

组分变化对甲烷氧化特性影响

郑玮琳¹, 庞历瑶¹, 张世杰¹, 谢凡², 曾文¹

(1. 沈阳航空航天大学 航空发动机学院, 沈阳 110136;

2. 中国航空工业集团有限公司 沈阳飞机设计研究所, 沈阳 110035)

摘 要: 在射流搅拌反应器实验平台上针对温度范围 850~1300 K、常压条件下的甲烷氧化反应过程进行了实验研究, 采用气相色谱仪测量了变组分条件下(当量比范围 0.2~2、氧气体积分数 2%~8%、二氧化碳体积分数 0~20%、水蒸气体积分数 0~20%)主要反应物(CH_4 、 O_2)、主要中间组分(C_2H_6 、 C_2H_4 、 C_2H_2 、 H_2)和主要污染物(CO 、 CO_2)的摩尔分数, 并分析了主要反应物、中间组分以及污染物生成的影响因素和影响规律。研究表明, 随着当量比和含氧量的增加, 主要中间组分的摩尔分数升高; 二氧化碳体积分数的增加对中间产物的生成有微弱的抑制作用, 却使得污染物浓度大大增加; 水蒸气体积分数的增加导致氢气生成量显著增加, 同时促进一氧化碳的生成, 而对二氧化碳的生成影响很小。

关键词: 甲烷; 组分变化; 中间产物; 污染物生成; 射流搅拌反应器

中图分类号: V31; TK16

文献标志码: A

Effect of composition variance on methane oxidation characteristics

ZHENG Weilin¹, PANG Liyao¹, ZHANG Shijie¹, XIE Fan², ZENG Wen¹

(1. School of Aero-engine, Shenyang Aerospace University, Shenyang 110136, China;

2. Shenyang Aircraft Design and Research Institute,

Aviation Industry Corporation of China, Limited, Shenyang 110035, China)

Abstract: The methane oxidation within the temperature range of 850—1300 K and atmospheric pressure was studied in a jet stirred reactor. The major reactants (CH_4 , O_2), intermediate components (C_2H_6 , C_2H_4 , C_2H_2 , H) and pollutants (CO , CO_2) were measured by gas chromatography under the condition of equivalence ratio range of 0.2—2, oxygen content of 2%—8%, carbon dioxide content of 0—20%, water vapor content of 0—20%. The effects of various compositions on species distributions during methane oxidation were analyzed in detail. It was found that the concentration of intermediate components increased with the increase of equivalence ratio and oxygen content; the increase of carbon dioxide content had a weak inhibitory effect on the formation of intermediate products, but resulted in obvious rise of the concentration of pollutants; the increase of water vapor content led to significant increase of hydrogen production, and promoted the formation of carbon monoxide, but had little effect on the formation of carbon dioxide.

收稿日期: 2020-05-25

基金项目: 辽宁省博士科研启动基金(2019-BS-185)

作者简介: 郑玮琳(1989—), 女, 副教授、硕士生导师, 博士, 主要从事燃烧室流动与反应动力学研究。

通信作者: 曾文(1977—), 男, 教授、博士生导师, 博士, 主要从事航空发动机燃烧过程与排放物生成的数值研究。

E-mail: zengwen928@sohu.com

引用格式: 郑玮琳, 庞历瑶, 张世杰, 等. 组分变化对甲烷氧化特性影响[J]. 航空动力学报, 2021, 36(1): 15-24. ZHENG Weilin, PANG Liyao, ZHANG Shijie, et al. Effect of composition variance on methane oxidation characteristics[J]. Journal of Aerospace Power, 2021, 36(1): 15-24.

Key words: methane; composition variance; intermediate species; pollutant emission; jet stirred reactor

天然气输运方便、污染小,是目前燃气轮机的主要燃料。由于受环保法规的限制,燃气轮机的低排放燃烧技术成为了国内外市场的准入门槛。燃气轮机燃烧室内部化学反应流场非常复杂,使得在狭小的燃烧室空间内非均匀强湍流燃烧过程的污染物生成机理变得混沌、低排放燃烧组织变得困难。因此,需要开展污染物空间分布规律与生成机理的基础研究,为燃气轮机燃烧室的燃烧组织和污染物抑制提供可靠依据。

射流搅拌反应器广泛应用于碳氢燃料氧化过程中组分浓度变化规律的实验研究。目前国内学者已经对天然气^[1-4]、液化石油气^[5]、汽油^[6-8]、柴油^[9-12]、航空煤油^[13-14]、生物质燃料^[15-18]中主要成分、添加剂及多种组分混合物的中低温氧化特性展开了大量研究。Tan等^[1]在射流搅拌反应器中研究了天然气及其混合物($\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$, $\text{CH}_4/\text{C}_3\text{H}_8$, $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6/\text{C}_3\text{H}_8$)的氧化反应动力学特性,测量了温度范围为800~1240 K、压力范围为0.1~1 MPa、当量比范围为0.1~1.5条件下的反应物、中间组分和生成物的摩尔分数分布,用于详细反应动力学机理的验证。研究表明:纯甲烷的氧化反应是由甲烷与氧气的反应引起的,而在天然气中,甲烷的氧化反应则是由OH、H和O自由基引发的。在此基础上,Bakali等^[2]测量了压力为101.3 kPa、当量比范围为0.75~1.5、停留时间为0.14 s的天然气混合物($\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$)的氧化反应动力学特性,分析了当量比从贫燃变化到富燃状态下的各组分摩尔分数的变化规律。Dagaut等^[3]则针对天然气与氢气混合物,在温度范围为900~1450 K、压力为0.1 MPa条件下的射流搅拌反应器中,通过在线FTIR分析和离线GC-TCD/FID分析方法测量了氧化过程中反应物、稳定中间体和最终产物的摩尔分数分布。研究表明,氢气初始体积分数的增加有利于 HO_2 低温下自由基的形成,导致OH和 H_2O_2 摩尔分数增加,从而加速天然气中甲烷、乙烷和丙烷与OH自由基的反应,掺氢作用的影响在贫燃状态下更为显著。此外,Bahrini等^[4]采用射流搅拌反应器与近红外区域cw-CRDS(continuous wave-cavity ring-down spectroscopy)光谱技术测量了甲烷氧化过程中一些稳定物种(CH_4 、 H_2O 和 CH_2O)的摩尔分数分布。实验中温度范围为500~1300 K,停

