

DOI: 10.11883/bzycj-2021-0191

# CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系爆炸动力学研究\*

钟飞翔<sup>1</sup>, 郑立刚<sup>1,2</sup>, 马鸿雁<sup>1</sup>, 杜德朋<sup>1</sup>, 王 玺<sup>1</sup>, 潘荣锬<sup>1,2</sup>

(1. 河南理工大学安全科学与工程学院瓦斯地质与瓦斯治理国家重点实验室培育基地, 河南 焦作 454003;  
2. 煤炭安全生产与清洁高效利用省部共建协同创新中心, 河南 焦作 454003)

**摘要:** 为探究甲烷在富氧条件下的火焰动力学规律, 以 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系为研究对象, 在小尺度方形透明管道中进行了一系列爆炸实验, 探讨了初始环境温度波动对爆炸参数的影响, 并对预混体系的燃烧机理进行分析。结果表明: 在 273 K 的环境温度下, 化学当量比  $\varphi=0.8\sim 1.0$  且氧气相对比  $\gamma<0.30$  和  $\varphi=1.2$  且  $\gamma<0.35$  的预混体系不能被点燃, 而其他预混体系均可被点燃, 最终产生郁金香与非郁金香两种火焰类型, 并且根据郁金香火焰独特的演变特征, 又划分为 T 形郁金香火焰和不对称郁金香火焰; 随着  $\gamma$  的增大, 无量纲火焰传播速度  $v/(S_L\sigma)$  的变化趋势由“两升两降”转变为“一升一降”。初始环境温度的升高并未对火焰传播速度和爆炸超压的变化趋势产生影响, 但是会导致最大爆炸超压  $p_{max}$  和最大火焰传播速度降低。值得注意的是, 初始环境温度对爆炸强度的影响随化学当量比的减小而增强。另外, 与最大爆炸超压相比, 最大火焰传播速度与层流燃烧速度之间的关系更紧密。从敏感性分析中可知: 层流燃烧速度对自由基链式反应 R38(即  $H+O_2=O+OH$ ) 表现出最大的正敏感度, 对 R52(即  $H+CH_3(+M)=CH_3(+M)$ ) 表现出最大的负敏感度, 并且对自由基 OH 的生成速率最敏感, 当初始环境温度升高至 303 K 时, 层流燃烧速度对 R38(正)和 R52(负)的敏感度降低; H、O 和 OH 自由基总摩尔分数的增大会削弱热扩散的不稳定性, 增强流体力学的不稳定性。

**关键词:** 富氧甲烷; 郁金香火焰; 初始环境温度; 敏感性分析

中图分类号: O381 国标学科代码: 13035 文献标志码: A

## A study of explosion dynamics of a CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> premixed system

ZHONG Feixiang<sup>1</sup>, ZHENG Ligang<sup>1,2</sup>, MA Hongyan<sup>1</sup>, DU Depeng<sup>1</sup>, WANG Xi<sup>1</sup>, PAN Rongkun<sup>1,2</sup>

(1. State Key Laboratory Cultivation Base for Gas Geology and Gas Control, School of Safety Science and Engineering, Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454003, Henan, China;

2. Collaborative Innovation Center of Coal Work Safety and Clean High Efficiency Utilization, Jiaozuo 454003, Henan, China)

**Abstract:** In order to explore the flame dynamics of methane under oxygen-rich conditions, a series of explosion experiments were carried out in a small-scale square transparent pipe with a CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> premixed system as the research object. Through the analysis of explosion parameters, the influence of the fluctuation of initial ambient temperature on explosion intensity was revealed, and the micro-combustion mechanism of premixed system was discussed. The results show that under the ambient temperature of 273 K, the mixtures with the equivalence ratio  $\varphi$  from 0.8 to 1.0, the oxygen relative ratio  $\gamma<0.30$  and  $\varphi=1.2$ ,  $\gamma<0.35$  could not be ignited, but other premixed systems could, and tulip and non-tulip flames were produced. According to the unique evolution characteristics of the tulip flame, the tulip flame can be divided into T-shaped tulip flame and asymmetric tulip flame. As the magnitude of  $\gamma$  increases, the evolution of the maximum normalized flame propagation velocity shifts from a two rises-and-two drops mode to a one rise-and-one drop mode. The increase in the initial ambient temperature has no effect

\* 收稿日期: 2021-05-14; 修回日期: 2021-08-23

基金项目: 国家自然科学基金(51674104, 51874120)

第一作者: 钟飞翔(1996—), 男, 硕士研究生, 390057630@qq.com

通信作者: 郑立刚(1979—), 男, 博士, 教授, zhengligang97@163.com

on the evolutions of flame propagation velocity and explosion overpressure, but it reduces the maximum explosion overpressure and the maximum flame propagation velocity. It is worth noting that when the equivalence ratio is lower, the initial ambient temperature has stronger influence on the explosion intensity. In addition, compared with the maximum explosion overpressure, the maximum flame propagation velocity displays a closer relationship with laminar burning velocity. The chemical kinetics calculations show that the laminar burning velocity is most positively sensitive to the free-radical chain reaction R38 (namely,  $H+O_2=O+OH$ ) and is most negatively sensitive to R52 (namely,  $H+CH_3(+M)=CH_4(+M)$ ), and is most sensitive to the rate of production of the free radical OH. When the initial ambient temperature increases to 303 K, the sensitivity of the laminar burning velocity to R38 (positive) and R52 (negative) are reduced. The increase in the total mole fraction of the free radicals H, O and OH weakens the thermal diffusion instability, but enhances the hydrodynamic instability.

**Keywords:** oxygen-enriched methane; tulip flame; initial ambient temperature; sensitivity analysis

天然气作为我国最主要的化石能源之一,在工业生产、运输等领域发挥着巨大作用,但是天然气在燃烧过程中会使 CO<sub>2</sub> 和其他 NO<sub>x</sub> 的排放量大大增加,造成严重的温室效应与大气污染问题。因此,为了降低有害气体的排放率,富氧燃烧 (oxygen-enriched combustion, OEC) 技术可以作为一种备选方案<sup>[1]</sup>。OEC 技术不仅可以提高燃料的利用效率,还能获得高纯度的 CO<sub>2</sub>, 更有利于碳捕获 (carbon capture, utilisation and storage, CCUS) 技术在实际中的应用<sup>[2-3]</sup>。采用 OEC 技术能够显著提高低碳燃料 CH<sub>4</sub> 的燃烧效率<sup>[4]</sup>, 因此富氧燃烧广泛应用于发电厂和燃气轮机中,以期达到节能减排的效果<sup>[5-7]</sup>。采用 OEC 技术,可提高燃料利用率,对环境保护也具有积极影响,但同时提高了预混体系的层流燃烧速度  $S_L$ <sup>[7-8]</sup>, 降低了预混气的爆炸下限<sup>[9-10]</sup>, 所以其本身存在的危险性是不容忽视的。

与传统燃烧相比,氧气体积分数的提升强烈影响预混体系自身的反应性。Benedetto 等<sup>[11]</sup>在非绝热 5 L 圆柱形容器中对 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 预混体系进行了爆炸实验,发现在燃烧过程中产生的水与容器壁接触后发生冷凝和蒸发的再循环现象,这种循环在燃烧诱导的快速相变中达到高潮,从而导致超绝热压力峰值;除此之外,他们还研究了 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 和 H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 这 2 种预混体系在不同 CO<sub>2</sub> 含量下的爆炸行为<sup>[12]</sup>,发现当 CO<sub>2</sub> 的含量使绝热火焰温度降低至 1 500 K 左右时,燃烧速率降低,从而导致火焰熄灭。Xia 等<sup>[13]</sup>研究了 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 预混体系在富氧条件下的层流和湍流燃烧速度,发现考虑热扩散不稳定性和湍流的影响对预测 NH<sub>3</sub> 燃烧场中湍流火焰传播速度非常重要。Cai 等<sup>[14]</sup>通过化学动力学软件对 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 进行模拟,发现对于高氧气含量的混合物,火焰失稳主要是由于流体力学不稳定性所引起的。所以氧气体积分数的增加,不仅会增强火焰不稳定性和最大爆炸压力,还会降低反应物的爆炸下限,从而增加预混体系的危险性。而 CO<sub>2</sub> 的物理和化学性质都不同于 N<sub>2</sub><sup>[15]</sup>, 首先, N<sub>2</sub> 作为双原子惰性气体,比热容低于 CO<sub>2</sub>, 展现出较弱的吸热作用<sup>[8-9]</sup>, 并且 CO<sub>2</sub> 为非惰性气体,在燃烧过程中与重要的链式反应竞争自由基<sup>[16-17]</sup>, 因此,与 N<sub>2</sub> 相比, CO<sub>2</sub> 抑制作用更强。Zhang 等<sup>[18-19]</sup>在封闭矩形管道中考察了 N<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 对火焰爆炸特性的影响,发现 CO<sub>2</sub> 对火焰加速和升压速率具有更强的削弱作用,并且从热力学和动力学角度解释了 N<sub>2</sub> 与 CO<sub>2</sub> 在燃烧过程中的抑制机理。Hu 等<sup>[9]</sup>使用圆柱形石英玻璃管道测量了气体混合物的可燃性下限 (lower flammability limits, LFL), 发现在同一氧气体积分数条件下, CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系的 LFL 高于 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系,另外, Hu 等<sup>[20]</sup>以 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系为研究对象,对 CO<sub>2</sub> 在富氧条件下产生的化学效应进行了分析,发现 CO<sub>2</sub> 的化学效应随氧气体积分数和当量比的变化而改变。

