

# FORMAÇÃO DE CO E CO<sub>2</sub> EM CHAMAS DE DIFUSÃO DE METANO UTILIZANDO-SE OS MÉTODOS EDDY BREAK UP, EDDY DISSIPATION E PDF COM FORMAS PRÉ-ASSUMIDAS

**Arima, M. N.**

**Krieger, G. C.** - guenther@usp.br

Universidade de São Paulo

Escola Politécnica -Departamento de Engenharia Mecânica

**Resumo.** *Apresenta-se neste trabalho uma avaliação da capacidade de três modelos de combustão para previsão das emissões de monóxido e dióxido de carbono em chamas de difusão turbulentas de metano. Os modelos Eddy Break Up (EBU), Eddy Dissipation Concept (EDC) e PDF com formas pré-assumidas são utilizados para a simulação de uma chama para a qual existem dados experimentais dos campos de velocidades, temperatura e espécies. O escoamento turbulento é descrito com o modelo  $k-\epsilon$ . No modelo PDF com formas pré-assumidas é utilizado o equilíbrio químico como modelo de combustão. No modelo EBU a taxa de formação/destruição na equação de transporte das espécies é avaliada em função da energia cinética turbulenta ( $k$ ) e da taxa de dissipação de  $k$ . No modelo EDC, parte da mistura é considerada dentro de um reator perfeitamente misturado, onde um mecanismo reduzido com 14 espécies é integrado no tempo. Do estudo conclui-se que os modelos Equilíbrio Químico/PDF com formas pré-assumidas e EDC melhor reproduzem a chama com exceção da concentração de CO. O modelo EBU não consegue capturar corretamente os efeitos de cinética de reação na chama turbulenta.*

**Palavras-chave:** *Escoamento Reativo Turbulento, Metano, Simulação Numérica, Emissões*

## 1. INTRODUÇÃO

A importância do estudo de chamas de difusão fundamenta-se no seu largo emprego em sistemas de combustão industrial. Neste trabalho estuda-se chamas de difusão turbulentas de metano, que é o componente principal do gás natural. Especialmente a formação de poluentes como o dióxido de carbono, que contribui para o efeito estufa, monóxido de carbono e NO é importante na análise de sistemas de combustão. A modelagem do processo de combustão em escoamento turbulentos é bastante dificultada pela necessidade de formulação do termo de fonte oriundo das reações químicas de combustão, considerando-se as flutuações de concentrações e temperatura intrínsecas do escoamento em regime turbulento. No presente estudo, a formulação do termo de fonte turbulento é feita com as abordagens dos modelos: Método Função Densidade de Probabilidade (PDF) com forma pré-assumida, Método Eddy

Break Up (EBU), Método Eddy Dissipation Concept (EDC). Procura-se identificar as vantagens e desvantagens de cada um dos modelos considerando-se como parâmetro principal suas capacidade de previsão das emissões de CO e CO<sub>2</sub> na chama escolhida para validação e descrita no item 2.

## 2. CHAMA ESTUDADA

A chama utilizada para avaliação dos modelos computacionais é uma chama proposta e documentada pela International Workshop on Measurement and Computation of Turbulent Nonpremixed Flames (1997). Foi escolhida esta chama por ser possível a comparação com resultados experimentais disponíveis no referida conferência. A chama é de difusão turbulenta com as seguintes características: pelo bocal de 7.2 mm de diâmetro é fornecida uma mistura de metano e ar na proporção volumétrica de 25% metano e 75% ar. Concêntrico ao bocal de combustível são posicionadas chamas-piloto para a estabilização da chama. Dos dados experimentais, pode-se observar que esta chama é dominada pelo processo de difusão e não como pré-mistura, como poderia sugerir o fato de queimar-se uma mistura metano/ar. A pré-mistura parcial é feita para evitar a formação de particulados, que inviabilizariam as medições com métodos espectrográficos. O número de Reynolds calculado com o diâmetro do bocal é de 22400, o que assegura o regime turbulento da chama.