留时间为1 s,压力为106.6 kPa,甲烷、氧气和氢气摩尔分数分别为6.3%、6.3%和87.4%。

分析上述研究现状可以发现,目前国内外有关甲烷氧化特性的研究已经得到了重视,部分研究成果对于指导燃烧室内的污染物生成机理分析具有一定的促进作用。考虑到天然气燃料低排放燃烧的技术方案通常采用主燃区贫燃预混燃烧的分级分区燃烧方式,燃烧室内污染物的生成、分布与演化不仅取决于燃料/空气的当量比,还和燃烧室内的组分分布息息相关。因此,本文旨在针对不同的当量比、氧气体积分数、燃烧产物的混气成分等物理参数开展甲烷氧化过程中主要中间组分与污染物生成特性的试验测试,为掌握燃气轮机燃烧室中典型污染物的生成反应路径及其抑制方法奠定理论基础。

1 实验方法

1.1 实验装置

射流搅拌反应器简图如图1所示,主要包括:燃料输入系统、加热系统、实验系统和检测系统。反应器为内径58 mm的石英玻璃球,球体中心有4个内径为0.3 mm的喷嘴。采用美国MKS(meter-kilogram-second)的质量流量计对混合气体的流量进行精确控制,流量最大不确定度为0.5%。反应器的预热区温度由德国Horst公司产的HT60温度控制仪控制,温度控制在900~1300 K范围内,误差在 ± 5 K。反应器的反应温度由位于反应器中心的K型热电偶测得,测量不确定度为 $\pm 0.4\%$ 。检测系统采用GC-MS(Agilent 7890B-5977A)和GC(Agilent 7890B)对产物进行了在线分析,配有热导检测器(TCD)和氢火焰离子化检测器(FID),测得物种摩尔分数的相对不确定度估计为 $\pm 10\%$ 。为确保实验的可靠性和重复性,需要对每个实验点的采样需要进行3次。本文中甲烷的氧化特性实验在850~1300 K的温度范围、常压条件下进行,停留时间设为2.0 s。

1.2 实验工况与验证

本文测量了不同组分变化条件下甲烷在低温氧化过程中的主要中间组分(C_2H_6 、 C_2H_4 、 C_2H_2 、 H_2)和主要污染物(CO 、 CO_2)的摩尔分数,具体工

况如表 1 所示。

实验前对压力为 106.6 kPa、当量比为 2.0、燃料体积分数为 6.3% 条件下甲烷在中低温氧化

过程中的物种摩尔分数进行了测试。对比 Bahri-
ni 等^[4]的实验结果吻合较好,验证了所采用的实
验方法的准确性,如图 2~图 4 所示。

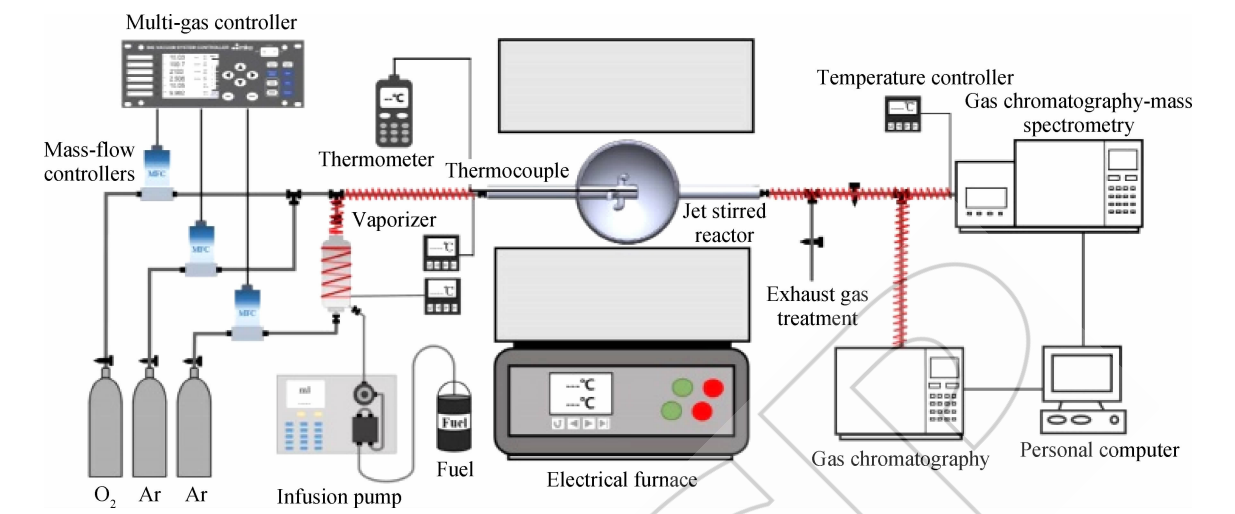


图 1 射流搅拌反应器简图

Fig. 1 Schematic diagram of jet stirred reactor

表 1 甲烷氧化实验条件工况

Table 1 Experimental conditions of methane oxidation

序号	当量比	体积分数/%					序号	当量比	体积分数/%				
		CH ₄	O ₂	N ₂	CO ₂	H ₂ O			CH ₄	O ₂	N ₂	CO ₂	H ₂ O
1	0.2	2	20	78	0	0	6	1.0	2	4	84	0	10
2	0.5	2	8	90	0	0	7	1.0	2	4	74	20	0
3	1.0	1	2	97	0	0	8	1.0	2	4	74	0	20
4	1.0	2	4	94	0	0	9	1.0	4	8	88	0	0
5	1.0	2	4	84	10	0	10	2.0	2	2	96	0	0

