

محاسبه سیستم بهینه احتراق ناقص متان در محیط متخلخل جهت دستیابی به درصد هیدروژن بیشینه: بررسی تجربی و دینامیک سیالات محاسباتی

محمد رضا شاه‌نظری*، هدایت موسوی و علی صابری

دانشکده مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی خواجه‌نصیرالدین طوسی، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۹۶/۱۰/۷ تاریخ پذیرش: ۹۷/۵/۱۳

چکیده

روش‌های مختلفی برای تولید هیدروژن به‌عنوان سوخت آینده وجود دارد. روش‌های تولید هیدروژن از سوخت‌های هیدروکربونی از اقتصادی‌ترین این روش‌ها به‌شمار می‌روند. اگرچه اکثر این فرآیندها به‌صورت کاتالیستی انجام می‌شوند اما به‌صورت ذاتی دارای معایب متعددی از قبیل تخریب کاتالیست‌ها، سیستم پیچیده، پاسخ آهسته و هزینه بالا هستند. از روش‌های جایگزین که اخیراً مورد توجه قرار گرفته‌است می‌توان به استفاده از فرآیند اکسیداسیون جزئی هیدروکربن‌ها با استفاده از شعله سوپرآدیاباتیک در محیط متخلخل بی‌اثر در حالت غنی و فوق‌غنی سوخت اشاره نمود. در این مقاله ضمن ارائه نتایج تجربی حاصل از آزمایش، نتایج شبیه‌سازی عددی یک مشعل محیط متخلخل محتوی ذرات کروی آلومینا ارائه و با نتایج تجربی مقایسه شده‌است. با در نظر گرفتن یک محدوده ناپیوسته مناسب برای هر یک از پارامترهای ورودی، یک فضای حالت برای آزمون‌ها و محاسبات ایجاد شده و به‌ازای مجموعه حالت‌های موجود، نتایج به‌دست آمده‌اند. همچنین براساس مجموعه داده‌ها، شرایط تولید بیشینه کسر مولی هیدروژن و سایر محصولات و بیشینه نسبت تبدیل کلی متان و تبدیل آن به هیدروژن و منوکسید کربن به‌دست آمده‌اند. نتایج تجربی و عددی از تطابق خوبی در بخش عمده‌ای از فضای حالت برخوردار بوده‌اند. راندمان کلی انرژی مشعل در حالت بهینه نیز محاسبه شده‌است که نشان می‌دهد برای شرایط ورودی مناسب، بیشینه تولید هیدروژن می‌تواند با راندمان انرژی نسبتاً مطلوب ۷۵٪ همراه گردد. در این مقاله نشان داده شده‌است که با وجود تاثیرهای اساسی تغییرات نسبت هم‌ارزی بر مشخصه‌های خروجی فرآیند که مد نظر اکثر محققین در این زمینه نیز قرار گرفته، پارامترهای ورودی دیگر مانند انرژی آزاد شده به‌ازای حجم مشعل، مجموعه ابعاد راکتور و قطر ذره که معرف میزان تخلخل و ضریب گذردهی محیط است نیز تاثیر چشم‌گیری دارند.

کلمات کلیدی: هیدروژن، اکسیداسیون جزئی متان، محیط متخلخل، سوپر آدیاباتیک، نسبت تبدیل

*مسئول مکاتبات

shahnazari@kntu.ac.ir

آدرس الکترونیکی
شناسه دیجیتال: (DOI: 10.22078/pr.2018.3079.2425)

مقدمه

می‌تواند در حضور کاتالیست یا بدون کاتالیست انجام گردد [۱].

فرآیند ریفورمینگ اتوترمال ترکیبی از فرآیند ریفورمینگ بخار و اکسیداسیون جزئی است [۶]. نسبت به سایر روش‌ها تکنولوژی فرآیند اکسیداسیون جزئی دارای مزیت‌هایی مانند عدم احتیاج به منبع حرارتی خارجی و سیال دیگری نظیر آب، زمان پاسخ دینامیکی بهتر، توانایی استفاده از هیدروکربن‌های سبک و سنگین به‌عنوان خوراک ورودی است. حساسیت کمتر نسبت به سوخت و زمان پاسخ بهتر، این فرآیند را برای سیستم‌هایی با بار حرارتی مختلف قابل استفاده می‌کند [۷] و [۸]. فرآیند اکسیداسیون جزئی می‌تواند در حضور کاتالیست یا بدون کاتالیست انجام گردد. این فرآیند به‌صورت معمول در حالتی که در حضور کاتالیست انجام گردد، عملکرد خوبی از لحاظ بازده مشعل دارد اما کاملاً حساس به تغییرات سوخت ورودی بوده و احتمال تولیدی مواد سمی خواهد داشت [۹]. استفاده از فرآیند اکسیداسیون جزئی بدون حضور کاتالیست دارای مزایایی از قبیل صرفه‌جویی در هزینه و استحکام مشعل نسبت به نمونه کاتالیستی خود است. اکسیداسیون جزئی بدون کاتالیست را فرآیند اکسیداسیون جزئی حرارتی^۱ می‌نامند که یک فرآیند مهم برای تولید هیدروژن است [۱۰]. ابعاد کوچک مشعل و نرخ کم سرعت واکنش‌ها در دمای کمتر از دمای آدیاباتیک باعث می‌گردد فرآیند ناپایدار و بازده پایینی داشته باشد. انجام واکنش درون محیط متخلخل جامد حاوی مواد جامد بی‌اثر سبب احتراق فوق آدیاباتیک شده و این مشکل را برطرف می‌سازد [۱۱]. ماتریس جامد در واکنش شرکت نمی‌کند اما انتقال حرارت را افزایش می‌دهد. تکنولوژی مشعل متخلخل یکی از روش‌های کاهش مصرف انرژی و کاهش آلودگی است.

رشد روز افزون میزان تقاضا برای سوخت‌های فسیلی موجب افزایش نرخ مصرف این‌گونه سوخت‌ها شده‌است و در نتیجه با توجه به کمبود این منابع، افزایش قیمت این سوخت‌ها را در پی داشته‌است. همچنین انتشار گازهای گلخانه‌ای ناشی از احتراق سوخت‌های فسیلی سبب گرم‌شدن کره‌زمین و مشکلات زیست‌محیطی شده و در نتیجه قوانین سخت‌گیرانه‌تری برای انتشار آلاینده‌های اتمسفر در نظر گرفته شده‌است. این عوامل سبب اقبال روزافزون به انرژی‌های تجدیدپذیر و پاک شده‌است که به‌عنوان مثال می‌توان به هیدروژن اشاره نمود که استفاده از آن به‌عنوان یک سوخت جایگزین مناسب، دارای رشد چشم‌گیری است. از هیدروژن به‌عنوان سوخت آینده یاد می‌کنند، زیرا هیدروژن علاوه بر فراوانی منابع تولید، دارای بیشترین انرژی به‌ازای واحد جرم و کمترین آلودگی به‌هنگام واکنش با اکسیژن در فرآیند احتراق است [۱]. همچنین محصول واکنش هیدروژن و اکسیژن در پیل سوختی آب بوده و هیچ نوع آلاینده‌ای ندارد. از سوی دیگر هیدروژن به‌عنوان خوراک ورودی مهم برای تعدادی از فرآیندهای صنعتی است [۲ و ۳]. هیدروژن را می‌توان از سوخت‌های هیدروکربنی (مایع و گازی) به‌وسیله فرآیندهای اکسیداسیون جزئی، ریفورمینگ بخار و ریفورمینگ اتوترمال [۴] از آب با استفاده از روش الکترولیز و تجزیه کاتالیزوری یا غیرکاتالیزوری هیدروژن سولفید تولید کرد [۵]. فرآیند ریفورمینگ بخار یک واکنش گرماگیر است که در آن سوخت هیدروکربنی با بخار در محیط کاتالیستی نسبتاً دما بالا ترکیب می‌گردند، این فرآیند به‌طور معمول بیشترین بازده تولید هیدروژن را دارد. فرآیند اکسیداسیون جزئی، یک واکنش گرماده است که در آن هیدروکربن با نسبت کم اکسیژن واکنش می‌دهد و منجر به تولید مخلوطی از گاز هیدروژن و کربن مونواکسید می‌گردد که مناسب برای کاربرد سیستم‌های پیل سوختی دما بالا است. این فرآیند

1. Thermal Partial Oxidation (TPOx)

تجربی در زمینه احتراق بیش مخلوط، مخلوط متان-اکسیژن-نیتروژن و انتشار آن را در ماسه انجام داد و با به دست آوردن سرعت انتشار پروفیل‌ها و همچنین حداقل قطر منفذ برای چند سوخت مختلف، نشان داد که پروفیل دما برای فاز گاز و فاز جامد متفاوت است. در واقع او یک مدل نیمه تجربی از طرح کلی انتقال حرارت در ناحیه پیش‌گرم و احتراق به دست آورد که امکان پیش‌بینی سرعت انتشار دمای نهایی ناحیه احتراق را به عنوان تابعی از پارامترهای حرارتی و سینتیک مانند حرارت منتقل شده از محیط متخلخل، ضریب انتقال حرارت، حرارت احتراق و سرعت سوختن فراهم می‌کند. هسو و همکاران [۱۶] نشان دادند دسترسی به پروفایل دمای دقیق‌تر و اجزای شیمیایی با جزئیات بیشتر نیازمند بررسی دقیق‌تر سینتیک برای مدل‌سازی احتراق است. البته این بدین معنی نیست که واکنش‌های تک مرحله‌ای بی‌اعتبار هستند. هنگامی که جزئیات شیمیایی مدنظر نباشد و هدف بررسی سرعت احتراق باشد، امکان استفاده از واکنش یک مرحله‌ای وجود دارد. آل‌همامر و همکاران [۱۷]، به بررسی عددی فرآیند اکسیداسیون جزئی حرارتی متان در محیط متخلخل براساس فرآیند ریفورمینگ و روش حجم محدود که شامل مدل‌سازی تشعشعی با ترکیب یک طرح سینتیک شیمیایی دقیق برای انجام شبیه‌سازی عددی است، پرداختند. آنها از مدل عدم تعادل حرارتی برای مدل‌سازی دمای فاز گاز و جامد که شامل دو معادله جدا برای فاز گاز و جامد است استفاده کردند. برای اعتبار سنجی مدل از مقایسه با نتایج تجربی بهره بردند. مدل آنها توانایی پیش‌بینی رفتار دما با دقت بسیار مناسب را دارد، با این حال غلظت H_2 و CO را کمتر و غلظت H_2O را بیشتر از مقدار واقعی آن برآورد می‌کند. میگل و همکاران [۱۸] به بررسی فرآیند اکسیداسیون حرارتی متان در ابعاد کوچک و در محیط متخلخل بی‌اثر پرداختند، آنها به دنبال یافتن شرایط بهینه برای بیشترین بازه تبدیل متان و کمترین تشکیل دوده بودند.

