## 气流床撞击流水煤浆气化火焰光谱辐射特性实验研究

宋旭东1,郭庆华2,龚 岩2\*,苏暐光1,白永辉1,于广锁1,2\*

1. 宁夏大学省部共建煤炭高效利用与绿色化工国家重点实验室, 宁夏 银川 750021

2. 华东理工大学煤气化及能源化工教育部重点实验室,上海 200237

摘 要 火焰光谱检测技术应用于气化炉有效监控,能实时反映气化炉工况,保障气化炉稳定运行。采用实 验室规模的气流床撞击水煤浆气化装置,利用光纤光谱仪通过对气化炉不同部位进行探测,研究了水煤浆 气化火焰在距离撞击平面不同轴向位置 L 处的光谱辐射特性,并利用不同自由基强度及分布对气化炉内各 反应区进行表征,为气化炉运行工况提供依据。结果表明:在 300~800 nm 范围内可检测到明显的 OH\* (306.7和 309.8 nm), H<sub>2</sub> (382 nm), CH\* (314.5和 387 nm), Na\* (589 nm), Ar(671 nm)和 K\* (404, 768 和 770 nm)特征峰,而各种粒子激发方式及分布方式不同,可用于实现火焰宏观特征的表征。从紫外至可见 光区域。水煤浆气化火焰中存在强烈的背景辐射,主要包括颗粒在高温下产生的黑体辐射及 CO, 受热激发 产生的 350~600 nm 的连续旋转辐射,强烈的背景辐射对自由基强度辐射测定形成干扰,需通过计算扣除 背景辐射。利用检测到的各自由基强度分布可对气化火焰进行表征,OH\*分布可表征火焰反应区域,而 CH\*存在范围相对较窄, 仅存在于-10 cm < L < 10 cm 反应剧烈区域。在 0.9 < O/C < 1.1 时, OH\*与 CH\*峰值强度最大值出现在撞击平面附近,随 O/C 增加, CH\*峰值强度最大值分布范围向向上流股中偏移。不 同平面处 OH\*/CH\*强度比值随 O/C 的变化不同, OH\*/CH\*强度反映了自由基激发路径的变化, OH\*/ CH\*强度在撞击平面处最低,化学激发占主导。化学激发主要发生区域在-10 cm≪L≤10 cm 范围内。撞击 平面附近 Na\*强度较大,而随着|L|增大, Na\*强度有所减小,其中向上流股中 Na\*强度高于向下流股中强 度,而K\*在-20 cm <>>L<>>20 cm 范围内强度变化比较无序。由于碱金属粒子激发方式为热激发,因此可利 用其分布判断火焰高温区域。由于煤中 Na 和 K 粒子含量较少,且存在形式多样,利用 Na\*和 K\*表征 O/C 会出现较大误差。由于碱金属强度受到背景辐射影响较小,可用于表征火焰频率,并可反映气化效果。Na\* 自发辐射强度随火焰撞击过程中可产生脉动而呈现峰谷分布。随着 O/C 增加 Na\*峰谷频率越高,说明随着 氧气气速逐渐增加,火焰脉动剧烈。且 Na\*强度逐渐增加,说明剧烈的撞击有助于反应的进行。煤中挥发分 在撞击区内析出,而挥发分中大部分的 H 反应并产生 H<sup>\*</sup> 辐射,H<sup>\*</sup> 强度可表征煤中挥发分的反应程度。

关键词 光谱辐射; 气流床气化炉; 化学激发; 热激发; 燃烧诊断 中图分类号: O433.5 文献标识码: A DOI: 10. 3964/j. issn. 1000-0593(2020)02-0465-07

### 引 言

气流床煤气化技术具有高操作压力、高反应温度和高碳 转化率,且污染小等优势,代表着煤气化技术的发展方向。 气化炉是气流床气化工艺的核心,其稳定高效运行影响着煤 气化技术的效率。气流床撞击水煤浆气化炉采用四个喷嘴对 置产生撞击区,可增强煤颗粒停留时间,提高碳转化率,因 此广泛应用于工业生产中<sup>[1]</sup>。 对气化炉实时有效监控可实时调节运行工况,保证气化 炉稳定运行。而光谱检测技术可避免传统检测技术控制粗 放、反应时间长等的弊病,实现气化火焰的实时监控。火焰 光谱检测技术通过收集火焰中自由基产生的特征辐射信息, 反映火焰中化学反应区域的结构变化及反应强弱<sup>[2-5]</sup>。对于 水煤浆等包含相对复杂物理-化学反应过程非均相火焰,采 用光谱检测技术对火焰的反应区划分具有独特的优势<sup>[6-8]</sup>。 Sung等<sup>[9-10]</sup>利用米氏散射(Mie scattering)对煤粉燃烧火焰 中 OH\*和 CH\*自由基辐射进行研究,指出 OH\*自由基辐

