

DOI:10.7652/xjtuxb201411005

碳酸二甲酯层流火焰特性的实验和数值研究

于会宾, 胡二江, 杨柯, 黄佐华

(西安交通大学动力工程多相流国家重点实验室, 710049, 西安)

摘要: 在定容燃烧弹上,利用高速纹影摄像系统对碳酸二甲酯(DMC)的预混层流燃烧特性进行了研究,获得了不同温度、压力和当量比下的层流燃烧速度、马克斯坦长度和胞状结构的临界半径,同时对火焰不稳定性进行了理论分析。研究表明:层流燃烧速度随当量比的增加先提高后下降,在当量比为 1.1 时达到峰值;层流燃烧速度随初始温度的升高而提高,随初始压力的增加而降低;马克斯坦长度、临界火焰半径随当量比和压力的增加而减小,表明火焰不稳定性随初始压力和当量比的增加而增强;临界贝克来数 Pe 随当量比的增加而减小。利用 Chemkin 软件对预混层流燃烧速度进行了数值模拟,结果显示,Glaude 机理对 DMC 层流燃烧速度的模拟值与实验测量值有较大偏差,表明该机理不能很好地预测 DMC 的层流燃烧速度。

关键词: 碳酸二甲酯;层流燃烧速度;马克斯坦长度;火焰不稳定性

中图分类号: TK16 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-987X(2014)11-0025-07

Experimental and Numerical Research on Laminar Burning Characteristics of Premixed Dimethyl Carbonate /Air Flames

YU Huibin, HU Erjiang, YANG Ke, HUANG Zuohua

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

Abstract: Experiment was conducted in a constant volume combustion chamber by high-speed schlieren photograph system. The unstretched laminar burning velocity, Markstein length and cellular critical radius of dimethyl carbonate (DMC) were obtained under different conditions of temperatures, pressures and equivalence ratios. Flame instabilities was also analyzed. The results show that the unstretched laminar burning velocity increases firstly then decreases with the increasing equivalence ratio and gets the peak at the equivalence ratio of 1.1; it also increases with the increasing initial temperatures and decreases with the increase of initial pressures. The Markstein length and cellular critical radius decrease with the increasing equivalence ratio and pressures to indicate that flame instabilities are enhanced with the increasing equivalence ratio and pressures, and the critical Peclet number decreases with the increasing equivalence ratio. The numerical simulation by Glaude mechanism and Chemkin program reveals that the mechanism is unable to predict the unstretched laminar burning velocity very well.

Keywords: dimethyl carbonate; unstretched laminar burning velocity; Markstein length; flame instabilities

全球能源的紧缺、环境污染的加剧和排放法规 的日益严格使清洁代用燃料的研究获得了越来越多

收稿日期: 2014-03-29。 作者简介: 于会宾(1988—),男,博士生;胡二江(通信作者),男,副教授。 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51306144);中央高校基本科研业务费专项资金资助项目。

网络出版时间: 2014-09-01

网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/detail/61.1069.T.20140901.1109.010.html>

的关注。对柴油机而言, NO_x 和颗粒物是主要的排放污染物, 其中颗粒物排放近年来越来越受到重视。许多学者致力于提高柴油机的性能和降低柴油机的排放, 然而同时降低颗粒物和 NO_x 排放是十分困难的。研究表明, 含氧燃料的添加可以显著降低颗粒物排放, 同时在一定程度上降低 NO_x 排放^[1-3]。碳酸二甲酯(DMC)具有含氧量较高(占总质量 53.3%)、与柴油互溶性好等优点, 因此可成为良好的柴油添加剂。Zhang 等人研究了 DMC 添加剂对柴油机性能的影响, 指出合适的喷油时刻可以在显著降低颗粒物排放的同时降低 NO_x 排放^[4]。Cheung 等人对柴油和 DMC 的混合物在欧 V 柴油机上的排放特性进行了研究, 指出燃用该混合燃料显著降低了颗粒物排放, 同时对 HC、 NO_x 的排放影响非常小^[5]。DMC 基础燃烧特性的研究对于其在发动机上的应用具有一定的指导意义, 但是目前对 DMC 基础燃烧特性的研究却很少。

