

УДК 544.452.1

DOI: 10.15372/KhUR2019172

## Зажигание углей различных стадий метаморфизма лазерными импульсами в режиме свободной генерации

Б. П. АДУЕВ<sup>1</sup>, Я. В. КРАФТ<sup>1</sup>, Д. Р. НУРМУХАМЕТОВ<sup>1</sup>, З. Р. ИСМАГИЛОВ<sup>1,2</sup><sup>1</sup>Федеральный исследовательский центр угля и углехимии СО РАН, Кемерово (Россия)

E-mail: lesinko-ixtm@yandex.ru

<sup>2</sup>Институт катализа СО РАН, Новосибирск (Россия)

### Аннотация

Исследовано лазерное зажигание ( $\lambda = 1064$  нм,  $\tau_i = 120$  мкс) углей Кузнецкого угольного бассейна различных марок: Б, ДГ, Г, Ж и К. Для всех марок углей обнаружены три последовательные стадии зажигания, характеризующиеся пороговыми плотностями энергии излучения  $H_{cr}^{(1)}$ ,  $H_{cr}^{(2)}$ ,  $H_{cr}^{(3)}$  с определенными значениями для каждой марки угля. Установлено, что на первой стадии происходит нагрев поверхности и воспламенение микровыступов на угольных частицах. Длительность ее не превышает длительности лазерного импульса. На второй стадии наблюдается выход и воспламенение летучих веществ. Длительность горения зависит от плотности энергии излучения. На третьей стадии при достижении  $H_{cr}^{(3)}$  происходит зажигание коксового остатка, время горения 40–150 мс. Показано, что порог на первой стадии слабо изменяется для всех углей в ряду метаморфизма. При возрастании степени углефикации второй порог для каменных углей уменьшается, а третий – увеличивается. Второй и третий пороги для бурого угля сопоставимы с величинами  $H_{cr}^{(2)}$  и  $H_{cr}^{(3)}$  для низкометаморфизованных углей марок ДГ и Г. На основе экспериментальных результатов сделан вывод, что на первой и третьей стадиях зажигание происходит по гетерогенному механизму, на второй – по гомогенному механизму.

**Ключевые слова:** уголь, лазерное зажигание, горение, угольная пыль

### ВВЕДЕНИЕ

Физические методы зажигания угольной пыли пока не получили широкого распространения. Однако в перспективе изучение лазерного зажигания углей позволит создать новые экономичные и безопасные методы розжига угольного топлива.

Лазерное зажигание углей исследуется с использованием преимущественно неодимовых и CO<sub>2</sub>-лазеров [1–8]. В [1] изучено лазерное зажигание (1064 нм, 150 мкс, 740 мДж) взвесей, состоящих из частиц углерода, битуминозного угля, антрацита. Получены кинетические характеристики процесса зажигания образцов, позволяющие выделить две области свечения.

Первая, короткая, проявляется во время импульса, вторая – широкая, длительностью 20–60 мс с двумя максимумами для битуминозного угля и 20–30 мс с одним максимумом для углерода и антрацита.

В [2] с помощью неодимового лазера (1064 нм, 100 мс, 5 Дж) изучено зажигание частиц угля. Выделены три стадии развития процесса зажигания углей. Первая стадия связана с газодинамическими процессами, возникающими при испарении, разлете и сгорании частицы угля; вторая характеризуется развитием экзотермической реакции разложения и образованием очага горения; третья стадия соответствует самоподдерживающемуся режиму горения.

В [3] исследовано зажигание лазерными импульсами (1064 нм, 150 мкс, 1 Дж) 18 типов углей и нефтяного кокса. Для регистрации свечения пламен использовались фотоэлектронные умножители и высокоскоростная камера. Регистрировалась скорость распространения пламени. Предложен механизм распространения пламени в пылеугольном аэрозоле при лазерном облучении.