季节变化导致初始环境温度波动,而不同的预混体系对这种波动表现出不同程度的敏感性,并且改变当量比时,爆炸压力随温度的降低呈现出非单调性的变化趋势<sup>[21]</sup>。Grabarczyk 等<sup>[22]</sup>通过设置不同的初始温度 (333~413 K), 对各种燃料在 20 L 球中开展爆炸实验,发现初始环境温度的升高会使最大爆炸超压  $p_{max}$  减小; 而 Bai 等<sup>[21]</sup>在中心点火的 20 L 球形爆炸容器中,通过不同初始环境温度 (263~293 K) 下对 3 种燃料/空气混合物进行实验研究,发现最大爆燃指数和最大升压速率都会随着初始环境温度的降低而减小。这说明初始环境温度的波动对爆炸极限范围和爆炸强度都有不同程度的影响。

在燃烧过程中,自由基,尤其是 H、O、OH 自由基,主导着链式反应,且这些自由基的化学反应速

率决定了预混气的爆炸强度<sup>[23]</sup>。Chu 等<sup>[24]</sup>认为  $H+O_2=OH+O$  对中间自由基的生成有重要作用, 但是 Nie 等<sup>[23]</sup>发现自由基对  $CH_3+O_2=OH+CH_2O$  最敏感, 这说明当改变预混体系的成分时, 自由基对链式反应的敏感程度也会发生很大的变化; Li 等<sup>[25]</sup>研究了氧气体积分数对氨气燃烧的影响, 发现氧含量的增加会促使反应区 H、O、OH 以及 NH<sub>2</sub> 自由基含量增加, 最终导致  $S_L$  快速提高。因此, 为了深入了解甲烷在富氧条件下的反应机制, 找到抑制此类燃烧爆炸事故强度的最有效途径, 有必要对其进行敏感性分析。

综上, 目前对富氧条件下火焰动力学的研究主要集中在氧气体积分数对爆炸强度的影响规律, 以及不同稀释剂对富氧体系爆炸参数的影响。因此, 本文中选用 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系为研究对象, 设置不同的当量比和氧气体积相对比, 在初始环境温度分别为 273 和 303 K 的条件下开展爆炸实验, 旨在探讨富氧条件下火焰结构的演变规律, 分析初始环境温度对富氧甲烷的火焰传播速度和爆炸超压的影响, 并通过敏感性分析找出影响富氧甲烷爆炸强度的反应机制, 以期对相关事故的预防提供理论依据。

## 1 实验装置及方法

### 1.1 实验装置

如图 1 所示, 整个实验装置由配气系统、爆炸管道、点火系统、火焰与压力采集系统及同步控制系统 5 部分组成。配气系统中, 由美国 Alicat 公司生产的质量流量控制器控制预混体系组成; 爆炸管道内部尺寸为 100 mm×100 mm×1 000 mm, 体积为 10 L, 材质为有机玻璃, 厚度为 20 mm, 最大承压为 2 MPa, 其中管道左端为开口端, 使用单层聚氯乙烯 (polyvinyl chloride, PVC) 薄膜密封, 管道右端为封闭端, 使用厚度为 5 mm 的钢板密封。实验过程中, 每次实验使用同一规格的聚氯乙烯材质 PVC 保鲜膜密封, 密封时 PVC 膜的初始弹性模量相同, 并且弹性拉伸程度基本相同, 而单层 PVC 薄膜对火焰传播的影响较小, 主要体现在对较低反应性预混体系的火焰传播前期, 该影响作用将在文中讨论; 点火系统使用直流电压为 6 V 的自制电子点火器, 放电电极材料采用直径为 0.3 mm 的铂丝, 点火电极之间的间隙为 6 mm, 点火器的初始能量估计为 100 mJ; 火焰传播图像由德国生产的高速摄像机 (Lavision 4G) 拍摄, 图像采集频率为 2 000 s<sup>-1</sup>, 分辨率为 1 024×1 024; 压力采集系统的 2 个压力传感器由上海铭控公司生产, 采集频率为 15 kHz, 精度为 2.5%FS, 分别安装在距离点火电极 0 mm 和距离泄爆口 20 mm 的位置; 数据采集卡型号为 USB-1608Plus。

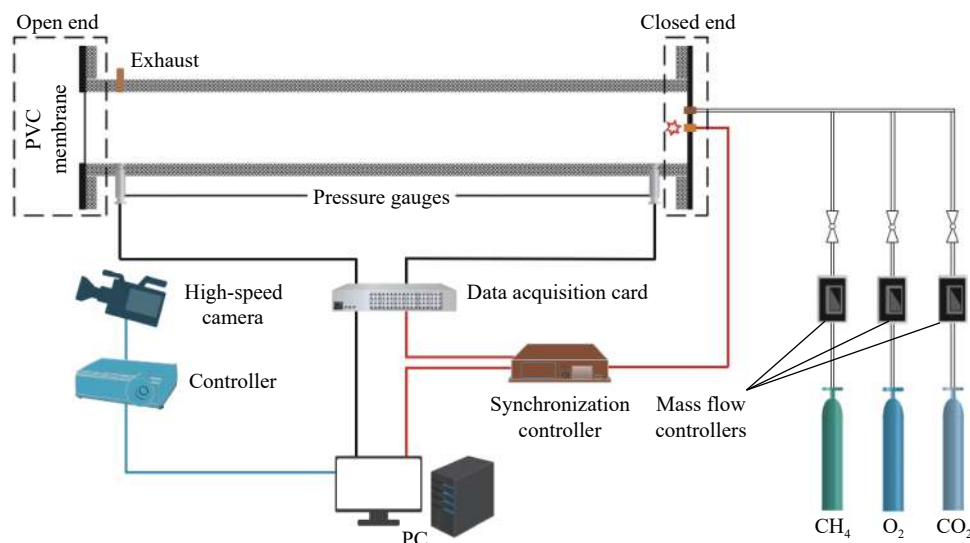


图 1 实验装置

Fig. 1 Experimental facility

## 1.2 实验方法

利用图 1 所示的实验平台进行实验, 本次实验共分 3 个不同的当量比  $\varphi$ , 即  $\varphi=0.8, 1.0, 1.2$ , 每个当量比下的氧气体积相对比  $\gamma$  由 0.20 增大至 0.50, 相邻  $\gamma$  的增大值为 0.05。当量比  $\varphi$  和氧气体积相对比  $\gamma$  的计算式分别为:

$$\varphi = \frac{(n_{\text{CH}_4}/n_{\text{O}_2})_{\text{actual}}}{(n_{\text{CH}_4}/n_{\text{O}_2})_{\text{st}}}, \quad \gamma = \frac{x_{\text{O}_2}}{x_{\text{O}_2} + x_{\text{CO}_2}} \quad (1)$$

式中:  $(n_{\text{CH}_4}/n_{\text{O}_2})_{\text{actual}}$  和  $(n_{\text{CH}_4}/n_{\text{O}_2})_{\text{st}}$  分别为 CH<sub>4</sub> 物质的量  $n_{\text{CH}_4}$  与 O<sub>2</sub> 物质的量  $n_{\text{O}_2}$  的实际比和化学计量比,  $x_{\text{O}_2}$  和  $x_{\text{CO}_2}$  分别为 O<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 的体积分数。

CH<sub>4</sub>、O<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 的纯度分别为 99.995%、99.995% 和 99.99%, 采用 4~5 倍排空气法进行配气, 首先利用四通通过质量流量计将 3 种气体预混至同一条橡胶软管中, 进气口设置在管道封闭端(即管道右端), 排气口设置在管道开口端(即管道左端), 同时打开进气口和排气口, 并使用橡胶软管将排出的预混气通至安全区域, 以此状态持续通气 5 min, 配气单位为 L/min, 每分钟通入 10 L 的预混气, 可以保证管道内的 10 L 空气完全排出。通气完成后, 同时关闭进气口与排气口, 点火之前静置 30 s, 保证气体均匀混合并且处于静止状态(忽略分子自由扩散运动), 目的是降低通气湍流效应对实验结果的影响。为便于反映不同季节(冬季与夏季)的真实环境, 所有实验工作均在室外完成, 以研究初始环境温度对爆炸特性的影响。为了保证采集的火焰图像达到最佳观测效果, 所有实验在黑暗环境中进行, 每个工况进行多次重复实验, 以保证数据的可靠性。