Esta chama foi estudada por (Hinz, 1999). No Trabalho de Hinz o método adotado é o método de Função Densidade de Probabilidade (PDF) com resolução da equação da PDF das grandezas escalares via método de Monte Carlo. O mecanismo de reações utilizado é um mecanismo reduzido com quatro espécies reativas. O autor conclui que embora, a estrutura da chama seja bem reproduzida, os resultados de CO indicam a necessidade de um mecanismo de reações mais completo. Acrescente-se a isto o grande esforço computacional necessário para solução, com métodos estocásticos de Monte Carlo, adotados por Hinz. No presente trabalho, propõe-se a verificação de modelos computacionais relativamente mais simples que o método de PDF. É necessário, entretanto, verificar a capacidade de predição destes modelos.

## 3. MODELOS TERMO-QUÍMICOS

Neste item são apresentados os modelos termo-químicos utilizados na modelagem da chama estudada. Em todos os modelos de combustão assume-se que a chama não troca calor por radiação. Desta forma em cada volume de controle na equação da energia só são computadas as trocas por convecção e condução. No item 4. discute-se o modelo de combustão turbulenta utilizado.

O Modelo PDF com forma pré-assumida (PDF) é construído em combinação com o modelo de equilíbrio químico para o processo de combustão. Neste modelo, assume-se que o processo de combustão é determinado pelo processo de mistura turbulenta e que as reações de combustão são extremamente rápidas. Desta forma assume-se que em cada volume de controle reina equilíbrio químico entre reagentes e produtos. Assume-se presentes as espécies: CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CO, H, O, OH e N<sub>2</sub>. Utilizando-se as rotinas para cálculo de equilíbrio químico do software CHEMKIN-II, faz-se o tabelamento das frações mássicas das espécies, densidade e temperatura em função da fração de mistura (Neuber *et al.*, 1998).

No Modelo Eddy Break Up (EBU) (Magnussen, 1976), considerou-se as espécies CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> e H<sub>2</sub>O. Para estas espécies utilizou-se uma única reação global para a qual a taxa de formação/consumo é calculada por uma expressão de Arrhenius. Maior detalhe do modelo podem ser visto no manual do software (FLUENT).

No Modelo Eddy Dissipation Concept (EDC), utilizou-se um mecanismo reduzido a partir de um mecanismo detalhado de 175 reações elementares envolvendo as cadeias C1 e C2. A redução, bem como as rotinas compatíveis com o software CHEMKIN-II, estão disponíveis em (International Workshop, 1997). A estratégia de redução do mecanismo elementar para o mecanismo reduzido, utilizando-se aproximações de regime permanente para algumas espécies, pode ser vista detalhadamente em (Chen, 1997). O mecanismo reduzido adotado envolve 14 espécies, quais sejam: O<sub>2</sub>, H, O, OH, H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CO, CO<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>, CH<sub>3</sub>OH, CH<sub>2</sub>O, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> e CH<sub>4</sub>.

#### 4. MODELOS DE COMBUSTÃO TURBULENTA

Neste item é descrita a formulação do modelo de combustão turbulenta nos três modelos utilizados nas simulações. Fundamentalmente, a diferença entre os modelos está na formulação do termo de fonte médio na equação de transporte das espécies reativas Eq. (1). A modelagem do escoamento turbulento foi feita utilizando-se o bem conhecido e documentado método  $k - \epsilon$  (Jones, 72), visto que a estrutura do escoamento não é complexa e espera-se com este modelo um bom compromisso entre captura dos efeitos de turbulência do escoamento e esforço computacional.

