮气混合气中的摩尔分数占比)、 OH 、 NO 和 NH 摩尔分数分布之间的比较。实验不确定性用误差棒表示,这些误差棒来自于 Brackmann 等^[27]的研究。



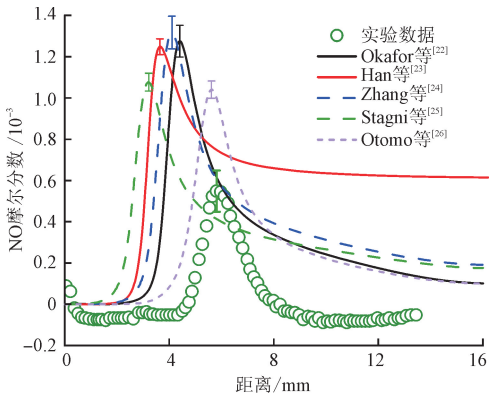
(a)温度



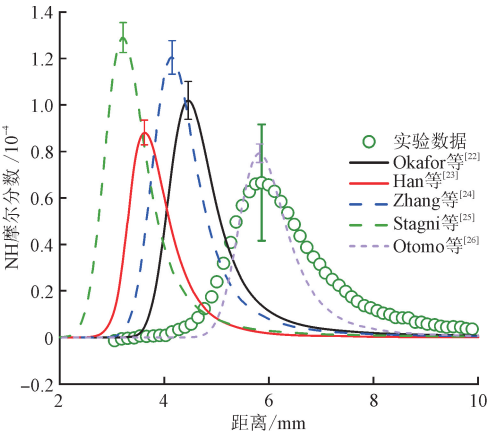
(b)相对氧浓度



(c)OH 摩尔分数



(d)NO 摩尔分数



(e)NH 摩尔分数

图 1 当量比为 1.2 时 NH₃-空气预混火焰中测量和模拟量对比

Fig. 1 Comparison of measured and simulated parameters in the NH₃-air premixed flame at equivalence ratio of 1.2

从图 1 可以发现,5 种机理都可以准确地捕捉温度和相对氧浓度的变化趋势,其中 Okafor 等^[22]和 Zhang 等^[24]在误差范围内。在图 1(c)显示的 OH 轮廓中,Otomo 等^[26]预测的峰值摩尔分数处于实验误差范围内,其他 4 种机理存在不同程度的高估。OH 峰值位置的预测与实验测量结果不一致,其中 Otomo 等^[26]和 Okafor 等^[22]较为接近。在图 1(d)显示的 NO 轮廓中,虽然预测结果都显著高估了峰值摩尔分数,但 Otomo 等^[26]准确预测了峰值位置,Okafor 等^[22]准确度次之。在图 1(e)中,Otomo 等^[26]准确地捕捉了 NH 的峰值位置和峰值摩尔分数,但略微低估了 NH 的分布厚度,其他 4 种机理中 Okafor 等^[22]具有最好的表现。总结来说,尽管所有机理的表现还需要进一步改进,但 Otomo 等^[26]在预测 NH、OH 和 NO 剖面的分布方面表现最佳,但对温度和相对氧浓度分布预热不佳。相比之下,Okafor 等^[22]可以较为均衡地预测实验数值,在所有机理中具有较好的表现。因此,1.1 节中的模拟主要基于 Okafor 等^[22]开展。

1.3 实验可行性验证

文献[19-20]报道了一种使用单台染料激光系统发射 304 nm 激光束,实现 NH 和 NH₃ 的同步 LIF 诊断的方法。这种诊断方法能实现氨火焰中 NH 和 NH₃ 的结构分布可视化。图 2 展示了 NH 和 NH₃-LIF 测量系统示意图,详细设置如下:掺铈铝石榴石激光器用于激发可调谐染料激光器,从而产生约 608 nm 的光束,随后约 608 nm 的光束经倍频晶体转换为脉冲能量为 5 mJ 的 304.740 nm 光束,用来

同时激发 NH 从基态到激发态的 $A^3\Pi-X^3\Sigma^-(1,0)$ 跃迁带和 NH_3 的 $C'-X(2,0)$ 跃迁带。使用两台增强型相机来捕获这两个物种的荧光信号,其中一台相机配备中心波长为 337 nm、带宽为 10 nm 的带通滤光片,专门用于探测 NH;另外一台相机配备一个中心波长为 575 nm、带宽为 50 nm 的带通滤光片,用于探测 NH_3 的 LIF 信号。

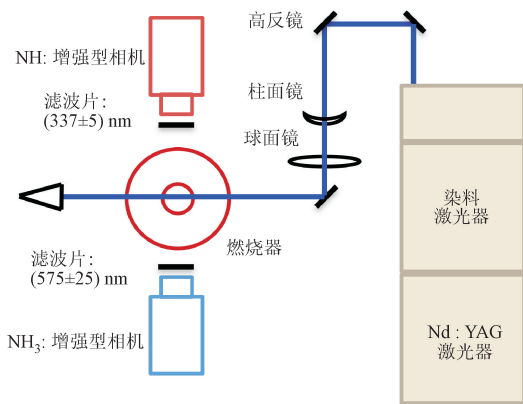


图2 NH和 NH_3 -LIF测量系统示意图

Fig. 2 Schematic diagram of NH-and NH_3 -LIF measurement system

基于该方法,在氨气裂解比为40%、当量比1.2、出口速度8 m/s的条件下进行实验,火焰稳定于内径为12 mm的圆形管出口。NH和 NH_3 -LIF诊断结果用于评估本文提出的标记物在实验上的可行性和效果。