\* 通讯联系人 e-mail: gsyu@ecust. edu. cn; yangong@ecust. edu. cn

收稿日期: 2018-12-19,修订日期: 2019-04-06

基金项目:国家重点研发计划(2017YFB0602601),国家自然科学基金项目(21676091)资助

作者简介: 宋旭东, 1988 年生, 宁夏大学省部共建煤炭高效利用与绿色化工国家重点实验室讲师 e-mail: xdsong@nxu. edu. cn

射能够表示煤颗粒的热解过程,而CH\*自由基辐射则能够 表示煤粉挥发分燃烧的热释放区域。有报道不同燃烧参数下 煤粉火焰辐射发光特性,并探究了Na和K等碱金属谱线与 火焰温度关系。有研究对0#柴油燃烧初期火焰光谱进行分 析,探讨了各种自由基辐射对柴油火焰识别的有效性。还有 研究针对敞开空间甲烷携带水煤浆的热氧火焰辐射特性,并 对各运行工况下自由基强度变化进行了表征。

本工作利用实验室规模的气流床撞击水煤浆气化装置, 研究了受限空间内水煤浆(CWS)气化过程的自由基辐射变 化特征,探究了受限空间撞击火焰化学反应特征,并利用自 由基辐射特性对气化工况进行表征,为气化炉火焰光谱监控 提供参考依据。

1 实验部分

### 1.1 试验装置与流程

图 1 为气流床撞击水煤浆气化装置光谱诊断实验装置 图,包括水煤浆气化系统、气化火焰监控系统及光谱诊断系统。



Fig. 1 The schematic diagram of the spectroscopic diagnostic system

水煤浆气化系统由两组互相呈 90°的对置同轴射流喷嘴 组成,喷嘴中心通道水煤浆进入气化炉后,经环隙高速氧气 雾化后撞击并发生反应,撞击后流体产生向上和向下的反应 流股。实验中分别利用 CCD 相机可视化,热电偶测温及气体 成分在线分析等三方面进行实时监控,保证气化炉稳定运 行。

光谱诊断系统设置如图 1 所示,利用光纤光谱仪结合光 纤探头对气化炉不同位置光谱信息进行收集分析。其中光纤 光谱仪采用 Ocean Optics 公司的 LIBS2500 光谱仪组,涵盖 波长范围为 200~900 nm,光谱分辨率为(0.15±0.01) nm。 光纤探头放置于水冷保护夹套内,并通过氩气(Ar)吹扫保证 清洁,其收光直径为 3 mm,视角为 25°。

如图1所示,L为取样口与喷嘴平面的垂直距离,以喷 嘴平面以上为正,即从喷嘴平面上方往下依次标记为L= 20,10,0,-10和-20 cm。

#### 1.2 实验条件

实验中采用 O/C 为 0.9~1.2 对水煤浆气化火焰自由基 特性进行分析研究。表 1 和表 2 分别为基础数据及试验工 况,其中水煤浆浓度为 61%,密度为 1 102 kg·m<sup>-3</sup>。

表 1 煤质分析 Table 1 Coal properties

工业分析/(d, %)					元素分析/(d,%)				碱金属/(mg•g <sup>-1</sup> )	
M <sub>ad</sub>	$\mathbf{V}_{ad}$	$\mathrm{FC}_{\mathrm{ad}}$	$A_{ad}$	$\mathrm{C}_{\mathrm{ad}}$	$H_{ad}$	$N_{ad}$	$\mathbf{S}_{\mathrm{ad}}$	$\mathrm{O}_{\mathrm{ad}}$	К	Na
2.40	33.20	58.39	9.01	73.49	4.82	1.12	0.61	10.95	2.23	4.75