##### 4.1 Equação de transporte de espécies reativas

A equação de transporte para o valor médio da fração mássica  $Y_\alpha$  de uma espécie  $\alpha$  é escrita:

$$\frac{\partial}{\partial x_j} \overline{\rho \tilde{u}_j \tilde{Y}_\alpha} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \overline{\rho D_{\alpha M} \frac{\partial Y_\alpha}{\partial x_j}} - \overline{\rho u_j'' Y_\alpha''} \right) + \overline{\dot{w}_\alpha} \quad (1)$$

Os termos  $\overline{\rho u_j'' Y_\alpha''}$  e  $\overline{\dot{w}_\alpha}$  representam respectivamente a correlação velocidade-grandeza escalar e o termo de fonte médio, oriundo das reações de combustão. Estes dois termos são desconhecidos e precisam ser modelados. A formulação do termo de fonte médio para cada modelo adotado é descrita posteriormente. A correlação de transporte turbulento é modelada por meio da aproximação de fluxo de gradiente e se resume a

$$-\overline{\rho u_j'' Y_\alpha''} = \frac{v_t}{\sigma_{Y_\alpha}} \left( \frac{\partial \tilde{Y}_\alpha}{\partial x_j} \right) \quad (2)$$

Nesta expressão  $\sigma_{Y_\alpha}$  representa o Número de Prandtl para a grandeza reativa escalar  $Y_\alpha$ . A equação modelada de  $\tilde{Y}_\alpha$  se escreve então

$$\overline{\rho \tilde{u}_j} \frac{\partial \tilde{Y}_\alpha}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \overline{\rho} \left( D + \frac{v_t}{\sigma_{Y_\alpha}} \right) \frac{\partial \tilde{Y}_\alpha}{\partial x_j} \right) + \overline{\dot{w}_\alpha} \quad (3)$$

**Equilíbrio/PDF com forma pré-assumida.** No modelo PDF com forma pré-assumida em conjunto com equilíbrio químico, são resolvidas equações de transporte para o valor médio e variância da fração de mistura. Como a fração de mistura é uma grandeza

conservativa, a Eq. (1) para a fração de mistura não tem o termo de fonte. Com estes dois parâmetros, valor médio e variância da fração de mistura, é construída uma função densidade de probabilidade com a forma pré-definida de uma função Beta. Este método é bastante conhecido e detalhes podem ser encontrados em (Neuber et al., 1998) e (FLUENT).

**Eddy Break Up (EBU).** Neste modelo, como implementado no software FLUENT, o termo de fonte médio para a equação de transporte das espécies reativas Eq. (1), é calculado pela avaliação do menor valor entre o taxa de formação/destruição calculada pela cinética química e pela taxa calculada a partir da estrutura do escoamento turbulento, em função das grandezas turbulentas energia cinética turbulenta  $k$  e taxa de dissipação ( $\varepsilon$ ) da energia cinética turbulenta.

**Eddy Dissipation Concept (EDC).** No modelo de combustão EDC a interação entre turbulência e reações de combustão é formulada como função da dinâmica dos turbilhões, na literatura em inglês denominados „eddies“. Segundo a teoria da cascata de energia, os grandes turbilhões, que contêm grandes quantidades de energia cinética turbulenta, se subdividem em turbilhões cada vez menores, até que nas escalas de comprimento e tempo de Kolmogoroff sua energia cinética é dissipada, por efeito molecular, em calor. As reações químicas de combustão só acontecem quando reagentes estão misturados a nível molecular. No modelo EDC o espaço físico de um volume de massa fluida é dividido em duas regiões: o fluido envolvente e as estruturas finas. Dentro da região das estruturas finas, os reagentes estão misturados a nível molecular e podem reagir, se a temperatura da mistura for suficiente para desencadear as reações. Desta forma, o tratamento das reações químicas fica restrito à região dos turbilhões das escalas de Kolmogoroff. Dentro desta região é utilizado o modelo de um Reator Perfeitamente Misturado (PSR) para determinação das taxas de formação/destruição das espécies reativas. De acordo com o trabalho de (Magel, 1996) a fração da massa ( $\gamma^*$ ) ocupada pelas estruturas finas pode ser estimada com a expressão

$$\gamma^* = \left[ 2.13(v\varepsilon/k^2)^{0.25} \right]^2. \quad (4)$$

A taxa de transferência de massa entre as duas regiões  $M^*$  é estimada por meio da expressão

$$M^* = 2.43 \left( \frac{\varepsilon}{\nu} \right)^{0.5}. \quad (5)$$

Nestas expressões fica clara a interdependência entre a dinâmica das estruturas turbulentas, definidas por  $k$ ,  $\varepsilon$ , e  $\nu$  e as grandezas  $\gamma^*$  e  $M^*$ , fundamentais para a determinação das grandezas termo-químicas dentro do PSR.

