Effets de l'enrichissement en oxygène sur une flamme turbulente non-prémélangée, méthane-air, stabilisée par un swirl

N. MERLO^a, T. BOUSHAKI^{a, b}, C. CHAUVEAU^a, S. DE PERSIS^{a,c}, L. PILLIER^a, B. SARH^{a, b}, I. GÖKALP^a

a. ICARE CNRS, 1C, Avenue de la Recherche Scientifique, 45071 Orléans Cedex 2, France
b. Université d'Orléans, IUT, GTE – 45067 Orléans cedex 2, France
c. Université d'Orléans, Faculté des Sciences – 45067 Orléans cedex 2, France

Résumé :

Ce travail présente les effets de l'enrichissement en oxygène sur le comportement d'une flamme nonprémélangée méthane-air dans un brûleur coaxial à swirl. L'étude s'inscrit dans le cadre du captage du CO_2 suite à sa concentration dans les fumées par l'ajout de l'oxygène à l'air. L'étude porte plus particulièrement sur la stabilité de la flamme et les émissions des polluants tels que les NO_x , le CO_2 , et le CO. Les expériences sont menées dans une chambre de combustion cylindrique d'une puissance de 25 kW sur un brûleur constitué de deux tubes concentriques avec un swirl placé dans la partie annulaire mettant en rotation l'oxydant. Des expériences de chimiluminescence du radical OH* sont menées pour décrire la structure et la stabilité de la flamme. Les mesures sont effectuées pour une concentration en oxygène qui varie de 0 à 30 % en volume, un nombre de swirl de 0,8 et 1,4 et une richesse globale de 0,8 et 0,9. Les hauteurs d'accrochage, les fluctuations de la base de la flamme, et les longueurs de flamme sont déterminées en fonction de ces paramètres. Les résultats montrent que l'ajout de l'oxygène améliore la stabilité de flamme, augmente le taux de CO_2 , décroit la formation de CO, mais favorise la formation des NO_x .

Abstract :

The present paper describes the effects of oxygen enrichment on flame stability and pollutant emissions for turbulent non-premixed swirling flames. The study is motivated by CO_2 capture applications following the increase of CO_2 concentration by the O_2 addition. The experiments are conducted in a 25 kW cylindrical combustion chamber, on a burner of two concentric tubes with a swirl placed in annular part for air or oxygen-air. The pollutant emissions as NO_x , CO_2 and CO are measured using gas analysers and a sampling probe with a heated sample line transfer. OH chemiluminescence experiments are conducted to investigate the structure and the stability of flames. The measurements were done for oxygen concentrations ranging from 21 % to 30 % by volume, with swirl numbers of 0.8 and 1.4, and with global equivalence ratios of 0.8 and 0.9. Flame lift-off heights, fluctuations of flame base and flame lengths are determined. Results show that the oxygen addition improves the flame stability, increases the CO_2 rate, decreases the CO formation and promotes the NO_x formation.

Mots clés : flamme turbulente, émissions polluantes, stabilité de flamme, flamme swirlée, enrichissement en oxygène.

1 Introduction

L'enrichissement en oxygène fait référence à des concentrations en oxygène qui varient de 21 % à 90 % [1]; au-delà de 90% d'O₂, il s'agit de l'oxycombustion. Une des applications les plus prometteuses de l'enrichissement en oxygène consiste à concentrer les fumées en CO_2 afin d'améliorer l'efficacité des procédés de captage comme l'ont montré Favre et al. [2]. Un des effets de la combustion à l'air enrichi en oxygène est l'augmentation de la température de flamme ce qui favorise le transfert thermique par rayonnement. Wu et al. [3] ont observé une diminution de 26 % de la consommation de combustible lorsque l'enrichissement en oxygène varie de 21 à 30 % en maintenant une température constante de 1220°C dans le four. Zhou et al. [4] ont constaté que l'enrichissement en oxygène favorise la formation des NO_x notamment

par la voie thermique. Afin de réduire la formation des NO_x , la combustion avec étagement d'air est employée afin de contrôler le mélange combustible-air. Cozzi et al. [5] ont comparé une injection radiale et axiale de combustible dans de l'air secondaire. Ils ont conclu que l'injection radiale permet un mélange centrifuge plus rapide que dans le cas d'une injection axiale. Zhen et al. [6] ont étudié récemment les caractéristiques d'une flamme de diffusion inverse stabilisée par un swirl et enrichie en oxygène.