از دیگر مزایای محیط متخلخل کاهش اندازه مشعل، افزایش محدوده شعله‌وری، توزیع یکنواخت حرارت، افزایش توان دینامیکی و کاهش سر و صدا است. مکانیزم انتقال حرارت در محیط متخلخل با شعله آزاد متفاوت است. مهم‌ترین نوع انتقال حرارت در شعله آزاد جابه‌جایی است، که توسط محصولات احتراق صورت می‌گیرد. در حالی که در شعله محیط متخلخل علاوه بر هدایت و جابه‌جایی تابش نیز نقش بسیار عمده‌ای را در انتقال حرارت ایفا می‌کند که به دلیل ضریب صدور بالای جسم جامد حاضر، به عنوان محیط متخلخل است. تابش انرژی به قسمت‌های ورودی راکتور موجب پیش‌گرم شدن واکنش‌دهنده‌های ورودی مخلوط هوا-متان می‌گردد. عمل پیش‌گرمایش، سرعت شعله را افزایش می‌دهد و در نتیجه محدوده شعله‌وری افزایش یافته و همچنین موجب پایداری فرآیند احتراق و ایجاد شعله سوپر آدیاباتیک گردد [۱۲]. براساس آزمایش‌هایی که توسط بابکین [۱۳] انجام گرفت، توزیع شعله در داخل جسم متخلخل تنها می‌تواند زمانی صورت گیرد که عدد پکلت تصحیح‌شده بزرگ‌تر مساوی ۶۵ باشد $P_e \geq 5$.

$$P_e = \frac{S_L d_m C_p \rho_f}{\lambda_f} \quad (1)$$

موادی که به عنوان محیط متخلخل در فرآیند احتراق انتخاب می‌گردد بایستی دارای ضریب هدایت حرارتی و ظرفیت حرارتی بالا، به منظور افزایش سطح انتقال حرارت و افزایش مقاومت در مقابل شوک حرارتی باشند. تحقیقات زیادی به مدل‌سازی عددی انتقال حرارت و احتراق در محیط متخلخل اختصاص یافته‌است و بیشتر مطالعات یک بعدی بوده و از اثرات جریان در جهت عمود بر محور صرف نظر می‌شود. با رشد رایانه‌ها مدل‌های دو بعدی و سه بعدی آن در سال‌های اخیر مدل سه‌بعدی نیز ارائه شده‌است. در موارد پیشرفته‌تر بررسی سینتیک دقیق، پایداری شعله و مکانیزم‌های انتقال حرارت نیز به این‌گونه تحلیل‌ها اضافه‌شد [۱۴]. دسوت [۱۵] یک مطالعه

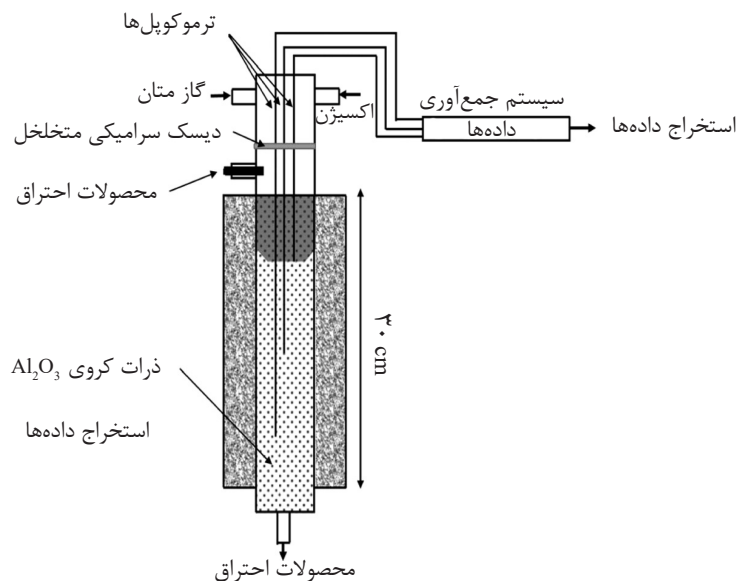
اکسیداسیون جزئی سوخت غنی متان در یک مشعل محیط متخلخل حاوی ذرات کروی آلومینا بوده که شامل دو ناحیه منطقه پیش‌گرم و منطقه واکنش است. با ملاحظه تقارن محوری و فرض عدم تعادل حرارتی بین دو فاز، معادلات انرژی برای جامد و گاز به‌صورت جداگانه حل شده‌است. به‌دلیل ناچیز بودن ضریب صدور و جذب گازها از تشعشع گاز صرف‌نظر کرده و انتقال حرارت تشعشع فقط برای جامد در نظر گرفته شده است.

تعریف مساله و سیستم تجربی

بررسی تئوری و تجربی احتراق جزئی متان با اکسیژن در یک راکتور حاوی مواد متخلخل خنثی (بدون کاتالیست) در این پژوهش صورت گرفته‌است. شکل ۱ طرح‌واره‌ای از دستگاه آزمایش را نشان می‌دهد. مدل حاضر شامل سه ناحیه است. قسمت اول: ناحیه اختلاط به طول ۱۰ cm و قطر ۳ cm، ناحیه دوم: پیش‌گرمایش به طول ۴ cm و قطر ۳ cm شامل فوم سرامیکی سیلیکون کاربید و ناحیه سوم: ناحیه احتراق ساخته‌شده که محیط متخلخل مورد استفاده در این ناحیه شامل گلوله‌های آلومینا به قطر ۳ تا ۵ mm به قطر ناحیه احتراق ۳ cm و طول ۳۰ cm است. همچنین در جدول ۱ می‌توان مشخصات محیط متخلخل مورد استفاده آمده‌است.

آنها از یک مدل شبه یک‌بعدی از مشعل محیط متخلخل اکسیداسیون ناقص برای اعتبار سنجی کار خود استفاده کردند. مدل آنها شامل جزئیات شیمیایی دقیق، استفاده از دو معادله انرژی برای فاز گاز و جامد و استفاده از انتقال حرارت تشعشعی برای فاز جامد بود. نتایج پارامتر شرایط عملیاتی آنها نشان می‌دهد که نسبت سوخت-هوای بهینه، نسبت بین تشکیل دوده و بازده ریفرمینگ است، همچنین نشان دادند که کوتاه‌شدن طول محیط متخلخل بی‌اثر و همچنین مخلوط کردن مقدار کمی از بخار آب با واکنش‌دهنده‌ها، روش مؤثری برای بهبود عملکرد عملیاتی مشعل فرآیند اکسیداسیون جزئی است. لوکوکو و همکاران [۱۹] به‌صورت تجربی و عددی فرآیند اکسیداسیون حرارتی جزئی متان در راکتور در ابعاد کوچک بررسی کردند. آنها به بررسی تولید گاز سنتز با استفاده از مخلوط پیش‌گرم متان- هوا پرداختند. فرآیندی که آنها آزمایش کردند مناسب برای کاربرد در فرآیند پیل سوختی جامد است. به همین منظور آنها بیشتر به بررسی کاراکترهای موثر برای کاربرد در پیل سوختی جامد مانند پروفیل دما و ترکیب گاز سنتز خروجی، به‌صورت عددی و تجربی پرداختند.

در این مقاله هدف بررسی عددی- تجربی



شکل ۱ طرح‌واره دستگاه آزمایش

از یک دستگاه آنالیزور محصولات احتراق و برای سنجش میزان H_2 از یک سنسور هیدروژن استفاده شده است. مقادیر دقت هر کدام در جدول ۲ قابل مشاهده است. همچنین از ترموکوپل‌های نوع C با دقت به ترتیب $\pm 0.1\%$ و $\pm 0.5\%$ که در مرکز رآکتور و در فواصل مساوی روی محور طولی نصب شده، جهت اندازه‌گیری دما استفاده گردید. ترموکوپل‌ها توسط محافظ سرامیکی^۱ نوع A به منظور احتراز از آسیب‌دیدگی در آزمون‌های طولانی پوشش داده شده‌اند (شکل ۳).

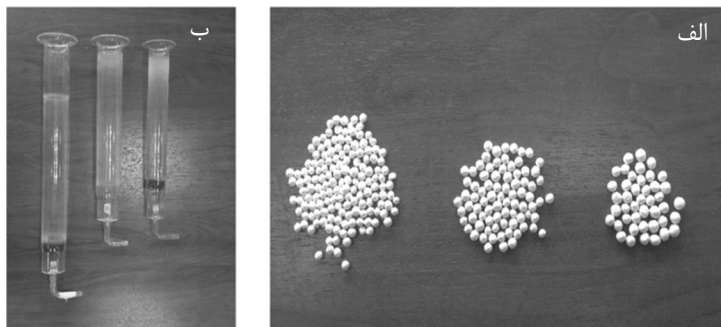
مدل‌سازی و معادلات حاکم

به منظور مدل‌سازی و بیان معادلات حاکم از تشعشع فاز گاز در مقایسه با فاز جامد صرف‌نظر شده است [۲۱]. معادله انرژی با شرط عدم تعادل حرارتی و به‌صورت جداگانه برای هر دو فاز گاز و جامد نوشته شده است.