## 2 实验结果与讨论

### 2.1 火焰结构演变

图 2 为在 273 K 的环境温度下实验工况所呈现的火焰状态, 图中●表示该工况下预混气不能被点燃, ●表示郁金香火焰, ●表示非郁金香火焰。界限 A1 视为点火边界, A1 以下区域为不能被点火的工况, 与 Zheng 等<sup>[26]</sup>的研究( $T_0=303$  K)结果相比可以发现, 在较高的环境温度下, 富氧甲烷更容易点火(如  $\varphi=0.8\sim 1.0$  且  $\gamma=0.25$  和  $\varphi=1.2$  且  $\gamma=0.30$  的工况), 但是受浮力影响, 会使火焰产生浮力型火焰, 而预混气不能被点燃的原因是混合气体中存在的 CO<sub>2</sub> 气体体积分数过高, 具有较强的抑爆性<sup>[27]</sup>。Hu 等<sup>[9]</sup>在环境温度为 300 K 的条件下, 测得当氧气体积分数在 10%~50% 变化时, CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系的燃烧下限(LFL)为 6.875%~7.875%, 表 1 展示了临界未点火预混体系(由图 2 中●可知)的氧气体积分数和甲烷体积分数, 可以发现, 临界未点火预混体系的氧气体积分数为 22.73%~25.43%, 该氧气体积分数范围处于 10%~50% 之间, 因此可以以 Hu 等<sup>[9]</sup>测量的可燃性下限(LFL)作为参照对象, 在环境温度下降近 20 °C 的条件下, 临界未点火预混体系中甲烷的最小体积分数(9.09%)依旧大于 Hu 等<sup>[9]</sup>测量的最高 LFL 值(7.875%)。并且在实验条件下, 预混体系被点燃时的 CH<sub>4</sub> 体积分数分别为 10.71%、13.04% 与 17.36%, 这说明较低

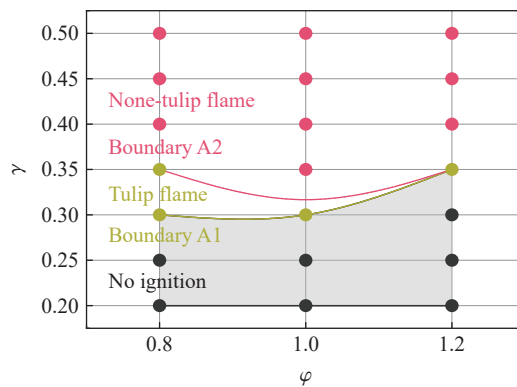


图 2 火焰状态统计

Fig. 2 Statistics of flame status

表 1 临界未点火预混体系甲烷体积分数

Table 1 Critical volume fractions of methane in unignited premixed systems

气体组分	临界未点火预混体系甲烷体积分数/%		
	$\varphi=0.8, \gamma=0.25$	$\varphi=1.0, \gamma=0.25$	$\varphi=1.2, \gamma=0.30$
O <sub>2</sub>	22.73	22.22	25.43
CH <sub>4</sub>	9.09	11.11	15.26

的实验环境温度(273 K)下将使预混气的燃烧下限升高<sup>[28]</sup>,使得 CH<sub>4</sub> 含量不能满足升高的 LFL 而无法被点燃。而界限 A1 与界限 A2 之间的区域为可以形成郁金香火焰的工况,界限 A2 之上的区域为产生非郁金香火焰的工况,因此,本文中对于未被点燃的工况将不再开展研究,重点对产生郁金香火焰和非郁金香火焰的工况进行分析。

Clanet 等<sup>[29]</sup>提出了郁金香火焰发展 4 个阶段的动力模型,因此这里不再对郁金香火焰的演变过程进行讨论。图 3 分别展示了 3 种不同发展模式的郁金香火焰演变过程,其差异主要体现在郁金香火焰的结构和火焰凹陷尖端的运动方式上。这与火焰的浮力作用和膨胀作用密切相关,火焰前锋在向未燃气方向传播的同时,反应区由于温度和压力的升高不断发生膨胀,为火焰凹陷尖端向前传播提供了动力。因此,改变膨胀作用强度,会影响火焰尖端在管道内的传播方式。其中图 3(a)( $\varphi=0.8, \gamma=0.30$ )中的凹陷尖端位置始终保持不变,而图 3(c)( $\varphi=1.0, \gamma=0.30$ )中的凹陷尖端位置出现短暂的停滞,这可能是由于火焰锋面附近的涡动作用与膨胀作用达到了相互抵消的状态;而在图 3(c)中出现了火焰凹陷尖端短时间向管道封闭端运动的现象,这可能是涡动作用大于膨胀作用导致的,并且凹陷尖端最后在 169.0 ms 时停滞,形成了 T 形郁金香火焰。而这种火焰类型一般出现在封闭管道中,Shen 等<sup>[30]</sup>认为压力反射波强烈影响郁金香火焰反转后的结构演变特征,从而加深了主尖端深度形成 T 形郁金香火焰,而在本实验条件下(管道左端为半开放状态)并不能产生压力反射波与火焰锋面相互作用,但是依然观察到类似的火焰结构类型,说明 T 形郁金香火焰的产生不依赖于管道的边界条件。相比于图 3(a)、3(c),图 3(b)( $\varphi=0.8, \gamma=0.35$ )中参与反应的氧气含量要高于前两者,因此出现了火焰膨胀作用大于涡动作用的现象,同时火焰的凹陷程度相对较弱,并且形成初始凹陷尖端的位置与点火电极的距离也相对较远。由此可知, $\gamma$  越大,预混气体的反应活性越强,膨胀作用对前部火焰结构演变的影响越强。因此,膨胀作用与涡动作用之间的相互竞争,使郁金香火焰具有 3 种不同的演变模式。另外,对于火焰传播速度较慢的预混体系,浮力作用将强烈影响火焰结构的演变过程,如图 3 所示,受浮力作用的影响,并未出现平面火焰,而是形成了倾斜的准平面火焰(如图 3(a)中 142.5 ms、图 3(b)中 75.0 ms 以及图 3(c)中 108.5 ms 所示),并且 $\varphi=0.8, \gamma=0.30$  预混体系在火焰传播后期还出现了火焰上唇传播速度快于火焰下唇的现象(如图 3(a)中 236.0 ms 所示),最终形成不对称郁金香火焰。

关于郁金香火焰产生的原因,Xiao 等<sup>[31-32]</sup>讨论了氢气/空气郁金香火焰和扭曲郁金香火焰的形成机理,他们更倾向于流体流动性和超压等因素综合作用造成火焰形态改变的观点。另外,Rayleigh-Taylor 失稳<sup>[29]</sup>、燃烧气体近壁面涡动以及火焰与燃烧流体的相互作用<sup>[33]</sup>都可能是郁金香火焰产生的原因,一般认为,郁金香火焰是由多种机制共同作用,而不是单一机制<sup>[34-35]</sup>作用的结果。在这里主要从失稳的角度来分析郁金香火焰的演变机理,而火焰失稳主要是由于热扩散不稳定性及流体力学不稳定性引起的<sup>[36]</sup>,如图 4(a)、(b)所示分别以 Lewis 数  $Le$  和膨胀比  $\sigma$  与火焰厚度  $\delta$  之比( $\sigma/\delta$ )来表征热扩散不稳定性及流体力学不稳定性。其中 Lewis 数、膨胀比以及火焰厚度的计算式分别为:

$$Le_i = \alpha/D_i, \quad \sigma = \rho_u/\rho_b, \quad \delta = \frac{T_{ad} - T_{pre}}{(dT/dx)_{max}} \quad (2)$$

式中: $Le_i$  为各组分气体的 Lewis 数, $\alpha$  为热扩散系数, $D_i$  为各组分气体的质量扩散系数, $\sigma$  为膨胀比, $\rho_u$  为未燃气体密度, $\rho_b$  为已燃气体密度, $\delta$  为火焰厚度, $T_{ad}$  为绝热火焰温度, $T_{pre}$  为预混气初始温度, $(dT/dx)_{max}$  为层流火焰反应区最大温度梯度。其中  $T_{ad}$  是根据化学动力学软件对预混体系在环境温度为 273 K、1 个标准大气压的条件下模拟所得。

从图 4(a)可以看出,相同当量比的 Lewis 数都会随着氧气相对比  $\gamma$  的增大呈线性增大,并且随着当量比的增大,其斜率不断增大,而每个工况的 Lewis 数都没有超过 1,这意味着每个工况下的火焰传播都受到了热扩散不稳定性的影响,且当量比和氧气相对比越小,热扩散不稳定性越强;从图 4(b)中可以看到相同当量比的  $\sigma/\delta$  随  $\gamma$  的增大而不断增大,并且 $\varphi=1.0$  时的  $\sigma/\delta$  始终大于 $\varphi=0.8$  和 $\varphi=1.2$  时的  $\sigma/\delta$ 。因此,可以得出流体力学不稳定性会随着  $\gamma$  的增大而不断增强,且 $\varphi=1.0$  时的流体力学不稳定性一直比 $\varphi=0.8$  和 $\varphi=1.2$  时的强。结合图 2 来看,在出现郁金香火焰的工况中(即 $\varphi=0.8, \gamma=0.30 \sim 0.35$ ;  $\varphi=1.0, \gamma=0.30$ ;

$\varphi=1.2, \gamma=0.35$ ), 其  $\gamma$  都比较低, 因而火焰失稳主要是由热扩散不稳定性引起的, 而流体力学不稳定性的影响较小; 在产生非郁金香火焰的工况中 ( $\varphi=0.8, \gamma=0.40 \sim 0.50$ ;  $\varphi=1.0, \gamma=0.35 \sim 0.50$ ;  $\varphi=1.2, \gamma=0.40 \sim 0.50$ ), 随着  $\gamma$  的增大, 热扩散不稳定性虽然不断减弱, 但是在火焰传播的过程中依然受其影响, 且流体力学不稳定性快速增强, 因此非郁金香火焰在传播过程中也会因受到热扩散不稳定性及流体力学不稳定性的影响致使火焰失稳, 只是由于实验管道长度的限制, 并未将火焰失稳现象呈现出来。

