

doi:10.3969/j.issn.1001-8352.2022.06.003

褐煤煤尘爆炸火焰传播特性及燃烧热分解机理研究^{*}

刘静平^① 杨振欣^② 赵懿明^② 刘毅飞^② 吴星亮^① 徐司雨^③ 徐 森^①

①南京理工大学化学与化工学院(江苏南京,210094)

②中北大学环境与安全工程学院(山西太原,030051)

③西安近代化学研究所燃烧与爆炸技术重点实验室(陕西西安,710065)

[摘 要] 煤尘爆炸是矿井安全开采的主要危险源之一。以褐煤煤尘为研究对象,探究煤尘粒径对煤尘火焰传播过程的影响。用高速摄影装置记录火焰的传播过程,进而分析不同粒径下煤尘爆炸火焰传播的高度和速度。为进一步分析煤尘燃烧过程中的化学反应机理,借助反应分子动力学方法对煤分子燃烧中的初始热分解过程进行了模拟。研究表明:爆炸火焰传播高度呈先增加、后稳定的趋势,传播速度呈先增大、后减小的趋势;随着煤尘粒径的减小,火焰传播高度和传播速度均呈增大的趋势;当煤尘粒径为 10.5 μm 时,火焰传播高度和传播速度的峰值分别为 623 mm 和 4.3 m/s;煤尘热分解主要产物为 H_2 、 H_2O 、 CO_2 和 CH_2O ,这些产物进一步与氧气的结合会促进煤尘燃烧和火焰传播过程,使得整个体系燃速加快。为煤尘热分解和燃烧提供了较为充分的数据基础。

[关键词] 褐煤煤尘;粉尘粒径;火焰传播;爆炸过程;分子动力学

[分类号] X932

Study on Flame Propagation Characteristics and Combustion Pyrolysis Mechanism of Lignite Dust Explosion

LIU Jingping^①, YANG Zhenxin^②, ZHAO Yiming^②, LIU Yifei^②, WU Xingliang^①, XU Siyu^③, XU Sen^①

①School of Chemistry and Chemical Engineering, Nanjing University of Science and Technology (Jiangsu Nanjing, 210094)

②School of Environment and Safety Engineering, North University of China (Shanxi Taiyuan, 030051)

③Science and Technology on Combustion and Explosion Laboratory, Xi'an Modern Chemistry Research Institute (Shaanxi Xi'an, 710065)

[ABSTRACT] Coal dust explosion is one of the main hazard sources for safe mining in mines. Taking lignite dust as the research object to explore the effect of dust particle size on the coal dust flame propagation. The flame propagation was recorded by a high-speed camera, and the height and velocity of flame propagation in coal dust explosion under different particle sizes were analyzed. To further analyze the chemical reaction mechanism during the combustion of coal dust, the initial pyrolysis process of coal molecules in combustion was simulated through reactive molecular dynamics. Results show that propagation height of flame increases first and then stabilizes, and propagation velocity increases first and then decreases. With the decrease of the particle size of coal dust, the flame propagation height and propagation velocity both show an increasing trend. When the particle size is 10.5 μm , the flame propagation height peak and propagation velocity peak are 623 mm and 4.3 m/s, respectively. The main products of coal dust pyrolysis are H_2 , H_2O , CO_2 , and CH_2O , and the further combination of these products with oxygen will promote the combustion and flame propagation of coal dust, so that the combustion rate of the whole system is accelerated. It provides a sufficient data support for coal dust pyrolysis and combustion.

[KEYWORDS] lignite dust; dust particle size; flame propagation; explosion process; molecular dynamics