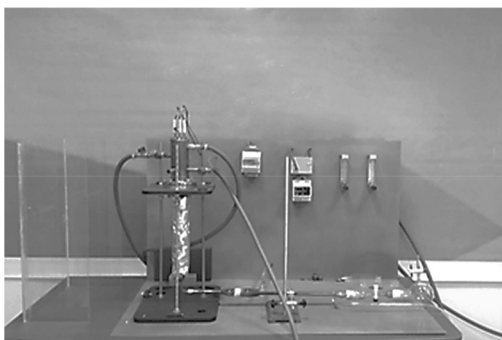
جدول ۱ مشخصات محیط متخلخل [۲۰]

۰/۶۳	ضریب تخلخل ϵ
۰/۰۱۵	قطر معادل $d_{por} (m)$
۳۲۰	سطح ویژه $a_p (m^{-1})$
۱۰۰	ضریب خاموشی $\beta (m^{-1})$
۰/۱۸	ضریب پخشی ω
۰/۴	ضریب صدور جامد ϵ

چنانچه مشاهده می‌شود از یک محفظه ورودی به‌عنوان پیش مخلوط متان و اکسیدانت استفاده شده است. محصولات احتراق خروجی از رآکتور پس از عبور از یک خنک‌کننده، آماده نمونه‌برداری می‌گردند. از ذرات کروی Al_2O_3 مشابه شکل ۲ به‌عنوان محیط متخلخل استفاده شده و در محفظه واکنش، لوله از جنس کوارتز در نظر گرفته شده است. جهت آنالیز محصولات احتراق



شکل ۲ الف- ذرات کروی Al_2O_3 و ب- محفظه واکنش



شکل ۳ نمایی از سیستم تجربی ساخته شده

جدول ۲ بیشترین خطای مقادیر اندازه‌گیری شده

شماره	کمیت	واحد	میزان خطای بیشینه
۱	دما	$^{\circ}C$	$\pm 1\%$
۲	غلظت H_2	PPM	2%
۳	غلظت O_2	درصد	1%
۴	غلظت CO	PPM	۱
۵	غلظت CO_2	%	0.1%

$$h_v = \left(\frac{6\epsilon}{d_p^2}\right) Nu \cdot K_g \quad (۸)$$

MW_i وزن مولکولی جزء λ_m و ϵ_i نرخ مولار^۲ تولید جزء i است. شرایط مرزی به صورت ثابت بودن دما و اجزای متان و اکسیژن در ورودی خواهد بود که برای حالت متان و اکسیژن خالص می‌تواند به صورت نرخ جرمی ورودی ثابت جایگزین گردد. شرایط خروجی به صورت عدم تغییرات سرعت، دما و جزء جرمی متان و اکسیژن بیان می‌گردد. شرایط ورودی این گونه تعریف می‌شود:

$$u = u_{in}; \quad v = 0; \quad T_f = T_{f,in}; \quad Y_{fuel} = Y_{f,in}; \quad Y_{OX} = Y_{OX,in}$$

$$(1-\hat{\alpha})K_s \frac{\partial T_s}{\partial Z} = -\hat{\alpha}_r \sigma (T_s^4 - T_0^4); \quad I = \frac{\sigma T_s^4}{\pi} \quad (۹)$$

که در آن T_0 دمای محیط معادل 300 K ، ϵ_r ضریب جذب و برابر با یک است. شرایط خروجی به صورت زیر است:

$$\frac{\partial u}{\partial z} = \frac{\partial v}{\partial z} = \frac{\partial T_f}{\partial z} = \frac{\partial Y_f}{\partial z} = \frac{\partial Y_{OX}}{\partial z} = 0$$

$$(1-\hat{\alpha})K_s \frac{\partial T_s}{\partial Z} = -\hat{\alpha}_r \sigma (T_s^4 - T_0^4); \quad I = \frac{\sigma T_s^4}{\pi} \quad (۱۰)$$

و شرایط تقارن نیز به صورت زیر است.

$$\frac{\partial u}{\partial r} = v = \frac{\partial T_s}{\partial r} = \frac{\partial T_f}{\partial r} = \frac{\partial Y_f}{\partial r} = \frac{\partial Y_{OX}}{\partial r} = 0 \quad (۱۱)$$

سینتیک دقیق اکسایش متان بسیار پیچیده است. یکی از جامع‌ترین این مکانیسم‌ها GR13 است که شامل ۵۳ جزء و ۳۲۸ واکنش ابتدایی است. با توجه به پیچیدگی این مکانیسم و مشکلاتی که به واسطه تفاوت شاخصه زمانی واکنش‌های ابتدایی با مقیاس زمانی در فرآیندهایی با مقیاس بزرگ‌تر اتفاق می‌افتد، طی سال‌ها بسیاری از محققین تلاش در یافتن مکانیسم معادل و ساده‌تر نموده‌اند [۲۴]. در این پژوهش علی‌رغم پیچیدگی مکانیسم‌ها در GR13 جهت مدل‌سازی سینتیک واکنش‌ها از این مکانیسم در ترکیب با کد CHEMKIN استفاده شده است. ضریب هدایت حرارتی ماده متخلخل به شدت وابسته به دما است. نتایج به‌دست‌آمده توسط ژوا و پیرا [۲۵] برای Al_2O_3 در جدول ۳ آورده شده است.

1. Ross land
2. Molar Rate

همچنین محیط متخلخل به صورت همگن (شامل ذرات کروی یکسان به قطر d_p) مد نظر قرار گرفته است. لذا براساس مقدار تخلخل ϵ برای محیط متخلخل معادله پیوستگی و مومنتوم را می‌توان به شکل زیر نمایش داد:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_g + \nabla \cdot (\rho_g u) = 0 \quad (۲)$$

$$\epsilon \left[\frac{\partial (\rho_g u)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_g u u_g) \right] = -\nabla \cdot P + \nabla \cdot (\mu \nabla u) + s \quad (۳)$$

همچنین معادله انرژی برای فاز گاز و جامد را با توجه به شرط عدم تعادل حرارتی می‌توان چنین نوشت:

$$\epsilon \frac{\partial}{\partial t} (C_g \rho_g T_g) + \epsilon \nabla \cdot (C_g \rho_g T_g u) = \epsilon \nabla \cdot (k_{eff-g} \nabla T_g) + \epsilon \sum_i w_i h_i W_i - h_{sg} (T_g - T_s) \quad (۴)$$

$$(1-\epsilon) \frac{\partial}{\partial t} (C_s \rho_s T_s) = \nabla \cdot (k_{eff-s} \nabla T_s) + h_{sg} (T_g - T_s) + h_s (T_s - T_0) \quad (۵)$$

که برای ایزولاسیون کامل راکتور می‌توان h_s را برابر صفر در نظر گرفت. معادله انتقال برای اجزا را می‌توان با استفاده از قانون فیک نمایش داد.

$$\epsilon \frac{\partial (\rho_g y_i)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_g u y_i) = \nabla \cdot (\rho_g D_{m,i} \nabla y_i) + \epsilon \epsilon_i (MW)_i \quad (۶)$$

همچنین به‌عنوان معادله تکمیلی از یک معادله حالت (مثلاً گاز ایده‌آل) می‌توان استفاده کرد. در اینجا C ، ρ و T به ترتیب بیانگر دانسیته، ظرفیت گرمایی ویژه و دما هستند. زیرنویس i بیانگر جزء λ_m فاز گازی و s و g به ترتیب بیانگر جامد و گاز می‌باشد. K_{eff} نیز بیانگر ضریب هدایت حرارتی مؤثر است که برای فاز گاز (K_{eff-g}) به صورت مجموع ضریب هدایت حرارتی گاز (k_g) و ترم پراکنش حرارتی $C_g D_{11}^a$ است و برای فاز جامد به صورت مجموع ضریب هدایت حرارتی جامد (k_s) و ترم تشعشعی فاز جامد (k_{rad}) برای ذرات جامد است که در اینجا توسط واسطه رزلند^۱ تقریب زده شده است [۲۲]. ضریب حجمی جابه‌جایی (h_v) با استفاده از رابطه Nu به صورت زیر برقرار می‌گردد [۲۳].

$$Nu = 2 + 1.1 Pr^{1/3} Re^{0.6} \quad (۷)$$

جدول ۳ تغییرات ضریب هدایت حرارتی آلومینا جامد نسبت به دما [۲۵]

۸۰۰	۶۰۰	۴۰۰	۲۰۰	۰	دما (°C)
۵/۷	۶/۵۱	۷/۹۱	۱۰/۷	۲۰/۹۳	ضریب هدایت حرارتی W/mK
	۱۵۰۰	۱۴۰۰	۱۲۰۰	۱۰۰۰	دما (°C)
	۵/۳	۴/۴	۴/۷۷	۵/۱۲	ضریب هدایت حرارتی W/mK

روش عددی

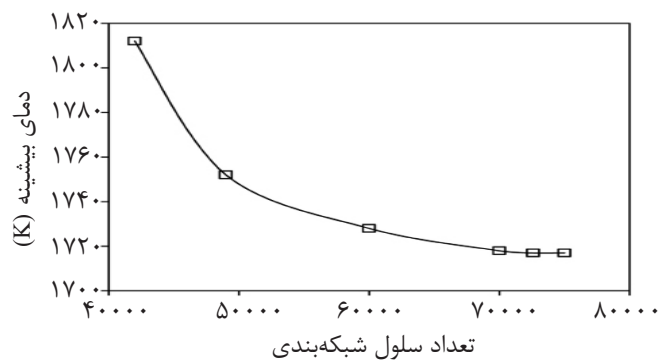
در این مدل سازی میدان حل به وسیله شبکه های سازمان یافته با المان های چهاروجهی تقسیم بندی شده است. در این تحقیق پایه هایی مربعی به طول های ۱ mm و ۰/۵ mm استفاده شده است. با انجام شبیه سازی بر روی شبکه بندی های مختلف، در نهایت با در نظر گرفتن دقت در نتایج و همچنین سرعت در انجام محاسبات، همان طور که در شکل ۴ نیز مشخص شده است، تعداد ۷۲۶۰۰ سلول انتخاب شد. معادلات حاکم به وسیله روش حجم محدود حل شده و از الگوریتم Piso برای ارتباط بین سرعت و فشار استفاده شده است. دقت همگرایی برای هر یک از معادلات 10^{-6} انتخاب شد و شبکه محاسباتی با استفاده از نرم افزار تجاری فلونت حل شده است. نرخ پیشرفت واکنش های شیمیایی، ویژگی های ترموفیزیکی و ترموشیمیایی توسط برنامه CHEMKIN و اطلاعات پایه آن به دست می آید [۲۴].