一般来说,探测与实验固定条件下,相机在单位体积内捕捉到的LIF强度 S_F 正比于荧光组分的分子数密度(即单位体积内的分子数)或浓度(单位体积内物质的量) n ,即 $S_F \propto n$ 。由于本文仅考虑使用LIF信号的空间分布,因此采用定义为LIF强度与最大强度($S_{F,max}$)比值的归一化LIF强度($S_F/S_{F,max}$)进行研究。类似地,在数值计算中,本文关注由分子数密度轮廓的空间变化,因此使用定义为分子数密度/浓度与其最大值(n_{max})之比的归一化分子数密度/浓度(n/n_{max}),在下文中,这一比值简称为归一化浓度。因此,归一化LIF强度与归一化浓度之间存在线性对应关系,这种关系允许将实验与数值计算的物种空间分布规律进行比较。

2 结果与讨论

2.1 热释放区标记物量化标准及评估

在 NH_3 -空气预混火焰中,热量主要通过 $NH_3 + OH \rightarrow NH_2 + H_2O$ 、 $NH_2 + OH \rightarrow NH + H_2O$ 以及 $NH_2 + NO \rightarrow N_2 + H_2O$ 等反应释放^[28]。单

组分标记物归一化浓度($X(NH)$ 、 $X(NH_2)$)以及双组分标记物归一化浓度乘积($X(NH) \times X(OH)$ 、 $X(NH) \times X(NO)$ 、 $X(NH) \times X(NH_2)$ 、 $X(NH_2) \times X(NO)$ 、 $X(NH_2) \times X(OH)$)可视为热释放区潜在有效的标记物。此外,结合Zhang等^[12]的研究,本文也采用 $X(O)$ 以及 $X(OH)$ 的空间梯度值作为标记物。首先,验证不同组分与热释放率的空间相关性。表征两者相关性的皮尔逊空间相关系数 r ^[15]计算如下

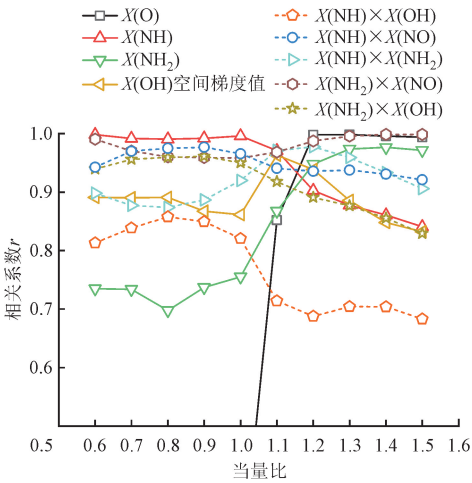
$$r = \frac{\sum x_i y - \sum x_i \sum y}{\sqrt{[N \sum x_i^2 - (\sum x_i)^2][N \sum y^2 - (\sum y)^2]}} \quad (2)$$

式中: x_i 代表物种 i 的物质的量; y 代表热释放率; N 代表在一维火焰计算域中的网格点数; $\sum$ 代表所有网格点上的数值相加。

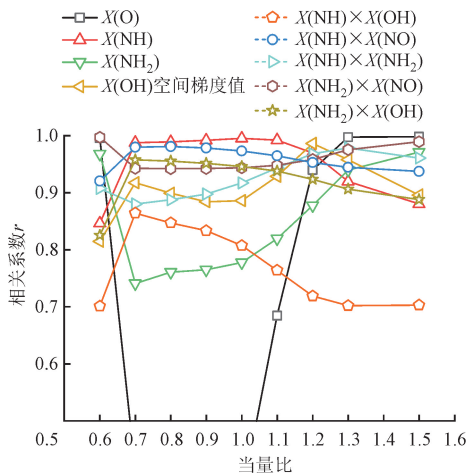
一般来说,利用LIF方法进行单组分诊断较为常见,因此,首先验证单组分标记物的有效性。如图3所示,在大多数情况下,单组分NH浓度分布与热释放率空间分布具有很好的相关性。但在浓燃工况下,尤其是在低裂解比下, $X(NH)$ 作为标记并不合适,这一点与Zhang等^[12]观察到的现象一致,即氢含量减小不利于 $X(NH)$ 作为火焰标记物。 $X(O)$ 在浓燃工况具有很好的表征效果,但是随着裂解比增加,其表征效果下降显著,因此 $X(O)$ 并不适合作为统一的标记物。 NH_2 具有相似的表现,在浓燃工况表现较好,但随裂解比增大表现下降。 $X(OH)$ 的空间梯度值总体表现欠佳,在高裂解比比下较为适用。总结来说,单组分中 $X(NH)$ 具有最佳的表现,且考虑到NH激发效率高,获取其高信噪比信号更加容易, $X(NH)$ 可以作为最佳的热释放区的表征。