^{*} 收稿日期:2022-06-19

第一作者:刘静平(1974-),女,高工,主要从事粉尘、气体爆炸安全测试方面的研究。E-mail:mbzx_liu@126.com

引言

煤炭在工业生产中会产生大量的煤尘,存在燃爆风险。煤尘爆炸后的火焰和冲击波严重影响着人们的生命和财产安全。因此,研究煤尘爆炸的火焰传播特性显得尤其重要。

Seshadri 等^[1]假定火焰结构由 3 个区域组成:第一个区域是预热挥发区,颗粒在预热挥发区吸热,以达到点火温度,此时的气相化学反应速率较小;第二个区域是化学反应区;第三个区域是对流区。结合 Seshadri 等的火焰结构理论,Bidabadi 等^[2]详细研究了粉尘粒径大小等因素对燃烧火焰的影响,发现大粒径的粉尘火焰温度要低于气相挥发分燃烧时的火焰温度。Cao 等^[3]在半封闭垂直燃烧管中对煤尘爆炸进行研究,发现当煤尘挥发分含量高或煤尘浓度大时,火焰传播速度更快,火焰温度也更高。Liu 等^[4]探究了煤尘云爆炸火焰传播的特性,结果发现,煤尘云爆炸火焰的高度和传播速度随煤尘浓度的增加呈现出先增大、后减小的变化规律。郭家鑫等^[5]研究了管长对煤尘爆炸火焰传播的影响,结果表明,管长越长,火焰传播距离越远。赵懿明等^[6]的研究表明,点火能越大,火焰传播距离越远,传播速度越快。Li 等^[7]对煤尘进行预氧化发现,煤尘预氧化温度的升高导致固体残渣粒度的分形维数变化趋势复杂。在此基础上,通过大量调查研究发现,煤矿中煤尘爆炸通常由瓦斯爆炸引发,混合爆炸会产生更严重的后果^[8-10]。Lin 等^[11]通过研究发现,与甲烷爆炸相比,甲烷-煤尘爆炸具有更亮的火焰和更长的火焰持续时间。

上述研究表明,煤尘火焰传播受诸多因素影响。因此,实验前确定实验条件就显得格外重要。以褐煤煤尘为研究对象,重点关注粉尘粒径对爆炸火焰传播特性的影响,确定不同粒径煤尘爆炸的火焰传播规律。可为保证煤矿生产安全和保障国家能源安全提供实验依据。

1 实验

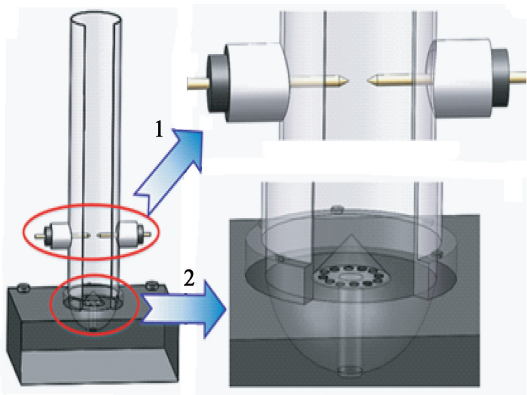
1.1 实验样品

选取具有高挥发分、易发生粉尘爆炸的褐煤为研究对象。首先,在氮气条件下将样品煤粉粉碎;然后,将样品放入真空干燥箱中,干燥温度和时间分别为 60 ℃ 和 6 h;筛选得到 100 目、200 目和 300 目粒

径的煤尘,并用 BT-9300ST 型激光粒度分布仪对上述煤尘进行粒径分析,对应的中位径分别为 112.2、37.1、10.5 μm。

1.2 实验仪器

粉尘爆炸实验在容积为 1.2 L 的竖直燃烧管中进行,如图 1 所示。通过点火电极放电点火,点火电极位于燃烧管底部上方 100 mm 处。点火电极总长大约 110 mm,电极尖端圆曲率半径在 0.01~0.04 mm 之间。竖直玻璃管由螺栓固定于储粉室和伞状喷嘴组成的分散系统的正上方。0.7 MPa 的高压空气通过伞状喷嘴将储粉室底部的粉尘扬起,形成粉尘云,随后,点火电极击穿空气,形成电火花,将粉尘点燃。采用高速摄影记录煤尘爆炸火焰的传播过程。



1 - 点火电极;2 - 安装位置。

图 1 竖直燃烧管

Fig. 1 Vertical combustion tube

2 实验结果

2.1 火焰传播过程

选取褐煤煤尘的最佳爆炸质量浓度 500 g/m³ 进行实验。设置点火能量为 2 J,3 种不同粒径的煤尘爆炸火焰传播过程大致相同。记点火时刻为 0 ms,每间隔 33 ms 选取一张火焰传播图片。图 2 为拍摄的粒径为 10.5 μm 的典型煤尘火焰传播过程。