表 2 实验工况 Table 2 Operating conditions

		-	-	
工况	氧气流量/ (Nm <sup>3</sup> ・h <sup>-1</sup> )	氧气气速/ (m•s <sup>-1</sup> )	CWS 流量/ (kg•h <sup>-1</sup> )	O/C/ (mol • mol <sup>-1</sup> )
1	3.7	108.3	10.0	0.9
2	4.1	120.0	10.0	1.0
3	4.6	134.6	10.0	1.1
4	5.1	149.2	10.0	1.2

### 2 结果与讨论

### 2.1 水煤浆气化火焰光谱辐射特性

水煤浆气化火焰撞击平面火焰光谱辐射特征如图 2(a) 所示:可见光区域可检测到明显的 Na\*(589 nm)特征峰和 K\* (768 和 770 nm)特征峰,而吹扫气为氩气因此可检测到 Ar(671 nm)特征峰,且强度较高;在紫外光区域,可检测到 明显的 OH\* (306.7 和 309.8 nm)特征峰、H<sub>2</sub>\*(382 nm)特征 峰、CH\*(314.5 和 387 nm)特征峰及 K\*(404 nm)第二特征 峰。水煤浆气化火焰中的背景辐射主要为高温颗粒产生的黑 体辐射及 CO<sub>2</sub>\*产生的 350~600 nm 的连续旋转辐射,因此 为获得真实的自由基辐射强度值,需通过计算扣除背景辐 射,如式(1)所示

$$I = I_{\&} - I_{CO_2} - I_{\& k \equiv \$}$$
(1)

其中 I 为真实自由基辐射强度,  $I_{CO_2}$  和  $I_{\mathbb{H}^k \oplus \mathbb{H}}$  分别为当前波 长下 CO<sub>2</sub>\*辐射强度和黑体辐射强度, Mosbach 和 Lauer<sup>[11-12]</sup> 通过利用 5 阶多项式拟合获取 CO<sub>2</sub>\*辐射强度,并利用普朗 克定律计算黑体辐射强度。自由基真实辐射强度值求取如图 2 所示。



图 2 撞击平面光谱辐射特征

(a): 300~800 nm 波段; (b): 300~420 nm 波段

Fig. 2 The radiation spectrum of flame at the burner plane

(a): 300~800 nm; (b): 300~420 nm

### 2.2 自由基辐射强度分布

沿着气化炉轴向方向,不同自由基强度变化不同,自由 基峰值强度分布与自由基激发方式及流场有关。

(1) OH\*与CH\*辐射

OH\*与CH\*的存在与强度可作为火焰反应区剧烈程度的指标。实验中可检测到紫外光区的OH\*(306.72和308.9 nm)自发辐射光谱和CH\*(314.5和387 nm)自发辐射光谱。 选取OH\*与CH\*峰值所在的308.9和387 nm强度进行探究,强度分布如图3所示。在0.9 $\leq$ O/C $\leq$ 1.1时,OH\*峰强度最大值出现在撞击平面附近,且强度随|L|增大逐渐减小; 但当O/C=1.2时,OH\*峰强度最大值出现在L=10 cm附近,且向上流股中OH\*峰强度>向下流股中OH\*峰强度。CH\*主要存在于-10 cm $\leq$ L $\leq$ 10 cm范围内,在0.9 $\leq$ O/C $\leq$ 1.1时,CH\*峰强度最大值出现在撞击平面附近,随O/C 增加, CH\*峰强度向向上流股中偏移。由表 3 中 OH\*与 CH\*自发辐射发光演变过程<sup>[13]</sup>可知:在喷嘴平面处, 氧气 量充足, 有利于 R2, R5 和 R7 反应的进行, 而在向上流股和 向下流股中氧气逐渐被消耗, 反应减少。而当 O/C 逐渐增 大, 炉膛尤其是向上流股温度逐渐升高<sup>[14]</sup>,将对 OH\*与 CH\*热激发产生影响, 自由基峰强度最大值分布位置上移。