随着多组分激光诱导荧光同步诊断方法的发展,氨气研究日益倾向于采用双组分或多组分同步LIF诊断,包括NH与OH的LIF、NH与NO的LIF、NH与 NH_3 的LIF、NH与 NH_3 及NO的LIF等组合。近期,一些研究已经采用双组分归一化LIF强度乘积结果来表征热释放区,这实质上等同于采用双组分的归一化浓度乘积表征热释放区。如图3所示,在不同裂解比下,贫燃工况下 $X(NH) \times X(NO)$ 组合表现最佳,而浓燃工况下 $X(NH_2) \times X(NO)$ 组合具有更好的表现。这归因于 $X(NH)$ 在贫燃工况、 $X(NH_2)$ 在浓燃工况下各自具有更好的表现。此外, $X(NH) \times X(NH_2)$ 组合与 $X(OH)$ 的空间梯度值类似,仅在较高裂解比下表现优异。值得注意的是,在所有工况下, $X(NH_2) \times X(NO)$ 组

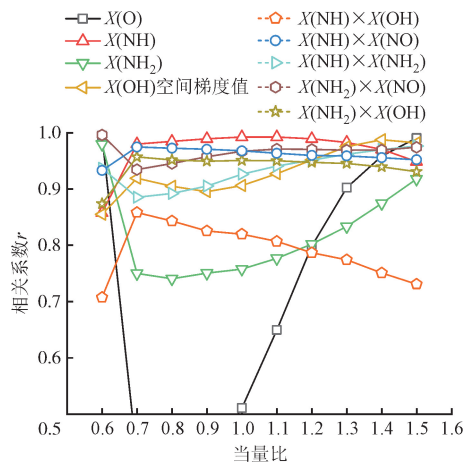
合均能获得较好的相关性,尽管在一些工况下其相关系数略低于 $X(\text{NH})$,但其仍可作为双组分中热释放区的最佳表征组合。



(a) 20% 裂解比



(b) 40% 裂解比



(c) 60% 裂解比

图 3 不同裂解比下标记物浓度与热释放率的空间相关系数
Fig. 3 Spatial correlation coefficients between the marker concentration and heat release rate under different cracking ratios

除空间相关性外,在实验中准确捕捉热释放率轮廓的峰值位置及热释放率轮廓半高宽厚度(即热释放区厚度)对于深入理解湍流-化学的相互作用至关重要。为了量化标记物组分浓度和热释放率轮廓特征的差异,引入两个无量纲变量 X_P/W_H 和 W/W_H ,其中 X_P/W_H 用于表征标记物峰值位置与热释放率轮廓峰值位置之间的差异相比较于热释放率半高宽对应厚度的变化率,而 W/W_H 用于比较标记物轮廓半高宽与热释放区厚度之间的差异相对于热释放率轮廓半高宽厚度的变化率,如图 4 所示。 X_P 和 W 分别为标记物与热释放率峰值对应的横坐标差异以及两者的半高宽差异,而 W_H 表示热释放区厚度。对于理想的热释放区标记物而言, X_P/W_H 和 W/W_H 均应趋近于 0。

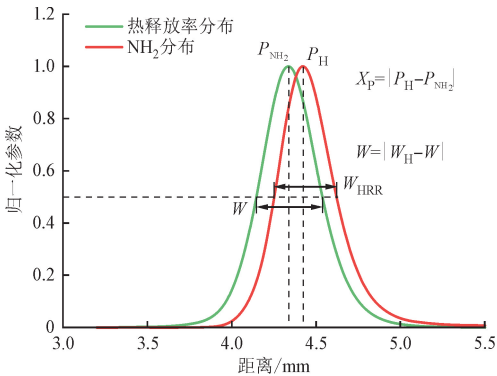


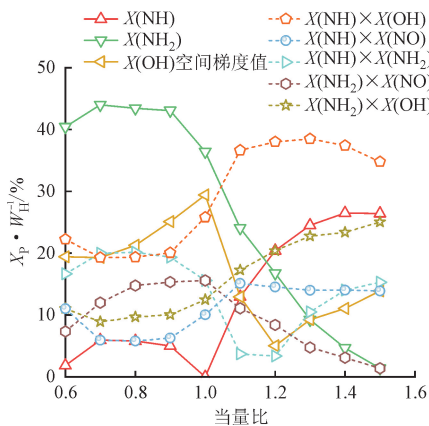
图 4 热释放率和标记物浓度空间分布特征的定义

Fig. 4 Definition of spatial distribution characteristics of heat release rate and marker concentration

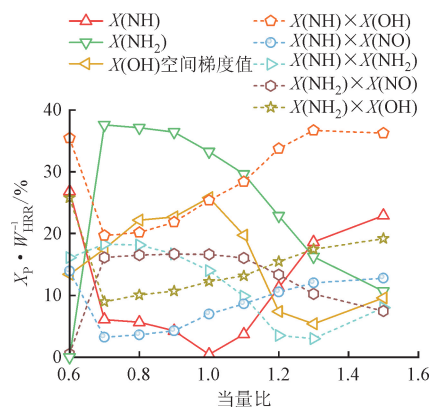
图 5 展示了在不同裂解比下,各种热释放区标记物的 X_P/W_H 和 W/W_H 随当量比变化的趋势。在 20% 的裂解比下, $X(\text{NH})$ 在稀燃工况对峰值位置表征较为准确,但在浓燃工况下存在较大偏差;相比之下, $X(\text{NH}_2)$ 和 $X(\text{OH})$ 的空间梯度值在浓燃工况下表现更佳。如图 5(a)、(b)和(c)所示,随着裂解比增加至 60%, $X(\text{NH})$ 在浓燃工况下对峰值位置的预测表现逐渐改善,同时 $X(\text{NH}_2)$ 和 $X(\text{OH})$ 的空间梯度值在浓燃工况下的表现也有所提升。对于多组分标记物,稀燃工况下 $X(\text{NH}) \times X(\text{NO})$ 的峰值位置与热释放率轮廓峰值位置的重合度最佳,而浓燃工况下 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{NO})$ 表现更好;随着裂解比增加, $X(\text{NH}) \times X(\text{NO})$ 在浓燃工况下的表现逐渐改善,而 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{NO})$ 表现变差。在不同工况下, $X(\text{NH}_2) \times X(\text{OH})$ 的变化规律与 $X(\text{NH}) \times X(\text{NO})$ 相似,但对峰值位置的预测表现略差。如