由图 2 可知,开始阶段,电火花放电形成明亮的白色火球,电极周围煤尘颗粒在火球的加热作用下被点燃,形成中间呈亮黄色、边缘为暗红色的斑点状火焰。火焰引燃周围煤尘后向四周扩散,进而形成连续的燃烧区域。在 133 ms 时,火焰前锋阵面到达管口。在 166 ms 后,火焰喷出管口,不再受管道的约束,从而向四周扩散,形成蘑菇云状火焰;同时,受外界空气作用,煤尘燃烧更加猛烈,火焰结构趋于完整,火焰颜色转为亮黄色。在火焰的加热下,气流裹

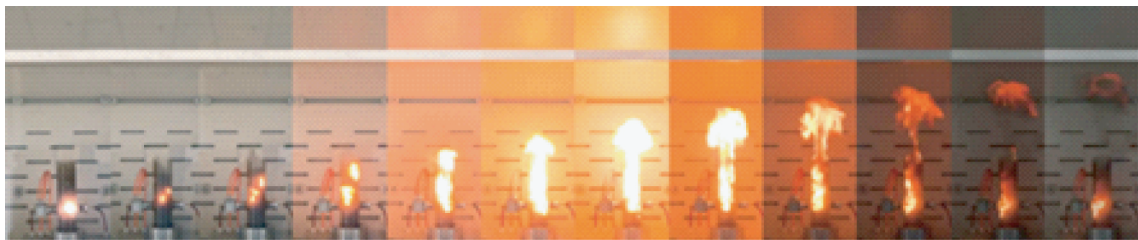


图 2 典型煤尘爆炸火焰传播过程

Fig. 2 Flame propagation process in typical coal dust explosion

挟煤尘向上运动,整个蘑菇云状火焰随煤尘向上移动。233 ms 后,随着煤尘的逐渐消耗,火焰传播速度减慢,火焰表面出现了暗红色的斑点区,并逐渐向内部扩散,火焰轮廓由平滑转向离散;333 ms 之后,顶部火焰熄灭,火焰高度急速下降,火焰整体转为暗红色,而后直至熄灭。

2.2 火焰传播高度和传播速度与煤尘粒径的关系

记火焰前锋阵面最高点到点火电极平面的距离为火焰传播高度 h ,结果如图 3 所示。

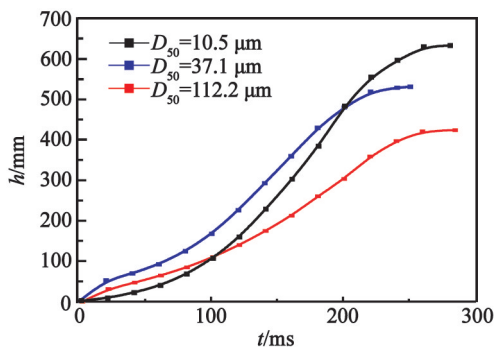


图 3 火焰传播高度

Fig. 3 Flame propagation height

由图 3 可以看出:100 ms 之前,火焰高度相对平缓;100 ~ 200 ms,火焰高度大幅提升;200 ms 之后,传播速度开始减缓,并达到火焰传播高度的峰值;火焰高度随着时间的延长先增大、后平缓。3 种粒径煤尘的爆炸火焰传播高度的峰值分别为 423、528、623 mm。

对火焰传播高度曲线进行求导处理,从而得到煤尘爆炸火焰传播速度曲线,如图 4 所示。不同粒径的煤尘爆炸火焰传播速度 v 均随时间先增大、后减小,当煤尘粒径为 112.2、37.1、10.5 μm 时,火焰传播速度的峰值分别为 3.1、3.6、4.3 m/s。