层流燃烧速度是燃料的一个重要的物性参数, 也是研究湍流燃烧的基础, 还可以用来验证化学反应机理和优化发动机设计^[6]。Bilde 等人开展了大气压下 DMC 与 OH 自由基反应速率常数的测量, 指出该速率常数具有较弱的温度依赖性, DMC 与 OH 自由基反应缓慢^[7]。Tundo 等人对 DMC 的化学特性进行了研究, 指出其反应性是可变的, 363 K 是反应性变化的一个分界点^[8]。Sinha 等人在大气压下利用对冲扩散火焰进行了组分和温度的测量, 指出 DMC 火焰主要的中间基是甲醛^[9]。Glaude 等人发展了 DMC 的动力学机理, 且与对冲扩散火焰组分数据进行了对比, 模拟数据与实验数据吻合得很好^[10]。现有文献中并没有 DMC 层流燃烧速度的实验数据, 本文采用定容燃烧弹和 Chemkin 软件对 DMC 在不同温度和压力下的层流燃烧速度进行了实验研究与数值模拟, 以及混合气系统状态参数(当量比、温度和初始压力)对层流燃烧速度和火焰不稳定性的影响, 以期为进一步加深对火焰传播和火焰不稳定性的理解、DMC 的清洁高效利用提供理论基础。

1 实验和计算方法

1.1 实验装置和方法

实验装置描述见文献^[11]。本文采用定容燃烧弹系统来测量层流燃烧速度, 该系统由定容燃烧弹、点火系统、加热系统、数据采集系统和高速纹影摄像系统组成。实验中定容燃烧弹的内径为 180 mm,

容积为 5.5 L。容弹体的两个端面装有直径为 80 mm 的石英玻璃视窗, 为纹影系统提供光学通路, 容弹内的中心电极点燃混合气。实验中使用了美国 Redlake 公司生产的型号为 HG-100K 的高速摄像机, 拍摄速度为 1 万幅/s; 使用加热带将容弹内温度加热到实验工况并且保持稳定, 容弹内的温度由热电偶测得, 精度为 ± 2 K。 O_2 和 N_2 根据相应分压进气, 混合气保持 5 min(混合均匀)后点火。为确保实验数据的可靠性, 每种工况重复 3 次。

实验中 DMC 液体燃料由微型计量器注入容弹, 且在容弹内高温条件下可迅速气化。实验所用的 DMC 纯度为无水级, 质量分数 $\geq 99\%$; 空气由纯度(质量分数)为 99.99% 的 N_2 和纯度为 99.99% 的 O_2 根据 79:21 的比例配制。定容燃烧弹实验工况: 当量比 ϕ 为 0.7~1.6, 初始温度 T_u 为 373~473 K, 初始压力 P_u 为 0.1~0.5 MPa。

1.2 计算方法和化学反应机理

利用球形膨胀火焰理论获得层流燃烧速度^[12]。火焰半径 $r_f(t)$ 由纹影图片获得, 拉伸火焰传播速率 $S_n = \frac{dr_f}{dt}$, 球形膨胀火焰拉伸率 $\kappa = 2 \frac{S_n}{r_f}$ 。根据马克斯坦理论, 在火焰发展早期拉伸火焰传播速率与火焰拉伸率之间成近似线性关系^[13], 即 $S_l - S_n = L_b \kappa$, 根据此公式、通过线性回归可获得无拉伸火焰的火焰传播速率 S_l 和马克斯坦长度 L_b 。根据火焰的前锋面上的质量守恒, 可推导出质量燃烧流量 $f_0 = \rho_u u_l$, 则层流燃烧速度 $u_l = \rho_b S_l / \rho_u$, 其中 ρ_u 、 ρ_b 分别为未燃气和已燃气的密度。绝热火焰温度 T_{ad} 和气体密度由 Chemkin 软件的 Equilibrium 模块计算得出。在计算层流燃烧速度时, 为了消除点火能量和压力升高的影响, 火焰半径应在 6~25 mm 范围内^[14-15]。此外, 火焰半径也会受到胞状不稳定性的限制, 所以测量时可综合以上两方面选取火焰半径。