图 5(d)、(e)和(f)所示,在热释放区厚度预测方面,大多数标记物都能实现半高宽预测误差低于 20%,如 $X(\text{NH})$ 、 $X(\text{NH}_2)$ 、 $X(\text{OH})$ 的空间梯度值和 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{NO})$,但 $X(\text{NH})$ 在浓燃工况表现仅在裂解比 60% 时较好。相比之下, $X(\text{NH}_2) \times X(\text{NO})$ 在不同当量比下具有较好的一致性,尽管其表现在高裂解比下有所下降,但仍优于大多数标记物。在裂解比 60% 情况下,所有标记物表现随当量比变化的稳定性增加,并且 $X(\text{NH})$ 和 $X(\text{OH})$ 的空间梯度值的在部分当量比下的偏差较 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{NO})$ 更小,表现更好。

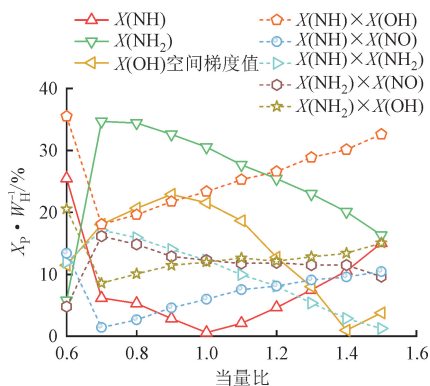
总的来说,没有一种标记物能同时对热释放率轮廓峰值位置及热释放区厚度的最佳预测。相比之下, $X(\text{NH})$ 和 $X(\text{NH}) \times X(\text{NO})$ 在表征热释放率峰值位置方面表现良好,而 $X(\text{NH}_2) \times X(\text{NO})$ 在预测热释放区厚度方面表现最佳,仅在裂解比为 60% 的某些当量比下, $X(\text{NH})$ 和 $X(\text{OH})$ 的空间梯度值的表现更为优越。 NH-LIF 诊断方法因具有激发效率高、信号强等显著优点,被广泛应用于实验上热释放区的表征。但需要注意, $X(\text{NH})$ 对热释放区的表征准确度仍受当量比和裂解比的影响,这说明在相关研究中需根据工况针对性选取热释放区标记物。



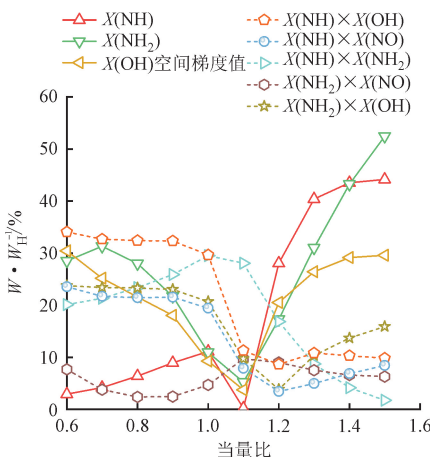
(a) 20% 裂解比下 X_p/W_H



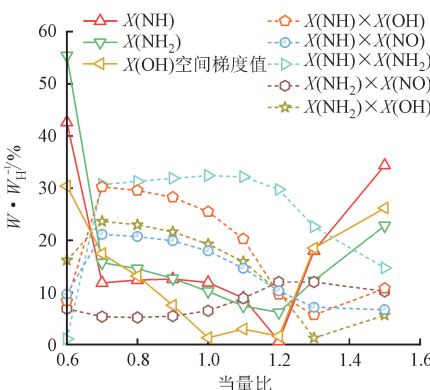
(b) 40% 裂解比下 X_p/W_H



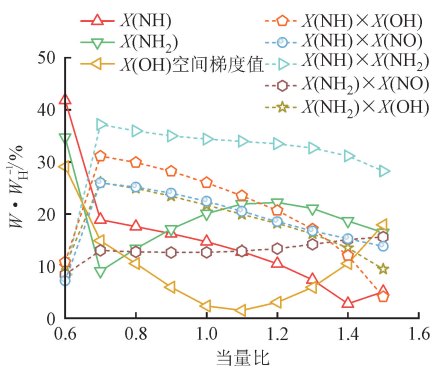
(c) 60% 裂解比下 X_p/W_H



(d) 20% 裂解比下 W/W_H



(e) 40% 裂解比下 W/W_H



(f) 60% 裂解比下 W/W_H

图 5 不同裂解比下 X_p/W_H 和 W/W_H 随当量比的变化
Fig. 5 Variation of X_p/W_H and W/W_H with the equivalent ratio at different cracking ratios