图 5 为不同煤尘粒径下的火焰传播高度峰值和传播速度峰值的比较。由图 5 可以看出,随着煤尘粒径的减小,煤尘火焰传播高度和传播速度均呈现增加趋势。

火焰产生的本质是分子的化学反应放热,反应

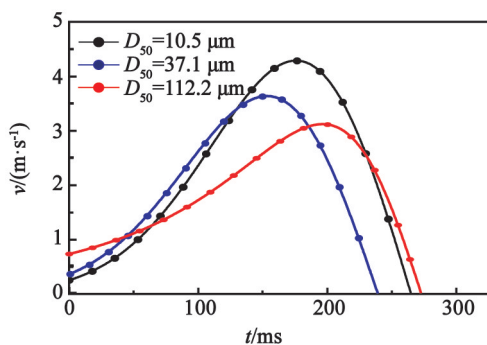


图 4 火焰传播速度

Fig. 4 Flame propagation velocity

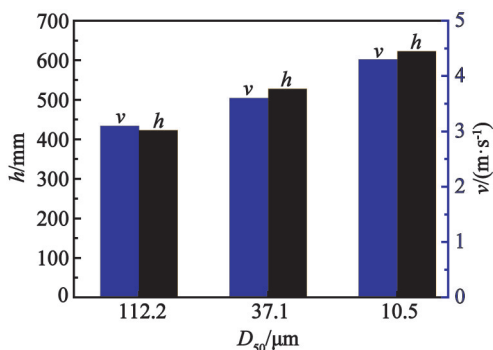


图 5 火焰传播高度峰值和传播速度峰值柱状图

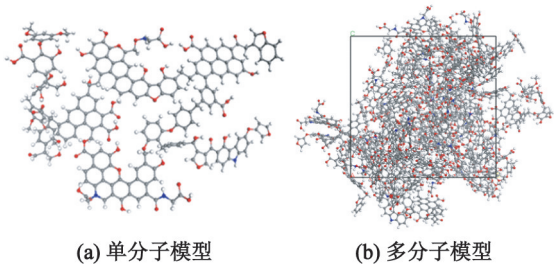
Fig. 5 Histogram of peak propagation height and peak propagation velocity of flame

过程中带动煤尘气相反应区周边的空气,分子加热而高速运动,从而发光,是煤尘燃烧的宏观表现形式。为了进一步探索煤尘燃烧火焰传播的化学反应过程,从分子层面借助分子动力学方法对煤尘的燃烧过程进行机理研究,以获取煤尘的初始分解、反应路径、原子运动轨迹和主要产物等,是一种可靠的研究方式。

3 分子动力学模拟

对煤分子的热分解过程进行分子动力学模拟研究,以初步获取煤尘在燃烧初期的热分解反应过程。

结合文献[12-13]中煤样元素及官能团含量分析数据,选取与煤尘元素组成相近的 Wolfrum 模型并进行适当修改和简化,重新构建—OH、—COOH 等含氧官能团,得出了如图 6 所示的褐煤单分子模型(分子式为 $C_{212}H_{156}N_4O_{57}$)和包含 10 个单分子的多分子模型。多分子模型的构建主要借助于 Materials Studio(MS) 软件中的 Amorphous Cell 模块,通过该模块构建出含有 10 个煤分子的无定型晶胞。为避免结构重合,首先对 0.1 g/cm^3 的堆积密度煤分子结构模型在 10.0 MPa 和 0.1 MPa 的压力下进行 NPT 压缩和减压过程,以获得更接近真实密度的优化模型,最终构建的煤分子多组分模型堆积密度为 1.150 g/cm^3 ,如图 6(b)所示。