В [4] установлено, что при лазерном воздействии на частицы угля первоначально воспламеняется освещенная часть. Инициаторами горения служат микровыступы. Воспламенение частицы угля на микровыступе стимулирует развитие термохимических реакций горения вокруг них. Реакция горения быстро распространяется на всю облученную часть частицы угля. Регистрируется процесс воспламенения. Температура частицы угля при воспламенении неоднородна, наблюдаются два максимума. Первый связан с выходом летучих веществ, второй – с горением кокса и термическим свечением золы.

Теоретические исследования механизмов зажигания твердых топлив мощным световым полем проведены в [8–12].

В [8] разработана модель лазерного зажигания (1064 нм, 5 мс) угля. В рамках модели предполагается, что в результате лазерного воздействия на поверхности частицы угля инициируется реакция окисления, осуществляется выход летучих веществ. Летучие вещества смешиваются с окислителем. В то же время, летучие вещества поглощают часть излучения, что приводит к нагреву газовой фазы и развитию химической реакции в ней. Зажигание частиц угля может происходить либо в газовой фазе (гомогенное инициирование), либо первоначально инициируется зажигание поверхности частицы, а затем осуществляется зажигание газовой фазы (гетерогенное инициирование). Теория гомогенного и гетерогенного воспламенения частиц угля развита в [9].

В [5] экспериментально подтверждено наличие двух механизмов лазерного зажигания (гомогенного и гетерогенного) образцов угля. В [13] считается, что механизм зажигания зависит от марки угля.

Из приведенных литературных данных следует, что до настоящего времени нет однозначного представления о механизме воспламенения и горения углей. По-видимому, эти процессы могут зависеть как от марки угля, так и от параметров лазерного излучения. Необходимы эксперименты, позволяющие однозначно выделить различные стадии воспламенения и горения углей при лазерном воздействии.

В наших предыдущих работах начаты исследования лазерного зажигания бурого (Б) и длиннопламенного газового (ДГ) углей [14, 15]. В качестве источника воздействия использовался YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазер (1064 нм, 120 мкс). Обнаружено, что процесс воспламенения и горения образцов углей обеих марок в зависимости от плотности энергии лазерного излучения имеет три стадии, каждая из которых характеризуется определенной плотностью энергии.

Первая стадия связана с нагревом и свечением поверхности образца при воздействии с плотностью энергии  $H_{cr}^{(1)} = 0.4 \text{ Дж/см}^2$  непосредственно в момент лазерного импульса. Вторая стадия характеризуется выделением и воспламенением летучих веществ, наблюдается в миллисекундном временном интервале при увеличении значений плотности энергии до  $H_{cr}^{(2)} \geq 1 \text{ Дж/см}^2$ . Над поверхностью образца наблюдается пламя. На третьей стадии происходит зажигание коксового остатка и вылет раскаленных частиц углей при воздействии с плотностью энергии  $H_{cr}^{(3)} \sim 2-3 \text{ Дж/см}^2$ . Над образцом наблюдается вертикальное пламя [14, 15].

В настоящей работе продолжено исследование лазерного зажигания углей Кузнецкого угольного бассейна и изучены характеристики процесса в зависимости от стадии метаморфизма угля.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Использовались угли Кузнецкого угольного бассейна различных марок: Б, ДГ, Г, Ж и К.

Угли измельчали на шаровой мельнице, отбирали фракцию частиц с размером  $\leq 63 \text{ мкм}$  путем просеивания через сито. Результаты технического анализа углей приведены в табл. 1. Технический анализ угля марки Г показал высокое содержание золы (38.4 %), поэтому была проведена его деминерализация методом кис-

ТАБЛИЦА 1

Результаты технического анализа углей

Марка угля	W <sup>a</sup> , %	A <sup>d</sup> , %	V <sup>daf</sup> , %	C <sup>daf</sup> , %
Б	11.1	9.5	51.4	61
ДГ	4.0	4.6	40.2	79
Г	6.2	1.6	40.9	81
Ж	1.2	4.8	34.1	88
К	1.0	4.9	21.2	90

Примечание. W<sup>a</sup> – влага аналитической пробы, A<sup>d</sup> – зольность аналитической пробы, V<sup>daf</sup> – выход летучих веществ; C<sup>daf</sup> – содержание углерода в аналитической пробе.