利用化学反应动力学软件 Chemkin 中的 Premix 模块对 DMC 进行了层流燃烧特性的模拟和分析, 计算层流燃烧速度所用的化学反应机理为 Glaude^[10] 等人发展的机理(以下简称 Glaude 机理), 该机理包括 102 个物种和 442 个反应, 已用扩散燃烧的组分数据进行了验证。

2 实验结果与分析

2.1 系统验证

图 1 给出了异辛烷-空气在初始压力为 0.1 MPa、初始温度为 373 K 时的层流燃烧速度及其与 Varea

等人^[16]、Galmiche 等人^[17]实验数据的对比。从图中可以看出,本实验结果与前人实验数据在较宽范围的当量比 ϕ 下吻合很好,从而证明了本实验系统的可靠性。

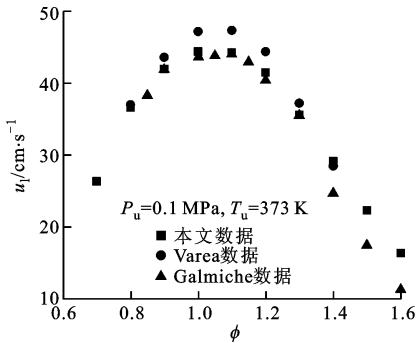
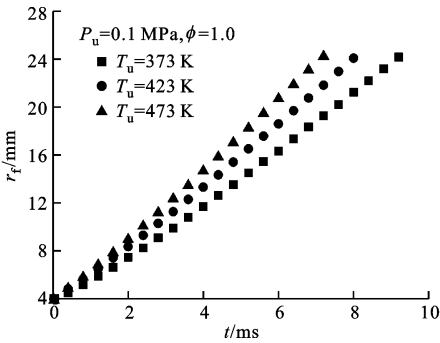


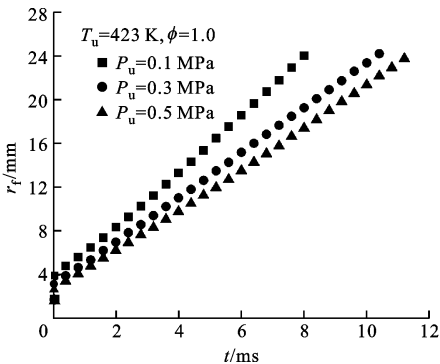
图 1 异辛烷-空气的层流燃烧速度

2.2 层流燃烧速度及数值模拟

图 2 给出不同初始温度和压力下 DMC-空气混合气在当量比为 1.0 时的火焰半径随时间的变化。从图中可以看出,火焰半径与时间呈线性关系。火焰传播速度随初始温度的增加而增加,随初始压力的增加而减小。



(a) 不同的初始温度下

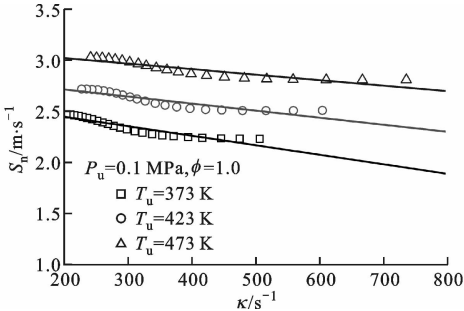


(b) 不同的初始压力下

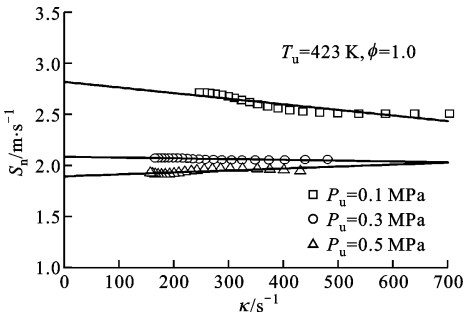
图 2 火焰半径随时间的变化

图 3 给出了不同初始温度和压力下拉伸火焰传播速率随拉伸率的变化。从图中可以看出,拉伸火

焰传播速率与拉伸率之间呈线性关系。拉伸率随火焰半径的增加而减小,火焰半径趋向于无穷大时,拉伸率趋向于 0。拉伸火焰传播速率外推至拉伸率为 0 时可获得无拉伸火焰传播速率。