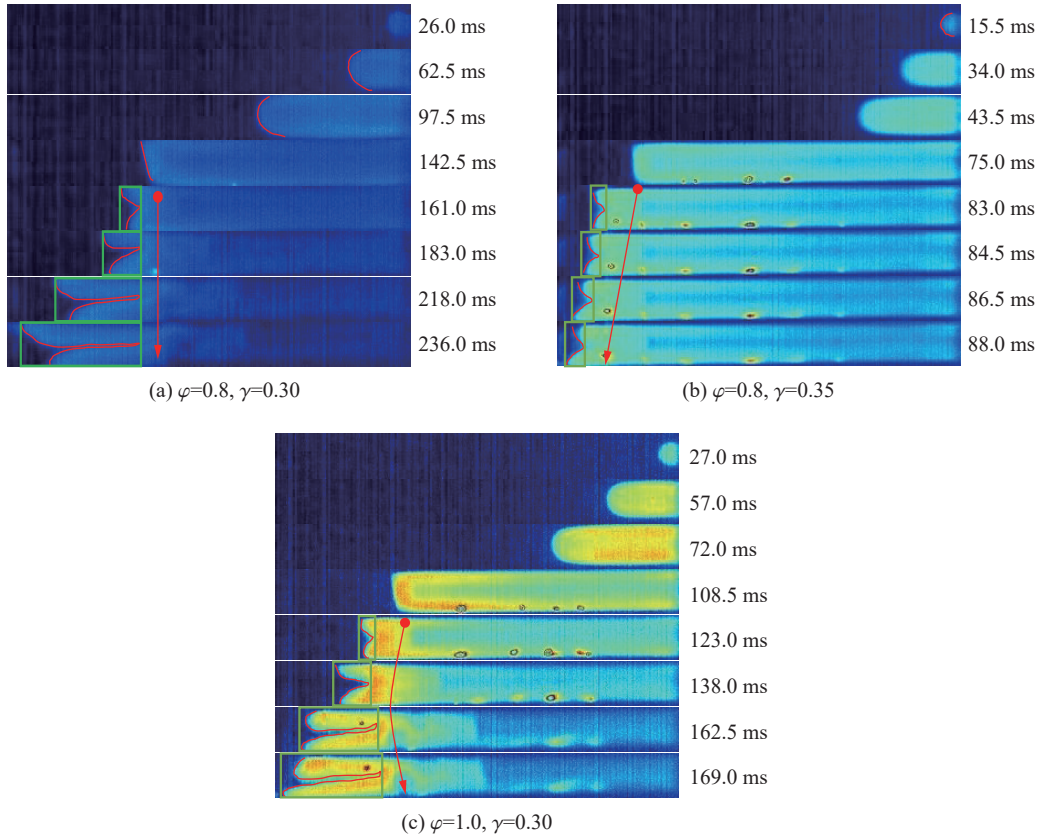


图 3 郁金香火焰的 3 种演变模式  
Fig. 3 Three patterns of evolution process of tulip flames

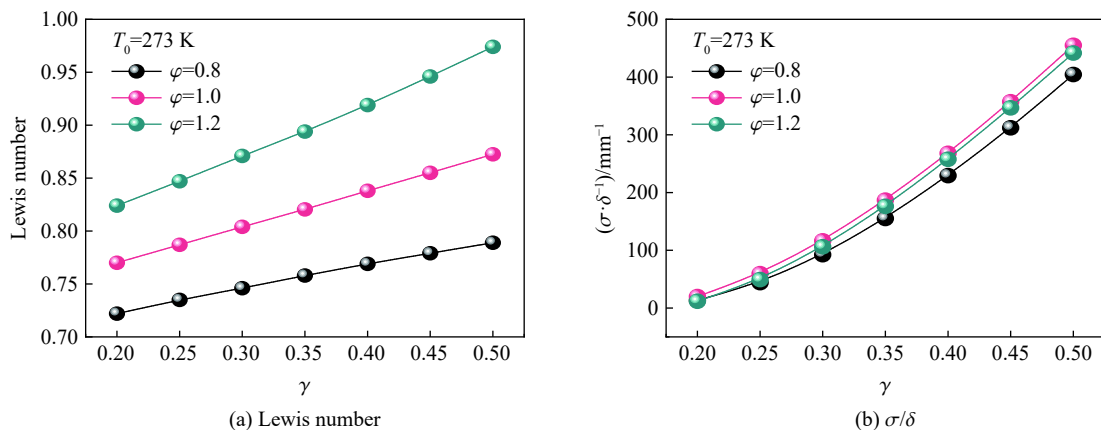


图 4 Lewis 数和  $\sigma/\delta$  随  $\gamma$  的变化趋势  
Fig. 4 Variation of Lewis number and  $\sigma/\delta$  with  $\gamma$

## 2.2 火焰动力学分析

图 5 中给出了归一化的火焰传播速度  $\bar{v}(=v/(S_L\sigma))$  与火焰前锋位置  $Z_{tip}$  之间的关系。因为不同当量

比的  $\bar{v}$  随  $Z_{tip}$  的变化趋势相同, 所以在这里只展示  $\varphi=1.0$  的图像并进行分析。从图 5 可以看出, 速度变化曲线分为 2 类。第 1 类速度曲线包含 2 次上升 2 次下降的变化趋势, 例如当  $\varphi=0.8, \gamma=0.30\sim 0.35$ ;  $\varphi=1.0, \gamma=0.30\sim 0.35$ ;  $\varphi=1.2, \gamma=0.35$  时, 皆为这类速度曲线。且这些工况下的火焰都能呈现出郁金香火焰的演变过程, 在传播过程中因火焰接触管壁, 火焰表面积快速减小, 且氧气体积分数相对较低不能提供足够的传播动力, 造成火焰速度的第 1 次下降; 随着火焰阵面发生凹陷形成郁金香火焰, 其凹陷尖端的产生使火焰表面积再次增大, 因此火焰开始了第 2 次加速。而其他工况均为第 2 类速度曲线, 由于氧气体积分数较高、反应活性较强并且没有郁金香火焰结构形成等原因, 火焰速度只有先上升后下降的趋势, 这是非郁金香火焰传播速度变化所特有的。火焰传播速度是未燃气相对于火焰锋面的速度与层流燃烧速度之和, 因此 2 种不同类型的速度曲线与  $S_L$  有紧密的关系。在该实验条件下, 火焰平均传播速度表现为第 1 类速度曲线的  $S_L$  范围为:  $\varphi=0.8$  时,  $S_L \leq 20.69$  cm/s;  $\varphi=1.0$  时,  $S_L \leq 25.08$  cm/s;  $\varphi=1.2$  时,  $S_L \leq 22.91$  cm/s。火焰平均传播速度表现为第 2 类速度曲线的  $S_L$  范围为:  $\varphi=0.8$  时,  $S_L > 20.69$  cm/s;  $\varphi=1.0$  时,  $S_L > 25.08$  cm/s;  $\varphi=1.2$  时,  $S_L > 22.91$  cm/s。

图 6 展示了  $\varphi=0.8$  时 2 种不同的爆炸超压演变曲线, 即单峰曲线和双峰曲线。双峰曲线在超压曲线中占大多数, 如  $\varphi=0.8, \gamma=0.40$  对应的曲线存在 2 个超压峰值, 分别为第 1 峰值  $p_1$  以及第 2 峰值  $p_2$ 。爆炸发生时, 管道内气体体积急剧膨胀, 压力快速上升, 导致 PVC 薄膜破裂, 管内气体随即泄放, 造成体积膨胀率及压力突然下降, 形成第 1 波峰  $p_1$ , 且  $p_1$  为动态压力而非静态压力; 第 1 峰值  $p_1$  形成后, 爆炸继续进行, 并且已燃气膨胀速率大于管道开口端气体泄放速率, 因此超压曲线继续上升, 直至已燃气膨胀速率再次等于气体泄放速率, 产生第 2 峰值  $p_2$ 。通常来讲, 最大超压峰值  $p_{max}$  由第 2 峰值  $p_2$  控制。当管道内气体膨胀速率始终大于开口端气体泄放速率时, 第 1 波峰  $p_1$  将不会出现在超压曲线上, 就形成了单峰曲线。这通常表现在高  $\gamma$ 、高反应活性体系中, 比如  $\varphi=0.8, \gamma=0.50$ 。由此可知, 超压峰值  $p_1$ 、 $p_2$  都与膨胀速率有很大的关系, 随着  $\gamma$  的不断增大, 预混体系的反应活性增强, 膨胀率不断增大, 这是爆炸超压由双峰曲线向单峰曲线转变的根本原因。另外, 从图 6 可以看出, 当  $\varphi=0.8$  时, 爆炸超压曲线的最大压力峰值随氧气相对比的增大而增大(其他当量比下也是如此), 即: 在相同当量比下, 氧气富集对最大爆炸超压  $p_{max}$  具有促进作用。

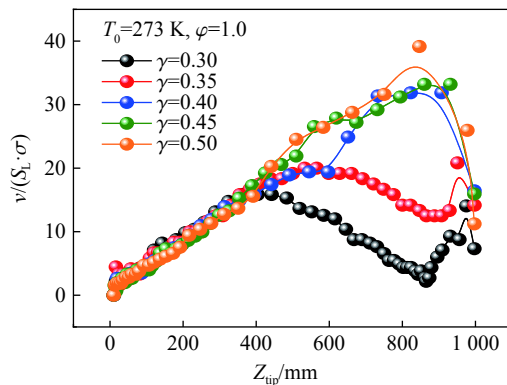


图 5 归一化火焰传播速度与火焰前锋位置之间的关系

Fig. 5 Relation between the normalized flame propagation velocity and the flame front position