A taxa média de formação/destruição ( $\overline{\dot{w}}_\alpha$ ) de uma espécie  $\alpha$  é determinada por

$$\overline{\dot{w}}_\alpha = \frac{\overline{\rho} M^* \gamma^*}{1 - \gamma^*} (\tilde{Y}_\alpha - Y_\alpha^*). \quad (6)$$

Nesta expressão  $\bar{\rho}$  é a densidade local média,  $\tilde{Y}_\alpha$  é o valor médio da fração de massa da espécie  $\alpha$  e  $Y_\alpha^*$  é a sua parcela dentro das estruturas finas. As concentrações e temperatura dentro desta região, idealizada como um reator perfeitamente misturado, são calculadas com as rotinas do CHEMKIN-II, incorporadas ao código CFD para solução das equações de transporte, momentum e energia.

## 4.2 Conservação da energia

A equação de balanço de energia escrita na forma da entalpia da mistura é dada por

$$\frac{\partial h}{\partial x_j} \bar{\rho} \tilde{u}_j \tilde{h} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \overline{\rho D \frac{\partial h}{\partial x_j}} - \overline{\rho u_j'' h''} \right) + \bar{q}. \quad (7)$$

Na ausência de significativas perdas de energia por radiação o termo de fonte  $\bar{q}$  desaparece. O termo  $\overline{\rho u_j'' h''}$  é modelado com a aproximação de fluxo de gradiente e a equação final da entalpia se escreve

$$\bar{\rho} \tilde{u}_j \frac{\partial \tilde{h}}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \bar{\rho} \left( D + \frac{v_t}{\sigma_h} \right) \frac{\partial \tilde{h}}{\partial x_j} \right). \quad (8)$$

## 5. RESULTADOS

Nesta seção são apresentados e discutidos os resultados obtidos com os modelos de simulação utilizados.

A Fig. 1 mostra os valores da velocidade axial ao longo da linha de centro da chama. A velocidade é normalizada com o valor no centro do jato no plano de saída do bocal.

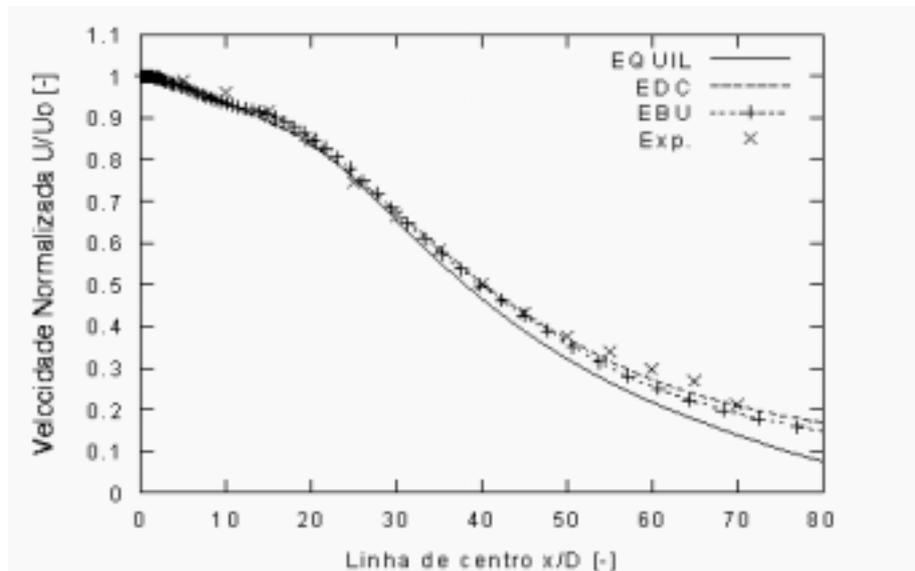


Figura 1 - Velocidade axial na linha de centro da chama, modelos Equilíbrio/PDF, EDC e EBU e dados experimentais.