Ce travail présente les résultats expérimentaux obtenus pour une combustion du méthane à l'air et à l'air enrichi en oxygène dans le cas des flammes turbulentes non-prémélangées stabilisées par un swirl. Après une description du dispositif expérimental et des techniques de mesure utilisées, les influences de l'enrichissement en oxygène, de l'intensité du swirl et de la richesse globale sur les caractéristiques des flammes enrichies en oxygène sont présentées. Les émissions polluantes, les visualisations par chimiluminescence, et les évolutions des hauteurs d'accrochage et les longueurs de flammes sont analysées.

2 Dispositif expérimental

2.1 Brûleur, chambre de combustion et paramètres d'étude

Le brûleur étudié possède une configuration coaxiale. Comme le montre la figure 1, il est composé de deux tubes concentriques avec un swirl placé dans la partie annulaire dédiée au passage de l'oxydant. Le tube central délivre le méthane radialement à travers 8 trous répartis symétriquement à la périphérie du tube, juste au-dessous du plan de sortie du brûleur. Cette injection radiale du combustible est adoptée afin d'améliorer le mélange combustible-oxydant à la sortie du brûleur.



FIG. 1 – Brûleur à swirl coaxial



FIG. 2 – Chambre de combustion

La rotation de l'écoulement est caractérisée par le nombre de swirl, un nombre sans dimension, noté S_n. Plus ce nombre est important, plus l'intensité de la rotation de l'écoulement est importante. S_n est le rapport du flux de quantité de mouvement tangentiel sur le flux de quantité de mouvement axial. Dans le dispositif expérimental, un swirl composé de 8 pales a été conçu. L'inclinaison des pales induit une variation de l'intensité de rotation. En se basant sur cette configuration, un calcul géométrique permet de déterminer la valeur du nombre de swirl, S_n , en fonction de certains paramètres comme l'angle des pales, leur épaisseur et les rayons intérieur et extérieur du swirl [7]. Les expériences sont menées dans une chambre de combustion de puissance de 25 kW de forme cylindrique, de 1,2 m de hauteur et 0,3 m de diamètre (figure 2). La chambre est refroidie par une circulation d'eau à travers une double paroi. Elle dispose d'accès optiques permettant des mesures au sein de la flamme. Dans cette étude, un mélange d'air et d'oxygène est employé pour constituer l'air enrichi en oxygène. Les débits de combustible et d'oxydant et les fractions volumiques d'oxygène sont contrôlés individuellement par des débitmètres massiques thermiques (Brooks). Les mesures sont effectuées pour des concentrations en oxygène variant de 21 à 30 % en volume, avec un nombre de swirl S_n de 0,8 et 1,4 et une richesse globale Φ de 0,8 et 0,9 comme cela est indiqué dans les tables 1 et 2. V désigne le débit volumique en normaux litres par minute. Le débit de l'oxydant et la richesse globale sont maintenus constants lorsque l'enrichissement en oxygène augmente alors que le débit de méthane augmente.

	Fraction volumique $d'O_2(\%)$			
V(NL/min)	21	25	30	
CH ₄	20.4	24.3	29.1	
O ₂	0	12.0	28.0	
Air	243.0	231.0	215.0	

TAB. 2 – Conditions opératoires pour $\Phi=0.9$

	Fraction volumique d'O ₂ (%)		
V(NL/min)	21	25	30
CH_4	22.9	27.3	32.7
O_2	0	12.0	28
Air	243.0	231.0	215