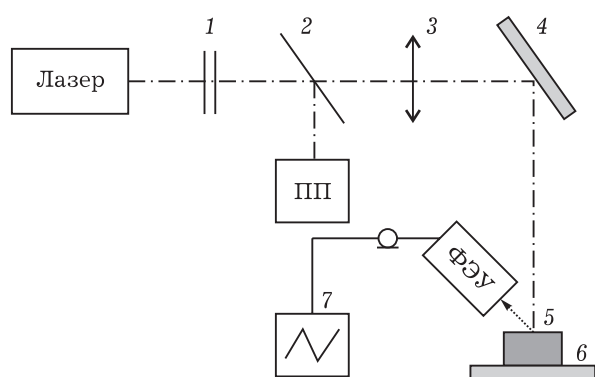


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – нейтральные светофильтры, 2 – светоделительная пластинка, 3 – фокусирующая линза, 4 – поворотное зеркало, 5 – образец, 6 – массивное основание, 7 – осциллограф, Лазер – импульсный YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазер, ПП – пирозлектрический приемник, ФЭУ – фотоэлектронный умножитель.

лотного разложения. В табл. 1 указаны данные для деминерализованного угля марки Г.

Экспериментальные образцы с насыпной плотностью  $\rho = 0.5 \text{ г/см}^3$  в виде навески массой 10 мг помещали в медный колпачок диаметром 5 мм и глубиной 2 мм. Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1.

Зажигание углей осуществлялось с помощью единичных импульсов излучения первой гармоники ( $\lambda = 1064 \text{ нм}$ ) YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазера, работающего в режиме свободной генерации. Длительность импульса  $\tau_i$  составляла 120 мкс, максимальная энергия в импульсе – 1 Дж. Регулирование энергии излучения осуществлялось с помощью стеклянных нейтральных светофильтров с известным коэффициентом ослабления. Для контроля энергии часть излучения (8 %) отводилась прозрачной стеклянной пластиной на пирозлектрический приемник Ophir Photonics PE50BF-C (Израиль). При помощи фокусирующей линзы с фокусным расстоянием  $F = 25 \text{ см}$  и поворотного зеркала излучение направлялось на образец, находящийся на массивном основании. Диаметр лазерного пятна на образце составлял  $d = 2.5 \text{ мм}$ . Свечение образца при помощи фотоэлектронного умножителя Hamamatsu H-10707-21 (Япония) преобразовывалось в электрический сигнал и регистрировалось осциллографом LeCroy WY332A (США).

**РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ**

Исследованы пороги зажигания образцов углей. Последовательно облучались десять образцов конкретной марки угля единичным импульсом лазера определенной энергии, реги-

ТАБЛИЦА 2

Пороговые плотности энергии излучения зажигания углей на различных стадиях, Дж/см<sup>2</sup>

Марка угля	$H_{cr}^{(1)}$	$H_{cr}^{(2)}$	$H_{cr}^{(3)}$
Б	0.47	1.75	2.6
ДГ	0.39	1.6	2.4
Г	0.45	1.85	3.3
Ж	0.47	1.1	5.5
К	0.35	0.9	10.0

стрировалась кинетика свечения с помощью фотоумножителя. Вероятность воспламенения определялась как  $P = n/10$ , где  $n$  – число зарегистрированных вспышек. Далее энергия излучения возрастала и эксперимент повторялся. В итоге получена зависимость вероятности появления вспышки от плотности энергии излучения лазера. За порог зажигания принимали плотность энергии  $H_{cr}$ , соответствующей 50 % вероятности появления вспышки.