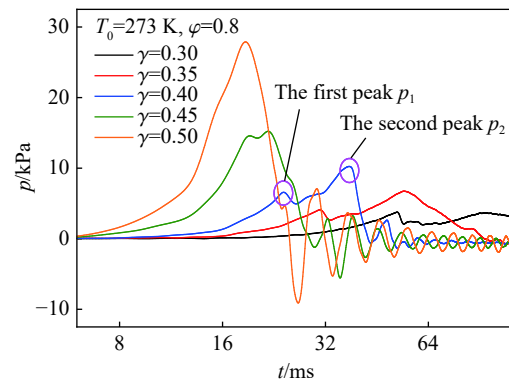


图 6 当量比为 0.8 时各氧气相对比下爆炸超压曲线

Fig. 6 Explosion overpressure-time history for various oxygen fractions at  $\varphi=0.8$

层流燃烧速度是衡量层流火焰基本燃烧特性的重要参数, 其作为预测气体燃烧特性的单一指标具有优越潜力。图 7 展示了最大爆炸超压  $p_{max}$  和最大火焰传播速度  $v_{max}$  与层流燃烧速度  $S_L$  的相关性。从图 7 可以观察到,  $p_{max}-S_L$  曲线的斜率不断增大, 当  $\gamma \leq 0.35$  时, 二者之间的拟合斜率较小, 而当  $\gamma > 0.35$  时, 其斜率快速增大。也就是说, 相同当量比下, 随着  $\gamma$  的增大,  $p_{max}$  对  $S_L$  的敏感性不断增强。 $v_{max}$  与  $S_L$  的相关性更强, 且二者之间呈线性相关, 即相比于爆炸超压, 火焰传播速度与  $S_L$  之间的关系更紧密, 更容易受  $S_L$  的影响。

初始环境温度  $T_0$  对预混气体爆炸强度有一定的影响<sup>[37]</sup>。图 8 中比较了初始环境温度为 273 和 303 K 时 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 混合物的爆炸强度。从图 8 可以看出, 在保持当量比和氧气相对比都不变的情况下, 环境温度为 273 K 时的  $p_{\max}$  和  $\bar{v}_{\max}$  ( $=v_{\max}/(S_L\sigma)$ ) 始终高于环境温度为 303 K 时的。这说明提高环境温度降低了爆炸强度。表 2 中展示了当环境温度由 273 K 升高至 303 K 时,  $p_{\max}$  和  $\bar{v}_{\max}$  的下降百分比, 例如: 当  $T_0$  从 273 K 升高到 303 K 时,  $\varphi=0.8, \gamma=0.35$  时的 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 混合物的爆炸压力降低了 43.38%,  $\varphi=1.0, \gamma=0.35$  的爆炸压力降低了 38.82%,  $\varphi=1.2, \gamma=0.35$  时的爆炸压力降低了 16.43%。可以发现, 随着当量比的增大,  $p_{\max}$  和  $\bar{v}_{\max}$  下降百分比逐渐减小, 这说明贫燃对初始环境温度的波动更敏感。另外, 当  $T_0=273$  K 时, 最大  $p_{\max}$  始终出现于  $\varphi=1.0$  时; 但是当  $T_0=303$  K 时,  $0.35 < \gamma \leq 0.45$  时的最大  $p_{\max}$  和  $\bar{v}_{\max}$  出现在富燃侧 ( $\varphi=1.2$ ), 当  $\gamma=0.50$  时,  $\varphi=1.0$  时的  $p_{\max}$  才超过  $\varphi=1.2$  时的, 而  $\varphi=0.8$  时的  $p_{\max}$  始终最小;  $\bar{v}_{\max}$  的这种趋势更明显。这意味着, 提高初始环境温度对富燃条件下的爆炸强度具有促进作用, 并且在  $\gamma$  处于 0.35~0.50 时, 富燃料甚至会超过化学当量比的爆炸强度。

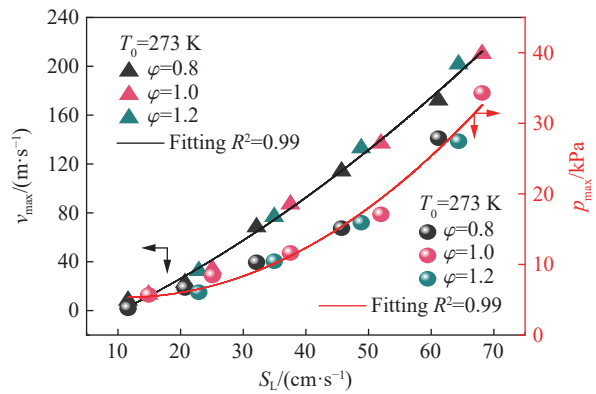


图 7 最大爆炸超压和最大火焰传播速度与层流燃烧速度之间的关系

Fig. 7 Dependence of the maximum explosion overpressure and the maximum flame propagation velocity on laminar burning velocity

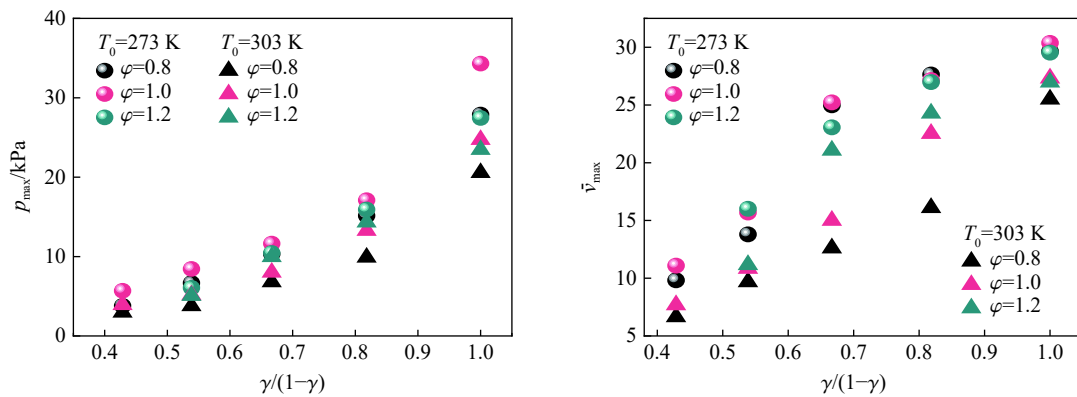


图 8 不同初始环境温度对  $p_{\max}$  和  $\bar{v}_{\max}$  的影响

Fig. 8 Influence of different initial ambient temperatures on  $p_{\max}$  and  $\bar{v}_{\max}$

表 2  $p_{\max}$  和  $\bar{v}_{\max}$  在环境温度由 273 K 升高到 303 K 影响下的下降百分比

Table 2 Decrease percentage of  $p_{\max}$  and  $\bar{v}_{\max}$  affected by ambient temperature from 273 K to 303 K

$\gamma$	$p_{\max}$ 下降百分比/%			$\bar{v}_{\max}$ 下降百分比/%		
	$\varphi=0.8$	$\varphi=1.0$	$\varphi=1.2$	$\varphi=0.8$	$\varphi=1.0$	$\varphi=1.2$
0.30	21.94	31.16		32.33	30.76	
0.35	43.38	38.82	16.43	29.81	30.95	30.32
0.40	34.06	31.23	4.77	49.54	40.56	8.65
0.45	34.66	22.45	10.05	41.76	17.08	10.03
0.50	26.30	27.94	14.56	14.02	10.07	8.67



根据 Hernandez 等<sup>[38]</sup> 的理论分析, 可以推导出:

$$dp/dt \propto (dv_{\text{reacting}}/dt)(\sigma - 1), \quad dv_{\text{reacting}}/dt = \varepsilon AS_L \quad (3)$$

式中:  $\varepsilon$  为拉伸因子,  $A$  为火焰表面积。而 Bychkov 等<sup>[39]</sup> 研究发现:

$$A \propto 2\sigma^2/(\sigma + 1) \quad (4)$$

由 Hernandez 等<sup>[38]</sup> 和 Bychkov 等<sup>[39]</sup> 的研究可得:

$$dp/dt \propto 2S_L\sigma^2(\sigma - 1)/(\sigma + 1) \quad (5)$$

综上, 图 9 展示了不同初始环境温度下最大升压速率  $(dp/dt)_{\text{max}}$  与  $S_L\sigma^2(\sigma - 1)/(\sigma + 1)$  之间的拟合关系。从图 9 中可以看出, 二者之间具有一定的相关性, 并且当初始环境温度升高至 303 K 时, 其拟合优度并无太大改变, 当  $S_L\sigma^2(\sigma - 1)/(\sigma + 1)$  增大时, 其离散程度也都会增大。由图 9 可知, 氧气相对比  $\gamma$  的增大会提高  $S_L$  和膨胀比  $\sigma$ , 从而使  $S_L\sigma^2(\sigma - 1)/(\sigma + 1)$  增大, 也就是说在相同当量比下,  $(dp/dt)_{\text{max}}$  会随着  $\gamma$  的增大而不断升高。但是对于所有的当量比, 当  $\gamma \leq 0.30$  时,  $(dp/dt)_{\text{max}}$  会随初始环境温度的升高而升高, 而在  $\gamma \geq 0.35$  的条件下,  $(dp/dt)_{\text{max}}$  会随初始环境温度的升高而降低。