2.2 Techniques de mesure

Les concentrations des NO_x, CO, CO₂, O₂ et SO₂ dans les gaz brûlés sont mesurées par un analyseur multigaz HORIBA PG250. Les NO_x (NO + NO₂) sont analysés par chimiluminescence, le CO, le CO₂ et le SO_2 sont mesurés via des détecteurs infrarouges non dispersifs et O_2 est détecté par paramagnétisme. Les produits de combustion sont échantillonnés par une sonde PSP4000-HCT, transportés via une ligne de transfert chauffée, ensuite passés dans un groupe froid (PSS5) pour éliminer la vapeur d'eau contenue dans les gaz brûlés avant d'être analysés ; les mesures de concentration sont effectuées sur fumées sèches. Le point de prélèvement des fumées est sur l'axe central de la chambre à 1 m de la sortie du brûleur. La technique de chimiluminescence OH* [7] est utilisée pour visualiser la zone de réaction et par conséquent mesurer les hauteurs d'accrochage et les longueurs de flamme. Les images de flamme ont été obtenues en collectant le signal instantané de chimiluminescence OH* à 306,4 nm à l'aide d'une caméra CCD intensifiée (PI-MAX Gen II). Un objectif 105-mm UV Nikkor (f/4.5) est utilisé. Le capteur de la caméra est constitué d'une matrice de taille 1024 x 1024 pixels et les images sont codées sur 16 bits en sortie. L'émission OH* a été filtrée à l'aide d'un filtre interférentiel 306BP20 (Omega Optical) centré à 306 nm avec une bande passante de 20 nm. Afin d'assurer une bonne représentativité statistique, 400 images instantanées de OH* sont collectées pour chaque cas d'étude. Un programme Matlab de traitement des images (seuillage, binarisation, filtrage et détection des contours) a été développé afin d'extraire les hauteurs d'accrochage et les longueurs de flamme. Le champ de mesure réel est un carré de 80 mm avec une résolution spatiale de 12 pixels/mm.

3 Résultats expérimentaux

3.1 Émissions polluantes

Les concentrations des produits de combustion tels que le CO₂, le CO et les NO_x sont analysées en fonction de l'enrichissement en oxygène, et d'autres paramètres comme la richesse du mélange et le nombre de swirl. La figure 3 montre les émissions de CO en fonction de l'enrichissement en oxygène pour les 2 richesses globales $\Phi = 0.8$ et $\Phi = 0.9$ et deux nombres de swirl $S_n = 0.8$ et $S_n = 1.4$. Le swirl est placé à une hauteur $H_{S_n} = 61 \text{ mm}$ de la sortie du brûleur. Les émissions de CO décroissent exponentiellement avec l'enrichissement en oxygène. L'augmentation de la richesse de 0.8 à 0.9 induit une décroissance également du taux de CO. L'augmentation du nombre de swirl de 0,8 à 1,4 entraîne une faible diminution de la concentration de CO. L'enrichissement en oxygène favorise la conversion du CO en CO2. L'équilibre CO/CO_2 est réalisé à haute température, mais le CO formé serait rapidement évacué par convection hors de cette zone si bien que la conversion n'est pas complète. L'augmentation de l'intensité du swirl tendrait à favoriser le mélange et à augmenter le temps de séjour au sein de la zone réactionnelle favorisant la conversion du CO en CO₂. L'efficacité de combustion C.E. est définie comme le rapport des concentrations [CO₂]/([CO₂]+[CO]) dans les fumées. L'enrichissement en oxygène augmente l'efficacité de combustion ; C.E. augmente de 96 % à 100 % lorsque l'enrichissement augmente de 21 % à 30 % pour les cas à richesse de 0,8 comme le montre la figure 5. Les émissions de CO_2 en fonction de l'enrichissement en oxygène sont présentées sur la figure 4 pour deux richesses 0.8 et 0.9 et deux nombres de swirl 0.8 et 1.4. Le taux de CO_2 augmente linéairement avec l'enrichissement en oxygène. Pour une richesse globale de 0.8, CO₂ augmente d'un facteur 1,5 entre 21 et 30 % d'oxygène. L'augmentation de la richesse globale tend à favoriser la formation du CO₂. Les prédictions de CO₂ dans l'hypothèse d'une combustion complète, qui permet le calcul des droites sur la figure 4, sont toujours légèrement supérieures aux mesures. Les émissions de NO_x en fonction de l'enrichissement en oxygène sont illustrées sur la figure 6 pour les deux richesses 0,8 et 0,9 et deux nombres de swirl 0,8 et 1,4. Les émissions des NO_x augmentent fortement avec l'enrichissement en oxygène. En effet, lorsque l'O₂ passe de 21 à 30 %, le taux des NO_x augmente de 10 à 170 ppm avec une richesse globale de 0,8 et un nombre de swirl de 0,8. Les émissions de NO_x décroissent d'un facteur 1,8 lorsque la richesse globale augmente de 0,8 à 0,9. L'augmentation du nombre de swirl tend à diminuer la production des NO_x , en particulier pour des enrichissements en oxygène supérieurs à 27 %. Supposant que la production des NO_x provient du mécanisme de Zeldovich, la température de la zone réactionnelle dans la flamme où se forment les NO_x décroit probablement avec l'augmentation du nombre de swirl. Les expériences et les calculs CFD [9-10] ont démontré que les émissions de NO_x décroissent avec l'augmentation du nombre de swirl, principalement à cause d'un mélange plus rapide des gaz brûlés à l'intérieur d'une zone de recirculation créée par la présence du swirl.