图 4 为不同位置处 OH\*/CH\*强度比值,不同平面处 OH\*/CH\*强度比值随 O/C 的变化不同。O/C<1.2 时,不 同位置处 OH\*/CH\*随着 O/C 增加逐渐增加,而当 O/C= 1.2 时,氧气气速将达到 150m·s<sup>-1</sup>,此时流场相比之前发 生变化,在喷嘴平面以下位置,OH\*/CH\*强度较小,而在 喷嘴平面以上位置逐渐增大。通过对比不同 O/C,喷嘴平面 处,OH\*/CH\*强度最小,此处化学激发占主导。由图 3 可 知,化学激发主要发生区域在-10 cm 毫L<10 cm 范围内。





(a): OH\*; (b): CH\*

衣り	日田本成及昭任
Table 3	Excitation nath of radicals

		•	
自由基能级跃迁	特征峰/nm	演变过	1程
		$O+H+M\rightarrow OH^*+M$	R1(化学激发)
$OH(A^2\Sigma^+)$ - $OH(X^2\Pi)$	306.72, 308.9	$CH+O_2 \rightarrow CO+OH^*$	R2(化学激发)
		$OH + M \rightarrow OH^* + M$	R3(热激发)
		$C_2$ + OH → CO + CH	R4(化学激发)
		$C_2H+O\rightarrow CO+CH^*$	R5(化学激发)
$\operatorname{CH}(A^2\Delta)\operatorname{-CH}(C^2\Sigma^+)$	;+) 314.5,387	$C+H+M\rightarrow CH^*+M$	R6(化学激发)
		$C_2H+O_2\rightarrow CO_2+CH^*$	R7(化学激发)
		$CH+M\rightarrow CH^*+M$	R8(热激发)

注: M 为碰撞粒子

OH\* /CH\* 变化可以反映激发路径的变化。



(2) 碱金属辐射

水煤浆中 Na 和 K 主要以溶于水的无机盐及矿物质中的 结晶体两种形式存在<sup>[15]</sup>。Na 与 K 离子在经热激发会产生相 应的特征峰,图 5 为 Na\*(589 nm)和 K\*(770 nm)在不同工 况下辐射强度差异。撞击平面附近 Na\*强度较大,而随着 | L |增大,Na\*强度有所减小,其中向上流股中 Na\*强度高于 向下流股中强度。K\*强度在强度变化比较无序,随 O/C 增 加至 1.2,K\*峰值强度在向上流股中出现。当水煤浆进入气 化炉后,经氧气剪切雾化,溶液中 Na 和 K 受热激发产生激 发态的 Na\*和 K\*,因此撞击区内辐射强度较高。而随着反 应进行,煤矿物质中结晶也将析出并产生辐射发光,矿物质 中碱金属析出受到矿物质停留时间影响,气流床撞击水煤浆 气化炉,通过撞击增加了颗粒的停留时间,因此在向上和向 下流股中也可检测到强烈的 Na\*和 K\*辐射。但是由于煤中 Na 和 K 粒子含量较少,利用 Na\*和 K\*表征 O/C 会出现较 大误差。

由于 Na\*和 K\*峰值受到背景辐射影响较小,因此利用 光纤光谱仪非积分校正的强度图来分析 Na\*和 K\*强度变 化,可反映出火焰频率。图 6 为不同工况下撞击平面处 Na\* 相对强度变化,可知 Na\*自发辐射强度随火焰撞击过程可产 生脉动而呈现峰谷分布。随着 O/C 增加 Na\*峰谷频率越高, 说明随着氧气气速逐渐增加,火焰脉动剧烈。且 Na\*强度逐 渐增加,说明剧烈的撞击有助于反应的进行。

(3) H<sub>2</sub>\* 辐射

图 7 为不同工况下 H<sup>2</sup> 辐射强度变化。撞击区内 H<sup>2</sup> 强 度较高,而向上流股与向下流股中强度较小,这是由于水煤 浆进入气化炉内迅速蒸发,煤中挥发分在撞击区内析出,而 挥发分中大部分的 H 反应并产生 H<sup>2</sup> 辐射,而向上流股与 向下流股中反应挥发分逐渐反应完全,H<sup>2</sup> 辐射强度变小。 O/C 为 1.2 时,H<sup>2</sup> 辐射强度在向上流股中检测到,说明此 时流场改变,使其在向上流股中发生反应。H<sup>2</sup> 强度分布可