(a) 不同的初始温度下



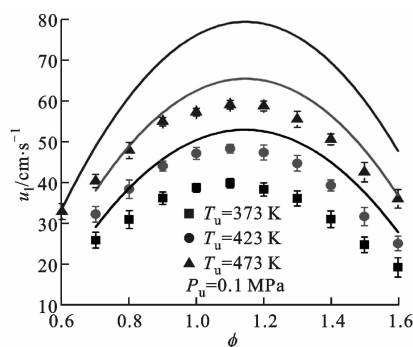
(b) 不同的初始压力下

图 3 拉伸火焰传播速率随拉伸率的变化

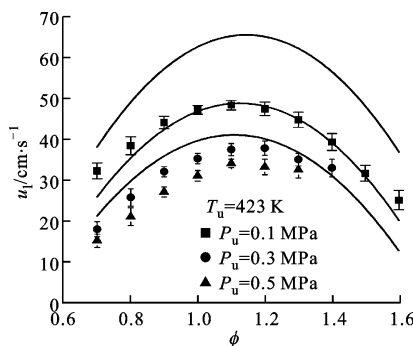
图 4 给出了不同初始温度和压力下层流燃烧速度的测量值和模拟值随当量比的变化。从图中可以看出,模拟值与测量值之间存在较大的偏差,说明 Glaude 机理不能很好地预测 DMC 的层流燃烧速度,因此该机理有待于进一步修正。从图中还可看出,在不同初始压力和温度下,层流燃烧速度均在当量比为 1.1 时到达峰值。此外,随着初始压力的增加,层流燃烧速度的下降幅度减小。

研究表明,绝热火焰温度是影响层流燃烧速度的主导因素^[18]。图 5 给出了不同初始温度和压力下绝热火焰温度随当量比的变化。从图中可以看出,绝热火焰温度随初始温度和压力的增加而增加。此外,相对于初始压力的变化,绝热火焰温度对初始温度的变化较敏感。

图 6 给出了当量比为 1.0 时 3 种初始压力和温度下的敏感性分析。从图中可以看出,主要的链分支反应和链终止反应对于初始温度和压力的变化比较敏感。Glaude 机理于 2005 年提出,其中一些基元反应的动力学参数是类比其他燃料机理获得的,其对 DMC 层流燃烧速度的模拟值与实验值存在较