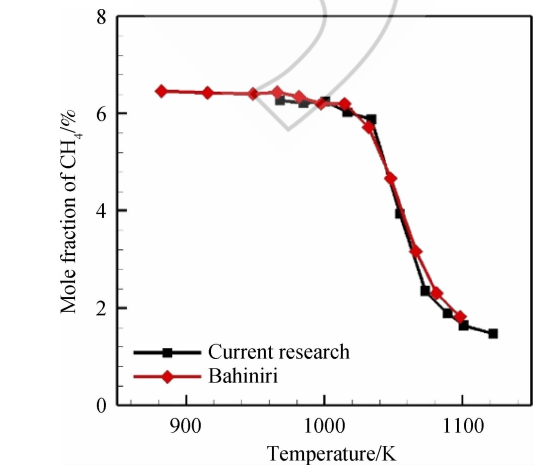


图 2 甲烷氧化实验中 CH₄ 的摩尔分数图

Fig. 2 Mole fraction of CH₄ during methane oxidation

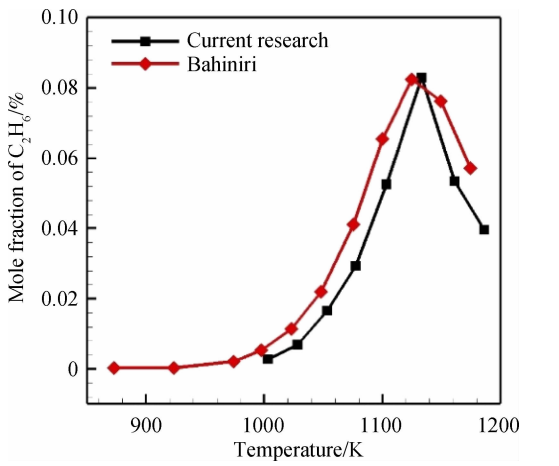


图 3 甲烷氧化实验中 C₂H₆ 的摩尔分数图

Fig. 3 Mole fraction of C₂H₆ during methane oxidation

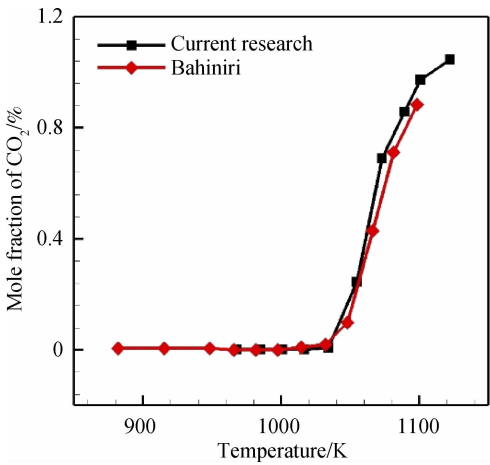


图 4 甲烷氧化实验中 CO₂ 的摩尔分数图
Fig. 4 Mole fraction of CO₂ during methane oxidation

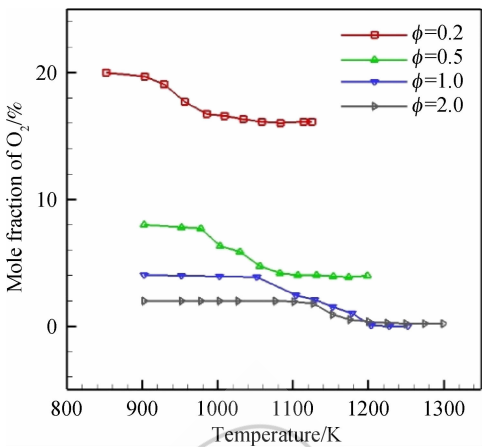


图 6 不同当量比下 O₂ 的摩尔分数图
Fig. 6 Mole fraction of O₂ under different equivalence ratio

2 结果分析

2.1 当量比的影响

工况 1、2、4、10 中当量比从贫燃变化到富燃状态($\phi=0.2, 0.5, 1, 2$),其中 CH₄ 的摩尔分数一直保持 2% 不变。图 5、图 6 分别给出了不同当量比条件下 CH₄ 和 O₂ 的摩尔分数随温度的变化曲线。从图中可以看出,当量比对 CH₄ 氧化反应的起始温度和剧烈程度均有较大的影响。当 $\phi=0.2$ 时,CH₄ 在 852 K 时开始发生氧化反应,温度升至 903 K 时 CH₄ 的分解速度加快,985 K 时大部分 CH₄ 已经转化为中间体和最终产物,并在 1125 K 时消耗完毕;当 $\phi=0.5$ 时,CH₄ 在 902 K 时开始发生氧化反应,907~1 082 K 区间内为剧烈反应区,1 153 K 时完全氧化;当 $\phi=1.0$ 时,CH₄ 在 1002 K 时开始发生氧化反应,1 052~

1 203 K 范围内发生剧烈的氧化反应,1 227 K 时完全氧化;富燃情况下 $\phi=2.0$ 时,CH₄ 在 1027 K 左右开始发生氧化反应,继续加热至 1 126 K 时发生剧烈氧化反应,直至本实验的温度上限 1 300 K 时 CH₄ 仍未完全氧化。综上可得,当实验工况从贫燃逐渐变到富燃工况(即 $\phi=0.2\sim 2.0$),CH₄ 氧化反应的起始温度逐渐升高。这是由于含氧的自由基摩尔分数随当量比的增大而减少,且这些含氧自由基是 CH₄ 氧化反应的主要消耗因素。同时,随着当量比的增大,CH₄ 剧烈氧化反应区也向高温区域移动。此外,CH₄ 开始反应的温度低于 O₂ 摩尔分数明显变化的温度,这是因为 CH₄ 在一定温度下先发生单分子裂解反应生成自由基,之后自由基才开始消耗 O₂,CH₄ 剧烈氧化反应区对应的 O₂ 摩尔分数也迅速下降。

图 7~图 10 分别给出了不同当量比条件下

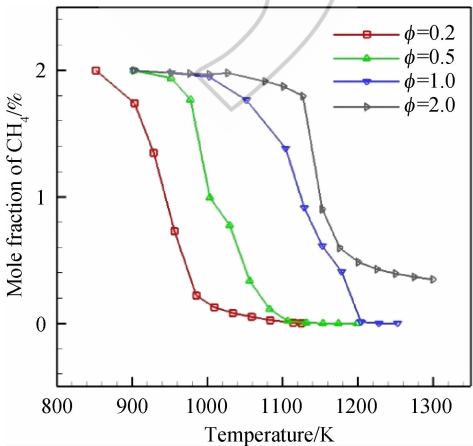


图 5 不同当量比下 CH₄ 的摩尔分数图
Fig. 5 Mole fraction of CH₄ under different equivalence ratios

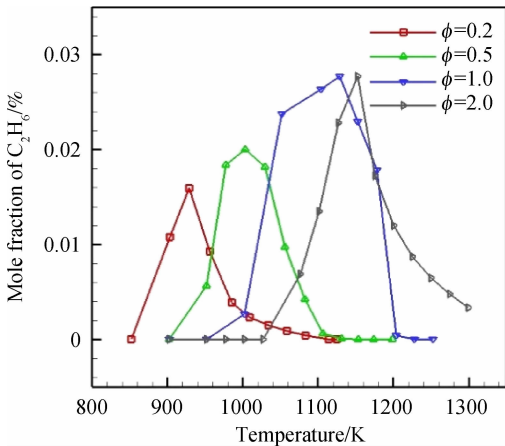


图 7 不同当量比下 C₂H₆ 的摩尔分数图
Fig. 7 Mole fraction of C₂H₆ under different equivalence ratios