图 5 Na\*(a)和 K\*(b)辐射强度变化 Fig. 5 The change of Na\*(a) and K\*(b) intensity



图 6 撞击平面处 Na\*辐射强度频率变化 Fig. 6 The frequency change of Na\* intensity at impinging plane



表征煤中挥发分反应程度。

3 结 论

(1) 气流床撞击水煤浆气化炉内火焰反应区内可检测到 OH\*, CH\*, H<sub>2</sub>\*, Na\*, K\*及 Ar\*特征峰, 且强度较高。

(2) OH\*分布可表征火焰反应区域,而CH\*存在范围 相对较窄,仅存在于-10 cm<L<10 cm反应剧烈区域。 OH\*/CH\*变化可以反映出其激发路径的变化,进而确定主 反应区。

(3) Na\*和K\*可反映气化炉高温区域。由于碱金属强度受到背景辐射影响较小,可用于表征火焰频率,并可反映 气化效果。

(4) H<sub>2</sub> 强度可表征煤中挥发分反应程度。煤中挥发分 在撞击区内析出,而挥发分中大部分的 H 反应并产生 H<sub>2</sub> 辐射。

### References

- [1] WANG Fu-chen, DAI Zheng-hua(王辅臣,代正华). Chemical World(化学世界), 2015, 56(1): 51.
- [2] Oh J. Energy, 2016, 116: 986.
- [3] Rankin B A, Magnotti G, Barlow R S, et al. Combustion and Flame, 2014, 161(11): 2849.
- [4] Xu H, Liu F, Sun S, et al. Combustion and Flame, 2017, 177: 67.
- [5] Escudero F, Fuentes A, Demarco R, et al. Experimental Thermal and Fluid Science, 2016, 73: 101.
- [6] Moon C, Sung Y, Eom S, et al. Experimental Thermal and Fluid Science, 2014, 62(1): 99.
- [7] Abboud J, Schobing J, Legros G, et al. Fuel, 2017, 193: 241.
- [8] Parameswaran T, Hughes R, Gogolek P, et al. Fuel, 2014, 134: 579.
- [9] Sung Y, Choi G. Fuel, 2016, 174: 76.
- [10] Sung Y, Lee S, Eom S, et al. Energy, 2016, 103: 61.
- [11] Mosbach T, Burger V, Gunasekaran B. Proceedings of ASME Turbo Expo 2015: Turbine Technical Conference and Exposition, 2015, V04BT04A002: 1.
- [12] Lauer M, Sattelmayer T. Journal of Engineering for Gas Turbines and Power. 2010, 132(6): 061502.
- [13] Leo M D, Saveliev A, Kennedy L A, et al. Combustion and Flame, 2007, 149: 435.
- [14] Yan G, Guo Q, Jie Z, et al. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2013, 52(8): 3007.
- [15] Van P J, Ashman P J, Alwahabi Z T, et al. Combustion and Flame, 2011, 158: 1181.

# Chemiluminescence Characteristics of Coal-Water Slurry Impinging Flames in Bench-Scale Entrained Flow Gasifier

SONG Xu-dong<sup>1</sup>, GUO Qing-hua<sup>2</sup>, GONG Yan<sup>2</sup>\*, SU Wei-guang<sup>1</sup>, BAI Yong-hui<sup>1</sup>, YU Guang-suo<sup>1, 2</sup>\*

- State Key Laboratory of High-Efficiency Coal Utilization and Green Chemical Engineering, School of Chemistry and Chemical Engineering, Ningxia University, Yinchuan 750021, China
- Key Laboratory of Coal Gasification and Energy Chemical Engineering of Ministry of Education, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China