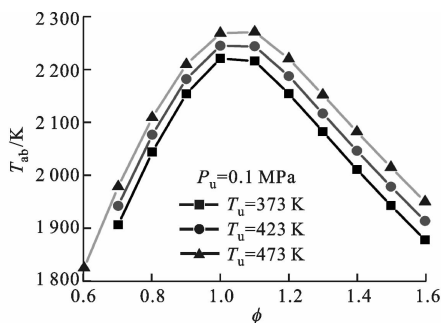
(a) 不同的初始温度下



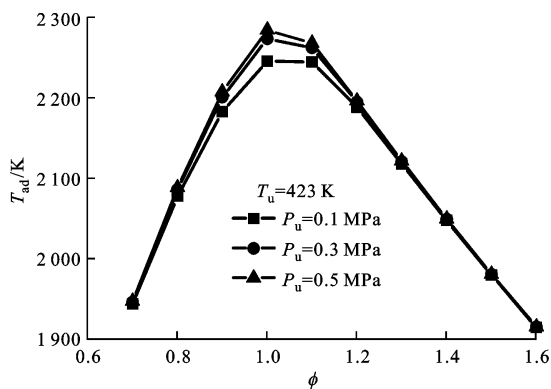
(b) 不同的初始压力下

标记符号:测量值;实线:模拟值

图4 层流燃烧速度随当量比的变化

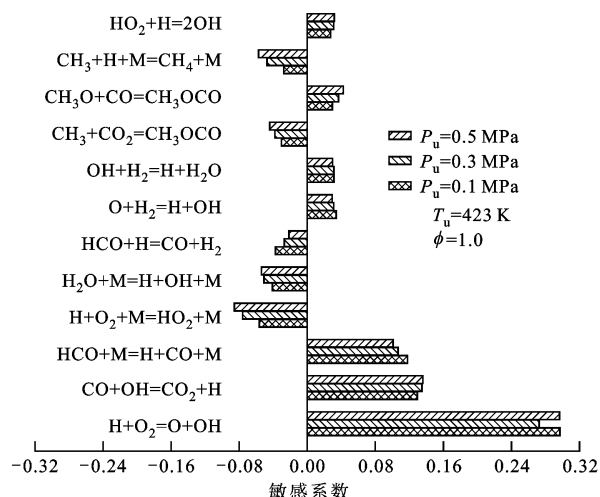


(a) 不同的初始温度下

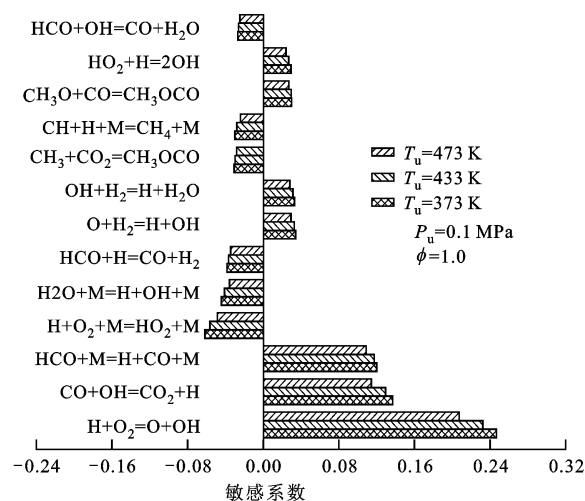


(b) 不同的初始压力下

图5 绝热火焰温度随当量比的变化



(a) 不同的初始压力下



(b) 不同的初始温度下

图6 3种初始压力和温度下的敏感性分析

大偏差的原因,可能是基元反应的动力学参数不够准确。

2.3 火焰不稳定性分析

影响火焰不稳定性的因素在3个方面,即热扩散不稳定性、流体动力学不稳定性、浮力不稳定性。在实验工况下,DMC的浮力不稳定性影响很小,因此以下仅讨论热扩散不稳定性和流体动力学不稳定性。

火焰前锋面的密度变化会造成流体动力学不稳定,在高压时更为显著,可以通过火焰厚度 δ 和密度比 σ 来分析流体动力学不稳定性^[19], $\delta = (\lambda/c_p)/(\rho_u u_1)$, $\sigma = \rho_u/\rho_b$ 。火焰厚度的减小和密度比的增大都会增强流体动力学不稳定性。

热扩散不稳定性是由热量与质量的不等扩散引起的,可通过Lewis数 Le (热扩散系数与质量扩散

系数的比值)来表征^[20]。一般而言,当 $Le>1$ 时火焰前锋面胞状结构受到抑制, $Le<1$ 时火焰前锋面趋向于不稳定。

马赫斯坦长度 L_b 可表征火焰拉伸对火焰传播的影响,也是反映火焰不稳定性的重要参数之一。马赫斯坦长度为负值时对应不稳定的火焰前锋面结构,为正值时对应稳定的火焰前锋面结构。在火焰发展过程中,马赫斯坦长度越大,火焰稳定性越好。

图 7 给出了 3 种初始压力下马赫斯坦长度随当量比的变化。从图中可以看出,马赫斯坦长度随当量比和初始压力的增加而减小,表明火焰不稳定性随当量比和初始压力的增加而增强。