Da Figura 1 conclui-se que os modelos conseguem reproduzir bem o escoamento. Isto significa que o processo de mistura turbulenta, que desempenha papel fundamental no processo de combustão, também é bem reproduzido.

Os perfis de fração de mistura para os modelos PDF com formas pré-assumidas e EDC são mostrados na figura 2.

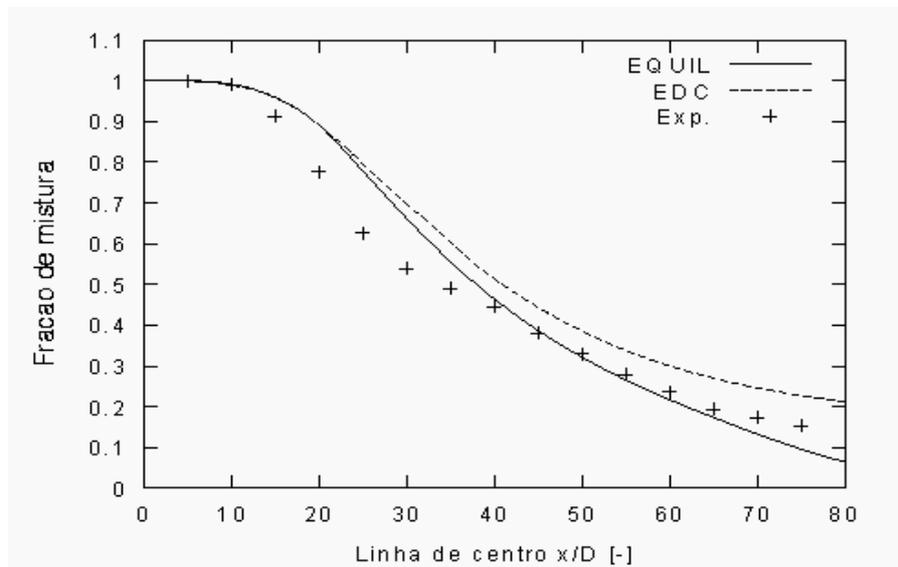


Figura 2 - Fração de Mistura na linha de centro da chama, modelos Equilíbrio/PDF, EDC e dados experimentais

O comportamento da fração de mistura é bem reproduzido pelos modelos. A fração de mistura, pela sua própria definição, é uma grandeza conservativa. Desta forma, sua distribuição é determinada pelos mecanismos de transporte unicamente. A boa concordância mostrada na Fig. 2, indica que os mecanismos de convecção, difusão e sobretudo o transporte turbulento estão bem reproduzidos nos modelos.

Os resultados da distribuição de temperatura ao longo do eixo de simetria da chama são apresentados na Fig. 3. Dos modelos utilizados, o modelo EBU se destaca, pelo fato de prever temperaturas muito mais altas que os outros modelos e os dados experimentais. Este resultado do modelo EBU bem como os de concentrações mostrados a seguir, mostram que este modelo não consegue descrever o processo de combustão turbulenta de maneira correta. Vale ressaltar que para todos os modelos não considerou-se perdas por radiação, o que pode ser a justificativa para as temperaturas sistematicamente mais altas das simulações em comparação com os dados experimentais. O modelo EDC apresentou dificuldade em capturar o início do processo de combustão. Isto foi resolvido utilizando-se uma estabilização artificial da chama até a posição  $x/D$  40. Esta estabilização foi conseguida tomando-se os valores de temperatura e densidade da solução obtida com o modelo Equilíbrio/PDF. Este último modelo não considera efeitos de cinética química e, por isto, sua previsão de grandezas não fortemente influenciadas pela interação cinética química/turbulência é sempre razoável. O comportamento dos modelos EDC e Equilíbrio/PDF é bastante semelhante e satisfatório.

