

文章编号:1000-582X(2008)03-0267-04

环形微细腔内甲烷催化转化效率的数值模拟

闫云飞, 马 盟, 张 力
(重庆大学 动力工程学院, 重庆 400030)

摘 要: 甲烷在微燃烧器内存在燃烧效率不高、燃烧不稳定等问题。为了研究微尺度下甲烷持续稳定燃烧的性能, 采用催化燃烧方式对环形微细腔内甲烷与空气混合物在铂催化表面上的催化燃烧进行了数值模拟, 研究了甲烷当量比、壁面温度对微通道内甲烷与空气混合物催化燃烧的甲烷转化效率的影响。结果表明, 甲烷当量比、壁面温度对甲烷转化率有重要影响, 通过催化可以促进甲烷在环形微细腔内的稳定燃烧。为了获得较高的甲烷转化效率, 微燃烧器入口的甲烷当量比在 0.8~1.0 范围内较为合理, 温度是影响环形微细腔内甲烷催化燃烧的主要因素, 尤其在甲烷当量比较低时, 温度的提高对甲烷的催化转化有更好的促进作用。甲烷的质量流量为 6.5 g/h 时, 甲烷催化转化效率可达 77%。

关键词: 环形微细腔; 催化燃烧; 数值模拟

中图分类号: TK16

文献标志码: A

Numerical Simulation of Catalytic Conversion Efficiency of CH₄ in Annular Micro-chamber

YAN Yun-fei, MA Meng, ZHANG Li

(College of Power Engineering, Chongqing University, Chongqing 400030, P. R. China)

Abstract: Generally, combustion of methane in micro chamber has some problems such as low efficiency and non-steady. In it has been proposed that the steady combustion in micro-scale could be achieved with catalyst method. The influence of molar ratio of CH₄/air and catalytic temperature for combustion in annular micro-chamber have been studied when Pt was used as catalyst. The results suggest that these factors have important influences on the combustion of CH₄/air mixture in annular micro-chamber, and the steady of combustion can be improved via catalysis approach. The ideal molar ratio of methane/air for combustion is obtained as 0.8~1.0. Catalytic temperature plays a key role on the combustion of methane in micro chamber. The higher temperature can accelerate catalytic combustion of CH₄/air mixture as the molar ratio of CH₄ is small. When flow rate of methane is 6.5 g/h, the maximal conversion efficiency of methane is 77%.

Key words: annular micro-chamber; catalytic combustion; numerical simulation

近年来,随着微机电系统(MEMS)的发展,国内外相继开展了对微燃烧器的研究工作^[1-4]。在微燃

烧器内,由于尺寸的缩小,燃烧器的面容比增大,使得热量损失比较严重,同时燃料在燃烧器内的驻留

收稿日期:2007-11-21

基金项目:教育部博士点基金资助项目(20040611013);重庆市自然科学基金资助项目(CSTC2005BB4185);重庆大学研究生科技创新基金资助项目(200609Y1A0100169)

作者简介:闫云飞(1978-),男,重庆大学博士,主要从事催化燃烧、多相流与环保等方面的研究。张力(联系人),男,重庆大学教授,博士生导师,(E-mail)Lizhang@cqu.edu.cn。

时间也急剧缩短,很难保证燃料完全燃烧。因此,在微细燃烧室内如何使燃料保持稳定地燃烧,以及采用何种措施提高微型燃烧器内燃烧效率等,给微型发动机燃烧器的研究提出了挑战。由于微燃烧器内催化燃烧的反应机理、燃烧条件等与常规燃烧有很大的差异,其燃烧过程会呈现不同的特征,研究各种因素对催化燃烧的影响对于实现微尺度条件下燃料的稳定性具有重要的实际意义。

文中对微型发动机内的环形微细腔中甲烷与空气混合物在热壁催化表面上的燃烧情况进行了数值模拟,详细分析了甲烷当量比(甲烷当量比为实际甲烷量与理论完全燃烧所需甲烷量之比)与壁面温度的变化对甲烷与空气混合物在微尺度通道内催化燃烧的影响,为进一步的试验研究提供了理论基础。

1 物理模型和数学模型

1.1 物理模型

如图 1 所示,计算中采用的物理模型是一个外径为 20 mm,内径为 8 mm,高为 2 mm 的环形微细腔,该微燃烧室有预混室,甲烷/空气预混气体在预混室内充分混合并被燃烧室内的热量预热。燃烧室入口为外径 20 mm,内径 19 mm 的环面,出口为外径 9.4 mm,内径 8 mm 的环面。甲烷/空气预混气体从入口进入燃烧室,在燃烧室进行表面催化燃烧。燃烧室表面涂有 Pt 催化剂。由于催化剂很薄,因此忽略了微燃烧器内表面涂催化剂对于体积的影响。