FIG. 3 – Évolutions de CO avec l'addition d' O_2



FIG.5 Évolutions de C.E. avec l'addition d'O₂



FIG. 4 – Évolutions de CO_2 avec l'addition d' O_2



FIG.6 Évolutions des NO_x avec l'addition d'O₂

3.2 Visualisations des flammes par chimiluminescence

La figure 7 présente des exemples d'images instantanées de chimiluminescence OH* dans le cas d'une richesse globale de 0,8, et d'un nombre de swirl de 0,8 pour trois enrichissements en oxygène : 21 %, 25 % et 30 %. En bas de la figure, les images moyennes calculées sur l'ensemble des images instantanées pour chaque cas d'étude sont présentées. D'après les images de chimiluminescence, une dissymétrie de la flamme est visible en moyenne ce qui témoigne de l'absence de symétrie axiale de la flamme. Dans les cas des flammes décrochées, *i.e.* pour des enrichissements en oxygène de 21 % à 25 %, l'intégration du signal de chimiluminescence de la flamme dans la ligne de visée donne une image de flamme qui se distingue par deux lobes intenses situés de part et d'autre de l'axe central du brûleur. Ces lobes traduisent l'intégration du signal OH* dans la direction de visée. La base de la flamme se rapproche du brûleur lorsque l'enrichissement en oxygène augmente. Il apparaît donc que l'enrichissement en oxygène permettrait d'élargir le domaine de stabilité du brûleur étudié, ce qui est probablement lié à une extension des limites d'inflammabilité du mélange CH₄ – air enrichi en oxygène [11]. Ainsi, la flamme à l'air enrichi en oxygène peut se propager

(dans les zones de prémélange) et brûler dans des régions où la vitesse de l'écoulement est plus forte, où le mélange n'est pas exactement à la stœchiométrie, et où les gradients de vitesse et de fraction de mélange des réactifs sont plus élevés que dans les cas de combustion à l'air.



FIG. 7 – Visualisations des images de chimiluminescence des flammes, cas Φ = 0,8, S_n=0.8.

3.3 Stabilité, hauteurs d'accrochage et longueurs de flamme

Les figures 8 et 9 montrent l'évolution de la hauteur d'accrochage et des longueurs de flamme en fonction de l'enrichissement en oxygène pour deux richesses globales 0,8 et 0,9 et deux nombres de swirl 0,8 et 1,4. On note que les incertitudes relatives sur les hauteurs de flamme sont estimées à 5 % et à 8 % pour les longueurs de flamme. La hauteur d'accrochage diminue quasi linéairement avec l'enrichissement en oxygène. Les fluctuations de la hauteur d'accrochage diminuent aussi avec l'enrichissement en oxygène, ce qui témoigne d'une amélioration de la stabilité. Dans le cas de la combustion à l'air, la flamme est décrochée à environ 40 mm au-dessus du brûleur pour $\Phi = 0.8$ et $S_n = 1.4$. Sa base fluctue de façon importante de ± 10 mm. Dans le cas d'une combustion à l'air enrichi à 30 % d'O2, la zone réactionnelle n'est plus qu'à 15 mm au-dessus du brûleur et les fluctuations sont de l'ordre de ± 2 mm. L'enrichissement en oxygène élargit le domaine de stabilité du brûleur. Notons que l'augmentation du nombre de swirl S_n tend à favoriser la stabilité de la flamme du fait d'une diminution de la hauteur d'accrochage. Ce comportement a également été rapporté auparavant par certaines études [12-15]. Par ailleurs, l'augmentation de la richesse globale Φ induit une déstabilisation de la flamme puisque la hauteur d'accrochage tend à augmenter pour un swirl S_n de 1,4. Les hauteurs de fin de flamme sont plus délicates à interpréter dans le cas de flammes « swirlées ». En effet, la flamme s'ouvre davantage avec le swirl, et présente d'importantes fluctuations sur sa longueur. La longueur de flamme diminue avec l'enrichissement en oxygène dans le cas $\Phi = 0.8$. Dans le cas $\Phi = 0.9$, les longueurs de flamme semblent à peu près constantes et sont généralement supérieures aux hauteurs mesurées dans le cas $\Phi = 0.8$ à enrichissement égal. Les fluctuations de longueur de la flamme sont importantes même pour des enrichissements en oxygène élevés.