2.2 预热区标记物量化标准及评估

预热区是未燃混合物在抵达热释放率发生区域之前,逐渐受热升温的区域。其厚度 δ_p 一般采用温度区间进行定义,定义为

$$\delta_p = \frac{T_{ig} - T_0}{\max(dT/dx)} \tag{3}$$

式中: T_0 为初始温度; x 为火焰传播方向的距离; $\max(dT/dx)$ 为温度随距离变化的最大梯度; T_{ig} 为点火温度,定义为 $\max(dT/dx)$ 所在位置的温度。

在含碳燃料-空气预混火焰实验中, CH_2O 常用作作为预热区标记物。一般来说,实验上通过定义信号强度阈值,提取 CH_2O -LIF 信号在未燃侧的边界,作为预热区的前沿,而预热区的后沿为热释放区标记物信号强度的半高宽在预热区的位置,从而获取预热区厚度,如 Skiba 等^[29] 定义以局部最大强度 30% 处的 CH_2O -LIF 位置作为预热区前沿,两组分归一化 LIF 信号强度 $X(\text{CH}_2\text{O}) \times X(\text{OH})$ 或单组分归一化信号 LIF 强度 $X(\text{CH})$ 表征的热释放区的 50% 强度位置作为预热区后沿。类似地,在当前氢氨火焰的研究中,预热区的后沿选取为热释放率轮廓半高宽在预热区侧位置。图 6 展示了温度和热释放率轮廓随距离的变化。值得注意的是,尽管式(4)定义的预热区后沿与热释放率半高宽所在位置略有不同,但其能准确确定预热区边界,因此本文采用式(4)来确定预热区前沿。为确保与实验处理的一致性,本文将预热区厚度 d_p 定义为上述前沿和后沿之间的距离。

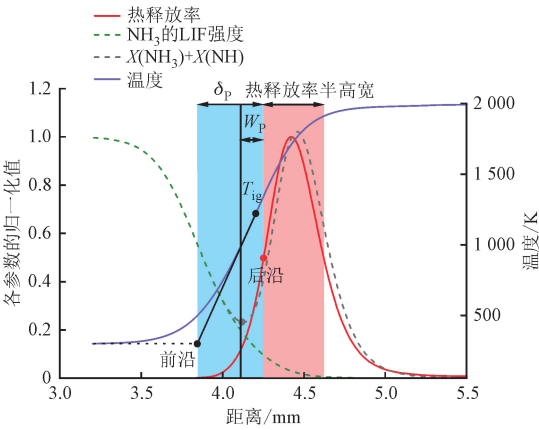
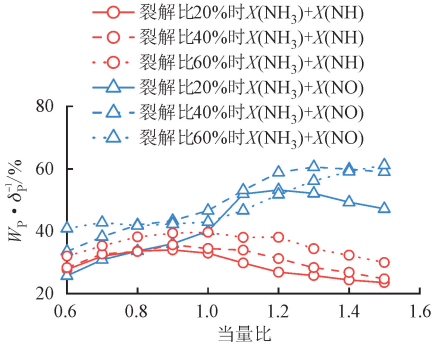


图 6 预热区定义和标记物浓度空间分布
Fig. 6 Definition of preheat zone and the distribution of markers

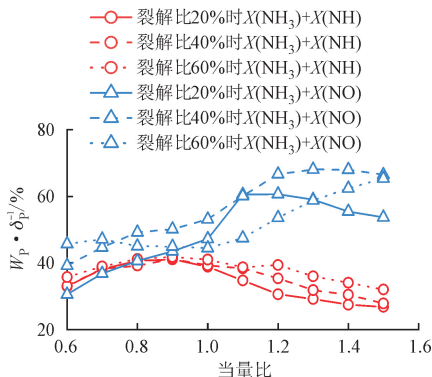
在多组分同步实验中,由于两组分归一化 LIF 信号相乘难以有效表征预热区,因此提出一种新方法,即采用两组分归一化 LIF 信号相加来表征预热

区厚度。实验图像中的强度极大值和极小值特征在数据处理时更易于准确识别。图 6 显示了以归一化浓度加和 $X(\text{NH}_3) + X(\text{NH})$ 为例的标记物浓度分布特征,在热释放区之前,可以清晰识别到一个浓度极小值位置,该位置用作预热区前沿的表征。本文选择 $X(\text{NH}_3) + X(\text{NH})$ 和 $X(\text{NH}_3) + X(\text{NO})$ 作为预热区表征物,并通过检验标记物和预热区厚度的比值(即 W_p/δ_p)来评价标记物与预热区的重合度。具体来说,标记物厚度 W_p 定义为以局部极小值为前沿、热释放率轮廓半高宽未燃侧位置为后沿所包围区域的距离,如图 6 中所示。