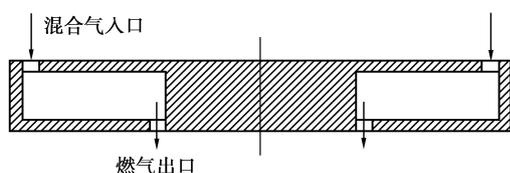


图 1 环形燃烧室结构

1.2 数学模型

由于燃烧器的空间较小(高为 2 mm),可燃混合物的流动速度很低,在计算中,忽略了体积力、流动中的耗散作用以及气体辐射等。因此,描述上述物理模型的数学模型包括以下控制方程。

1) 连续方程

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_j) = 0。$$

2) 组分方程

$$\rho \frac{\partial Y_s}{\partial t} + \rho u_j \frac{\partial Y_s}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(D \rho \frac{\partial Y_s}{\partial x_j} \right) + R_s。$$

3) 动量方程

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_j u_i) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right]。$$

4) 能量方程

$$\rho \frac{Dh}{Dt} - \frac{\partial p}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x_j} \right) + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\sum_s D \rho \frac{\partial Y_s}{\partial x_j} h_s \right) + q。$$

5) 理想气体状态方程

$$p = \rho R T \sum \frac{Y_s}{M_s}。$$

上述各式中, Y_s 、 M_s 和 R_s 分别为组分的质量分数、摩尔质量及生成或消耗速率; h 为混合物焓; q 为反应热效应。

1.3 反应机理

燃烧室内壁涂有铂催化剂,降低了甲烷反应的活化能,使甲烷燃烧更容易进行。由于燃烧器的空间较小(高为 2 mm),可燃混合物的流动速度很低,且甲烷的反应温度相对较低,在这种条件下基本不发生空间反应^[5],同时 Davis^[6]也指出,甲烷与空气混合气在铂表面进行催化反应时,空间反应只有在 1 275 K 以上的温度下才能发生,因而忽略空间反应的影响,只考虑催化表面上的反应。

模拟中,采用甲烷在铂表面催化燃烧的简单化学动力学^[7]: $\text{CH}_4 + 2\text{O}_2 = \text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$,表面催化反应中,甲烷的转化速率表达式为

$$\omega_{\text{CH}_4} = -4.11 \times 10^7 \exp \left(-\frac{1.35 \times 10^8}{RT} \right) [\text{CH}_4]^1 [\text{O}_2]^{0.5},$$

甲烷催化转化的活化能为 1.35×10^8 J/kmol。

1.4 计算方法

使用 FLUENT 6.1 模拟了甲烷与空气混合物在微型发动机的燃烧腔内催化燃烧的情况。通过改变甲烷的当量比、催化壁面的温度,研究它们对甲烷在微细腔内燃烧时转化效率的影响。

文中的燃烧器有预混室,进入燃烧室时甲烷与空气已充分混合,因此,边界条件设置为:入口采用质量流量边界条件,入口温度均设定为 500 K;出口为压力边界条件,出口表压为 10 kPa;壁面采用无滑移等温壁边界条件。

采用层流模型,流体密度根据理想气体方程计算,流体混合气体的传热系数、粘滞系数和导热系数根据组分特性的质量加权平均来计算。文中采用单精度非耦合求解器来求解控制方程,解的收敛根据控制方程残差值来判定,能量残差值取 10^{-6} ,其余均为 0.000 1,求解方法采用 SIMPLE 算法。

为了便于分析经过整个燃烧器以后甲烷参加催化燃烧反应的情况,把甲烷燃烧的催化转化率定义为

$$\eta = \frac{\text{入口甲烷质量分数} - \text{出口甲烷平均质量分数}}{\text{入口甲烷质量分数}}$$

2 计算结果与讨论

2.1 当量比对甲烷催化转化率的影响

维持甲烷质量流量为 6.5 g/h,通过改变空气量从而改变甲烷当量比。为了充分分析甲烷当量比对甲烷催化转化的影响情况,选取了较大范围的甲烷当量比(0.4~2.0)进行数值模拟,通过改变环形燃烧室入口处甲烷当量比,研究了当量比对甲烷转化率的影响情况。