### 2.3 敏感性分析

为了探讨甲烷在富氧条件下的爆炸机理, 本节中利用化学动力学计算, 对该预混体系的物性参数等进行敏感性分析, 进而从微观机理角度来分析郁金香火焰产生的原因以及初始环境温度对爆炸参数的影响机制。

甲烷空气预混气体的爆炸过程中, H、O、OH 这 3 种自由基在链式反应中起到了至关重要的作用<sup>[23, 40-41]</sup>, 与火焰传播、爆炸强度、爆炸机理有着密切的关系。图 10 采用 GRI-Mech 3.0 机理得到了不同工况下主要链式反应对层流燃烧速度的敏感度系数, 其中基元反应 R11、R38、R99、R119、R135、R166 的敏感度系数始终为正, 说明这些反应可以提高层流燃烧速度, 而其他几个反应敏感系数始终为负, 说明这几种反应将会削弱层流燃烧速度。结合表 3 可知, 敏感系数为正的反应都会产生大量 H、O 或者 OH 自由基, 而敏感系数为负的反应大都会消耗大量 H、O、OH 自由基。在 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系所有的链式反应中, 对层流燃烧速度影响最大的 2 个分别为: R38, H+O<sub>2</sub>=O+OH; R52, H+CH<sub>3</sub>(+M)=CH<sub>4</sub>(+M)(其中 M 为第 3 体效应, 即 M 通过与自由基的碰撞促进反应的进行, 但是其本身不参与化学反应)。值得注意的是, 提高氧气体积分数抑制了反应 R38 和 R52 的进行, 而提高当量比促进了反应 R38 和 R52 的进行。这是因为, R38 和 R52 的反应物需要大量的 H 和 CH<sub>3</sub> 自由基, 而这 2 种自由基在该反应体系中只能由 CH<sub>4</sub> 产生, 并且氧气体积相对比  $\gamma$  的提高显著提高了预混体系的反应活性, 从而提高了各链式反应的反应程度。因此, H 自由基的产生量不足以维持原来的反应平衡, 削弱了 R38 和 R52 对层流燃烧速度的敏感度。

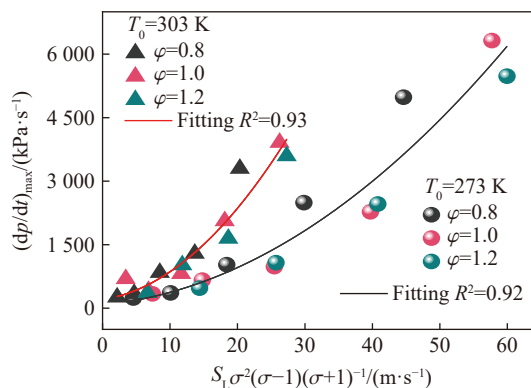


图 9 2 种初始环境温度下  $(dp/dt)_{\text{max}}$  与  $S_L\sigma^2(\sigma - 1)/(\sigma + 1)$  的关系

Fig. 9 Relationship between  $(dp/dt)_{\text{max}}$  and  $S_L\sigma^2(\sigma - 1)/(\sigma + 1)$  for two initial ambient temperatures

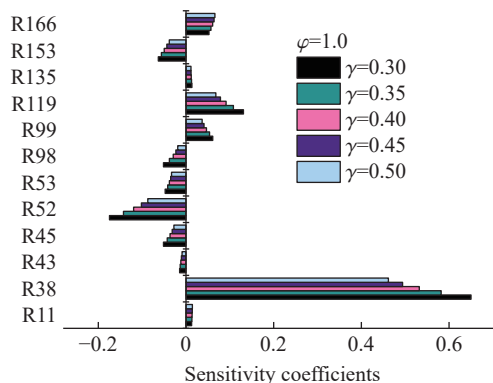


图 10 各种氧气相对比下主要链式反应对层流燃烧速度的敏感度系数

Fig. 10 Sensitivity coefficients of the main chain reactions to laminar burning velocity for various oxygen fractions

通过对图 10 和表 3 的分析,可以看出, H、O、OH、CH<sub>3</sub> 这 4 种自由基对反应体系物性参数的影响最大。在这里改变 Chemkin 初始环境温度,对比了不同工况下 4 种自由基生成速率(rate of production, ROP,  $c$ )的变化趋势,发现其他 3 种自由基的生成速率所表现出来的变化趋势与 OH 自由基的相同。由图 11 可以看出,在相同当量比下,随着氧气体积分数的增大,OH 自由基的生成速率  $c_{OH}$  不断提高,并且初始环境温度由 273 K 升高至 303 K,对自由基的生成速率具有一定的促进作用。结合图 12(a) 发现  $T_0$  升高至 303 K 时,层流燃烧速度变大,而在图 7 中,层流燃烧速度的增大提升了最大火焰传播速度  $v_{max}$  以及最大爆炸超压  $p_{max}$ ,这与图 8 所呈现出来的初始温度的升高对  $v_{max}$  和  $p_{max}$  有削减作用的结果相反。这意味着初始温度的改变对预混体系物性参数的影响是多方面的,如在图 12(b) 中可以观察到,相同当量比下,初始温度升高会使膨胀比显著减小,这与初始温度对层流燃烧速度的影响作用正好相反,而膨胀比的减小会抑制火焰传播速度以及爆炸超压。说明当  $T_0$  升高时,对反应体系的物性参数都有不同方向、不同程度的影响,它们之间相互竞争,最终呈现出环境温度升高会削弱  $p_{max}$  和  $v_{max}$  的现象。

表 3 预混体系中主要的链式反应

Table 3 Main chain reactions in the premixed system

反应序号	主要链式反应	反应序号	主要链式反应
R11	O+CH <sub>4</sub> =OH+CH <sub>3</sub>	R98	OH+CH <sub>4</sub> =CH <sub>3</sub> +H <sub>2</sub> O
R38	H+O <sub>2</sub> =O+OH	R99	OH+CO=H+CO <sub>2</sub>
R43	H+OH+M=H <sub>2</sub> O+M	R119	HO <sub>2</sub> +CH <sub>3</sub> =OH+CH <sub>3</sub> O
R45	H+H <sub>2</sub> O=H <sub>2</sub> +OH	R135	CH <sub>2</sub> +O <sub>2</sub> =OH+H+CO
R52	H+CH <sub>3</sub> (+M)=CH <sub>4</sub> (+M)	R153	CH <sub>2</sub> (s)+CO <sub>2</sub> =CH <sub>2</sub> O+CO
R53	H+CH <sub>4</sub> =CH <sub>3</sub> +H <sub>2</sub>	R166	HCO+H <sub>2</sub> O=H+CO+H <sub>2</sub> O

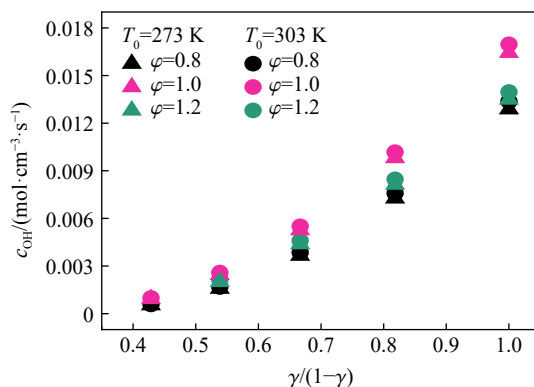


图 11 不同初始环境温度下 OH 自由基的生成速率

Fig. 11 Rates of production of the free radical OH at different initial ambient temperatures

为了更深入地分析甲烷在富氧条件下爆炸强度的影响因素,对 H、O、OH、CH<sub>3</sub> 自由基的生成速率与层流燃烧速度和膨胀比之间的关系进行了探讨。发现层流燃烧速度与 OH 自由基的生成速率存在良好的正相关性(见图 12(a)),且不依赖于当量比;但膨胀比与 OH 自由基的生成速率之间的关系受当量比的影响(见图 12(b))。从图 12 还可以看出,当 OH 自由基的生成速率不断提高时,层流燃烧速度和膨胀比都呈现出增大的趋势,但曲线斜率不断减小,即 OH 自由基的生成速率越高,对层流燃烧速度的影响程度越低。其他 3 种自由基(H、O、CH<sub>3</sub>)与层流燃烧速度和膨胀比之间也具有相似的变化趋势,但随着当量比的改变,数据的离散程度变大。这意味着,相对于 H、O、CH<sub>3</sub> 自由基,层流燃烧速度对 OH 自由基的生成速率更敏感。并且提高初始环境温度时,层流燃烧速度对 OH 自由基的生成速率也更敏感(见图 12(a))。

火焰传播过程除受预混体系的层流燃烧速度和膨胀比影响外, 还受热扩散不稳定性和流体力学不稳定性的影响, 因此这里分析了 H、O、OH 等 3 种主要自由基对这 2 种不稳定性的影响。由图 13 可知, 热扩散系数与 H、O、OH 自由基的最大摩尔分数之和存在非常好的正相关性, 而  $\sigma/\delta$  与其更是存在线性关系。在同一初始环境温度下, 热扩散系数和  $\sigma/\delta$  都会随着自由基含量的增加而不断增大, 并且从图 4(a) 可以发现, 有效 Lewis 数都小于 1, 说明热扩散不稳定性对火焰都具有失稳效应, 因此 H、O、OH 自由基最大摩尔分数的增大对有效 Lewis 数的增大有促进作用, 导致热扩散不稳定性的失稳效应逐渐减弱; 而  $\sigma/\delta$  用来衡量流体力学不稳定性的强弱<sup>[36]</sup>, 因此当 H、O、OH 自由基的最大摩尔分数增大时, 流体力学不稳定性会不断增强。另外, 当  $T_0$  升至 303 K 时, 相同工况下的热扩散系数会大幅度增大, 而对  $\sigma/\delta$  会有减小的效果, 说明环境温度的升高会削弱热扩散不稳定性 and 流体力学不稳定性。