По характеру зарегистрированных кинетических кривых для всех марок исследованных углей можно выделить три порога  $H_{cr}$ , приводящих к различным процессам в образцах. Данные по величине  $H_{cr}$  для всех исследованных образцов представлены в табл. 2.

Для установления влияния содержания золы на пороги зажигания аналогично исследован исходный уголь марки Г. Как отмечалось ранее, содержание золы в нем составляет 38.4 %. При лазерном зажигании образцов исходного угля марки Г получены близкие значения порогов, что и при зажигании деминерализованных образцов. Соответственно, содержание золы в угле не влияет на пороги лазерного зажигания.

На рис. 2 приведены осциллограммы, зарегистрированные фотоумножителем, соответствующие свечению пламен угля марки Г при вероятности  $P = 0.5$  для трех выше указанных процессов. Качественно аналогичные кривые частоты и соответствующие им зарегистрированные кинетики свечения получены и для остальных изученных марок углей.

Установлено, что для всех исследованных марок углей длительность свечения на первой стадии практически соответствует длительности лазерного импульса (см. рис. 2, а). На второй стадии кинетика включает свечение первой стадии и свечение в миллисекундном временном интервале (см. рис. 2, б). На третьей стадии кинетика свечения включает первые две стадии и свечение, возникающее примерно через 10 мс после воздействия лазерного импульса, длительностью 40–150 мс для различных марок углей (см. рис. 2, в).