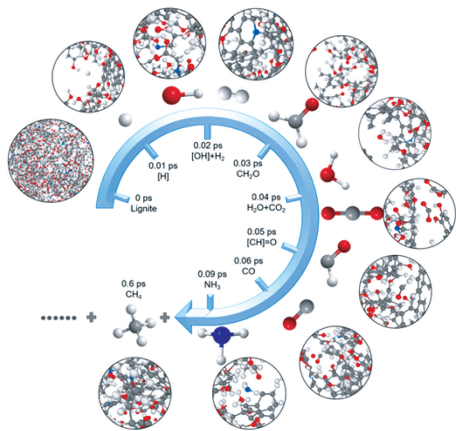


灰色 - C; 白色 - H; 红色 - O; 蓝色 - N。
图 6 煤分子模型
Fig.6 Coal molecular model

对煤尘分子在 $3\,000\text{ K}$ 温度下进行恒温热分解模拟。所用的 ReaxFF 力场参数是从 LAMMPS^[14] 中的 Reax 包获得的。首先,采用微正则系综(NVE 系综;恒定原子数 n 、恒定体积 V 、恒定能量 E)对煤分子进行能量最小化;其次,在 NVT 系综^[15]下进行低温平衡模拟,设置模拟温度和时间分别为 300 K 和 10 ps ,时间步长为 0.1 fs ,温度由 Berendsen 恒温器控制,阻尼常数为 0.1 ps 。在等温模拟中采用了将温度跳跃到目标值的策略,以避免在升温过程中影响化学反应的分析。恒温模拟在 NVT 系综下进行,设置温度为 $3\,000\text{ K}$,模拟时间为 200 ps ,时间步长为 0.1 fs 。NVT 系综意味着模拟箱和环境之间没有传热阻力,也没有传质。生成的挥发物(气体和焦油)将留在模拟箱中未反应的煤分子中,并在热分解模拟过程中进一步反应。键序设置为 0.3 。模拟完成后,通过可视化分析软件(open visualization tool, OVITO)分析原子坐标的输出文件,并对输出文件进行再处理,根据输出的产物文件分析反应机理。

煤热分解的过程中产生了大量的中间产物和最终产物。中间产物和最终产物的生成时间和数量对研究煤分子的初始分解和燃烧火焰的产生机理具有

重要意义。对主要小分子中间产物($[H]$ 、 $[OH]$ 、 $[CH_2]=O$)和最终产物(H_2 、 H_2O 、 CO_2 、 CH_2O 、 NH_3 、 CH_4)产生的时间及方式进行了分析。图 7 显示了在 $3\,000\text{ K}$ 下煤初始分解的主要中间产物和最终产物的产生时间。反应开始后,首先通过 C—H 键的断裂产生 $[H]$ 自由基, C—O 断裂产生 $[OH]$ 自由基, $[H]$ 自由基相互结合或与其他分子的氢原子结合进而形成 H_2 , $[H]$ 自由基与 $[OH]$ 自由基结合进而生成 H_2O , 同时, CH_2O 、 CO_2 、 CO 、 CH_4 等稳定产物随着分解过程逐步产生。



灰色 - C; 白色 - H; 红色 - O; 蓝色 - N。
图 7 $3\,000\text{ K}$ 时由煤分解产生的主要产物
Fig.7 Production of the main products by coal decomposition at $3\,000\text{ K}$

为了获取煤热分解的主要产物,分析产物分子在热分解过程中出现的频率和数量,总结出了不同温度时煤分子热分解的主要产物及其数量变化过程,如图 8 所示。煤分子热分解的最终产物中, H_2 为分子数量最多的产物,且产生的速率最快,在反应开始后其数量就随煤分子模型的分解而迅速增加。 H_2 的产生在煤尘燃烧过程中可加速煤尘与氧气的反应,增加放热量,促进燃烧火焰的产生。 $[H]$ 和 $[OH]$ 自由基是煤分子分解初期最主要的自由基, $[H]$ 自由基在煤分子分解开始后迅速产生并达到最大值,随着时间的增加又迅速消耗,数量开始下降。

H_2 、 H_2O 、 CO_2 和 CH_2O 均呈现出明显的数量优势,是煤的热分解主要产物。其中, H_2 的数量最多,在反应初期,其生成速率较快,其数量在较短时间内迅速增加,后期仍呈现增长趋势; H_2O 的产生呈现逐步增长趋势,羧基中碳原子和氧原子的脱离产生 CO_2 ,其数量与关键中间体羧基和 $[O]$ 自由基的数量有关; CH_2O 是煤分子模型燃烧中出现的主要中间体之一,在 $3\,000\text{ K}$ 温度下,反应速率较快,煤分子