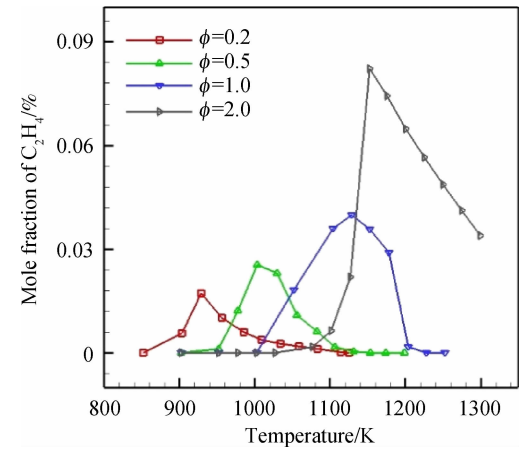


图 8 不同当量比下 C₂H₄ 的摩尔分数图
Fig. 8 Mole fraction of C₂H₄ under different equivalence ratios

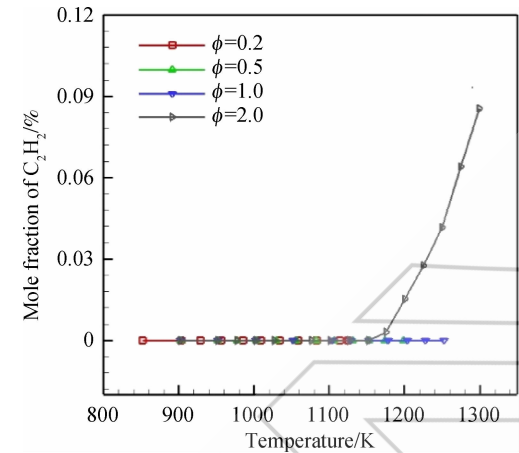


图 9 不同当量比下 C₂H₂ 的摩尔分数图
Fig. 9 Mole fraction of C₂H₂ under different equivalence ratios

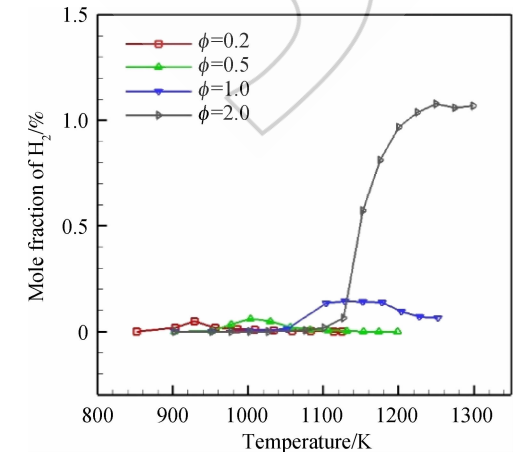


图 10 不同当量比下 H₂ 的摩尔分数图
Fig. 10 Mole fraction of H₂ under different equivalence ratios

C₂H₆、C₂H₄、C₂H₂、H₂ 的摩尔分数随温度的变化曲线。由图 7 和图 8 可以看出,随着当量比的增大,C₂H₆ 和 C₂H₄ 的摩尔分数都呈现出更高的峰值摩尔分数,且对应的峰值温度向高温区移动。不同之处在于,富燃条件下 C₂H₄ 的生成量显著增加,而 C₂H₆ 的生成量受当量比的影响相对较小,其摩尔分数峰值随着当量比的增加而略微增大。图 9 中仅在富燃条件下($\phi=2.0$)且温度达到 1077 K 以上时才会有大量 C₂H₂ 生成。图 10 中 H₂ 摩尔分数峰值随着当量比增大而升高,且在贫燃和富燃条件下 H₂ 的峰值摩尔分数相差很多倍。这是因为 H₂ 的主要生成来源为氢原子与燃料分子发生的脱氢反应,且上述反应在富燃条件下更加剧烈。

图 11、图 12 显示了不同当量比条件下 CO、CO₂ 的摩尔分数随温度的变化曲线。不同当量

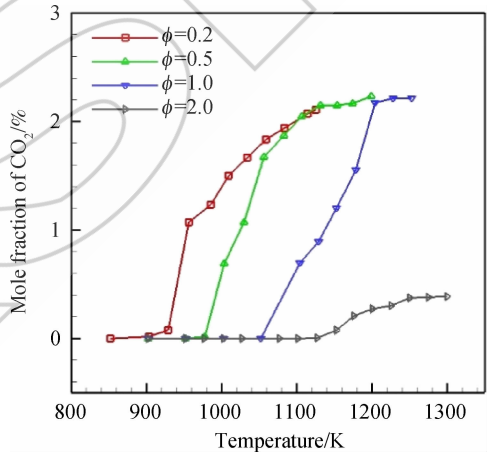


图 11 不同当量比下 CO₂ 的摩尔分数图
Fig. 11 Mole fraction of CO₂ under different equivalence ratios

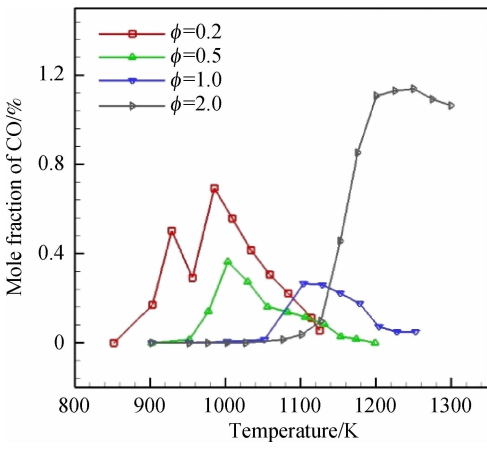


图 12 不同当量比下 CO 的摩尔分数图
Fig. 12 Mole fraction of CO under different equivalence ratios

比下 CO_2 的摩尔分数均随着温度的升高而增加。富燃条件下, CO 是主要的含氧产物, CO_2 生成较少; 而在贫燃条件下会生成大量的 CO_2 , CO 作为中间产物在生成后又很快的被消耗。这是由于在甲烷的氧化反应过程中, CO 的主要消耗途径是与 OH 自由基发生反应: $\text{CO} + \text{OH} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}$; 在富燃条件下, OH 的摩尔分数降低, 导致了 CO 的积累; 而在贫燃条件下, OH 自由基摩尔分数升高, CO 与 OH 自由基进行反应, 将被完全氧化成 CO_2 。