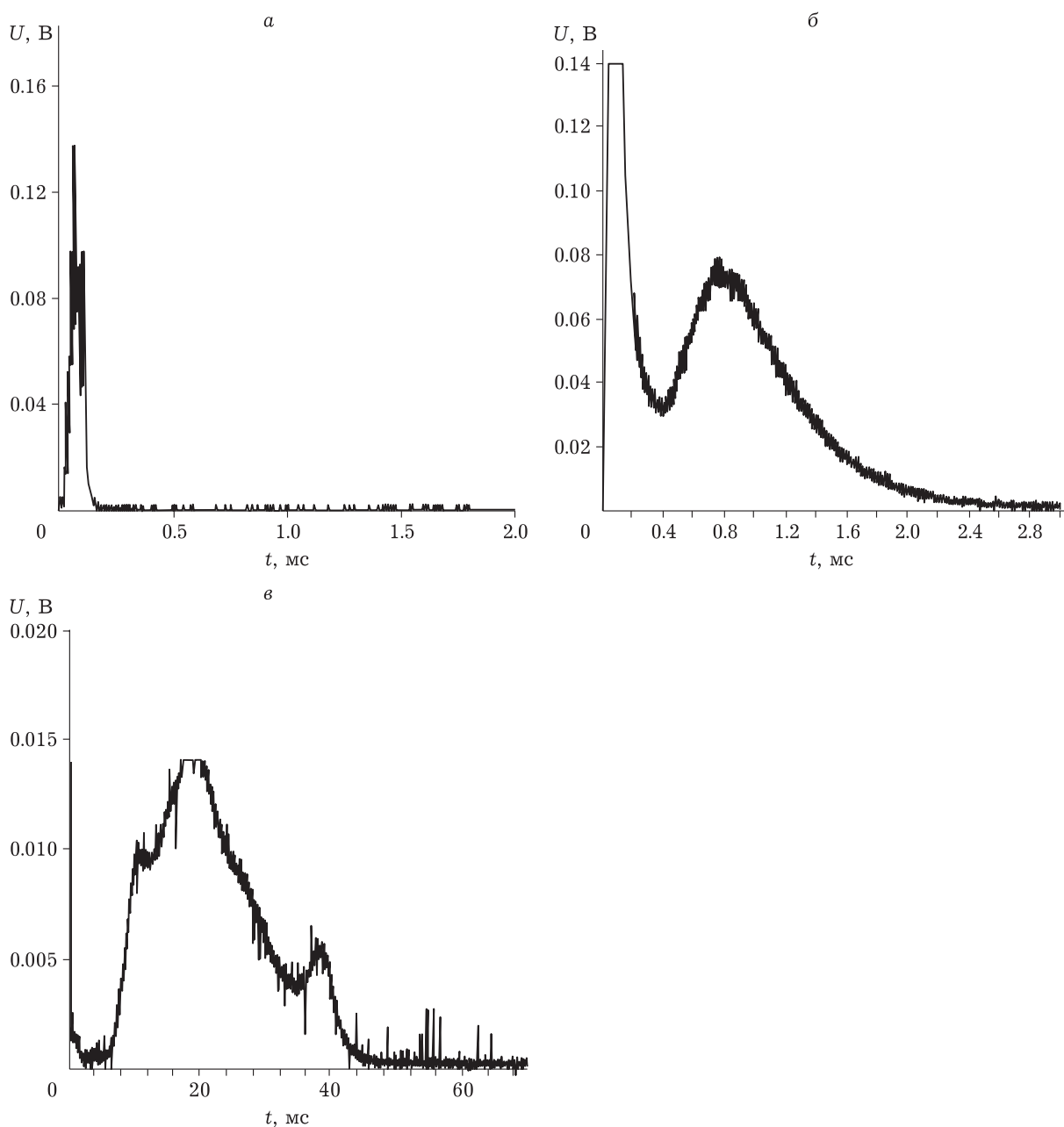


Рис. 2. Кинетики свечения пламени угля марки Г, соответствующие трем стадиям зажигания:  $H_{\text{cr}}^{(1)} = 0.45$  Дж/см<sup>2</sup> (а),  $H_{\text{cr}}^{(2)} = 1.85$  Дж/см<sup>2</sup> (б),  $H_{\text{cr}}^{(3)} = 3.3$  Дж/см<sup>2</sup> (в).

При плотностях энергии, соответствующих  $H_{\text{cr}}^{(1)}$ , над поверхностью образцов наблюдается невысокое пламя ( $h \leq 1$  мм), а при достижении  $H_{\text{cr}}^{(2)}$  оно составляет 3–5 мм. При достижении  $H_{\text{cr}}^{(3)}$  для всех марок углей наблюдается вертикальное пламя высотой до 10 см. Аналогичные процессы наблюдались нами ранее при исследовании лазерного зажигания угля марки Б [15].

На рис. 3 представлены зависимости пороговых плотностей энергии излучения  $H_{\text{cr}}^{(1)}$ ,  $H_{\text{cr}}^{(2)}$ ,  $H_{\text{cr}}^{(3)}$  от степени углефикации,

увеличение которой сопровождается возрастанием относительного содержания углерода в образце ( $C^{\text{daf}}$ ). Как видно из рис. 3, а, при изменении степени углефикации наблюдаются практически постоянные значения  $H_{\text{cr}}^{(1)} = 0.35\text{--}0.47$  Дж/см<sup>2</sup> с большим статистическим разбросом.

Для каменных углей (ДГ, Г, Ж, К) с увеличением степени углефикации уменьшаются значения  $H_{\text{cr}}^{(2)}$  (см. рис. 3, б) и, напротив, возрастают  $H_{\text{cr}}^{(3)}$  (см. рис. 3, в). Для бурого угля значения пороговых плотностей энергии излучения второй