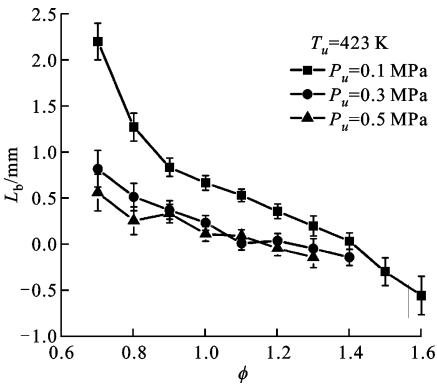


图 7 马赫斯坦长度随当量比的变化

表 1 给出了部分工况下的 Le 。由表 1 可以看出,随着初始压力的增加, Le 基本不变,表明热扩散不稳定性对初始压力的变化不敏感。

表 1 $\phi=1.2$ 、 $T_u=423$ K 时的压力纹影

参数	压力纹影		
	$r_f=10$ mm	$r_f=20$ mm	$r_f=30$ mm
$P_u=0.1$ MPa $Le=0.843$ 9			
$P_u=0.3$ MPa $Le=0.843$ 9			
$P_u=0.5$ MPa $Le=0.843$ 9			

图 8 和图 9 分别给出了 3 种压力下密度比和火焰厚度随当量比的变化。从图中可以看出:密度比随初始压力的增加而增加,但是增加量非常小;火焰

厚度随初始压力的增加而减小,且变化趋势非常明显。这表明随着初始压力的增加,火焰流体动力学不稳定性增强。综合对 Le 的分析可以得出,初始压力的增加导致火焰流体动力学不稳定性增强的主要原因是火焰厚度减小。从图中还可以看出:密度比与火焰厚度随当量比的变化呈相反的趋势,密度比随当量比的增加先增大后减小,在 $\phi=1.1$ 时达到最大;火焰厚度随当量比的增加先减小后增大,在 $\phi=1.1$ 时最小。

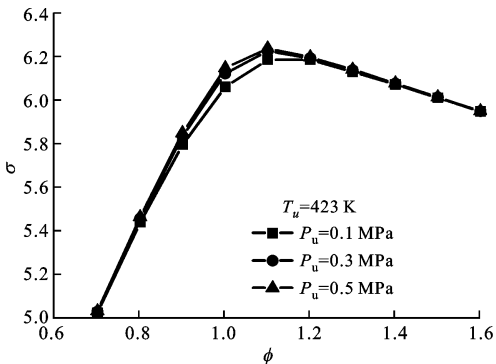


图 8 密度比随当量比的变化

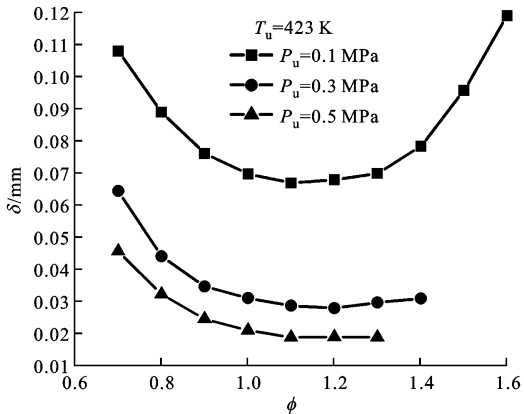


图 9 火焰厚度随当量比的变化

图 10 给出了初始压力为 0.3、0.5 MPa 时胞状不稳定性的临界火焰半径 R_{cr} 和临界 Peclet 数 Pe 随当量比的变化。在本文中采用 Bradley 等人的第二种定义方法^[21]获得 R_{cr} ,即小于分支裂纹的胞状结构自发、均匀地遍布火焰表面。临界 Pe 或 R_{cr} 与 δ 的比值也可以反映火焰不稳定性。从图中可以看出, R_{cr} 随当量比和初始压力的增加而减小,表明火焰胞状结构提前出现,即火焰胞状不稳定性增强。对于稀混合气,热扩散不稳定性受到抑制($Le>1$),火焰很难发展成胞状结构。与临界半径一样,临界 Pe 随当量比的增加而减小,表明火焰不稳定性增强。