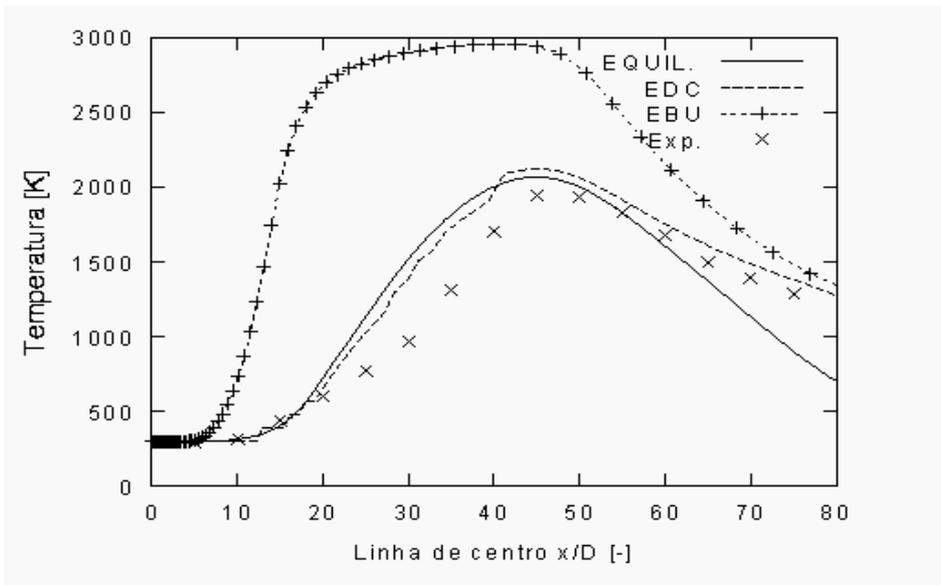


Figura 3 - Temperatura na linha de centro da chama, modelos Equilíbrio/PDF, EDC e EBU e dados experimentais

As frações mássicas de  $\text{CO}_2$  e  $\text{CO}$  são mostradas nas figuras 4 e 5 respectivamente. Na Fig 4 nota-se que os modelos EDC e Equilíbrio/PDF pré-assumida melhor reproduzem os dados experimentais. O Modelo EBU superestima a concentração de  $\text{CO}_2$ . Vê-se claramente que o modelo EBU não consegue capturar o processo de combustão turbulenta corretamente.

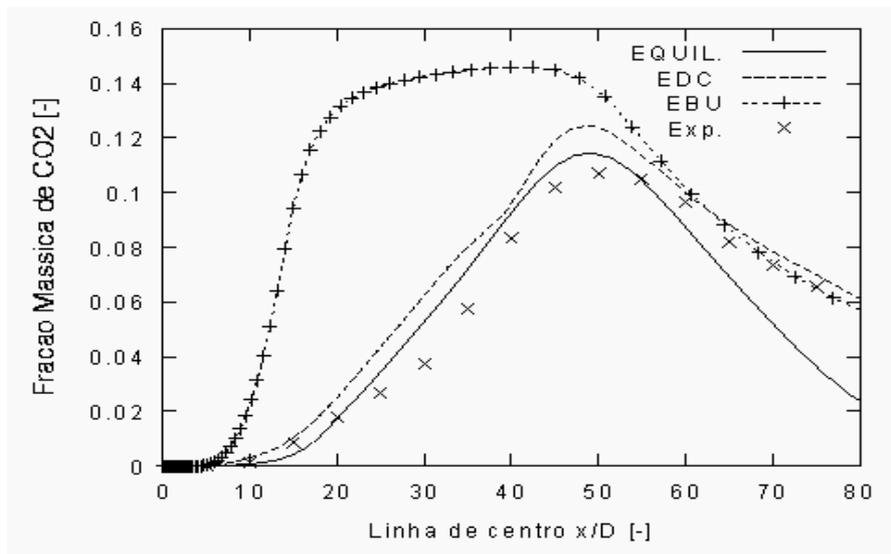


Figura 4 - Fração mássica de  $\text{CO}_2$  na linha de centro da chama, modelos Equilíbrio/PDF, EDC, EBU e dados experimentais