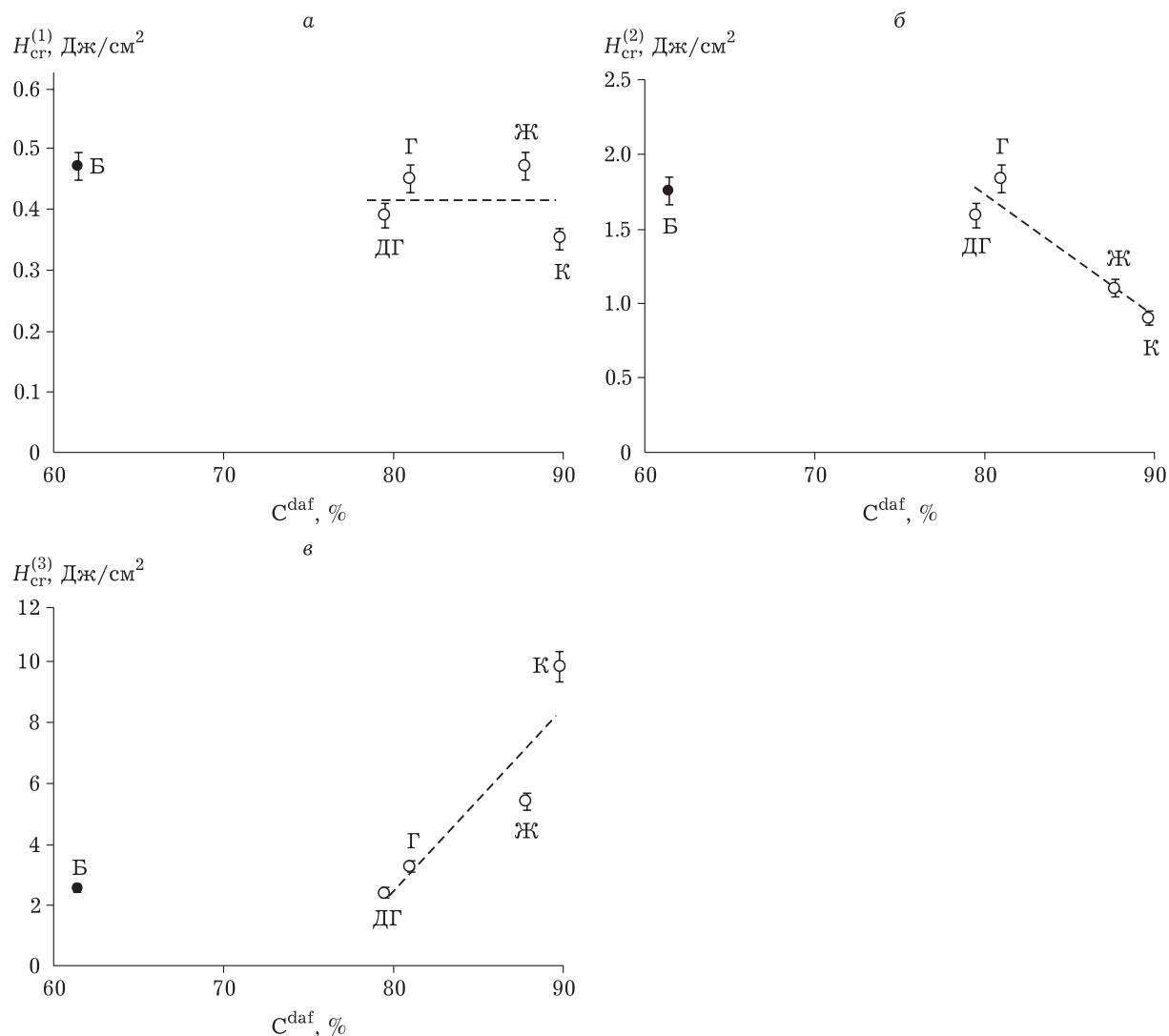


Рис. 3. Зависимость порогов зажигания  $H_{cr}^{(1)}$  (а),  $H_{cr}^{(2)}$  (б),  $H_{cr}^{(3)}$  (в) от степени углефикации для различных марок углей.

и третьей стадий незначительно отличаются от соответствующих значений для низкометаморфизованных углей марок ДГ и Г.

Предполагается, что частицы измельченного угля могут зажигаться либо по гетерогенному механизму (зажигание поверхности с последующим выделением и зажиганием газовой фазы), либо по гомогенному механизму (зажигание выделившейся газовой фазы с последующим зажиганием частицы) [5, 8, 9, 13].