4 Conclusion

Cette étude porte sur les caractéristiques d'une flamme turbulente non-prémélangée stabilisée par un swirl avec injection radiale du combustible. L'accent est mis sur l'effet de l'enrichissement en oxygène sur une flamme CH₄-air, sur la stabilité de la flamme et les émissions polluantes comme le CO, CO₂ et les NO_x. Les effets de la richesse et l'intensité de swirl sont également analysés. Les résultats montrent que l'enrichissement en O₂ entraîne une diminution importante du CO. Il est observé une augmentation des NO_x probablement due à une augmentation de la température de flamme avec l'addition d'O₂. Une augmentation linéaire des émissions de CO₂ avec l'enrichissement en oxygène est aussi observée. L'enrichissement en oxygène améliore la stabilité de la flamme, et ce, pour de faibles enrichissements. Cette stabilité accrue se

\$

 $\overline{\mathbf{\Phi}}$

*****0

Ā

Т

30 31

traduit par une diminution de la hauteur d'accrochage ainsi qu'une diminution des fluctuations de cette même hauteur. La longueur de flamme diminue lorsque le taux d'O₂ dans l'oxydant augmente.



Remerciements

Les auteurs remercient l'ANR EESI CO₂-Energicapt pour son soutien financier (Référence du projet ANR : ANR-10-EESI-0003).

Références

- [1] Baukal C. E., Oxygen-enhanced combustion, CRC Press, 384 pages, 1998
- [2] Favre E., Bounaceur R., Roizard D., A hybrid process combining oxygen enriched air combustion and membrane separation for post-combustion carbon dioxide capture, Sep Purif Technol, 68(1), 30-36, 2009.
- [3] Wu, K.-K., Y.-C. Chang, et al., High-efficiency combustion of natural gas with 21–30% oxygen-enriched air, Fuel, 89(9), 2455-2462, 2010
- [4] Zhou, L. X., X. L. Chen, et al., Studies on the effect of swirl on no formation in methane/air turbulent combustion, Proceedings of the Combustion Institute, 29(2), 2235-2242, 2002
- [5] Cozzi, F., A. Coghe, Effect of air staging on a coaxial swirled natural gas flame, Experimental Thermal and Fluid Science, 43(0), 32-39, 2012
- [6] Zhen, H. S., C. W. Leung, et al., Combustion characteristics of a swirling inverse diffusion flame upon oxygen content variation, Applied Energy 88(9), 2925-2933, 2011.
- [7] Beér J.M. and Chigier N.A., Combustion aerodynamics, Applied Science Publishers Ltd, 1972.
- [8] Dandy D.S., Vosen S.R., Numerical and Experimental Studies of Hydroxyl Radical Chemiluminescence in Methane-air Flames, Combustion Science and Technology, 82, 131-150, 1992
- [9] Frassoldati, A., S. Frigerio, et al., Determination of emissions from strong swirling confined flames with an integrated CFD-based procedure, Chemical Engineering Science, 60(11), 2851-2869, 2005
- [10] Schmittel, P., B. Günther, et al., Turbulent swirling flames: Experimental investigation of the flow field and formation of nitrogen oxide, Proceedings of the Combustion Institute, 28(1), 303-309, 2000.
- [11] Dyakov, I. V., A. A. Konnov, et al., Measurement of adiabatic burning velocity in methane-oxygennitrogen mixtures, Combustion Science and Technology 172(1), 81-96, 2001.
- [12] Boushaki, T., Sautet J.C., Labegorre, B., Control of flames by tangential jet actuators in oxy-fuel burners Combust. Flame, 156, 2043-2055, 2009.
- [13] D. Feikema, R.H. Chen, J.F. Driscoll, Enhancement of Flame Blowout Limit by the Use of Swirl, Combust. Flame, 80, 183–195, 1990.
- [14] Yuasa S., Effects of swirl on the stability of jet diffusion flames, Combust. Flame, 66:181-192, 1986.
- [15] Takahashi F., Schmoll, W.J., Lifting criteria of jet diffusion flames. 23th Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, pp 375-382, Orleans, France, 1990.