Os resultados para a concentração de  $\text{CO}$  na chama são mostrados na figura 5. O modelo EBU não leva em conta a formação de  $\text{CO}$ . Os modelo de Equilíbrio/PDF com forma pré-assumida e EDC superestimam a formação de  $\text{CO}$ , o que indica que a chama não tem tempo para reagir até o equilíbrio, pelo menos no que concerne à formação de espécies intermediárias como  $\text{CO}$ . O modelo EDC apresenta valores ainda maiores que os do modelo com equilíbrio químico. Isto se deve ao fato que o modelo Equilíbrio/PDF faz uma integração dos valores instantâneos de equilíbrio com a função PDF para obtenção dos valores médios. O modelo EDC poderia ainda ser testado variando-se as expressões para os valores da fração de

massa de fluido ocupada pelas estruturas finas  $\gamma^*$  e para a taxa de transferência  $M^*$  entre as duas regiões: fluido envolvente e estruturas finas (PSR). Dos resultados da Fig. 5 se conclui que estes valores estão superestimados levando a simulação com o modelo EDC aos mesmos resultados do modelo com equilíbrio químico, que não é consistente com os dados experimentais.

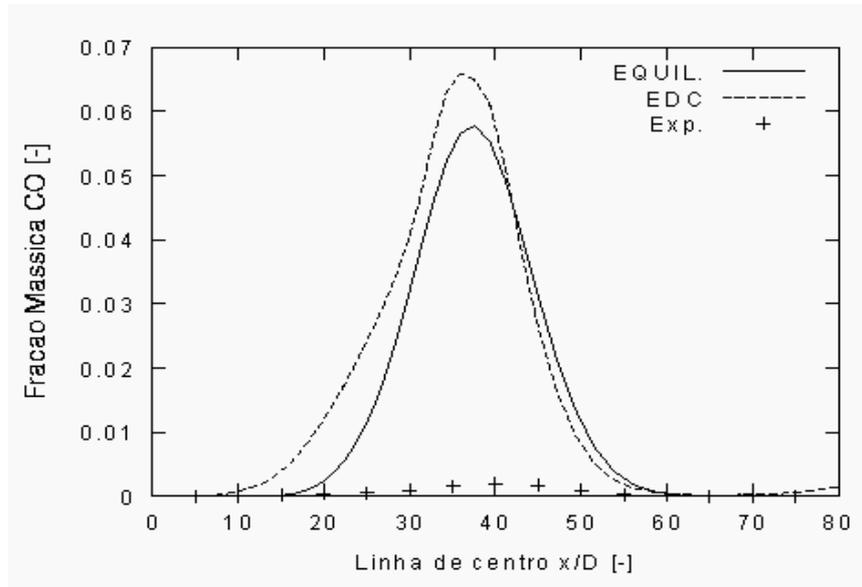


Figura 5 - Fração mássica de CO na linha de centro da chama, modelos Equilíbrio/PDF, EDC e dados experimentais

## 6. CONCLUSÃO

Neste trabalho apresentou-se a utilização dos modelos Equilíbrio Químico/PDF com formas pré-assumidas, Eddy Break UP e Eddy Dissipation Concept para a modelagem de uma chama de metano. Buscou-se avaliar a capacidade dos modelos na predição das concentrações de CO<sub>2</sub> e CO numa chama turbulenta. Dos resultados numéricos comparados com os dados experimentais, conclui-se que os modelos Equilíbrio/PDF e Eddy Dissipation Concept reproduzem bem a chama exceto a concentração de CO. O modelo Eddy Break UP apresenta resultados com grande afastamento dos dados experimentais o que não dá confiabilidade ao modelo. Nota-se que os modelos que procuram incorporar os efeitos de cinética química (EBU e EDC) têm dificuldade em capturar o início das reações de combustão. Pela semelhança dos resultados dos modelos Equilíbrio e EDC, concluí-se que seus parâmetros de fração de massa e taxa de transferência para o PSR estão superestimados. Com a correção destes parâmetros, o modelo EDC, por incorporar um mecanismo detalhado de cinética química, talvez possa capturar melhor a formação de CO na chama.