Первый процесс, соответствующий плотности энергии  $H_{cr}^{(1)}$ , ранее мы связали с нагревом поверхности частиц лазерным излучением [15]. Наблюдаемое над поверхностью невысокое пламя ( $\leq 1$  мм), по-видимому, связано с зажиганием микровыступов на частицах угля, как это показано в работе [4]. При этом температура на-

грева на данной стадии, измеренная методом спектральной пирометрии с временным разрешением, достигает 3200 К [15] и соответствует температуре поверхности. Поверхность частицы охлаждается за счет конвективного и излучательного процессов. Кроме того, тепло проводится в глубь частицы, что способствует ее равномерному прогреву. Как показывают модельные расчеты, описанные в работе [1], процесс выравнивания температуры зависит от теплофизических параметров и размеров угольных частиц; в общем случае временной интервал составляет 200–500 мкс. При этом температура частицы падает. Если после равномерного прогрева температура частицы ниже температуры зажигания, то после импульса облучения свечение частицы затухает (см. рис. 2, а).

При достижении плотности энергии лазерного излучения  $H \sim H_{cr}^{(2)}$  инициируется термохимическая реакция в частице, что способствует выходу и воспламенению летучих веществ. Спектрально-кинетические измерения в миллисекундном временном интервале показали, что на этом этапе при воздействии на образцы с плотностью энергии  $H \geq 2$  Дж/см<sup>2</sup> наблюдается свечение пламени СО, возбужденных молекул Н<sub>2</sub> и Н<sub>2</sub>О и тепловое свечение с температурой 2300 К [15].

О начальной температуре воспламенения летучих веществ данные эксперименты информации не дают. Однако можно предположить, что порядок этой величины примерно равен 2000 К, поскольку дополнительный нагрев в результате термохимической реакции, измеренный на образцах бурого угля, дает величину ~2300 К [15].

Таким образом, на рассматриваемой стадии ( $H \sim H_{cr}^{(2)}$ ) температура поверхности частиц достаточна для выделения, воспламенения и горения летучих веществ в газовой фазе. В данном случае поверхность частицы является источником тепла для воспламенения летучих либо инициирования реакции окислителя и летучих в газовой фазе. Однако сама поверхность не горит. При таком подходе механизм горения газовой фазы на данной стадии можно считать гомогенным. После выгорания летучих веществ при  $H \sim H_{cr}^{(2)}$  в миллисекундном временном интервале пламя гаснет, и частицы не загораются.

При достижении плотности энергии  $H_{cr}^{(3)}$  через ~10 мс наблюдается рост интенсивности свечения во временном интервале 40–150 мс (см. рис. 2, в). Время горения составляет 40–150 мс для различных марок углей. Мы считаем, что этот процесс обусловлен инициированием химических реакций в коксовом остатке после выделения и сгорания летучих веществ и, как следствие, дополнительным нагревом угольных частиц. Температура пламени на этой стадии, измеренная ранее методом спектральной пирометрии с временным разрешением на образцах угля марки Б, составила 1800 К [15]. На данной стадии изучения механизм зажигания можно считать гетерогенным.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При лазерном воздействии на угли марок Б, ДГ, Г, Ж, К с насыпной плотностью 0.5 г/см<sup>3</sup> выделены три стадии воспламенения, имеющие

пороговый характер. Первая стадия связана с нагревом поверхности и зажиганием микровыступов на частицах угля. Вторая стадия характеризуется выходом и воспламенением летучих веществ. Третья – зажиганием коксового остатка. Измерены пороги зажигания для всех марок углей на каждой стадии. Порог на первой стадии слабо изменяется для всех углей в ряду метаморфизма. Для каменных углей при возрастании степени углефикации второй порог уменьшается, а третий – увеличивается. Вторым и третьим пороги для бурого угля незначительно отличаются от таковых для низкометаморфизованных углей марок ДГ и Г.