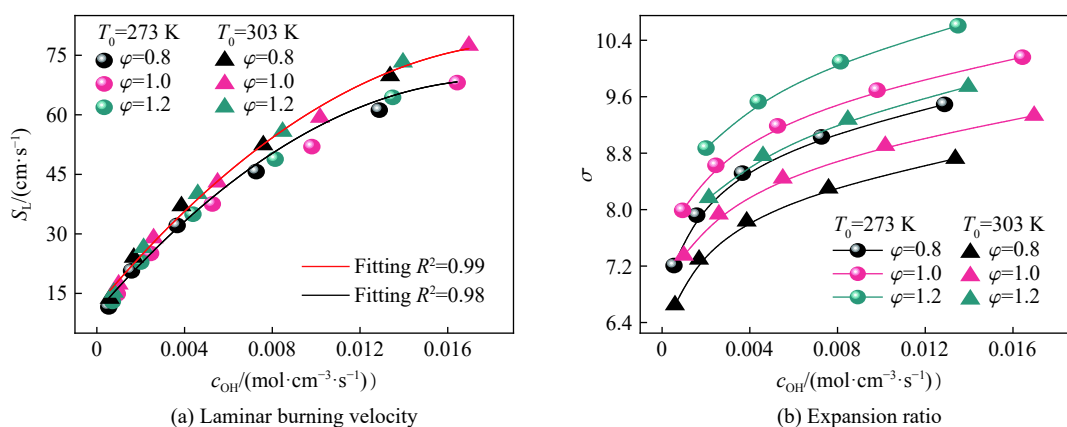


图 12 层流燃烧速度和膨胀比随自由基 OH 的生成速率变化

Fig. 12 Variation of laminar burning velocity and expansion ratio with the rate of production of OH free radical

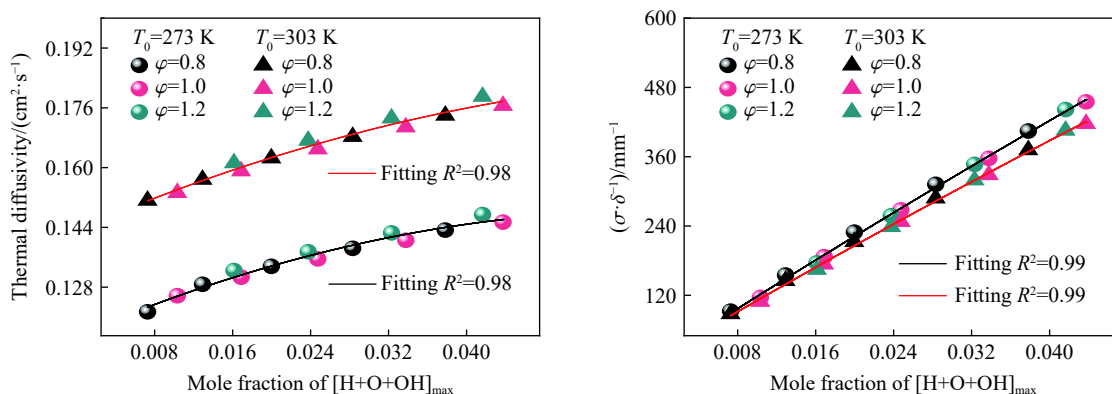


图 13 火焰不稳定与 H、O、OH 自由基最大摩尔分数的拟合关系

Fig. 13 Fitting relationship between the flame instability and the maximum mole fraction of H, O and OH radicals

### 3 结论

为研究甲烷在富氧条件下的爆炸动力学, 以 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系为研究对象, 在不同的初始环境温度下开展了爆炸实验, 得到的结论如下。

(1) 氧气体积分数对火焰结构类型以及火焰传播模式具有显著影响。受火焰失稳和管道长度限制的综合影响, 随着氧气体积分数的增大, 每种当量比下都依次出现郁金香和非郁金香 2 种火焰结构类型。由于膨胀作用与涡流作用相互竞争, 使郁金香火焰上下唇和主尖端出现 3 种运动模式, 并产生不对称型郁金香火焰和 T 形郁金香火焰, 并且在这里认为 T 形郁金香火焰的形成不依赖于管道边界条件。

(2) 火焰传播速度曲线和爆炸超压曲线类型与氧气体积相对比  $\gamma$  密切相关。随着氧气体积分数的增大, 归一化的火焰传播速度曲线分为“两升两降”和“一升一降”2 种类型, 且第 1 类曲线对应为郁金香火焰, 第 2 类曲线对应为非郁金香火焰; 氧气体积分数强烈影响预混体系的反应性, 当层流燃烧速度  $S_L > 37.53$  cm/s 时, 破膜压力  $p_1$  消失, 导致爆炸超压-时间曲线由双峰曲线转变为单峰曲线。

(3) 初始环境温度  $T_0$  的波动会对爆炸强度产生影响。与 Hu 等<sup>[9]</sup> 在环境温度为 300 K 条件下测得的可燃性下限相比可知, 环境温度的降低, 将提高 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系的爆炸下限。最大爆炸压力  $p_{\max}$  和归一化最大火焰传播速度  $\bar{v}_{\max}$  ( $=v_{\max}/(S_L\sigma)$ ) 都随  $T_0$  的升高而降低, 而对于最大升压速率  $(dp/dt)_{\max}$ , 只有在较高的氧气体积相对比下 ( $\gamma \geq 0.35$ ),  $T_0$  的升高才会对其呈现抑制作用。另外,  $p_{\max}$  和  $\bar{v}_{\max}$  的下降百分比随当量比的增大而减小, 这说明贫燃预混体系的爆炸强度更容易受环境温度波动的影响。

(4) 由敏感性分析可知, 在 CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 预混体系中,  $S_L$  对链式反应 R38 (即 H+O<sub>2</sub>=O+OH) 和 R52 (即 H+CH<sub>3</sub>(+M)=CH<sub>4</sub>(+M)) 分别表现出最大正敏感度和最大负敏感度, 而氧气体积分数的提高会削弱  $S_L$  对 R38 和 R52 的敏感度, 并且发现  $S_L$  与 OH 自由基的生成速率相关性最强。H、O、OH 这 3 种自由基的总摩尔分数与热扩散系数和  $\sigma/\delta$  呈线性相关, 并且这种线性关系不受  $T_0$  的影响, 通过提高 H、O、OH 自由基的总摩尔分数可以削弱热扩散不稳定性, 增强流体力学不稳定性。

## 参考文献:

- [1] SAANUM I, DITARANTO M. Experimental study of oxy-fuel combustion under gas turbine conditions [J]. *Energy and Fuels*, 2017, 31(4): 4445–4451. DOI: 10.1021/acs.energyfuels.6b03114.
- [2] STANGER R, WALL T, SPÖRL R, et al. Oxyfuel combustion for CO<sub>2</sub> capture in power plants [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2015, 40: 55–125. DOI: 10.1016/j.ijggc.2015.06.010.
- [3] CHAKROUN N W, GHONIEM A F. High-efficiency low LCOE combined cycles for sour gas oxy-combustion with CO<sub>2</sub> capture [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2015, 41: 163–173. DOI: 10.1016/j.ijggc.2015.06.025.
- [4] LI B, SHI B, CHU Q, et al. Characteristics of stoichiometric CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> flame up to the pure oxygen condition [J]. *Energy*, 2019, 168: 151–159. DOI: 10.1016/j.energy.2018.11.039.
- [5] ABDELHAFEZ A, NEMITALLAH M A, RASHWAN S S, et al. Adiabatic flame temperature for controlling the macrostructures and stabilization modes of premixed methane flames in a model gas-turbine combustor [J]. *Energy and Fuels*, 2018, 32(7): 7868–7877. DOI: 10.1021/acs.energyfuels.8b01133.
- [6] KUTNE P, KAPADIA B K, MEIER W, et al. Experimental analysis of the combustion behaviour of oxyfuel flames in a gas turbine model combustor [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2011, 33(2): 3383–3390. DOI: 10.1016/j.proci.2010.07.008.
- [7] LIU C Y, CHEN G, SIPÖCZ N, et al. Characteristics of oxy-fuel combustion in gas turbines [J]. *Applied Energy*, 2012, 89(1): 387–394. DOI: 10.1016/j.apenergy.2011.08.004.
- [8] ZHANG Q S, CHEN G Y, DENG H X, et al. Experimental and numerical study of the effects of oxygen-enriched air on the laminar burning characteristics of biomass-derived syngas [J]. *Fuel*, 2021, 285: 119183. DOI: 10.1016/j.fuel.2020.119183.
- [9] HU X Z, YU Q B, SUN N, et al. Effects of high concentrations of CO<sub>2</sub> on the lower flammability limits of oxy-methane mixtures [J]. *Energy and Fuels*, 2016, 30(5): 4346–4352. DOI: 10.1021/acs.energyfuels.6b00492.
- [10] HU X Z, YU Q B, LIU J X, et al. Investigation of laminar flame speeds of CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> mixtures at ordinary pressure and kinetic simulation [J]. *Energy*, 2014, 70: 626–634. DOI: 10.1016/j.energy.2014.04.029.
- [11] DI BENEDETTO A, CAMMAROTA F, DI SARLI V, et al. Anomalous behavior during explosions of CH<sub>4</sub> in oxygen-enriched air [J]. *Combustion and Flame*, 2011, 158(11): 2214–2219. DOI: 10.1016/j.combustflame.2011.03.015.
- [12] DI BENEDETTO A, DI SARLI V, SALZANO E, et al. Explosion behavior of CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> mixtures [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2009, 34(16): 6970–6978. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2009.05.120.
- [13] XIA Y, HASHIMOTO G, HADI K, et al. Turbulent burning velocity of ammonia/oxygen/nitrogen premixed flame in O<sub>2</sub>-enriched air condition [J]. *Fuel*, 2020, 268: 117383. DOI: 10.1016/j.fuel.2020.117383.