## Agradecimentos

Os autores agradecem aos Prof. J. Janicka da Technische Universitaet Darmstadt e Prof. R. Barlow do Sandia National Lab., coordenadores da *International Workshop on Measurement and Computation of Nonpremixed Flames*, pelo acesso aos dados experimentais. Este trabalho foi realizado com apoio financeiro da FAPESP.

## REFERÊNCIAS

- Chen, J.-Y., 1997, Development of Reduced Mechanisms for Numerical Modelling of Turbulent Combustion, Workshop on Numerical Aspects of Reduction in Chemical Kinetics, CERMICS-ENPC Cite Descartes-Champus sur Marne, France, September 2<sup>nd</sup>.  
FLUENT, [http://www.fluentusers.com/fluent5/doc/doc\\_f.html](http://www.fluentusers.com/fluent5/doc/doc_f.html)
- Hinz, A., 1999, Numerical Simulation of Turbulent Non-Equilibrium Metane-Air Jet Flames using Monte Carlo PDF Method, First International Symposium on Turbulence and Shear Flow Phenomena, pp. 333-338, Santa Barbara, California.
- International Workshop on Measurement and Computation of Nonpremixed Flames, <http://www.ca.sandia.gov/tdf/M3APilot97/FlameD.html>
- Jones, W. P., Launder, B. E., 1972, The Prediction of Laminarization with a Two-Equation Model of Turbulence; International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 15, pp. 301-314, Pergamon Press.
- Krieger, G., 1997, Untersuchung zur Hydroxylradikal- und Stickoxidbildung in turbulenten Wasserstoffdiffusionsflammen mittels Wahrscheinlichkeitsdichte-Methoden, tese de doutoramento, em alemão, TU- Darmstadt.
- Magnussen, B. F., Hjertager, H., 1976, On Mathematical Modeling of Turbulent Combustion with Special Emphasis on Soot Formation and Combustion, 16th Symposium (Internat.) on Combustion, pp. 719-729, The Combustion Institute, Pittsburgh.
- Magel, H.C., Schnell, U., Hein, K. R. G., 1996, Simulation of Detailed Chemistry in a Turbulent Combustor Flow, 26th Symposium (Internat.) on Combustion, pp.67-74, The Combustion Institute, Pittsburgh.
- Neuber, A., Krieger, G., Tacke, M., Hassel, E. P., Janicka, J., 1998, Finite Rate Chemistry and NO Molefraction in Nonpremixed Turbulent Flames, Combustion and Flame, vol 113, pp 198-211, April.

### CO<sub>2</sub> AND CO FORMATION IN DIFFUSION FLAMES USING THE MODELS PRESUMED PDF, EDDY BREAK UP AND EDDY DISSIPATION CONCEPT

**Abstract.** *The formation of CO and CO<sub>2</sub> in a methane turbulent diffusion flame is investigated in the present work. Three models are used to perform the simulation: Eddy Break Up (EBU), Eddy Dissipation Concept (EDC) and Equilibrium Chemistry with Presumed PDF (EQUIL). The turbulent flow is modeled using the  $k-\epsilon$  model. In the Presumed PDF model, fast chemistry is assumed for the combustion model. In the EBU model, the average chemical source for the species transport equation is constructed using the turbulent quantities turbulent kinetic energy and the dissipation ratio of  $k$ . In the EDC model, a reduced mechanism encompassing 14 species is integrated in a perfectly stirred reactor and used as averaged source term. From the obtained results, can be concluded that the EQUIL and EDC models reproduce the flame structure in good agreement with the experimental data, except the CO concentration. The EBU is not able to capture the kinetic effects, which are of paramount importance in the CO and CO<sub>2</sub> formation. Further work to properly estimate the parameters of the EDC model, would give better results concerning the CO formation.*

**Keywords:** *Turbulent Reactive Flows, Metane, Numerical Simulation, Emissions*