صحه گذاری روش عددی

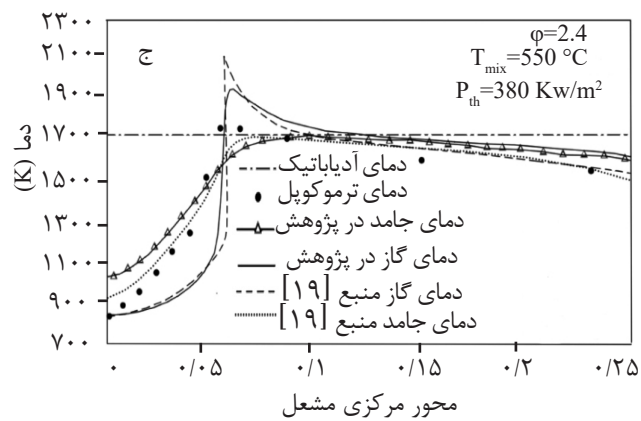
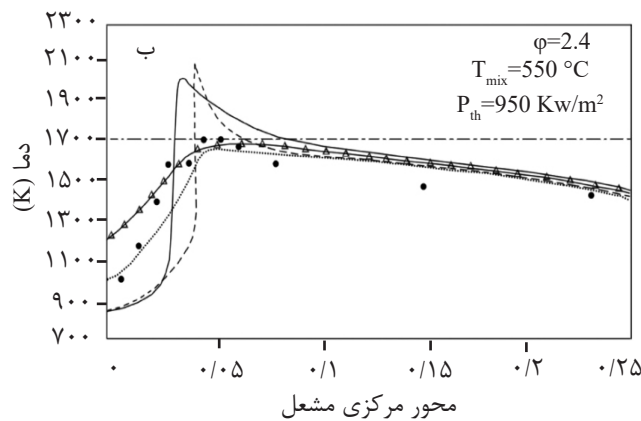
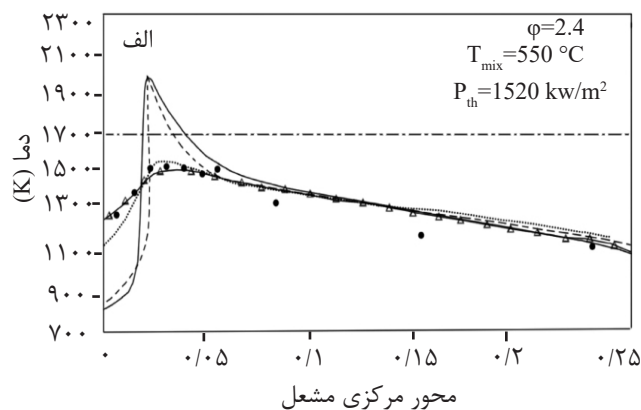
به منظور اعتبار سنجی شرایط شبیه سازی عددی، شبیه سازی مشعل محیط متخلخل ساخته شده در بخش احتراق موسسه فن آوری کارلسروهه [۱۹] مد نظر قرار گرفته است. به همین منظور نتایج شبیه سازی پژوهش حاضر با تست تجربی و شبیه سازی عددی مرجع فوق مقایسه گردیده است. شکل ۵ این مقایسه را برای دمای محور مرکزی مشعل نشان می دهد؛ هم خوانی مناسبی بین نتایج عددی این پژوهش و نتایج مرجع مورد ذکر مشاهده می شود.

نتایج

نتایج تجربی و عددی برای بازه های مختلف بار حرارتی، دمای پیش گرم و نسبت های هم ارزی مختلف ارائه شده در جدول ۴ به دست آمده است. نتایج حاصل از تست های تجربی شامل مقادیر دما در راستای محور مرکزی مشعل و غلظت اجزای محصول احتراق خروجی مؤثر بوده و نتایج خروجی شامل غلظت گونه های شیمیایی، دمای گاز و جامد است که با نتایج آزمایشگاهی مقایسه و مورد بحث و بررسی قرار گرفته است. همان طور که قبلا نیز ذکر شد، در این مقاله تلاش شده است تا ضمن انجام آزمایش تجربی برای اکسیداسیون جزئی متان برای یک راکتور لوله ای پر از مواد متخلخل، با هدف دستیابی به بیشینه مقدار درصد هیدروژن تولیدی، تاثیر مشخصه های محیط متخلخل، از جمله خواص ساختاری مواد مانند قطر ذرات و همچنین تغییرات فیزیکی در راکتور مانند قطر راکتور محاسبه شود و در نهایت نسبت هم ارزی سوخت و هوا و همچنین سرعت جریان ورودی سوخت و اکسیژن بر آن مورد تحلیل قرار گیرد. شکل ۶ نتایج تجربی توزیع دما در داخل راکتور نشان می دهد. چنانچه اشاره شد دماسنج برای اندازه گیری دما در طول راکتور مختلف نصب شده است. لازم به ذکر است که نتایج ارائه شده نتایج آزمون برای دبی حجمی یکسان متان و اکسیژن (۱۰۰ L/hr) است. نسبت هم ارزی در این مدل ($\phi = 2$) است. از جنبه های مختلف، نرخ جریان جرم بر احتراق حرارتی ناقص در محیط متخلخل تاثیر می گذارد که شامل: زمان اقامت، توزیع دما و بار گرمایی است.



شکل ۴ استقلال نتایج از شبکه بندی

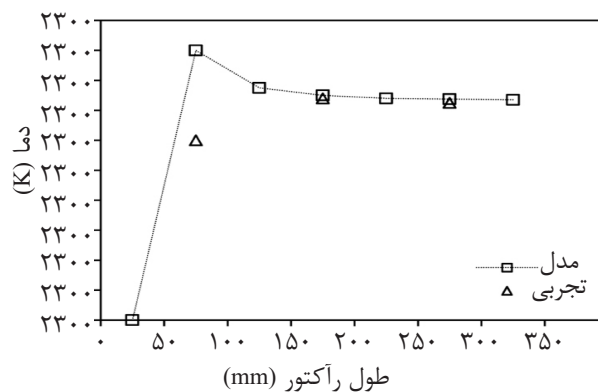


شکل ۵ تغییرات دما برحسب محور مرکزی مشعل برای نسبت‌های هم‌ارزی مختلف (مقایسه نتایج حاصل از این پژوهش درمقایسه با نتایج مرجع [۱۹])

جدول ۴ فضای حالت کمیت ورودی محاسبات

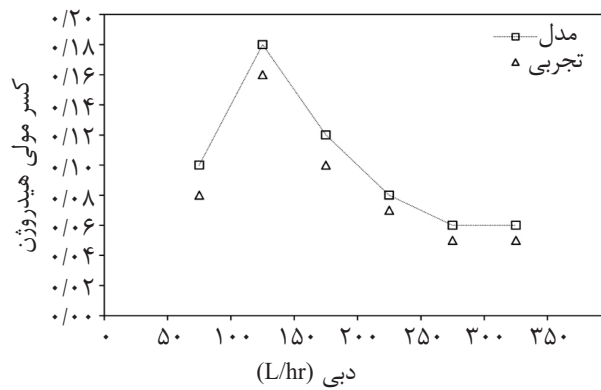
محدوده مورد بررسی				کمیت
حد بالا		حد پایین		
۴	۳	۲	۱/۵	ϕ
۴	۳	۲	۱	$Q_f/V = (Q_f/V)_0^*$
۲	-	-	۱	D/D_0
۱۵	-	-	۱۰	L/D_0
۰/۲	-	۰/۱	۰/۰۵	dp/D_0

$$*(Q_f/V)_0 = 4678.44 \text{ kw/m}^3, D_0 = 30 \text{ mm}$$

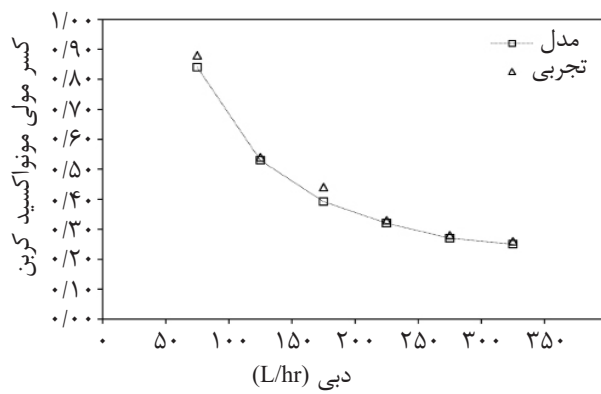
شکل ۶ توزیع دما در طول راکتور ($\phi=2, Q_{\text{methane}}=100 \text{ L/hr}, Q_{\text{Oxygen}}=100 \text{ L/hr}$)

جریان سیال نشان می‌دهد. قطر راکتور ۳۰ mm، طول ۳۰ cm و نسبت هم‌ارزی ۲ برای جریان‌های مختلف است. با توجه به شکل‌ها اگر چه رفتار هر دو منحنی تقریباً مشابه است ولی نسبت به هم دارای یک موقعیت انتقالی هستند. انتقال حرارت بالا در اجسام متخلخل نه تنها به علت هدایت حرارتی زیاد، بلکه همچنین به علت منافذ متعدد در اجسام متخلخل است که سطح انتقال حرارت و سپس انتقال گرما را افزایش می‌دهد. یک پارامتر موثر در این فرآیند، قطر گرانول در محیط متخلخل است. در این مدل‌سازی، قطر ذرات بین ۱ تا ۵ mm در نظر گرفته شده‌است. شکل ۹ تغییرات دما در خروجی راکتور را با گرانول اکسید آلومینیومی در قطرهای مختلف در یک راکتور با قطر ۳۰ mm، طول ۳۰ cm و نسبت هم‌ارزی ۱/۵ و ۲ را نشان می‌دهد.

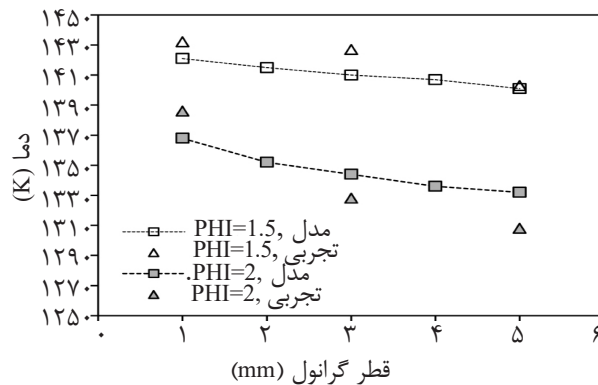
به سادگی می‌توان دریافت که نرخ جریان جرمی بالا باعث کاهش زمان اقامت در راکتور می‌شود. این بدان معنی است که واکنش‌دهنده‌ها زمان کوتاه‌تری برای تکمیل واکنش دارند. علاوه بر این، جریان جرمی بالای سوخت- هوا سبب افزایش گرمای آزاد شده در راکتور می‌شود. با این حال، اگر راکتور برای طیف گسترده‌ای از آشفتگی‌ها مانند راکتورهای متخلخل ساخته شده باشد، اثر زمان اقامت بر میزان تبدیل، کمتر از اثر توربولانسی و گرمای آزاد شده در ساختار متخلخل خواهد بود. بنابراین انتظار می‌رود که غلظت هیدروژن در بارهای حرارتی بالا بیشتر از میزان مشابه آن در بارهای کم حرارتی، علی‌رغم زمان اقامت نسبی کمتر باشد. شکل‌های ۷ و ۸ به ترتیب کسر مولی هیدروژن و مونوکسید کربن را در خروجی راکتور برای مقادیر مختلف



شکل ۷ مقادیر کسر مولی هیدروژن ($\phi=2, D=30\text{mm}, L=30\text{cm}$)