2.2 氧气体积分数的影响

工况 3、4、9 中改变氧气体积分数 2%、4%、8%, 调整对应的燃料和惰性气体体积分数以保持当量比为 1.0。图 13 给出了不同 O_2 体积分数 (φ_{O_2}) 下 CH_4 的摩尔分数随温度的变化曲线。从图中可以看出, O_2 体积分数对 CH_4 氧化反应的起始温度和剧烈程度均有较大的影响。随着 O_2 体积分数的增加, CH_4 的氧化反应起始温度和剧烈反应区的温度逐渐向低温区移动。图 14~图 16 分别给出了不同 O_2 体积分数下 C_2H_6 、 C_2H_4 、 H_2 的摩尔分数随温度的变化曲线。由图中可以看出, O_2 体积分数的增加会使甲烷在氧化反应过程中生成更多的主要中间组分 (C_2H_6 、 C_2H_4 、 H_2)。只有当 O_2 体积分数为 8%、温度达到 1159 K 以上时才有大量 C_2H_2 生成。图 17、图 18 显示了不同 O_2 体积分数下 CO 、 CO_2 的摩尔分数随温度的变化曲线。由图中可以看出, CO_2 的摩尔分数随着温度的升高不断增加, CO 的摩尔分数先随温度的升高而增大, 直至摩尔分数峰值后逐渐降低。随着含氧量的增加, CO 、 CO_2 的生成量均有所增加。

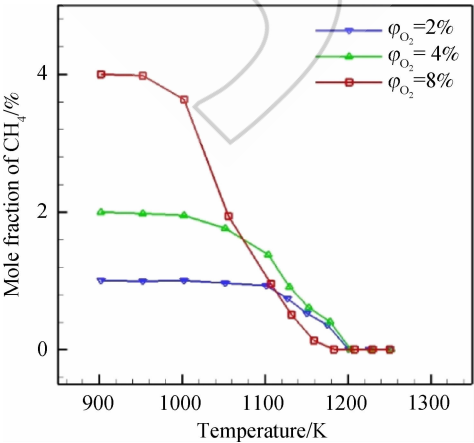


图 13 不同氧气体积分数下 CH_4 的摩尔分数图
Fig. 13 Mole fraction of CH_4 under different oxygen volume fractions

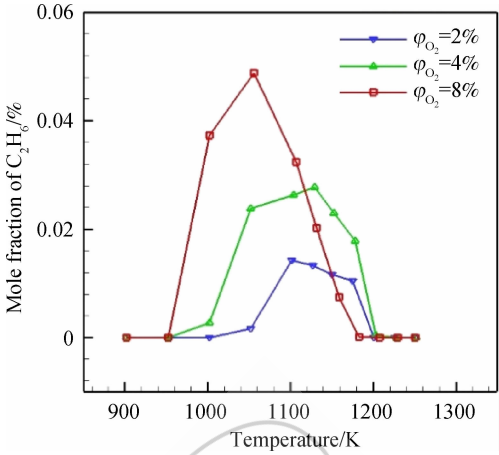


图 14 不同氧气体积分数下 C_2H_6 的摩尔分数图
Fig. 14 Mole fraction of C_2H_6 under different oxygen volume fractions

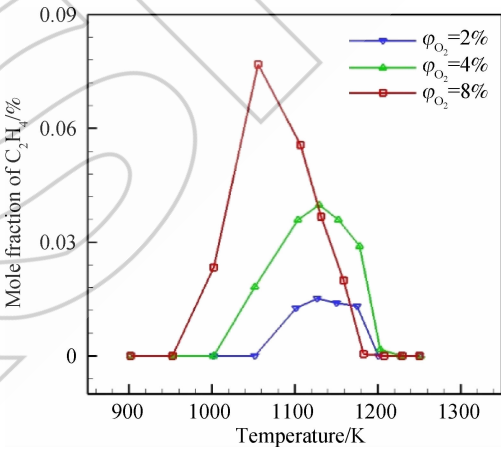


图 15 不同氧气体积分数下 C_2H_4 的摩尔分数图
Fig. 15 Mole fraction of C_2H_4 under different oxygen volume fractions

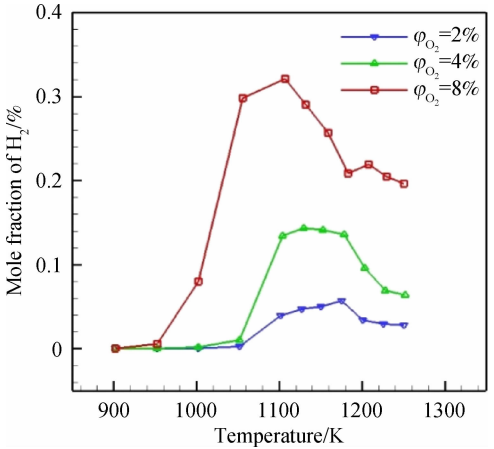


图 16 不同氧气体积分数下 H_2 的摩尔分数图
Fig. 16 Mole fraction of H_2 under different oxygen volume fractions

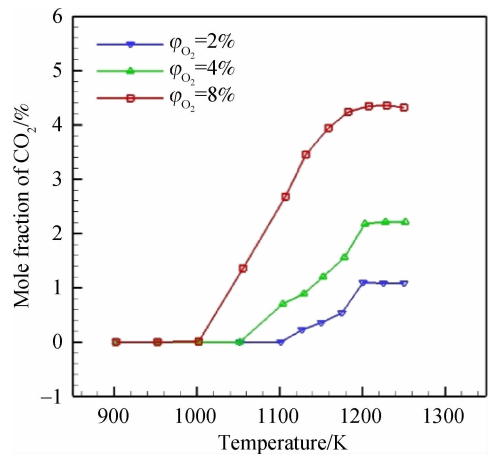


图 17 不同氧气体积分数下 CO₂ 的摩尔分数图
Fig. 17 Mole fraction of CO₂ under different oxygen volume fractions

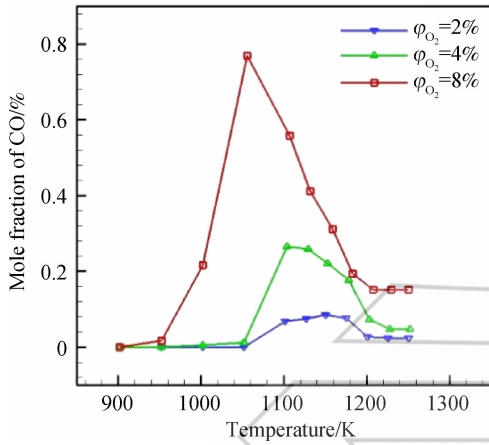


图 18 不同氧气体积分数下 CO 的摩尔分数图
Fig. 18 Mole fraction of CO under different oxygen volume fractions