Abstract The flame spectrum detection technology applied to the effective monitoring of gasifier can reflect the working condition of gasifier in real time and guarantee the stable operation of gasifier. Based on the bench-scale entrained flow gasifier, the different chemiluminescence characteristics at different axial positions of the impinging plane (L) of coal-water slurry (CWS) flame are studied by the spectrometer, and the reaction zones in gasifier are characterized by different radical intensity and distributions. The results show that: OH\* (306.7 nm, 309.8 nm), H<sub>2</sub>\* (382 nm), CH\* (314.5 nm, 387 nm), Na\* (589 nm), Ar (671 nm) and K\* (404 nm, 768 nm, 770 nm) characteristic peaks can be detected in the range of 300~800 nm. Different particle distributions can be used to characterize the macroscopic characteristics of flame. There is also a strong background radiation in CWS gasification flame. The background radiation mainly comes from the blackbody radiation generated by coal particles at high temperature and continuous rotational radiation of  $350 \sim 600$  nm generated by  $CO_2^*$ . The strong background radiation will interfere with the determination of free radical intensity radiation, which will be deducted by the calculation. The distribution of OH\* can be used to characterize the flame reaction region, while  $CH^*$  only exists in a relatively narrow reaction region of -10 cm< $L \leq 10$  cm. When  $0.9 \leq O/C \leq 1.1$ , OH<sup>\*</sup> and CH<sup>\*</sup> peak intensity exist at the impinging plane. With the increase of O/C, the existence position of CH\* peak intensity turns to upstream. The intensity ratio of OH\* /CH\* varies with the change of O/C at different positions. OH\*/CH\* reflects the change of free radical excitation path. OH\*/CH\* is the lowest at the impinging plane, because of chemical excitation dominates. Chemical excitation mainly occurs in the range of -10 cm < L < 10 cm. The intensity of Na<sup>\*</sup> near the impinging plane is relatively high, but with the increase of |L|, the Na<sup>\*</sup> intensity will decrease. The Na\* intensity in the upstream is higher than that in the downstream. Different from Na\*, the change of K\* intensity is disordered in the region of -20 cm < L < 20 cm. Since the excitation mode of alkali particles (Na<sup>\*</sup> and K<sup>\*</sup>) is thermal excitation, the distribution of alkali particles can be used to judge the high temperature region of the flame. However, due to the low content of Na and K particles in coal, the use of Na\* and K\* to characterize O/C will cause a large error. Because Na\* and K\* is less affected by background radiation, it can be used to characterize the flame frequency and reflect the gasification effect. Na\* intensity fluctuates with the impact of flames. With the increase of O/C, the frequency of Na<sup>\*</sup> intensity can indicate the change of flame fluctuation with the increase of oxygen gas velocity. And the Na<sup>\*</sup> strength gradually increase, indicating that the violent impact is conducive to the reactions. There is a high intensity of  $H_2^*$  in the impinging zone, and the  $H_2^*$  intensity can represent the reactions of volatile matter.

Keywords Spectral radiation; Entrained-flow gasifier; Chemical excitation; Thermal excitation; Combustion diagnosis

\* Corresponding authors

(Received Dec. 19, 2018; accepted Apr. 6, 2019)

### (上接 460 页)

### 4.3 会议住宿

会议酒店:

1. 世外桃源酒店

地址:四川省成都市武侯区科华北路 69 号

酒店房间价格:标间 620 元/间天;大床房 560 元/间天

2. 科华苑宾馆

地址:四川省成都市武侯区科华北路141号

酒店房间价格:标间 360 元/间天;大床房 470 元/间天

由于会议期间住宿相对紧张,涉及到房间预定、会议安排等因素,务请各位专家、同学在截止日期前注册,只有在收到注 册费后,才会进行会议相关安排,务请体谅与协助。

### 五、会议组织机构

大会组委会人员组成请见如下链接: http://www.sinospectroscopy.org.cn/meeting/extend.php?mid=24&body\_id=12 学术委员会人员组成见如下链接: http://www.sinospectroscopy.org.cn/meeting/extend.php?mid=24&body\_id=13 有关会议的邀请报告、住房信息、交通路线、稿件编号等信息敬请登录会议主页查询。

### 六、组委会和会务组联系方式

组委会: 吴兰: 13688385033 Email: wulan@scu.edu.cn 会务组: 注册&住宿:张 亮 15902844473 Email: zhang.liang@scu.edu.cn 报告&论文: 李成辉 18980877825 Email: atcpubs@scu.edu.cn 厂 商 联 络: 王香凤 13520034335 Email: xiangfeng@bnu.edu.cn

### 七、支持媒体

会议官网:光谱网(http://www.sinospectroscopy.org.cn) 会议各类信息发布以光谱网信息为准。

### 主办单位:

中国光学学会 中国化学会 中国光学会光谱专业委员会

### 承办单位:

四川大学分析测试中心

中国光学学会光谱专业委员会 四川大学分析测试中心 2019年11月18日