Длительность свечения на первой стадии для всех марок углей совпадает с длительностью лазерного импульса (120 мкс). Длительность свечения углей на второй стадии при  $H = H_{cr}^{(2)}$  составляет 5–10 мс, а на третьей – 40–150 мс.

Экспериментальные результаты позволяют сделать вывод, что на первой и третьей стадиях зажигание происходит по гетерогенному механизму, на второй стадии – по гомогенному механизму.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1 Chen J. C., Taniguchi M., Narato K., Ito K. Laser ignition of pulverized coals // *Combust. Flame*. 1994. Vol. 97, No. 1. P. 107–117.
- 2 Бойко В. М., Волянский П., Климин В. Ф. Особенности развития инициируемого лазерным излучением зажигания угольных частиц // *Физика горения и взрыва*. 1981. Т. 17, № 5. С. 71–77.
- 3 Taniguchi M., Kobayashi H., Kiyama K., Shimogori Y. Comparison of flame propagation properties of petroleum coke and coals of different rank // *Fuel*. 2009. Vol. 88, No. 8. P. 1478–1484.
- 4 Погодаев В. А. Частица каменного угля в интенсивном лазерном пучке // *Физика горения и взрыва*. 1984. Т. 20, № 1. С. 51–55.
- 5 Phuoc T. X., Mathur M. P., Ekmann J. E. High-energy Nd-YAG laser ignition of coals: Experimental observations // *Combust. Flame*. 1993. Vol. 93, No. 1–2. P. 19–30.
- 6 Глова А. Ф., Лысков А. Ю., Зверев М. М. Особенности взаимодействия лазерного излучения с газопылевой средой // *Квант. электроника*. 2009. Т. 39, № 6. С. 537–540.
- 7 Кузиковский А. В., Погодаев В. А. О горении твердых аэрозольных частиц под действием излучения СО<sub>2</sub>-лазера // *Физика горения и взрыва*. 1977. Т. 13, № 5. С. 783–788.
- 8 Phuoc T. X., Mathur M. P., Ekmann J. M. High-energy Nd-YAG laser ignition of coals: Modeling analysis // *Combust. Flame*. 1993. Vol. 94, No. 4. P. 349–362.
- 9 Annamalai A., Durbetaki P. A theory on transition of ignition phase of coal particles // *Combust. Flame*. 1977. Vol. 29. P. 193–208.
- 10 Amos B., Fernandez-Pello A. C. Model of the ignition and flame development on a vaporizing combustible surface in

- a stagnation point flow: ignition by vapor fuel radiation absorption // *Comb. Sci. Tech.* 1988. Vol. 62, No. 4–6. P. 331–343.
- 11 Di Blasi C., Crescitelli S., Russo G., Cinque G. Numerical model of ignition processes of polymeric materials including gas-phase absorption of radiation // *Combust. Flame.* 1991. Vol. 83, No. 3–4. P. 333–344.
- 12 Дик И. Г., Саженова Е. А., Селиховкин А. М. Роль газовой фазы на переход в горение конденсированного вещества при зажигании радиационным потоком // *Физика горения и взрыва.* 1991. Т. 27, № 4. С. 7–12.
- 13 Zhang DK. Laser induced ignition of pulverized fuel particles // *Combust. Flame.* 1992. Vol. 90, No. 2. P. 134–142.
- 14 Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Нелюбина Н. В., Ковалев Р. Ю., Заостровский А. Н., Исмагилов З. Р. Лазерное зажигание низкометаморфизованного угля // *Хим. физика.* 2016. Т. 35, № 12. С. 47–47.
- 15 Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Ковалев Р. Ю., Крафт Я. В., Заостровский А. Н., Гудилин А. В., Исмагилов З. Р. Спектрально-кинетические характеристики лазерного зажигания пылевидного бурого угля // *Оптика и спектроскопия.* 2018. Т. 125, № 2. С. 277–283.