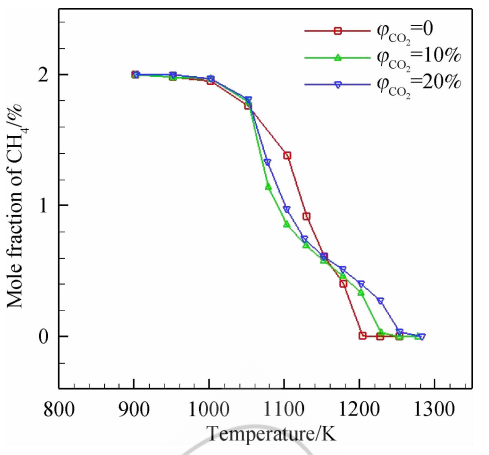


图 19 不同二氧化碳体积分数下 CH₄ 的摩尔分数图
Fig. 19 Mole fraction of CH₄ under different carbon dioxide volume fractions

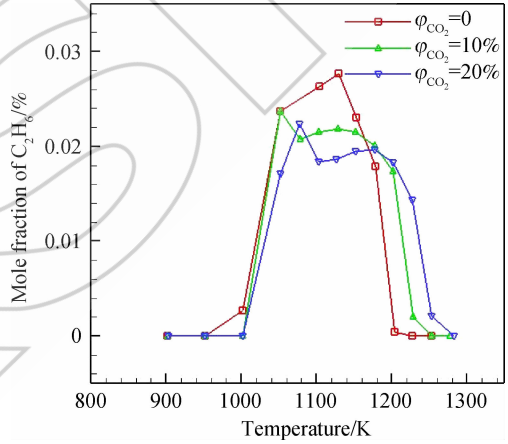


图 20 不同二氧化碳体积分数下 C₂H₆ 的摩尔分数图
Fig. 20 Mole fraction of C₂H₆ under different carbon dioxide volume fractions

2.3 二氧化碳体积分数的影响

工况 4、5、7 中改变二氧化碳体积分数 0%、10%、20%，保持燃料和氧气体积分数不变、当量比为 1。图 19 给出了不同 CO₂ 体积分数 (φ_{CO_2}) 下 CH₄ 的摩尔分数随温度的变化曲线。从图中可以看出，CO₂ 体积分数的增加对 CH₄ 氧化反应的起始温度和剧烈反应区的温度基本没有影响。图 20~图 22 分别给出了不同 CO₂ 体积分数下 C₂H₆、C₂H₄、H₂ 的摩尔分数随温度的变化曲线。由图中可以看出，随着 CO₂ 体积分数的增加，C₂H₆、C₂H₄ 和 H₂ 的摩尔分数峰值逐渐降低，可见 CO₂ 体积分数的增加对中间产物的生成都有抑制作用。只有在 CO₂ 体积分数为 10%、20% 且温度分别达到 1202、1227 K 以上时才有大量 C₂H₂ 生成。图 23、图 24 显示了不同 CO₂ 体积分数下 CO、CO₂ 的摩尔分数随温

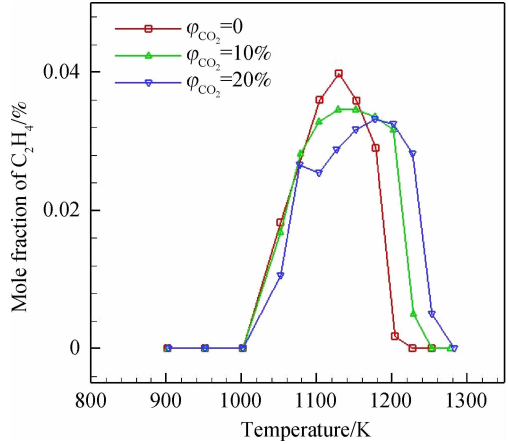


图 21 不同二氧化碳体积分数下 C₂H₄ 的摩尔分数图
Fig. 21 Mole fraction of C₂H₄ under different carbon dioxide volume fractions

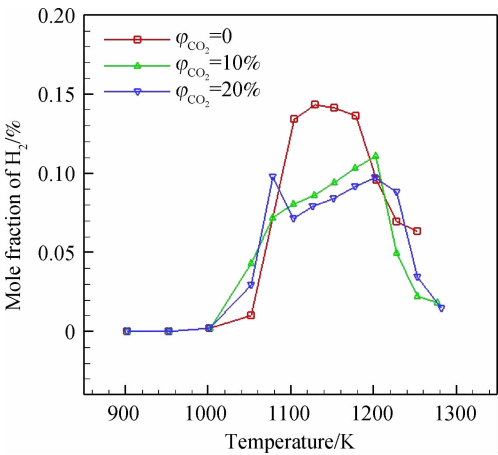


图 22 不同二氧化碳体积分数下 H₂ 的摩尔分数图
Fig. 22 Mole fraction of H₂ under different carbon dioxide volume fractions

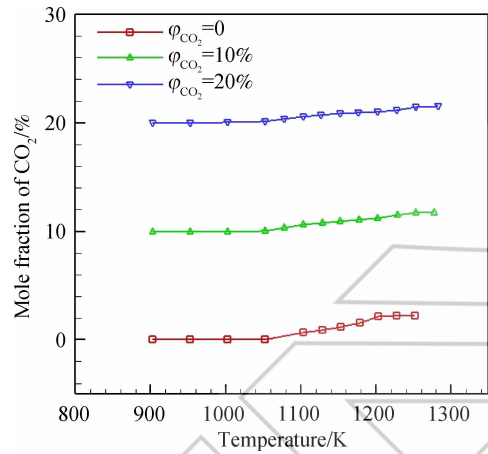


图 23 不同二氧化碳体积分数下 CO₂ 的摩尔分数图
Fig. 23 Mole fraction of CO₂ under different carbon dioxide volume fractions

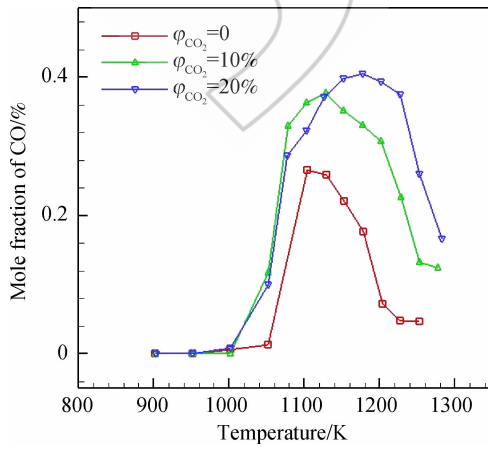


图 24 不同二氧化碳体积分数下 CO 的摩尔分数图
Fig. 24 Mole fraction of CO under different carbon dioxide volume fractions