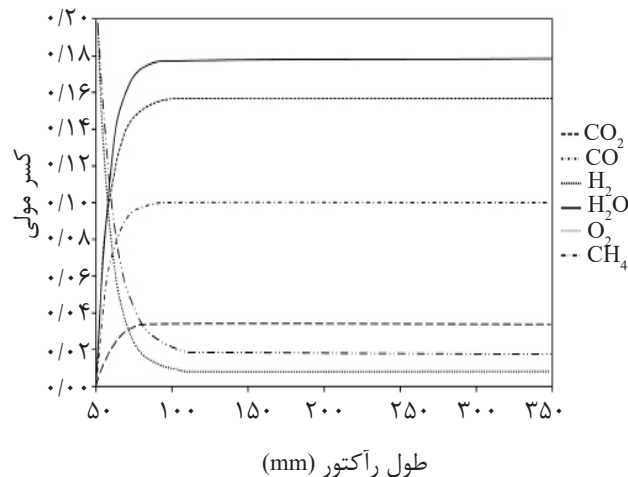
شکل ۸ مقادیر کسر مولی مونواکسید کربن ($\phi=2, D=30\text{mm}, L=30\text{cm}$)



شکل ۹ تغییرات دما در خروجی راکتور با گرانول اکسید آلومینیومی در قطرهای مختلف در یک راکتور با قطر ۳۰ mm، طول ۳۰ cm و نسبت هم‌آری ۱/۵ و ۲

واکنش‌ها در کمتر از ۱۵٪ طول راکتور (بدون احتساب ناحیه پیش اختلاط) به تعادل نسبی رسیده‌اند. چنانچه ذکر شد به منظور بررسی تاثیر مشخصه‌های ورودی بر میزان محصولات احتراق، آزمون‌های تجربی و مدل‌سازی برای مجموعه حالت‌های ورودی مشخص شده در جدول ۴ صورت گرفت.

اکسیداسیون ناقص متان منجر به محصولات نظیر CO ، H_2 و یا CH_2 در دمای بالا و غلظت ناکافی اکسیژن می‌شود. در احتراق ناقص متان، غلظت آب تولیدی در جریان خروجی می‌تواند به مقادیر بیش از ۱۵٪ برسد. شکل ۱۰ یک نمونه از مقادیر کسر مولی محصولات احتراق را در موقعیت‌های مختلف طولی راکتور نشان می‌دهد. عمده تبدیل‌ها و



شکل ۱۰ مقادیر کسر مولی مونواکسید کربن ($\phi=2, D=30\text{mm}, L=30\text{cm}$)

نسبت تبدیل و راندمان انرژی احتراق ناقص متان

نسبت تبدیل متان یک شاخص مناسب جهت مشاهده چگونگی مصرف متان در فرآیند فرمینگ است. سه شاخص نسبت تبدیل متان به هیدروژن، $\text{CH}_4\text{-H}_2$ ، نسبت تبدیل متان به مونواکسید کربن $\text{CH}_4\text{-CO}$ و تبدیل کلی متان به عنوان شاخص های مهم در مصرف این سوخت در یک فرآیند اکسیداسیون جزئی [۲۷] با استفاده از روابط زیر در حالت های مختلف محاسبه شده است.

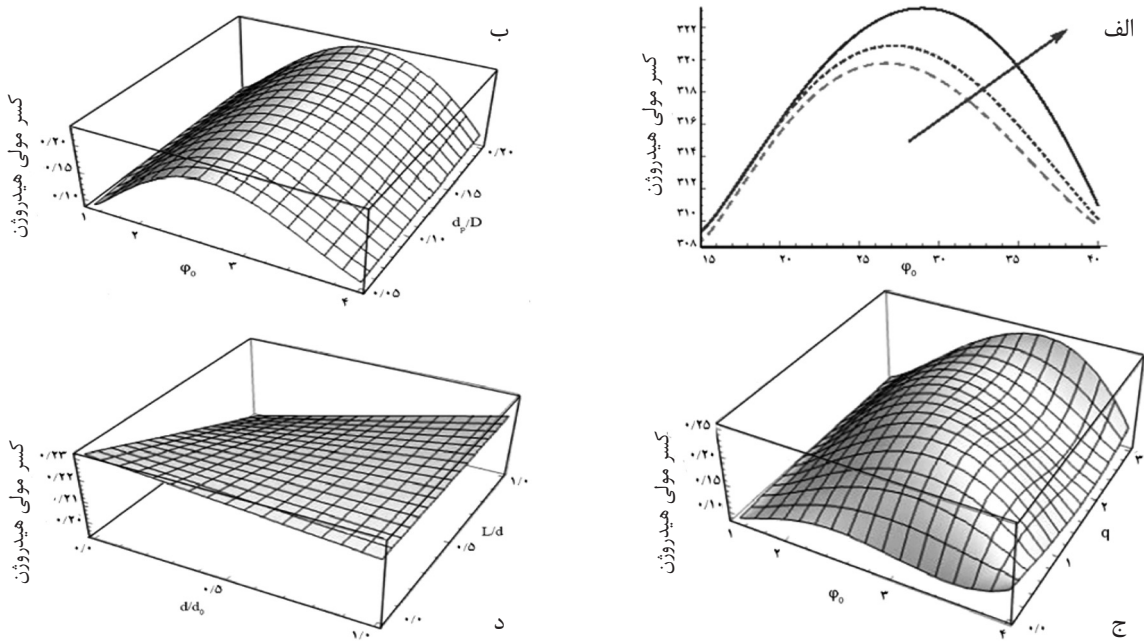
$$\eta_{\text{CH}_4} = \frac{[\text{CH}_4]_{\text{out}}[\text{N}_2]_{\text{in}} + [\text{CH}_4]_{\text{out}}[\text{N}_2]_{\text{out}}}{[\text{CH}_4]_{\text{in}}[\text{N}_2]_{\text{out}}} \quad (12)$$

$$\eta_{\text{CH}_4\text{-H}_2} = \frac{[\text{H}_2]_{\text{out}} + [\text{N}_2]_{\text{in}}}{2[\text{CH}_4]_{\text{in}}[\text{N}_2]_{\text{out}}} \quad (13)$$

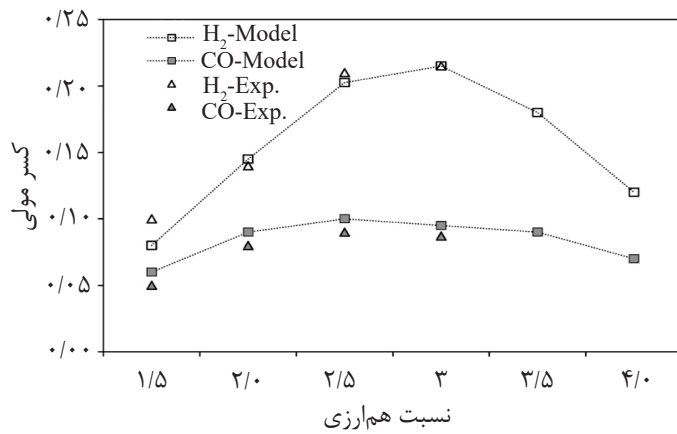
$$\eta_{\text{CH}_4\text{-CO}} = \frac{[\text{CO}]_{\text{out}} + [\text{N}_2]_{\text{in}}}{[\text{CH}_4]_{\text{in}}[\text{N}_2]_{\text{out}}} \quad (14)$$

شکل ۱۳ نشانگر تغییرات مقادیر نسبت های تبدیل ذکر شده برحسب تغییرات نسبت هم آروزی برای $(d_p=6\text{mm}, D=30\text{mm} \ \& \ L=30\text{cm})$ می باشد. با افزایش نسبت هم آروزی نسبت تبدیل متان کاهش می یابد. در حالی که نتایج عددی نشان می دهد که نسبت $\eta_{\text{CH}_4\text{-H}_2}$ و همچنین نسبت $\eta_{\text{CH}_4\text{-CO}}$ با افزایش نسبت هم آروزی از مقدار $\phi=1/5$ افزایش می یابند و در حوالی $\phi=2$ به بیشینه مقدار خود می رسند. $\eta_{\text{CH}_4\text{-CO}}$ تقریباً در $\phi=2$ به بیشینه مقدار خود (۰.۶۳/۷) می رسد، این در حالی است که $\eta_{\text{CH}_4\text{-H}_2}$ دارای مقدار بیشینه ای در حدود ۰.۴۲/۵ به ازای $\phi=2/25$ هستند.

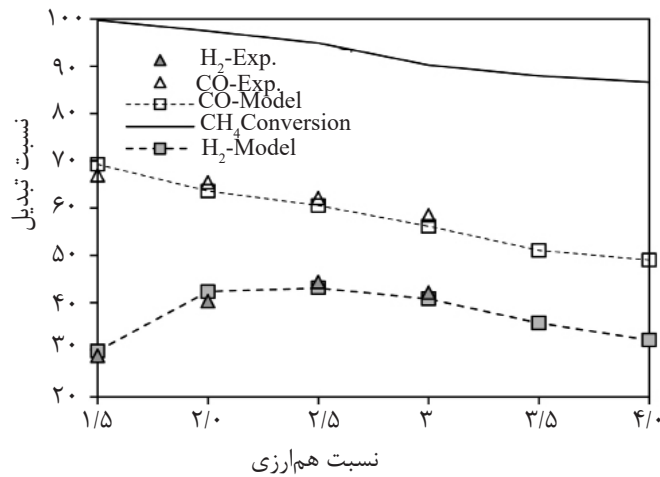
شکل ۱۱ به صورت اجمالی تاثیر پارامترهای ورودی را بر میزان کسر مولی هیدروژن تولید شده نشان می دهد. شکل ۱۱-الف و ۱۱-ب تاثیر نسبت هم آروزی و d_p/D را نشان می دهد. چنانچه مشخص است میزان بیشینه کسر مولی هیدروژن به ازای نسبت هم آروزی دارای یک فرم درجه دو است و با افزایش d_p/D افزایش می یابد. همچنین شکل ۱۱-ج نشان می دهد که قطر ۳۰ mm و نسبت برابر ۱۰ بهترین شرایط ورودی برای دستیابی به میزان بهینه کسر مولی هیدروژن است. در نهایت تاثیر هم زمان ϕ و q بر میزان هیدروژن تولیدی در شکل ۱۱-د ارائه شده است. مشخص است که میزان q برای بیشینه کسر مولی هیدروژن در حدود ۲/۲ (حرارت آزاد شده بر واحد حجم $10292/568 \text{ kWh/m}^3$) می باشد. چنانچه از شکل ۱۲ مشخص است میزان کسر مولی هیدروژن با افزایش نسبت هم آروزی افزایش می یابد و در $\phi \cong 2/9$ به مقدار بیشینه خود ($\text{H}_{2,\text{max}}=0/22$) می رسد و پس از آن با افزایش ϕ کاهش می یابد. نتایج حاصل از آزمون های تجربی (در مقادیر اندازه گیری شده) مطابقت خوبی با نتایج عددی نشان می دهد. نسبت کسر مولی هیدروژن به مونواکسید کربن نیز برحسب افزایش نسبت هم آروزی افزایش می یابد. البته این مقدار از یک رابطه خطی برحسب نسبت هم آروزی پیروی می کند.