图2给出了催化壁面温度为 900、1 000、1 200 K 时,甲烷通过整个微细腔后的转化率随当量比的变化情况。由图中可以看出,在温度为 1 200 K 的情况下,甲烷当量比为 1.0 左右时,甲烷在微燃烧室内可以获得较好的催化燃烧效果,甲烷最大转化率可以达到 77%。甲烷的转化率随着甲烷当量比增加是先增大后减小,温度越高,这种变化趋势越明显。比如当温度为 900 K 时,随着当量比的增加,甲烷的转化率从 11.05% 增加到 25.22%,然后又降低为 23.62%;而当温度为 1 200 K 时,当量比的增加,甲烷的转化率从 57.29% 增加到 77.15%,然后又降低为 42.49%。这主要是因为甲烷含量与甲烷反应速度增加的速度不同造成的,在低当量比的情况下,整个反应对甲烷的需求量大于对氧气的需求量,所以甲烷含量的增加必然促进反应的进行,从而使甲烷转化率随当量比增加而增加。而在甲烷含量继续增加,其速度大于反应速度的增加时,反应对氧气的需求量大于甲烷,就导致甲烷转化率的减少,所以,呈现甲烷的转化率随着甲烷当量比的增加而减小的情况。

由图2中可知,不同温度下(900~1 200 K)甲烷最大转化率分别出现在甲烷当量比为 1.8、1.4、1.0 时。温度较低时,甲烷转化率的峰值出现在甲烷当量比高的区域,而在温度较高时,甲烷转换率的峰值会出现在甲烷当量比低的区域。比如当壁面温度为 900 K 时,甲烷的最高转化率 25.22% 出现在甲烷当量比为 1.8,而当壁面温度为 1 200 K 时,甲烷的最高转化率 77% 则出现在甲烷当量比为 1.0。

从图2可知,在当量比为 1.0 时,壁面温度从 1 000 K 提高到了 1 200 K,甲烷转化率提高 75%;而在当量比为 2.0 时,壁面温度从 1 000 K 提高到 1 200 K,甲烷转化率仅提高了 3.9%,这说明在甲烷量不足时,提高温度,可以大幅度提高甲烷的转化率,而在甲烷过量的情况下,单纯提高温度并不能提高甲烷转化效率。

如图3显示了不同壁面温度下,出口处甲烷质量平均分数随当量比的变化情况。在壁面温度为

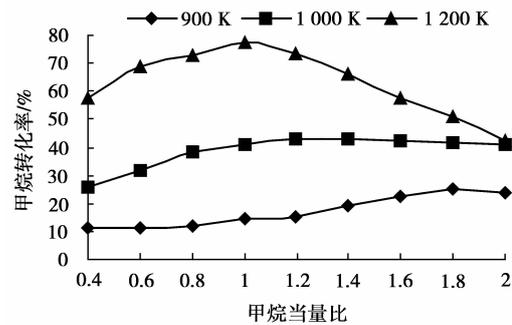


图2 当量比对甲烷转化率的影响

1 200 K 时,当量比小于 1.0 的情况下,出口处甲烷质量平均分数变化不大,说明在此种条件下甲烷可以获得较好的转化效率。壁面温度为 900、1 000 K 时,出口处甲烷质量平均分数随当量比的增加而呈直线增加,说明此种条件下甲烷的转化效率不高,出口处仍有较多的甲烷。

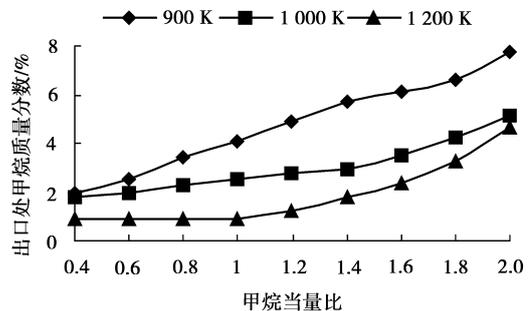


图3 出口处甲烷质量平均分数

2.2 温度对甲烷催化转化率的影响

Pt 对甲烷的催化作用在 900~1 200 K 温度范围内最有效,因此,计算中燃烧器壁面温度取值也限定在这个范围。通过改变壁面温度,研究了壁面温度对甲烷转化率的影响情况。

图4给出了壁面温度在 900~1 200 K 范围内甲烷与空气混合物在微细腔内进行表面催化燃烧后甲烷转化率的变化情况。可以看出,在温度从 900 K 提高到 1 200 K 的情况下,当量比为 1.0 时,甲烷的转化率从 17.07% 提高到 77.15%,当量比为 1.4 时,甲烷的转化率从 20.71% 提高到 63.56%。

从图4可以看出,温度小于 1 050 K,当量比为 1.4 时的甲烷转化率要略高于当量比为 1.0 时的甲烷转化率,而在温度超过 1 050 K,当量比为 1.4 时的甲烷转化率趋于平缓,当量比为 1.0 时的甲烷转化率则超过当量比为 1.4 时的甲烷转化率。这是因为,在低温区域,甲烷含量增加的速度要小于化学反应速度,甲烷含量的增加促进了反应的进行,而在高温区域,甲烷含量增加的速度要大于化学反应速度,导致甲烷转化率增加趋于平缓。Kaoru 等人曾对当