度的变化曲线。由图中可以看出,随着 CO₂ 体积分数的增加,产物中 CO₂ 的摩尔分数增加比率基本等于反应物中 CO₂ 体积分数的增加比率。同时,CO 的摩尔分数峰值也随着 CO₂ 体积分数的增加而增大,因此 CO₂ 体积分数的增加会促进 CO 的生成。

2.4 水蒸气体积分数的影响

工况 4、6、8 中改变水蒸气体积分数 0%、10%、20%,保持燃料和氧气体积分数不变、当量比为 1。图 25 给出了不同 H₂O 体积分数(φ_{H_2O})下 CH₄ 的摩尔分数随温度变化曲线。从图中可以看出,H₂O 体积分数的增加对 CH₄ 氧化反应的起始温度和剧烈反应区温度基本没有影响。图 26~图 28 分别给出了不同 H₂O 体积分数下 C₂H₆、C₂H₄、H₂ 的摩尔分数随温度的变化曲线。由图中可以看出,随着 H₂O 体积分数的增加,C₂H₆、C₂H₄ 的摩尔分数峰值均减小且变化幅度相对较小,而 H₂ 的摩尔分数峰值显著增加。只有在 H₂O 体积分数为 10%、20%且温度范围分别在1152~1227 K、1152~1252 K 内才有大量 C₂H₂ 产生,说明 H₂O 体积分数的增加将促进 C₂H₂ 的生成。图 29、图 30 显示了不同 H₂O 体积分数下 CO、CO₂ 的摩尔分数随温度的变化曲线。由图中可以看出,CO₂ 的摩尔分数随着温度的升高而不断增大,不同 H₂O 体积分数下的 CO₂ 的摩尔分数变化不大,说明 H₂O 体积分数对 CO₂ 的生成影响很小;CO 的摩尔分数峰值随着 H₂O 体积分数的增加而增大,因此 H₂O 体积分数的增加也会促进 CO 的生成。

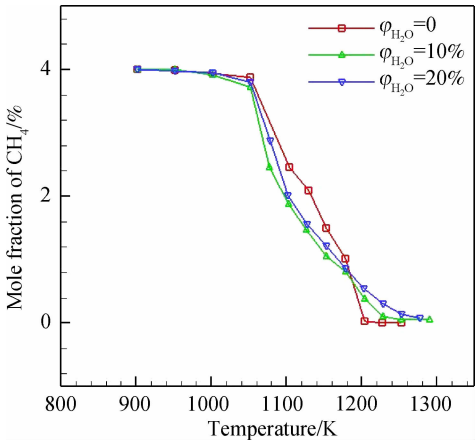


图 25 不同水蒸气体积分数下 CH₄ 的摩尔分数图
Fig. 25 Mole fraction of CH₄ under different water vapor volume fractions

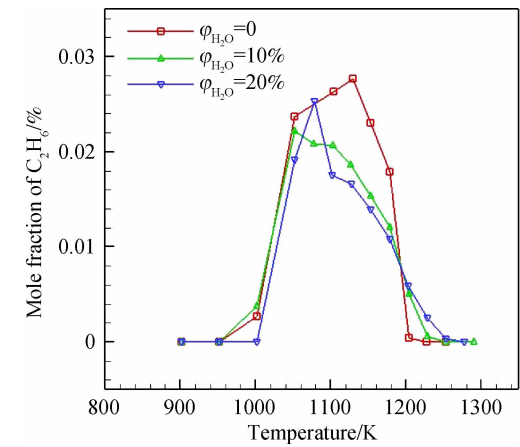


图 26 不同水蒸气体积分数下 C_2H_6 的摩尔分数图
Fig. 26 Mole fraction of C_2H_6 under different water vapor volume fractions

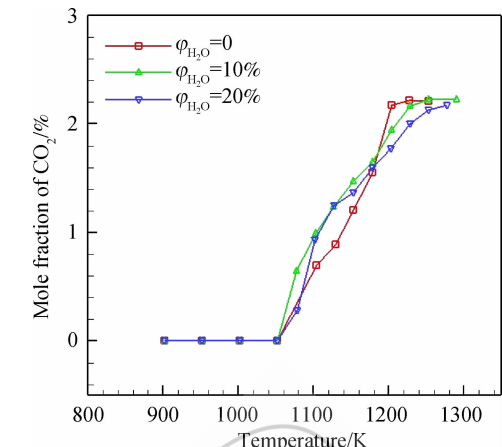


图 29 不同水蒸气体积分数下 CO_2 的摩尔分数图
Fig. 29 Mole fraction of CO_2 under different water vapor volume fractions

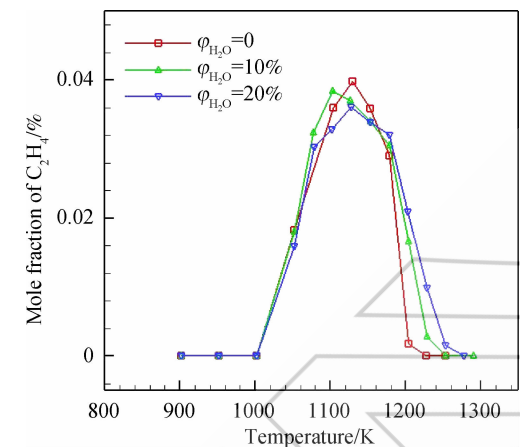


图 27 不同水蒸气体积分数下 C_2H_4 的摩尔分数图
Fig. 27 Mole fraction of C_2H_4 under different water vapor volume fractions

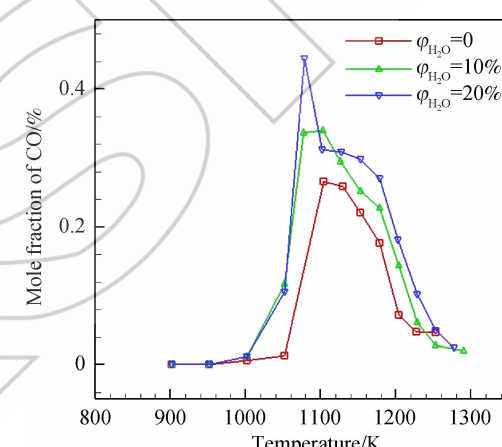


图 30 不同水蒸气体积分数下 CO 的摩尔分数图
Fig. 30 Mole fraction of CO under different water vapor volume fractions