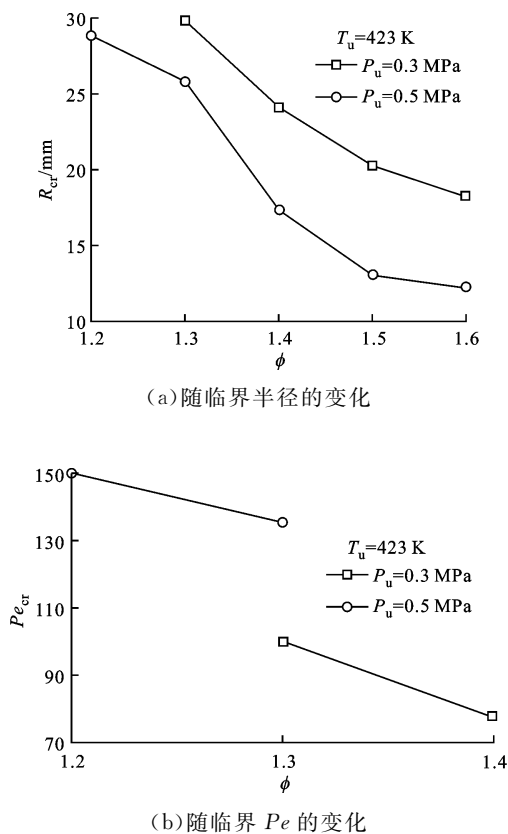


图10 临界参数随当量比的变化

3 结 论

利用定容燃烧弹和 Chemkin 软件开展了 DMC 层流燃烧速度的实验与数值研究,同时结合火焰纹影图片开展了火焰不稳定性的研究,获得的主要结论如下。

(1)通过实验获得了高温、高压条件下 DMC 的层流燃烧速度,DMC 的层流燃烧速度随当量比的增加先增加后减小,在 $\phi = 1.1$ 时达到峰值。DMC 的层流燃烧速度随初始温度的增加而增加,随初始压力的增加而减小。

(2)Glaude 机理对 DMC 层流燃烧速度的模拟值与实验测量值有较大偏差,说明该机理不能很好地预测 DMC 的层流燃烧速度,有待于进一步修正。

(3)马赫数随当量比和初始压力的增加而减小,表明火焰不稳定性随初始压力和当量比的增加而增强。

(4)临界火焰半径随当量比和初始压力的增加而减小,表明火焰胞状不稳定性增强。临界 Pe 随当量比的增加而减小,进一步表明火焰胞状不稳定性增强。

参考文献:

- [1] ZHU R, MIAO H, WANG X, et al. Effects of fuel constituents and injection timing on combustion and emission characteristics of a compression-ignition engine fueled with diesel-DMC blends [J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2013, 34(2): 3013-3020.
- [2] RAKOPOULOS D C, RAKOPOULOS C D, GIAKOMIS E G, et al. Characteristics of performance and emissions in high-speed direct injection diesel engine fueled with diethyl ether/diesel fuel blends [J]. Energy, 2012, 43(1): 214-224.
- [3] CHEN Z, LIU J, HAN Z, et al. Study on performance and emissions of a passenger-car diesel engine fueled with butanol-diesel blends [J]. Energy, 2013, 55: 638-646.
- [4] ZHANG G, LIU H, XIA X, et al. Effects of dimethyl carbonate fuel additive on diesel engine performances [J]. Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers: Part D Journal of Automobile Engineering, 2005, 219(7): 897-903.
- [5] CHEUNG C, ZHU R, HUANG Z. Investigation on the gaseous and particulate emissions of a compression ignition engine fueled with diesel-dimethyl carbonate blends [J]. Science of the Total Environment, 2011, 409(3): 523-529.
- [6] AUNG K T, HASSAN M I, FAETH G M. Flame stretch interactions of laminar premixed hydrogen/air flames at normal temperature and pressure [J]. Combustion and Flame, 1997, 109(1/2): 1-24.
- [7] BILDE M, MØGELBERG T, SEHESTED J, et al. Atmospheric chemistry of dimethyl carbonate: reaction with OH radicals, UV spectra of $\text{CH}_3\text{OC}(\text{O})\text{OCH}_2$ and $\text{CH}_3\text{OC}(\text{O})\text{OCH}_2\text{O}_2$ radicals, reactions of $\text{CH}_3\text{OC}(\text{O})\text{OCH}_2\text{O}_2$ with NO and NO_2 , and fate of $\text{CH}_3\text{OC}(\text{O})\text{OCH}_2\text{O}$ radicals [J]. The Journal of Physical Chemistry: A, 1997, 101(19): 3514-3525.
- [8] TUNDO P, SELVA M. The chemistry of dimethyl carbonate [J]. Accounts of Chemical Research, 2002, 35(9): 706-716.
- [9] SINHA A, THOMSON M J. The chemical structures of opposed flow diffusion flames of C3 oxygenated hydrocarbons (isopropanol, dimethoxy methane, and dimethyl carbonate) and their mixtures [J]. Combustion and Flame, 2004, 136(4): 548-556.
- [10] GLAUDE P A, PITZ W J, THOMSON M J. Chemical kinetic modeling of dimethyl carbonate in an opposed-flow diffusion flame [J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2005, 30(1): 1111-1118.