图 7(a)展示了 W_p/δ_p 在裂解比 20%~60% 范围下随当量比的变化。可以发现,这两种方法都低估了预热区厚度。 $X(\text{NH}_3) + X(\text{NH})$ 只表征了 30% 左右的预热区厚度,但其 W_p/δ_p 在不同裂解比下十分接近,且在不同当量比下仅在 25%~40% 范围内变化。相比之下, $X(\text{NH}_3) + X(\text{NO})$ 表现出较差的一致性,但在浓燃工况下可以表征超过 50% 的预热区厚度。因此,从定量角度讲,实验中预热区厚度有潜力基于标记物 $X(\text{NH}_3) + X(\text{NH})$ 或 $X(\text{NH}_3) + X(\text{NO})$ 厚度的倍数进行计算;从定性角度讲,实验中预热区位置,可以大致确定为 $X(\text{NH}_3)$ 信号和 $X(\text{NH})$ 信号区域之间的局部低强度区域来表征,而针对预热区是否增厚问题,可以直接比较这个低强度区域的厚度变化。为了验证预热区后沿位置定义是否对上述结论产生影响,图 7(b)给出了使用点火温度 T_{ig} 对应的位置作为预热区后沿得到的预热区厚度 δ_p 时,标记物的变化。可以发现,比值随当量比变化趋势与图 7(a) 十分相似, $X(\text{NH}_3) + X(\text{NH})$ 组合在不同裂解比下的变化幅度略有减小, $X(\text{NH}_3) + X(\text{NO})$ 组合仍可以表征更宽的预热区域。综上所述,无论预热区采用哪种定义方式,上述标记物均可在一定程度上表征预热区厚度, $X(\text{NH}_3) + X(\text{NH})$ 具有最稳定的表现,而 $X(\text{NH}_3) + X(\text{NO})$ 可以表征更宽的预热区域。



(a) 热释放率半高宽位置作为预热区后沿

(b) 点火温度 T_{ig} 位置作为预热区后沿图 7 在两种预热区后沿位置定义的 δ_p 下 W_p/δ_p 随裂解比和当量比的变化Fig. 7 Variation of W_p/δ_p with equivalent ratio and cracking ratios with different δ_p calculated method

2.3 实验验证

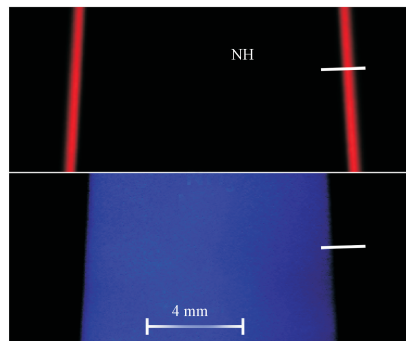
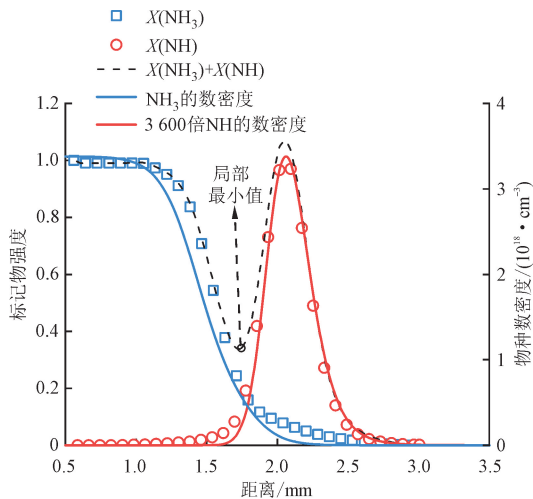
以往的热释放区和预热区厚度表征研究中,基于数值模拟的标记物验证工作已广泛开展,但实验上的可行性验证却鲜有尝试,并且关于氢氨预混火焰预热区和反应区厚度的报道也较少。本研究开展 NH/NH_3 -LIF 同步诊断实验,旨在捕捉层流火焰结构。在此基础上,验证热释放区厚度标记物 $X(NH)$ 以及预热区标记物 $X(NH_3)+X(NH)$ 的可行性和表征效果。

图 8(a) 展示了裂解比 40%、当量比 1.2 以及出口速度为 8 m/s 的层流火焰长曝光数码照片。图 8(b) 显示了基于两台相机同时捕捉的 NH 和 NH_3 的 LIF 平均图像,分别用红色和蓝色表征。可以发现: NH 和 NH_3 信号区域之间存在一条黑色的间隙;依据 2.2 节的讨论,这个低强度间隙区域可能与预热区相对应。例如,第一行中,三组分的叠加图像所示,当前图像可以较好地利用 NH 表征外侧热释放区、 NH_3 表征未燃区、 NH 与 NH_3 之间的间隙厚度与预热区相关。沿图 8(b) 中的白线提取了这几种信号的归一化强度分布,如图 9 所示。

从图 9 可以发现,Okafor 机理^[22] 计算的分子数密度分布可以较为准确地捕捉实验获取的 LIF 信号强度规律,尤其是对 $X(NH)$ 峰值位置和厚度的捕捉。分别提取了热释放区标记物 $X(NH)$ 的半高宽;与此同时,以 $X(NH_3)+X(NH)$ 的局部最小值为预热区前沿, $X(NH)$ 半高宽为预热区的后沿,提取了预热区厚度。此外,给出了 40% 裂解比、当量比 1.2 工况下标记物的热释放率轮廓半高宽差异系数 $(W-W_H)/W_H$ 以及预热区厚度重合度 W_p/δ_p ,用于推导热释放区和预热区厚度。



(a) 长曝光数码照片

(b) NH 和 NH_3 的 LIF 平均图像图 8 $NH_3/H_2/N_2$ -空气层流预混射流火焰实验结果Fig. 8 Experiment image of $NH_3/H_2/N_2$ -air laminar premixed jet flame图 9 实验和模拟的组分分布比较及标记物 $X(NH_3)+X(NH)$ 空间分布Fig. 9 Distribution comparison between experiment and simulation, and the spatial distribution of $X(NH_3)+X(NH)$