شکل ۱۱ مقادیر کسر مولی هیدروژن برحسب تغییرات نسبت هم‌ارزی: الف و ب- برحسب نسبت هم‌ارزی و نسبت d_p/D ، ج- برحسب نسبت هم‌ارزی و نسبت $q=Q/Q_0$ و د- برحسب نسبت D/D_0 و نسبت L/D .



شکل ۱۲ مقادیر کسر مولی محصولات احتراق برحسب تغییرات نسبت هم‌ارزی ($d_p=6mm, D=30mm, L=30cm$)



شکل ۱۳ مقادیر نسبت تبدیل محصولات احتراق برحسب تغییرات نسبت هم‌ارزی ($d_p=6mm, D=30mm, L=30cm$)

به دست آمده‌اند. براساس مجموعه داده‌ها، شرایط تولید بیشینه کسر مولی هیدروژن و سایر محصولات، همچنین بیشینه نسبت تبدیل کلی متان و تبدیل آن به هیدروژن و منوکسید کربن به دست آمده‌اند. نتایج تجربی و عددی از تطابق خوبی در بخش عمده‌ای از فضای حالت برخوردار بودند. راندمان کلی انرژی مشعل در حالت بهینه نیز محاسبه شد که نشان می‌دهد برای شرایط ورودی مناسب بیشینه تولید هیدروژن می‌تواند با راندمان انرژی نسبتاً مطلوب ۷۵٪ همراه گردد. نتایج نشان می‌دهد که یک محدوده از پارامترهای ورودی برای دستیابی به کسر مولی هیدروژن وجود دارد. این مقادیر معرف راکتور به قطر ۳۰ mm؛ $L/D=10$ ، $d_p/D=0/2$ و مشخصات فرآیند $Q/Q_0=2/2$ و نسبت هم‌ارزی ۲/۹ است. با توجه به ایجاد یک مجموعه داده از نتایج برحسب فضای حالت در نظر گرفته‌شده و یافتن شرایط برای بیشینه هیدروژن تولیدی؛ برای اولین بار در این تحقیق بهینه پارامترهای هندسی و طراحی منجر به هیدروژن بیشینه تولیدی تعیین گردید و مشخص شد که نسبت هم‌ارزی بهینه فرآیند تابعی از سایر پارامترهای ورودی است و احتمالاً اختلاف سایر محققین در میزان نسبت هم‌ارزی بهینه به اختلاف در مشخصات مشعل و شرایط ورودی مختلف به کار رفته توسط آنها باز می‌گردد. علی‌رغم احتراق ناقص، با انتخاب شرایط بهینه مناسب فرآیند از راندمان انرژی مناسبی برخوردار است.

علائم و نشانه‌ها

- A : مساحت (m^2)
 a_p : سطح ویژه (m/L)
 C_p : ظرفیت گرمایی ویژه ($J/kg \text{ } ^\circ C$)
 d_m : قطر معادل (m)
 d_p : قطر ذره (m)
 H : ضریب انتقال حرارت حجمی (W/m^3k)
 L : طول (m)
 P : فشار (pa)

در محدوده نسبت هم‌ارزی بین دو و نیم تا سه، مقدار تبدیل متان به هیدروژن دارای تغییرات ناچیز بوده و با افزایش بیشتر نسبت هم‌ارزی با آهنگ کندی کاهش می‌یابد. مقدار تبدیل متان به مونو اکسید کربن، با افزایش نسبت هم‌ارزی با شیب ملایم خطی کاهش می‌یابد.

راندمان انرژی یکی از مهم‌ترین مشخصه‌های یک فرآیند است. برای فرآیند مورد نظر راندمان انرژی را می‌توان با توجه به واکنش‌دهنده‌ها و محصولات احتراق تعریف کرد. به نظر می‌رسد راندمان کلی انرژی حرارتی و راندمان تبدیل هیدروژن که در ادامه تعریف می‌شوند می‌توانند معیار مناسبی برای این فرآیند باشند.

$$\eta_e = \frac{\sum_{product,i} f_{out,i} LHV_{out,i}}{f_{CH_4,in} LHV_{CH_4}} \quad (15)$$

$$\eta_e = \frac{f_{H_2,out} LHV_{H_2}}{f_{CH_4,in} LHV_{CH_4}} \quad (16)$$

نتایج حاصل از محاسبات نشان می‌دهد که راندمان حرارتی فرآیند براساس نسبت هم‌ارزی افزایش می‌یابد. با افزایش نسبت هم‌ارزی از ۱/۵ به ۳ راندمان انرژی از ۴۲/۵٪ تا ۷۵٪ افزایش می‌یابد و با گذر از نسبت هم‌ارزی ۳ تقریباً ثابت می‌ماند. راندمان انرژی تبدیل هیدروژن برای نسبت هم‌ارزی بزرگ‌تر از ۲/۳ تقریباً در میزان ۲۷٪ ثابت است.

نتیجه‌گیری

در این مقاله یک سیستم تجربی احتراق ناقص متان طراحی و ساخته شده است. به منظور بررسی تاثیر پارامترهای موثر ورودی از راکتورهای با ابعاد مختلف و ذرات کروی آلومینیا در سایز گوناگون استفاده شد. همچنین آزمون‌ها در شرایط مختلف ورودی جریان هوا و متان انجام پذیرفت. باتوجه به پارامترهای موثر بر مشخصات محصولات فرآیند، با در نظر گرفتن یک محدوده ناپیوسته مناسب برای هریک از پارامترهای ورودی یک فضای حالت برای آزمون‌ها و محاسبات ایجاد و به‌ازای مجموعه حالت‌های ایجاد شده نتایج

ρ : چگالی (kg/m^3)	P_{th} : بار حرارتی (kW/m^3)
λ : ضریب انتقال حرارت هدایتی (W/mK)	P_e : عدد پکلت
ϵ : ضریب تخلخل	S_f : سرعت آرام شعله (m/s)
β : ضریب خاموشی (m/L)	T : دما (K)
ϵ : ضریب صدور	V : بردار سرعت (m/s)
ω : ضریب پخشی	
μ : ویسکوزیته دینامیکی (Pa.s)	

علائم یونانی

ϕ : نسبت هم‌ارزی

مراجع

- [1]. Al-Hamamre Z. and Voss S. and Trimis D., "Hydrogen production by thermal partial oxidation of hydrocarbon fuels in porous media based reformer," International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 34, No. 2, pp. 827–832, 2009.
- [2]. Kazim A., Liu H. T. and Forges P., "Modelling of performance of PEM fuel cells with conventional and interdigitated flow fields," Journal of Applied Electrochemistry, Vol. 29, No. 12, pp. 1409–1416, 1999.
- [3]. Van Nguyen, T., "Modeling two-phase flow in the porous electrodes of proton exchange membrane fuel cells using the interdigitated flow fields," Proceedings-Electrochemical Society, (Tutorials in Electrochemical Engineering-Mathematical Modeling), pp. 222–241, 1999.
- [4]. Vielstich W., Lamm A. and Gasteiger A. H., "Handbook of fuel cells, fundamentals technology and application," Hoboken, USA: John Wiley & Sons Inc., 2004.
- [5]. Kaloidas V. E. and Papayannakos N. G., "Hydrogen production from the decomposition of hydrogen sulphide, Equilibrium studies on the system $\text{H}_2\text{S}/\text{H}_2/\text{Si}$, ($i/4, 1, \dots, 8$) in the gas phase," Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 16, No. 6, pp. 403–409, 1987.
- [6]. Lee J. Y., Lee P. H., Park C. S., Park B. II and Hwang, S. S. "Combustion characteristics of mixture of anode off gas and LNG in reformer," International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 36, No. 8, pp. 5181-5188, 2011.
- [7]. Mitchell W., "Development of a partial oxidation reformer for liquid fuels," Society of Automotive Engineers, In: Proceedings, Fuel Cells for Transportation TOPTEC, Arlington, VA., 1996.
- [8]. Cross J., "Gasoline fuel processing: a system perspective," Presented at the IQPC Fuel Cells Infrastructure Conference, Chicago, IL, 1999.
- [9]. Pena M. A., Gómez J. P. and Fierro, J. L. G., "New catalytic routes for syngas and hydrogen production," Applied Catalysis A: General, Vol. 144, No. 2, pp. 7–57, 1996.
- [10]. Weinberg F. J., "Combustion temperatures: the future," Nature, Vol. 233, pp. 239-241, 1971.
- [11]. Wood S. and Harris, A. T. "Porous burners for lean-burn applications," Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 34, No. 5, pp. 667-684, 2008
- [12]. Han S., Park J., Song S. and Min Chun K., "Experimental and numerical study of detailed reaction mechanism optimization for syngas ($\text{H}_2 + \text{CO}$) production by non-catalytic partial oxidation of methane in a flow reac

- tor," International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 35, No. 16, pp. 8762-8771, 2010.
- [13]. Babkin V. S., Korzhavin A. A. and Bunev V. A., "Propagation of premixed gaseous explosion flames in porous media," Combustion and Flame, Vol. 87, No. 2, pp. 182–190, 1991.
- [14]. Vafai K., "Handbook of porous media," Third Edition, CRC Press Taylor and Francis Group, 2005.
- [15]. De Soete G. "Stability and propagation of combustion waves in inert porous media," In Symposium (International) on Combustion, Vol. 11, No. 1, pp. 959-966, 1967.
- [16]. Hsu P. F. and Matthews R. D., "The necessity of using detailed kinetics in models for premixed combustion within porous media," Combustion and Flame, Vol. 93, No. 4, pp. 457–466, 1993.
- [17]. Al-Hamamre Z., Al-Zoubi A. and Trimis D., "Numerical investigation of the partial oxidation process in porous media based reformer," Combustion Theory and Modelling, Vol. 14, No. 1, pp. 91–103, 2010.
- [18]. Miguel A. A., Mendes J. M. C. and Pereira, J. C. F., "Numerical study of methane TPOX within a small scale Inert Porous Media based reformer," International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 39, No. 9, pp. 4311-4321, 2014.
- [19]. Loukou A., Mendes M. A. A., Frenzel I., Pereira J. M. C., Ray S., Pereira J. C. F., and Trimis D. "Experimental and numerical investigation of methane thermal partial oxidation in a small-scale porous media reformer," International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 42. No. 1, pp 652-663, 2017.
- [20]. Zhdanok S. A., "Porous media combustion based hydrogen production," Proc. of the European Combustion Meeting, The French Section of the Combustion Inst. Vol. 1, 2003.
- [21]. Malico I. and Pereira J. C. F., "Numerical study on the influence of radiative properties in porous media combustion," ASME Journal of Heat Transfer, Vol. 123, No. 5, pp. 951-957, 2001.
- [22]. Modest M. F. "Radiative heat transfer," Third Edition, Academic Press, 2013.
- [23]. Dhamrat R. S. and Ellzey J. L., "Numerical and experimental study of the conversion of methane to hydrogen in a porous media reactor," Combustion and Flame, Vol. 144, No. 4, pp. 698–709, 2006.
- [24]. Kee R. J., Miller J. A. and Jefferson T. H., "CHEMKIN: a general purpose problem independent, transportable, Fortran, chemical kinetic program package," Sandia National Lab. Report, SAND80-8003, 1989.
- [25]. Zhou X. Y. and Pereira J. C. F., "Numerical study of combustion and pollutants formation in inert nonhomogeneous porous media," Combust Sci. Technol. Vol. 130, pp. 335-364, 1997.