- [11] TANG C, HE J, HUANG Z, et al. Measurements of laminar burning velocities and Markstein lengths of propane-hydrogen-air mixtures at elevated pressures and temperatures [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2008, 33(23): 7274-7285.
- [12] LAMOUREUX N, DJEBAILI-CHAUMEIX N, PAILLARD C E. Laminar flame velocity determination for H_2 -air-He- CO_2 mixtures using the spherical bomb method [J]. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2003, 27(4): 385-393.
- [13] BRADLEY D, LAWES M, LIU K, et al. Laminar burning velocities of lean hydrogen-air mixtures at pressures up to 1.0 MPa [J]. *Combustion and Flame*, 2007, 149(1): 162-172.
- [14] BRADLEY D, GASKELL P, GU X. Burning velocities, Markstein lengths, and flame quenching for spherical methane-air flames: a computational study [J]. *Combustion and Flame*, 1996, 104(1/2): 176-198.
- [15] CHEN Z, BURKE M P, JU Y. Effects of compression and stretch on the determination of laminar flame speeds using propagating spherical flames [J]. *Combustion Theory and Modelling*, 2009, 13(2): 343-364.
- [16] VAREA E, MODICA V, VANDEL A, et al. Measurement of laminar burning velocity and Markstein length relative to fresh gases using a new postprocessing procedure: application to laminar spherical flames for methane, ethanol and isooctane/air mixtures [J]. *Combustion and Flame*, 2012, 159(2): 577-590.
- [17] GALMICHE B, HALTER F, FOUCHER F. Effects of high pressure, high temperature and dilution on laminar burning velocities and Markstein lengths of iso-octane/air mixtures [J]. *Combustion and Flame*, 2012, 159(11): 3286-3299.
- [18] LAW C K. *Combustion physics* [M]. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2006.
- [19] LANDAU L. On the theory of slow combustion [M] // *Dynamics of curved fronts*. San Diego, USA: Academic Press, 1988: 403-411.
- [20] LAW C K, SUNG C J. Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets [J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2000, 26(4/5/6): 459-505.
- [21] BRADLEY D, SHEPPART C G W, WOOLLEY R, et al. The development and structure of flame instabilities and cellularity at low Markstein numbers in explosions [J]. *Combustion and Flame*, 2000, 122(1/2): 195-209.

(编辑 苗凌)

(上接第 19 页)

- Studies on the composition and source of diesel particulate emission [J]. *Journal of Nanjing University of Information Science & Technology*, 2010, 2(2): 138-142.
- [8] 魏衍举, 汪文瑞, 陈晓, 等. 柴油机颗粒物可溶有机组分来源研究 [J]. *西安交通大学学报*, 2013, 47(5): 6-11.
- WEI Yanju, WANG Wenrui, CHEN Xiao, et al. Study on the origination of soluble organic fractions in diesel engine-out particulate matters [J]. *Journal of Xi'an Jiaotong University*, 2013, 47(5): 6-11.
- [9] OSADA H, AOYAGI Y, SHIMADA K, et al. SOF component of lubricant oil on diesel PM in a high boosted and cooled EGR engine, SAE 2007-01-0123 [R]. New York, USA: SAE, 2007.

(编辑 苗凌)