标记物表征的厚度及模拟结果见表 1, 其中实验和提取过程中误差约为 5%。实验中和模拟中预热区后沿分别从 $X(NH)$ 和热释放率轮廓半高宽左侧的位置获取。可以发现, 模拟获取的标记物厚度可以较好的吻合实验数值, 均保持在实验误差范围内。在利用模拟获取的厚度偏差修正后, 基于 NH -LIF 实验值推导得到的热释放区厚度与模拟得到的结果完全一致, 而基于 $X(NH_3)+X(NH)$ 也可获得预热区厚度。因此, 上述两种标记物在实验中具有可行性, 并且热释放区和预热区厚度也可以基于模拟获取的厚度差异进行修正而准确获得。在定性研究中, $X(NH)$ 具有与热释放区厚度最小的差异, 可以直接视为热释放区的良好标记物, 而本研究

也提出 $X(\text{NH}_3)+X(\text{NH})$ 可以用于获取预热区位置定性表征和厚度定量计算的方法。这将为氢氨湍流预混火焰结构的研究提供重要的指导。

表 1 标记物表征的热释放区和预热区厚度
Table 1 The thickness of the heat release zone and preheat zone obtained by the markers

参数	热释放区	$X(\text{NH})$	$X(\text{NH}_3)+X(\text{NH})$
模拟厚度	0.369	0.365	0.127
实验厚度		0.373 ± 0.019	0.144 ± 0.014
$(W-W_{\text{H}})\cdot W_{\text{H}}^{-1}$		-0.011	
$W_{\text{P}}\cdot\delta_{\text{P}}^{-1}$			0.312
修正后实验厚度		0.369 ± 0.019	0.462 ± 0.023

3 结 论

本文利用一维传播火焰模拟和 NH 与 NH_3 的同步激光诊断实验方法,对不同氨裂解比和当量比下氨气/氢气/氮气-空气预混火焰中热释放区和预热区厚度表征方法进行了研究,获得了多种标记物的表征效果,得到的结论如下。

(1)单组分归一化浓度 $X(\text{NH})$ 、 $X(\text{NH}_2)$ 分别在贫燃和浓燃工况下能够较好表征热释放率轮廓分布,而双组分归一化浓度乘积 $X(\text{NH}_2)\times X(\text{NO})$ 在不同裂解比及当量比下均与热释放率轮廓分布呈现出良好的相关性; $X(\text{NH})$ 和 $X(\text{NH})\times X(\text{NO})$ 在表征热释放率峰值位置方面表现较好,而 $X(\text{NH}_2)\times X(\text{NO})$ 则在表征热释放区厚度方面最佳。

(2)组分归一化浓度加和 $X(\text{NH}_3)+X(\text{NH})$ 与 $X(\text{NH}_3)+X(\text{NO})$ 的空间分布存在局部极小值,此极小值位置可用于标记预热区前沿;其中, $X(\text{NH}_3)+X(\text{NH})$ 在宽广工况下表现出稳定的厚度表征程度,而 $X(\text{NH}_3)+X(\text{NO})$ 则能够表征更宽的预热区厚度。

(3) NH 与 NH_3 的同步激光诱导荧光诊断实验结果证明,经过模拟修正,实验获取的 $X(\text{NH})$ 信号半高宽厚度能准确表征热释放区厚度,而 $X(\text{NH}_3)+X(\text{NH})$ 组合可用于准确提取预热区厚度。这为实验表征氢氨湍流火焰的热释放区和预热区厚度提供了有效指导。

参考文献:

[1] KOBAYASHI H, HAYAKAWA A, SOMARATHNE K D K A, et al. Science and technology of ammonia combustion [J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2019, 37(1): 109-133.

[2] VALERA-MEDINA A, XIAO H, OWEN-JONES M, et al. Ammonia for power [J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2018, 69: 63-102.

[3] 周上坤, 杨文俊, 谭厚章, 等. 氨燃烧研究进展 [J]. 中国电机工程学报, 2021, 41(12): 4164-4181.

ZHOU Shangkun, YANG Wenjun, TAN Houzhang, et al. Research progress of ammonia combustion [J]. Proceedings of the CSEE, 2021, 41(12): 4164-4181.

[4] 范卫东, 陈钧. 氨气燃烧强化措施及 NO_x 控制策略研究进展 [J]. 华中科技大学学报(自然科学版), 2022, 50(7): 14-23.

FAN Weidong, CHEN Jun. Research progress of combustion enhancement and NO_x control strategies for ammonia combustion [J]. Journal of Huazhong University of Science and Technology(Natural Science Edition), 2022, 50(7): 14-23.

[5] 刘晶儒, 胡志云. 基于激光的测量技术在燃烧流场诊断中的应用 [J]. 中国光学, 2018, 11(4): 531-549.

LIU Jingru, HU Zhiyun. Applications of measurement techniques based on lasers in combustion flow field diagnostics [J]. Chinese Optics, 2018, 11(4): 531-549.

[6] ZHOU Bo, KIEFER J, ZETTERBERG J, et al. Strategy for PLIF single-shot HCO imaging in turbulent methane/air flames [J]. Combustion and Flame, 2014, 161(6): 1566-1574.

[7] VAGELOPOULOS C M, FRANK J H. An experimental and numerical study on the adequacy of CH as a flame marker in premixed methane flames [J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2005, 30(1): 241-249.