Enhancement of Hydrogen Production of Methane Incomplete Combustion through Porous Medium

MohammadReza Shahnazari*, Hedayat Mousavi, and Ali Saberi

Mechanics Engineering Department, K. N. Toosi University of Technology, Tehran, Iran

Shahnazari@kntu.ac.ir

DOI: 10.22078/pr.2018.3079.2425

Received: December/28/2017

Accepted: August/04/2018

INTRODUCTION

Hydrogen is referred as the fuel of the future, because the Hydrogen has many sources of production, the highest energy per mass unit and the lowest pollution in the combustion process [1]. It is also the reaction product of hydrogen and oxygen in the fuel cell is water, which is ideal for nature. The steam reforming, thermal partial oxidation (PO_x) and auto-thermal reforming are methods for producing hydrogen. Auto thermal reforming (ATR) is a combination of steam reforming and partial oxidation [2]. Compared with the other reforming technologies partial oxidation process has several advantageous. There is no need for external heat sources and additional feeds like water as in steam reforming. It has a good dynamic response, a very simple system design and can be applied to almost all hydrocarbons [3, 4].

Numerous experimental and numerical studies have been conducted on hydrogen production in

porous media. A model for premixed combustion within porous inert media has been studied by Hsu and Matthews [5]. Their results have shown that single-step kinetics is adequate for predicting all the flame characteristics except the emissions for the very lean conditions. Numerical investigation of the thermal partial oxidation process of Methane in porous media based reformer performed by Al-Hamamre et al [6]. Their model was able to predict the temperature behavior in the reformer reasonably well. Also they mentioned that however the concentrations of H_2 and CO are under predicted while the H_2O concentration was over predicted. Also, Methane Thermal Partial Oxidation (TPOX) within a small scale Inert Porous Media (IPM) based reactor has been investigated by Miguel et al [7]. Moreover, a quasi-1D model of the TPOX reactor has been used by them to study the process and explore the operating conditions and possible procedures for maximizing the reforming efficiency and

minimizing the soot formation. Also, it has been found by them that a high preheating temperature of the reactants is beneficial for the process, and the effect of power input is negligible for the reforming efficiency.

EXPERIMENTAL PROCEDURE

The partial oxidation apparatus is shown in Figure 1 schematically. The apparatus consists of a combustion tube filled with a porous medium, fuel and air supply system and temperature measurement system. Also, a combustion tube with three internal diameters and wall thickness of 2 mm and the packed bed of 1, 3 and 5 mm solid Al_2O_3 spheres as the porous medium with different porosity has been used by us (Figure 2). It should be mentioned that the reactants are mixed in mixing chamber, and also a reservoir tank is provided to gather the gas after passing the gas cooling

system for testing sample. Also, the measurement instruments are used to analyze the Oxygen, CO, CO_2 and CH_4 , and also C-type thermocouples with the accuracy of $\pm 0.5\%$ and $\pm 1.0\%$ are installed at the center of the reactor to measure the temperature and are covered with a layer of A-type ceramic paper insulation to avoid damage.

GOVERNING EQUATION

In order to model and introduce the governing equations, the radiation of the gas phase is ignored. It is considered that the porous medium is homogeneous, so the continuum and momentum equations are as follows (Equations 1 and 2):

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_g + \nabla \cdot (\rho_g u) = 0 \tag{1}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} p_g + \nabla \cdot (p_g u) = 0 \tag{2}$$

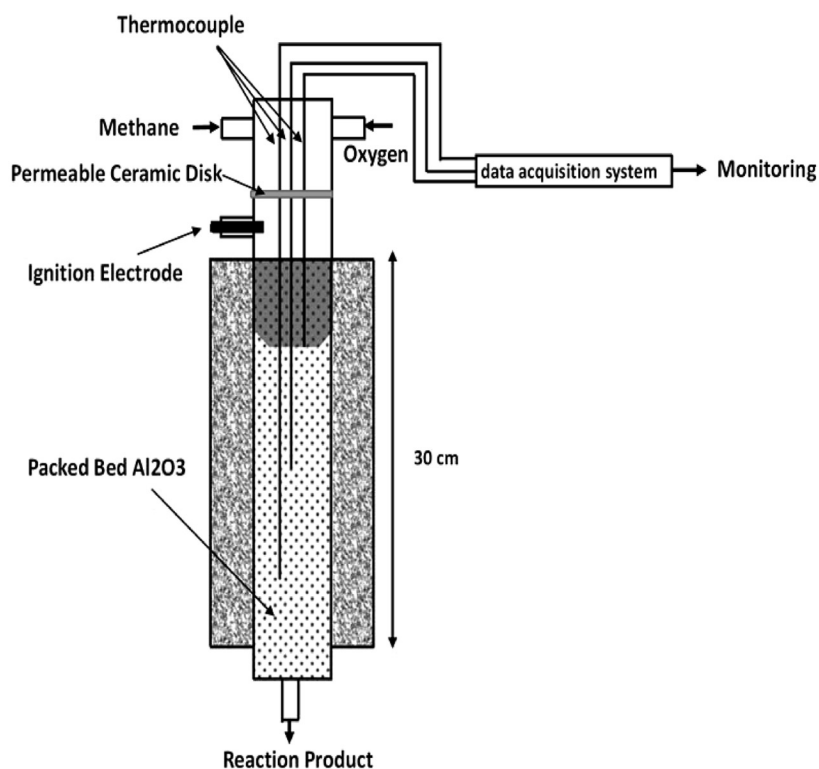


Figure 1: Schematic of the apparatus.

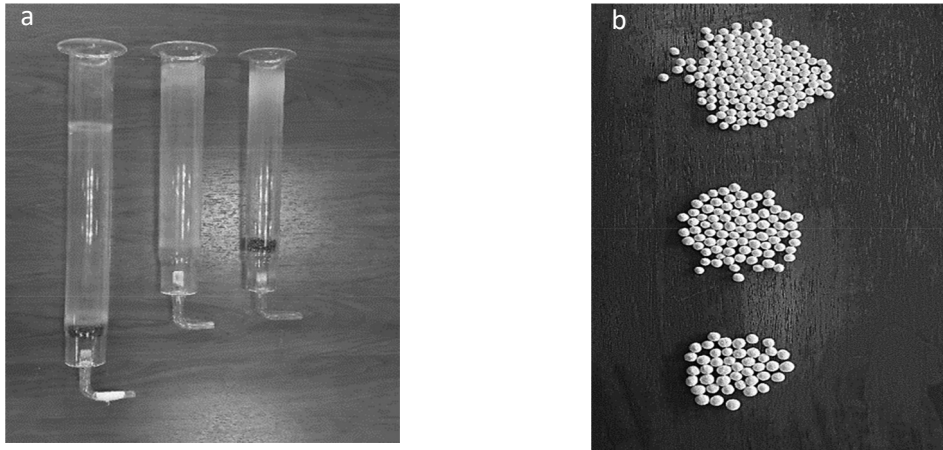


Figure 2: a) Combustion reactor tube with different length and diameter and b) Packed bed of 1, 3, and 5 mm solid Al_2O_3 .

The energy equation for the gas and the solid phase is as follows (Equations 3 and 5):

$$\epsilon \left[\frac{\partial(\rho_g u)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_g u u_g) \right] = -\nabla \cdot P + \nabla \cdot (\mu \nabla u) + s \quad (3)$$

$$(1 - \epsilon) \frac{\partial}{\partial t} (C_s \rho_s T_s) = \nabla \cdot (k_{eff-s} \nabla T_s) + h_{sg}(T_g - T_s) + h_s(T_s - T_0) \quad (4)$$

It can be assumed that h_s is zero. By using Fick's law, it can be written:

$$\begin{aligned} \epsilon \frac{\partial(\rho_g y_i)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_g u y_i) \\ = \nabla \cdot (\rho_{gi} D_{m,i} \nabla y_i) + \epsilon \epsilon_i (MW)_i \end{aligned} \quad (5)$$

Where ρ , C and T are density, heat capacity and temperature, respectively. The parameter K_{eff} is the effective thermal conductivity factor [8]. one can use a state equation (e.g., ideal gas) as an additional equation. In this study, despite the complexity of the GR13 mechanism to modeling the kinetic reactions, the combination of the CHEMKIN code and GR13 mechanism is used. The thermal conductivity of the porous material is temperature dependent. The governing equations are solved by a finite volume method and also the Piso algorithm is used. The rate

of chemical reactions, thermo-physical and thermo-chemical properties are achieved by the CHEMKIN program and its basic information.

Results and Discussion

Figure 3, shows the experimental results of temperature distribution inside the reactor. As mentioned, the thermometer has been installed in different length of reactor to measure temperature. Figures 4 and 5 show the hydrogen and carbon monoxide mole fraction in the reactor outlet in different values of flow rate, respectively in the case where the diameter of the reactor is 30 mm, the length is 30 cm and the equivalence ratio is 2. It can be conclude that although the behavior of both curves is almost the same, they have a relative transitional position to each other. High heat transfer in porous medium is due to the presence of multiple pores in porous objects, which increases the heat transfer surface. The diameter of the granule is an effective parameter in this process. Figure 6 shows the temperature variations in the reactor output versus diameter of the aluminum oxide granule. Figure 8 shows the effect of input parameters on the H_2 mole fraction.