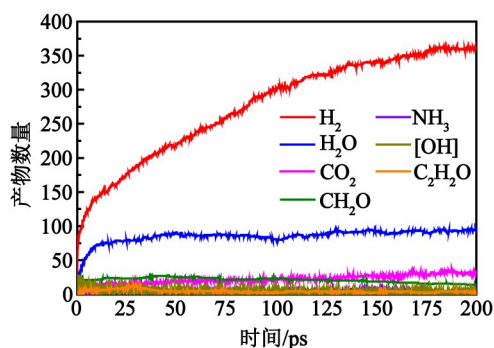
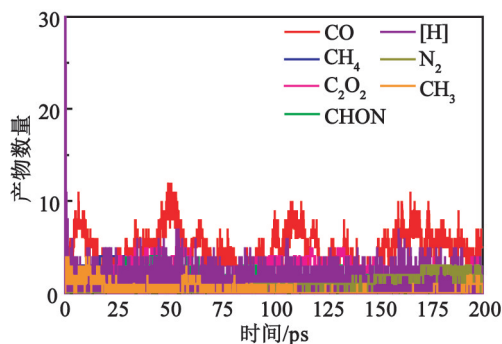
(a) H_2 、 H_2O 、 CO_2 、 CH_2O 、 NH_3 、 $[\text{OH}]$ 、 $\text{C}_2\text{H}_2\text{O}$ 的数量(b) CO 、 CH_4 、 C_2O_2 、 CHON 、 $[\text{H}]$ 、 N_2 、 CH_3 的数量

图 8 3 000 K 下煤热分解的主要产物

Fig. 8 Main products of coal pyrolysis at 3 000 K

的热分解程度较高, CH_2O 数量先增加、后减少, 以进一步生成更为稳定的最终产物。

通过分子动力学模拟结果可得, 煤分子在热分解时主要生成 H_2 、 H_2O 、 CO_2 和 CH_2O , 这些产物进一步与氧气结合会形成可燃物, 促进煤尘燃烧和火焰传播过程。当煤尘粒径较小时, 其比表面积较大, 反之则较小。比表面积较大时, 煤分子更容易与空气中的 O_2 结合。粉尘表面吸附更多的 O_2 时, 反应物含量的增加加快了吸附氧与煤尘表面碳的反应, 从而加快了 H_2 、 H_2O 、 CO_2 和 CH_2O 的形成和析出, 使得整个体系燃速加快; 另外一方面, 从物理学角度分析, 在 2 J 的电火花作用下, 被点燃的煤尘作为热源向周边煤尘辐射热量, 未被点燃的煤尘接收到热辐射, 并向粉尘内部进行热传导, 当粉尘粒径较小时, 热量传递速率快, 燃烧反应快, 从而燃速加快, 使得火焰传播速度加快; 相反, 当粒径较大时, 热量传递速率较低, 一定程度上起到了阻热、隔热的作用, 从而降低反应速率, 使得火焰传播高度以及传播速度降低。

4 结论

利用竖直燃烧管实验装置对褐煤煤尘的爆炸进

行了实验和模拟研究, 得到主要结论如下:

1) 煤尘爆炸火焰的结构和颜色与反应的剧烈程度有关。火焰传播初期和火焰衰减阶段, 煤尘燃烧反应进程缓慢, 火焰呈现为离散的暗红色区域。火焰喷出管口后, 燃烧反应剧烈, 火焰整体呈现为连续的明黄色区域。燃烧反应越剧烈, 火焰亮度越高。

2) 煤尘爆炸火焰传播高度随着时间先增大、再稳定, 火焰传播速度随着时间先增大、后减小。煤尘爆炸火焰的传播高度峰值和传播速度峰值随着煤尘粒径的减小不断增大。当煤尘粒径为 112.2、37.1、10.5 μm 时, 煤尘爆炸火焰传播高度峰值分别为 423、528、623 mm; 传播速度峰值分别为 3.1、3.6、4.3 m/s。

3) 褐煤煤尘在 3 000 K 温度下化学键断裂, 吸收能量, 开始分解。C—H 键、芳香环、C—O 键和 C—C 键等断裂, 产生了大量的中间产物和最终产物, 主要产物为 H_2 、 H_2O 、 CO_2 和 CH_2O 。