- [14] CAI X, WANG J H, ZHANG W J, et al. Effects of oxygen enrichment on laminar burning velocities and Markstein lengths of CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> flames at elevated pressures [J]. *Fuel*, 2016, 184: 466–473. DOI: 10.1016/j.fuel.2016.07.011.
- [15] CHAN Y L, ZHU M M, ZHANG Z Z, et al. The effect of CO<sub>2</sub> dilution on the laminar burning velocity of premixed methane/air flames [J]. *Energy Procedia*, 2015, 75: 3048–3053. DOI: 10.1016/j.egypro.2015.07.621.
- [16] KHAN A R, ANBUSARAVANAN S, KALATHI L, et al. Investigation of dilution effect with N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> on laminar burning velocity of premixed methane/oxygen mixtures using freely expanding spherical flames [J]. *Fuel*, 2017, 196: 225–232. DOI: 10.1016/j.fuel.2017.01.086.
- [17] LIU F, GUO H S, SMALLWOOD G J. The chemical effect of CO<sub>2</sub> replacement of N<sub>2</sub> in air on the burning velocity of CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub> premixed flames [J]. *Combustion and Flame*, 2003, 133(4): 495–497. DOI: 10.1016/S0010-2180(03)00019-1.
- [18] ZHANG C, SHEN X B, WEN J X, et al. The behavior of methane/hydrogen/air premixed flame in a closed channel with inhibition [J]. *Fuel*, 2020, 265: 116810. DOI: 10.1016/j.fuel.2019.116810.
- [19] ZHANG C, WEN J, SHEN X B, et al. Experimental study of hydrogen/air premixed flame propagation in a closed channel with inhibitions for safety consideration [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2019, 44(40): 22654–22660. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2019.04.032.
- [20] HU X Z, YU Q B, LIU J X. Chemical effect of CO<sub>2</sub> on the laminar flame speeds of oxy-methane mixtures in the condition of various equivalence ratios and oxygen concentrations [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2016, 41(33): 15068–15077. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2016.05.276.
- [21] BAI C H, LIU W J, YAO J, et al. Explosion characteristics of liquid fuels at low initial ambient pressures and temperatures [J]. *Fuel*, 2020, 265: 116951. DOI: 10.1016/j.fuel.2019.116951.
- [22] GRABARCZYK M, TEODORCZYK A, DI SARLI V, et al. Effect of initial temperature on the explosion pressure of various liquid fuels and their blends [J]. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 2016, 44: 775–779. DOI: 10.1016/j.jlpi.2016.08.013.
- [23] NIE B S, YANG L L, GE B Q, et al. Chemical kinetic characteristics of methane/air mixture explosion and its affecting factors [J]. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 2017, 49: 675–682. DOI: 10.1016/j.jlpi.2017.02.021.
- [24] CHU H Q, XIANG L K, MENG S, et al. Effects of N<sub>2</sub> dilution on laminar burning velocity, combustion characteristics and NO<sub>x</sub> emissions of rich CH<sub>4</sub>-air premixed flames [J]. *Fuel*, 2021, 284: 119017. DOI: 10.1016/j.fuel.2020.119017.
- [25] LI J, HUANG H Y, KOBAYASHI N, et al. Numerical study on effect of oxygen content in combustion air on ammonia combustion [J]. *Energy*, 2015, 93: 2053–2068. DOI: 10.1016/j.energy.2015.10.060.
- [26] ZHENG L G, DU D P, WANG J, et al. Study on premixed flame dynamics of CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> mixtures [J]. *Fuel*, 2019, 256: 115913. DOI: 10.1016/j.fuel.2019.115913.
- [27] 李成兵. N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 抑制甲烷爆炸化学动力学机理分析 [J]. *中国安全科学学报*, 2010, 20(8): 88–92. DOI: 10.3969/j.issn.1003-3033.2010.08.014.
- LI C B. Chemical kinetics mechanism analysis of N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O suppressing methane explosion [J]. *China Safety Science Journal*, 2010, 20(8): 88–92. DOI: 10.3969/j.issn.1003-3033.2010.08.014.
- [28] 高娜, 张延松, 胡毅亭. 温度、压力对甲烷-空气混合物爆炸极限耦合影响的实验研究 [J]. *爆炸与冲击*, 2017, 37(3): 453–458. DOI: 10.11883/1001-1455(2017)03-0453-06.
- GAO N, ZHANG Y S, HU Y T. Experimental study on methane-air mixtures explosion limits at normal and elevated initial temperatures and pressures [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2017, 37(3): 453–458. DOI: 10.11883/1001-1455(2017)03-0453-06.
- [29] CLANET C, SEARBY G. On the tulip flame phenomenon [J]. *Combustion and Flame*, 1996, 105(1/2): 225–238. DOI: 10.1016/0010-2180(95)00195-6.
- [30] SHEN X B, ZHANG C, XIU G, et al. Evolution of premixed stoichiometric hydrogen/air flame in a closed duct [J]. *Energy*, 2019, 176: 265–271. DOI: 10.1016/j.energy.2019.03.193.
- [31] XIAO H H, SHEN X B, SUN J H. Experimental study and three-dimensional simulation of premixed hydrogen/air flame propagation in a closed duct [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2012, 37(15): 11466–11473. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2012.05.006.

- [32] XIAO H H, HOUIM R W, ORAN E S. Formation and evolution of distorted tulip flames [J]. *Combustion and Flame*, 2015, 162(11): 4084–4101. DOI: 10.1016/j.combustflame.2015.08.020.
- [33] PONIZY B, CLAVERIE A, VEYSSIÈRE B. Tulip flame: the mechanism of flame front inversion [J]. *Combustion and Flame*, 2014, 161(12): 3051–3062. DOI: 10.1016/j.combustflame.2014.06.001.
- [34] GONZALEZ M, BORGHI R, SAOUAB A. Interaction of a flame front with its self-generated flow in an enclosure: the tulip flame phenomenon [J]. *Combustion and Flame*, 1992, 88(2): 201–220. DOI: 10.1016/0010-2180(92)90052-Q.
- [35] DUNN-RANKIN D, SAWYER R F. Tulip flames: changes in shape of premixed flames propagating in closed tubes [J]. *Experiments in Fluids*, 1998, 24(2): 130–140. DOI: 10.1007/s003480050160.
- [36] 李艳超, 毕明树, 高伟. 耦合火焰不稳定的爆炸超压预测 [J]. *爆炸与冲击*, 2020, 40(1): 012101. DOI: 10.11883/bzycj-2019-0004.
- LI Y C, BI M S, GAO W. Explosion pressure prediction considering the flame instabilities [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2020, 40(1): 012101. DOI: 10.11883/bzycj-2019-0004.
- [37] 吕启申, 臧小为, 潘旭海, 等. 温度和浓度对甲醇喷雾爆炸特性参数的影响 [J]. *爆炸与冲击*, 2019, 39(9): 095402. DOI: 10.11883/bzycj-2018-0121.
- LYU Q S, ZANG X W, PAN X H, et al. Effects of temperature and concentration on characteristic parameters of methanol explosion [J]. *Explosion and Shock Waves*, 2019, 39(9): 095402. DOI: 10.11883/bzycj-2018-0121.
- [38] HERNANDEZ F, ABDEL-JAWAD M, HAO H. Simplified multiple equations' inverse problem of vented vessels subjected to internal gas explosions [J]. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 2015, 35: 65–79. DOI: 10.1016/j.jlp.2015.03.007.
- [39] BYCHKOV V, AKKERMAN V, FRU G, et al. Flame acceleration in the early stages of burning in tubes [J]. *Combustion and Flame*, 2007, 150(4): 263–276. DOI: 10.1016/j.combustflame.2007.01.004.
- [40] WEI S M, YU M G, PEI B, et al. Suppression of CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O on the cellular instability of premixed methane/air flame [J]. *Fuel*, 2020, 264: 116862. DOI: 10.1016/j.fuel.2019.116862.
- [41] XIANG L K, CHU H Q, REN F, et al. Numerical analysis of the effect of CO<sub>2</sub> on combustion characteristics of laminar premixed methane/air flames [J]. *Journal of the Energy Institute*, 2019, 92(5): 1487–1501. DOI: 10.1016/j.joei.2018.06.018.

(责任编辑 张凌云)