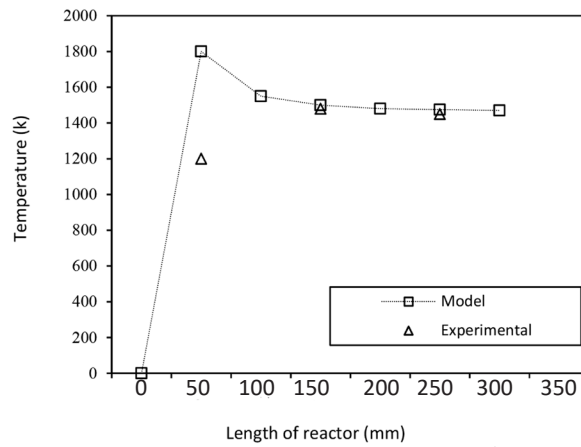


Figure 3: Variation of temperature in $\phi=2$, $Q_{\text{methane}}=100$ lit/hour, $Q_{\text{Oxygen}}=100$ lit/hour.

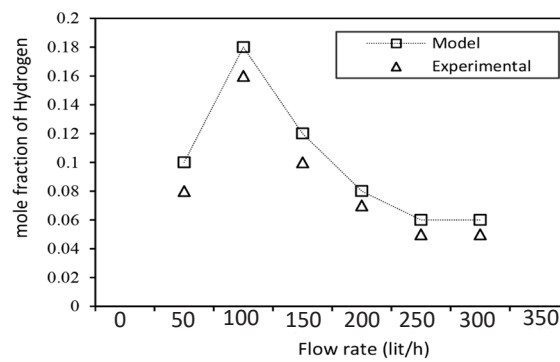


Figure 4: Mole fraction of Hydrogen versus flow rate in $\phi=2$, $D=30\text{mm}$, $L=30\text{cm}$.

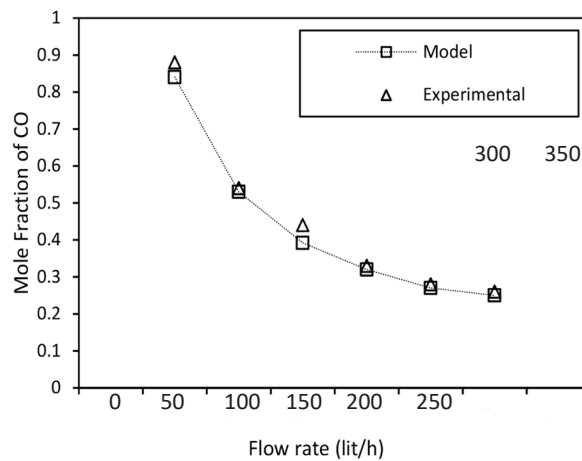


Figure 5: Mole fraction of CO versus flow rate in $\phi=2$, $D=30\text{mm}$, $L=30\text{cm}$.

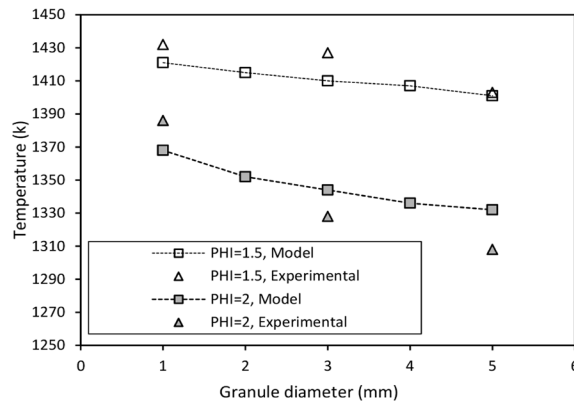


Figure 6: Variation of temperature versus Granule diameter in $\phi=1.5$ and $\phi=2$.

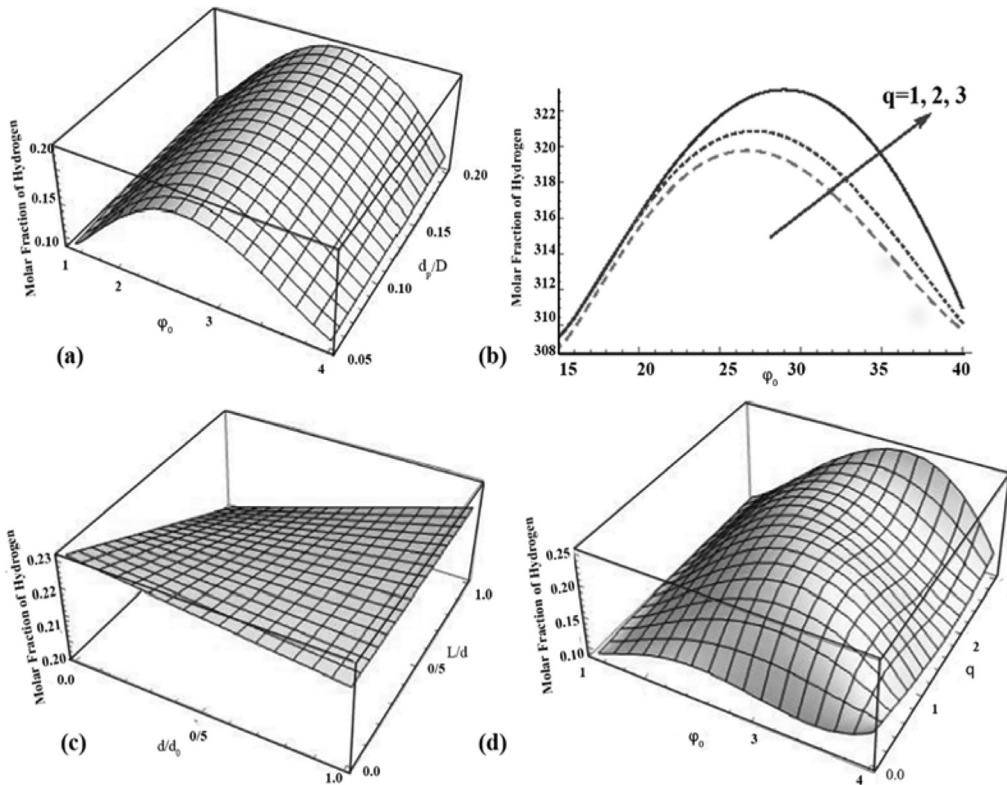


Figure 7: Variation of mole fraction with a) and b) equivalence ratio and d_p/D c) $q=Q/Q_0$ and equivalence ratio d) D/D_0 and $L/$.

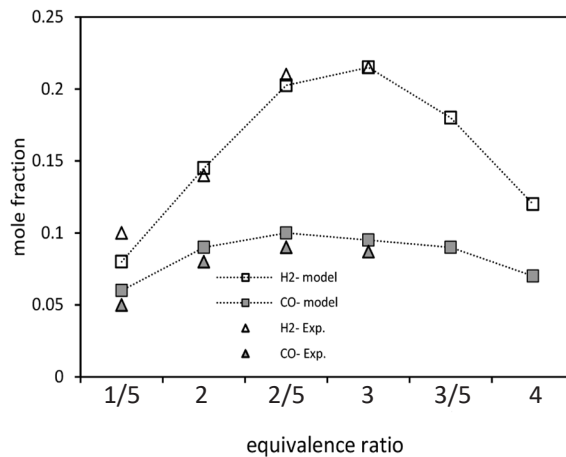


Figure 8: Mole fraction versus equivalence ratio $d_p=6$ mm, $D=30$ mm, and $L=30$ cm.

Figures (7-a) and (7-b) show the effect of the equivalence ratio and d_p/D . It can be concluded that the maximum mole fraction of hydrogen is in a second order form and increases as d_p/D increases. According to Figure 8-c, the best conditions to obtain optimal mole fraction of H_2 are $D=30$ mm and $L/D=10$. The simultaneous effects of φ and q on the mole fraction of produced hydrogen is shown in Figure 8-d. It is shown that $q=2.2$ in the maximum value of H_2 mole fraction.

As shown in Figure 8, the value of H_2 mole fraction increases as the equivalence ratio increases and in $\varphi \cong 2.9$ reaches to its maximum value ($H_{2,max}=2.2$).

CONCLUSION

In this paper, in order to investigate the effect of different input parameters, various sizes of reactors and spherical particles of alumina have been used experimentally. Also, the experiment tests have been carried out under different conditions of air and methane flow, and the results show a good agreement between the experimental and numerical methods.

For the first time, the optimal geometric parameters have been determined to reach maximum H_2 production. Also, it has been shown that the optimal equivalence ratio is a function of input parameters. The optimum efficiency of the burner is calculated. Moreover, under good input conditions, the maximum hydrogen production can be achieved with a relatively optimal 75% energy efficiency. Moreover, the best conditions for obtaining the optimal mole fraction of H_2 are $D=30$ mm, $L/D=10$, $d_p/D=0.2$, $Q/Q_0=2.2$, and $\phi=2.9$. It can be concluded that despite incomplete combustion, using specific conditions lead to considerable energy efficiency.

REFERENCES

- [1]. Al-Hamamre Z. and Voss S. and Trimis D., "Hydrogen production by thermal partial oxidation of hydrocarbon fuels in porous media based reformer," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 34, No. 2, pp. 827–832, 2009.
- [6]. Lee J. Y., Lee P. H., Park C. S., Park B. II and Hwang, S. S. "Combustion characteristics of mixture of anode off gas and LNG in reformer," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, No. 8, pp. 5181-5188, 2011.
- [7]. Mitchell W., "Development of a partial oxidation reformer for liquid fuels," *Society of Automotive Engineers*, In: *Proceedings, Fuel Cells for Transportation TOPTEC*, Arlington, VA., 1996.
- [8]. Cross J., "Gasoline fuel processing: a system perspective," presented at the *IQPC Fuel Cells Infrastructure Conference*, Chicago, IL, 1999.
- [16]. Hsu P. F. and Matthews R. D., "The necessity of using detailed kinetics in models for premixed combustion within porous media," *Combustion and Flame*, Vol. 93, No. 4, pp. 457–466, 1993.
- [17]. Al-Hamamre Z., Al-Zoubi A. and Trimis D., "Numerical investigation of the partial oxidation process in porous media based reformer," *Combustion Theory and Modelling*, Vol. 14, No. 1, pp. 91–103, 2010.
- [18]. Miguel A. A., Mendes J. M. C. and Pereira, J. C. F., "Numerical study of methane TPOX within a small scale Inert Porous Media based reformer," *International journal of hydrogen energy*, Vol. 39, No. 9, pp. 4311-4321, 2014.