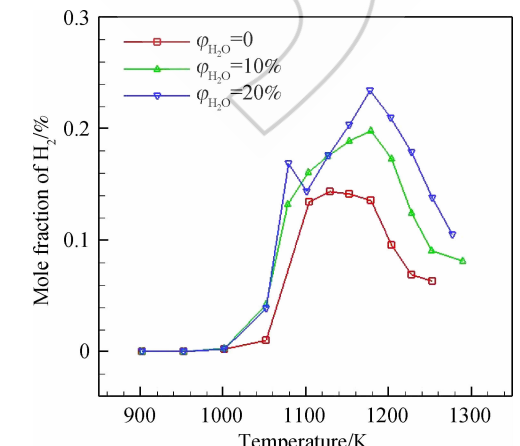


图 28 不同水蒸气体积分数下 H_2 的摩尔分数图
Fig. 28 Mole fraction of H_2 under different water vapor volume fractions

3 结 论

本文利用射流搅拌反应器装置开展了温度范围 850~1300 K、常压条件下甲烷中低温氧化过程的实验测试,采用气相色谱仪获得了主要反应物(CH_4 、 O_2)、主要中间组分(C_2H_6 、 C_2H_4 、 C_2H_2 、 H_2)和主要污染物(CO 、 CO_2)的摩尔分数分布,系统研究了当量比、含氧量以及二氧化碳、水蒸气体积分数对主要中间组分与污染物生成特性的影响规律。主要结论如下:

1) CH_4 氧化反应的起始温度和剧烈反应区的温度均随当量比增大而升高;随着当量比的增大, C_2H_6 、 C_2H_4 、 H_2 的摩尔分数峰值升高;富燃条件下 CH_4 氧化反应的主要产物为 CO ,而在贫燃条件下 CH_4 氧化反应会生成大量的 CO_2 。

2) CH_4 氧化反应的起始温度和剧烈反应区的温度随着 O_2 体积分数的增加逐渐向低温区移动;随含氧量的增加, C_2H_6 、 C_2H_4 、 H_2 的摩尔分数峰值升高, CO 、 CO_2 的生成量均有所增加。

3) CO_2 体积分数的增加对 CH_4 氧化反应的起始温度和剧烈反应区的温度影响很小; CO_2 体积分数的增加对中间产物 C_2H_6 、 C_2H_4 、 H_2 的生成有微弱的抑制作用,却使得污染物 CO 、 CO_2 的摩尔分数大大增加。

4) H_2O 体积分数的增加对 CH_4 氧化反应的起始温度和剧烈反应区的温度影响很小;随着 H_2O 体积分数的增加, C_2H_6 、 C_2H_4 的摩尔分数峰值略微减少,而 H_2 摩尔分数峰值显著增加; H_2O 体积分数的增加会促进 CO 的生成,而对 CO_2 的生成影响很小。

参考文献:

- [1] TAN Y, DAGAUT P, CATHONNET M, et al. Natural gas and blends oxidation and ignition: experiments and modeling[J]. Symposium (International) on Combustion, 1994, 25(1): 1563-1569.
- [2] BAKALI A E, DAGAUT P, PILLIER L, et al. Experimental and modeling study of the oxidation of natural gas in a premixed flame, shock tube, and jet-stirred reactor[J]. Combustion and Flame, 2004, 137(1): 109-128.
- [3] DAGAUT P, NICOLLE A. Experimental and detailed kinetic modeling study of hydrogen-enriched natural gas blend oxidation over extended temperature and equivalence ratio ranges[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2005, 30(2): 2631-2638.
- [4] BAHIRINI C, HERBINET O, GLAUDE P A, et al. Detection of some stable species during the oxidation of methane by coupling a jet-stirred reactor (JSR) to cw-CRDS[J]. Chemical Physics Letters, 2012, 534: 1-7.
- [5] BURKE S M, METCALFE W, HERBINET O, et al. An experimental and modeling study of propene oxidation: Part 1 speciation measurements in jet-stirred and flow reactors[J]. Combustion and Flame, 2014, 161(11): 2765-2784.
- [6] CHEN B, WANG Z, WANG J Y, et al. Exploring gasoline oxidation chemistry in jet stirred reactors[J]. Fuel, 2019, 236: 1282-1292.
- [7] YIN G, GAO Z, HU E, et al. Comprehensive experimental and kinetic study of 2, 4, 4-trimethyl-1-pentene oxidation[J]. Combustion and Flame, 2019, 208: 246-261.
- [8] YANG M, GAO Z, TANG C, et al. Nitromethane pyrolysis and oxidation in a jet-stirred reactor: experimental measurements, kinetic model validation and interpretation[J]. Fuel, 2020, 263: 116491. 1-116491. 11.
- [9] DAGAUT P, BOETTNER J C, CATHONNET M. Chemical kinetic study of dimethylether oxidation in a jet stirred reactor from 1 to 10 atm: experiments and kinetic modeling[J]. Symposium (International) on Combustion, 1996, 26(1): 627-632.
- [10] BATTIN-LECLERC F, FOURNET R, GLAUDE P A, et al. Modeling of the gas-phase oxidation of *n*-decane from 550 to 1600 K[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2000, 28: 1597-1605.
- [11] GAO Z, HU E, XU Z, et al. Low to intermediate temperature oxidation studies of dimethoxymethane/*n*-heptane blends in a jet-stirred reactor[J]. Combustion and Flame, 2019, 207: 20-35.
- [12] ZOU J B, LI W, YE L L, et al. Exploring the low-temperature oxidation chemistry of cyclohexane in a jet-stirred reactor: an experimental and kinetic modeling study[J]. Chinese Journal of Chemical Physics, 2018, 31(4): 537-546.
- [13] DAGAUT P, GAILL S. Chemical kinetic study of the effect of a biofuel additive on jet-A1 combustion[J]. Journal of Chemical Physics, 2007, 111: 3992-4000.
- [14] LIU Y X, DAN Y, TIAN D X, et al. An experimental and modeling study of oxidation of 1, 2, 4-trimethylcyclohexane with JSR[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2019, 37(1): 437-444.
- [15] GALMICHE B, TOGBE C, DAGAUT P, et al. Experimental and detailed kinetic modeling study of the oxidation of 1-propanol in a pressurized jet-stirred reactor (JSR) and a combustion bomb[J]. Energy and Fuels, 2011, 25: 2013-2021.
- [16] VELOO P S, DAGAUT P, TOGBE C, et al. Jet-stirred reactor and flame studies of propanal oxidation[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2013, 34(1): 599-606.
- [17] SERINYEL Z, TOGBÉ C, ZARAS A, et al. Kinetics of oxidation of cyclohexanone in a jet-stirred reactor: experimental and modeling[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2015, 35(1): 507-514.
- [18] LIAO H D, TAO T, SUN W Y, et al. Investigation of the low-temperature oxidation of *n*-butanal in a jet-stirred reactor[J]. Proceedings of the Combustion Institute, 2019, 37(1): 453-460.

(编辑:李岩梅、张雪)