[8] PAUL P H, NAJM H N. Planar laser-induced fluorescence imaging of flame heat release rate [J]. Symposium (International) on Combustion, 1998, 27(1): 43-50.

[9] CHENG Mengzhen, WANG Haiou, XIAO Hua, et al. Emission characteristics and heat release rate surrogates for ammonia premixed laminar flames [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2021, 46(24): 13461-13470.

[10] SONG Chengbin, WANG Haiou, CHENG Mengzhen, et al. A DNS study of heat release rate surrogates with unity and non-unity exponents for ammonia/air premixed flames [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2023, 48(43): 16470-16480.

[11] ZHU Xuren, GUIBERTI T F, LI Renfu, et al. Numerical study of heat release rate markers in laminar premixed ammonia-methane-air flames [J]. Fuel, 2022, 318: 123599.

- [12] ZHANG Haotian, HAN Xinlu, JIANG Jianyi, et al. Numerical study of experimental feasible heat release rate markers for NH_3 - H_2 -air premixed flames [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2022, 47 (65): 28165-28175.
- [13] XING Jiangkuan, PILLAI A L, KUROSE R. Heat release rate surrogate for ammonia-hydrogen premixed flames under various conditions [J]. *Applications in Energy and Combustion Science*, 2023, 15: 100193.
- [14] CHI Cheng, SREEKUMAR S, THÉVENIN D. Data-driven discovery of heat release rate markers for premixed NH_3/H_2 /air flames using physics-informed machine learning [J]. *Fuel*, 2022, 330: 125508.
- [15] HARDAYA A P, KULATILAKA W D, SORIANO B S, et al. Heat release surrogates for $\text{NH}_3/\text{H}_2/\text{N}_2$ -air premixed flames [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2024, 40(1/4): 105432.
- [16] STEINBERG A M, HAMLINGTON P E, ZHAO Xinyu. Structure and dynamics of highly turbulent premixed combustion [J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2021, 85: 100900.
- [17] LI Z S, LI B, SUN Z W, et al. Turbulence and combustion interaction: High resolution local flame front structure visualization using simultaneous single-shot PLIF imaging of CH, OH, and CH_2O in a piloted premixed jet flame [J]. *Combustion and Flame*, 2010, 157(6): 1087-1096.
- [18] FAN Qingshuang, LIU Xin, CAI Xiao, et al. Structure and scalar correlation of ammonia/air turbulent premixed flames in the distributed reaction zone regime [J]. *Combustion and Flame*, 2022, 241: 112090.
- [19] WANG Guoqing, WANG Shixing, GUIBERTI T F. Simultaneous planar laser-induced fluorescence measurement of reactant NH_3 , radical NH, and pollutant NO in ammonia-hydrogen flames using a single dye laser [J]. *Combustion and Flame*, 2023, 256: 112981.
- [20] WANG Ze, LI Xun, LI Lunang, et al. Strategy for simultaneous multi-scalar imaging in turbulent NH_3/H_2 premixed flames using a single laser system [J]. *Combustion and Flame*, 2022, 242: 112185.
- [21] KEE R J, DIXON-LEWIS G, WARNATZ J, et al. A Fortran computer code package for the evaluation of gas-phase, multicomponent transport properties [M]. Livermore, CA, USA: Sandia National Laboratories Livermore, 1988.
- [22] OKAFOR E C, NAITO Y, COLSON S, et al. Experimental and numerical study of the laminar burning velocity of CH_4 - NH_3 -air premixed flames [J]. *Combustion and Flame*, 2018, 187: 185-198.
- [23] HAN Xinlu, WANG Zhihua, HE Yong, et al. Experimental and kinetic modeling study of laminar burning velocities of NH_3 /syngas/air premixed flames [J]. *Combustion and Flame*, 2020, 213: 1-13.
- [24] ZHANG Xiaoyuan, MOOSAKUTTY S P, RAJAN R P, et al. Combustion chemistry of ammonia/hydrogen mixtures: jet-stirred reactor measurements and comprehensive kinetic modeling [J]. *Combustion and Flame*, 2021, 234: 111653.
- [25] STAGNI A, CAVALLOTTI C, ARUNTHANAYOTHIN S, et al. An experimental, theoretical and kinetic-modeling study of the gas-phase oxidation of ammonia [J]. *Reaction Chemistry & Engineering*, 2020, 5(4): 696-711.
- [26] OTOMO J, KOSHI M, MITSUMORI T, et al. Chemical kinetic modeling of ammonia oxidation with improved reaction mechanism for ammonia/air and ammonia/hydrogen/air combustion [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2018, 43 (5): 3004-3014.
- [27] BRACKMANN C, ALEKSEEV V A, ZHOU Bo, et al. Structure of premixed ammonia+air flames at atmospheric pressure: laser diagnostics and kinetic modeling [J]. *Combustion and Flame*, 2016, 163: 370-381.
- [28] COLSON S, HAYAKAWA A, KUDO T, et al. Extinction characteristics of ammonia/air counterflow premixed flames at various pressures [J]. *Journal of Thermal Science and Technology*, 2016, 11 (3): JTST0048.
- [29] SKIBA A W, WABEL T M, CARTER C D, et al. Premixed flames subjected to extreme levels of turbulence: part I flame structure and a new measured regime diagram [J]. *Combustion and Flame*, 2018, 189: 407-432.

(编辑 亢列梅)