参 考 文 献

- [1] SESHADRI K, BERLAD A L, TANGIRALA V. The structure of premixed particle-cloud flames [J]. Combustion and Flame, 1992, 89(3/4): 333-342.
- [2] BIDABADI M, FANAEE A, RAHBARI A. Investigation over the recirculation influence on the combustion of micro organic dust particles [J]. Applied Mathematics and Mechanics (English Edition), 2010, 31(6): 685-696.
- [3] CAO W G, GAO W, LIANG J Y, et al. Flame-propagation behavior and a dynamic model for the thermal-radiation effects in coal-dust explosions [J]. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, 2014, 29: 65-71.
- [4] LIU Y F, ZHANG Y, YANG Z X, et al. Experimental research on flame propagation characteristic of coal dust combustion [J]. Journal of Measurement Science and Instrumentation, 2021, 12(3): 356-361.
- [5] 郭家鑫, 谭迎新, 刘毅飞, 等. 燃烧管长度对煤粉火焰传播规律的影响 [J]. 测试技术学报, 2021, 35(5): 381-385.
- [6] GUO J X, TAN Y X, LIU Y F, et al. Influence of combustion tube length on propagation law of pulverized coal flame [J]. Journal of Test and Measurement Technology, 2021, 35(5): 381-385.
- [6] 赵懿明, 刘毅飞, 杨振欣, 等. 点火能量对煤尘爆炸火焰传播规律的影响 [J]. 中北大学学报 (自然科学版), 2022, 43(1): 70-75.
- ZHAO Y M, LIU Y F, YANG Z X, et al. Influence of ignition energy on flame propagation law of coal dust ex-

plosion [J]. Journal of North University of China (Natural Science Edition), 2022, 43(1): 70-75.

[7] LI H T, LI S S, ZHAI F E, et al. Effect of the initial oxidized status of coal dust on the deflagration severities and flame behaviors of pulverized coal explosion in various methane-air atmospheres [J]. Fuel, 2022, 315: 123211.

[8] MORADI H, SERESHKI F, ATA EI M, et al. Evaluation of the effect of the moisture content of coal dust on the prediction of the coal dust explosion index [J]. The Mining-Geology-Petroleum Engineering Bulletin, 2020, 35(1): 37-47.

[9] NIU Y H, ZHANG L L, SHI B M. Experimental study on the explosion-propagation law of coal dust with different moisture contents induced by methane explosion [J]. Powder Technology, 2020, 361: 507-511.

[10] 曾祥敏, 张玉刚, 蒋榕培, 等. $N_2O/C_2H_4/CO_2$ 预混气体火焰传播及爆炸特性的试验研究[J]. 火炸药学报, 2018, 41(5): 501-505.

ZENG X M, ZHANG Y G, JIANG R P, et al. Experimental investigation of flame propagation and explosion properties of premixed gases $N_2O/C_2H_4/CO_2$ [J]. Chinese Journal of Explosives & Propellants, 2018, 41(5): 501-505.

[11] LIN S, LIU Z T, WANG Z R, et al. Flame characteristics in a coal dust explosion induced by a methane explosion in a horizontal pipeline [J]. Combustion Science and Technology, 2022, 194(3): 622-635.

[12] ZHANG Y, CAO W G, RAO G N, et al. Experiment-based investigations on the variation laws of functional groups on ignition energy of coal dusts [J]. Combustion Science and Technology, 2018, 190(10): 1850-1860.

[13] 张云, 赵懿明, 谭迎新, 等. 粒径对煤粉云最低着火温度特性的影响[J]. 爆破器材, 2021, 50(6): 37-42.

ZHANG Y, ZHAO Y M, TAN Y X, et al. Influence of particle size on minimum ignition temperature characteristics of coal dust cloud [J]. Explosive Materials, 2021, 50(6): 37-42.

[14] MATTSSON T R, LANE J M D, COCHRANE K R, et al. First-principles and classical molecular dynamics simulation of shocked polymers [J]. Physical Review B, 2010, 81(5): 054103.

[15] HUO X Y, WANG F F, NIU L L, et al. Clustering rooting for the high heat resistance of some CHNO energetic materials [J]. Fire Physical Chemistry, 2021, 1(1): 8-20.

(上接第 15 页)

[18] 李栋, 宋方臻, 刘保双. 单直管型科里奥利质量流量计动力学分析 [J]. 中国仪器仪表, 2014(10): 52-56.

LI D, SONG F Z, LIU B S. Dynamics analysis of single straight tube coriolis mass flowmeter [J]. China Instrumentation, 2014 (10): 52-56.

[19] 何那仁朝格图, 邓国栋, 鲁磊明, 等. 改性双基推进剂制备中硝化甘油的连续加料与计量技术 [J]. 爆破器材, 2017, 46(4): 59-64.

HE N R, DENG G D, LU L M, et al. Continuous feeding and measurement of nitroglycerin in preparation process of modified double-base propellant [J]. Explosive Materials, 2017, 46 (4): 59-64.