量比为 0.4 的甲烷/空气混合物在直径为 1 mm 的微型直通道中的表面催化燃烧情况进行了初步的实验研究(见图 4-5 中的实验数据),得出催化壁面温度在 1 000 K 以上时贫燃混合物能够发生剧烈反应的结论^[8]。文中结果与该实验结果较为吻合。

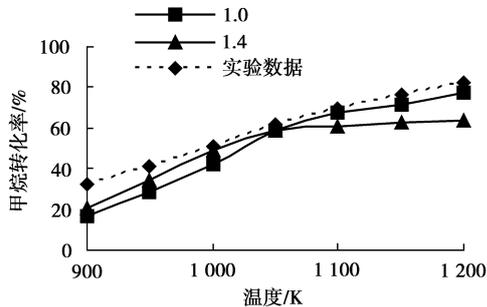


图 4 温度对甲烷转化率的影响

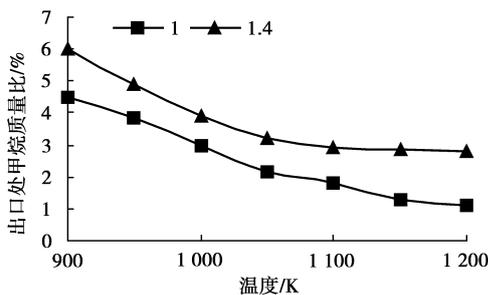


图 5 出口甲烷质量平均分数

图 5 显示了不同当量比下,出口处甲烷质量平均分数随壁面温度的变化情况,从图中可以看出,温度越高,出口处甲烷含量越低,甲烷的转化效率也就越高。壁面温度的提高促进了微细腔内甲烷的催化燃烧,当壁面温度升高时,所有当量比下的甲烷转化率均有不同程度的提高。因此,在保证催化剂不失效的情况下,应采取措施,尽量提高催化壁面的温度。

3 结 论

1) 在环形微细腔内,合适的甲烷当量比是实现甲烷稳定高效燃烧的关键性因素,为了获得较高甲烷燃烧转化效率,微燃烧器的甲烷当量比在 0.8 ~ 1.0 范围内较为合理;

2) 壁面温度是影响环形微细腔内甲烷催化燃烧的主要因素,尤其在甲烷当量比较低时,温度的提高对甲烷的催化转化有更好的促进作用;

3) 微细腔结构尺寸,催化壁面温度为 1 200 K、甲烷的质量流量为 6.5 g/h 以及甲烷当量比为 1.0 的情况下,甲烷催化转化效率可达 77%。

参考文献

- [1] WAITZ I A, GAUBA G, TZENG Y, Combustors for micro-gas turbine engines [J]. Journal of Fluids Engineering, 1998, 120(5): 109-117.
- [2] AMIT MEHRA, XIN ZHANG, AYON A A, et al. A six-wafer combustion system for a silicon micro gas turbine engine[J]. IEEE Journal of Micro Electromechanical Systems, 2000, 9(4): 517-527.
- [3] 胡国新,王明磊,李艳红. 一种微细型腔内氢气与空气预混燃烧的实验研究[J]. 中国电机工程学报, 2005, 24(1):128-131.
HU GUO-XIN, WANG MING-LEI, LI YAN-HONG. Experimental study on Combustion of Premixed Hydrogen-air Gas in annular Microchamer [J]. Proceedings of the CSEE, 2005, 24(1):28-131.
- [4] CHOI C W, JU Y. Observation of flame dynamics in mesoscale channel. In: Proceedings of the Third Joint Meeting of the U. S. Sections of The Combustion Institute [C] // USA, Chicago, 2003.
- [5] 伍亨,钟北京. 空间反应和入口速度对甲烷催化反应的影响[J]. 清华大学学报:自然科学版, 2005, 45(5): 670-672, 676.
WU HENG, ZHONG BEI-JING. Influence of the gas-phase reaction and the inlet velocity on the catalytic reaction of CH₄ [J]. Journal of Tsinghua University: Sci & Tech, 2005, 45(5): 670-672, 676.
- [6] DAVIS MB, PAWSON MD, VESER G, et al. Methane oxidation over noble metal gauzes: an LIF study [J]. Combust Flame, 2000(123): 159-174.
- [7] V. DUPONT, S. H. ZHANG, A. WILLIAMS. Experiments and simulations of methane oxidation on a platinum surface[J]. Chemical Engineering Science, 2001(56): 2659-2670.
- [8] KAORUM, KOICHI T, SITZKI L, et al. Catalytic combustion in microchannel for MEMS power generation. In: The Third Asia - Pacific Conference on Combustion [C] // Seoul, Korea, 2001.

(编辑 陈移峰)