

УДК 544.452.1, 520.843.054

## ЗАЖИГАНИЕ КАМЕННЫХ УГЛЕЙ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ В РЕЖИМЕ МОДУЛЯЦИИ ДОБРОТНОСТИ

© 2021 г. Б. П. Адуев<sup>1,\*</sup>, Д. Р. Нурмухаметов<sup>1</sup>, Г. М. Белокуров<sup>1</sup>, Я. В. Крафт<sup>1</sup>, З. Р. Исмагилов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> ФИЦ угля и углехимии СО РАН, 650000 Кемерово, Россия

\*e-mail: lesinko-iuxm@yandex.ru

Поступила в редакцию 11.06.2020 г.

После доработки 11.01.2021 г.

Принята к публикации 03.02.2021 г.

Измерены пороги зажигания и кинетические характеристики свечения пламени при воздействии лазерных импульсов наносекундной длительности ( $\tau_i = 14$  нс) YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазера ( $\lambda = 1064$  нм) на каменные угли Кузнецкого бассейна марок ДГ (длиннопламенный газовый), Г (газовый), Ж (жирный), К (кокосовый). Выделены стадии, связанные с испарением микровыступов на поверхности частиц и развитием электронной лавины. Порог  $H_{cr}^{(1)}$  не зависит от марки угля. Амплитуда свечения нелинейно зависит от  $H$ , кинетика свечения содержит два компонента с  $\tau_1 \sim 20$  нс и  $\tau_2 \sim 1$  мкс. При достижении плотности энергии  $H_{cr}^{(2)}$  наблюдается свечение в микросекундном временном интервале, связанное с воспламенением коксового остатка. Порог воспламенения  $H_{cr}^{(2)}$  уменьшается при возрастании степени углефикации и уменьшении содержания летучих веществ.

Ключевые слова: лазерное зажигание, каменные угли, кинетика свечения, летучие вещества, коксовый остаток, свечение пламени, нелинейная ионизация

DOI: 10.31857/S0023117721030026

### ВВЕДЕНИЕ

Физические методы зажигания пылевидного угольного топлива пока не получили широкого применения, что связано с решением ряда технических проблем и фундаментальных исследований. Лазерное излучение в перспективе может быть использовано для разработки технологии лазерного инициирования термохимических процессов переработки углей, в том числе зажигания пылеугольного топлива в котельных установках и создания новых эффективных камер сгорания. Детальное изучение механизма зажигания пылевидного топлива представляет также интерес для разработки методов предотвращения взрывов угольной пыли в шахтах или методов стабилизации пламени при сжигании пылеугольного топлива [1–3]. Такие исследования удобно вести с использованием импульсного лазерного излучения в сочетании регистрации свечения пламени с использованием времяразрешающих методик регистрации. Работы по лазерному зажиганию ведутся давно с использованием лазерных импульсов длительностью  $10^{-4}$ – $10^{-3}$  с [4–9].

В работах [10, 11] при воздействии YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазера, работающего в режиме свободной генерации ( $\tau_i = 120$  мкс), исследовали зажигание углей

марок ДГ и 2Б. Установлено три характерных порога воспламенения в различных временных интервалах. Во время импульса происходит нагрев частиц до  $T \sim 3000$  К и зажигание микровыступов при плотностях энергии  $H_{cr}^{(1)} \sim 0.5$  Дж/см<sup>2</sup>. При  $H_{cr}^{(2)} \sim 1$  Дж/см<sup>2</sup> в микросекундном временном интервале происходит выход и зажигание летучих веществ. При  $H_{cr}^{(3)} \sim 2.5$  Дж/см<sup>2</sup>, через 10 мс происходит воспламенение и горение во временном интервале 50–150 мкс коксового остатка.

Представляет интерес проведение таких экспериментов с использованием лазера с наносекундной длительностью импульса. Такого рода работы по зажиганию угольных частиц практически отсутствуют, что, по-видимому, связано с определенными экспериментальными трудностями. Однако такие эксперименты с использованием времяразрешающих методов регистрации позволят получить информацию о первичных физико-химических процессах в частицах угля.

### ОБЪЕКТЫ И МЕТОДИКА

Использовались образцы каменных углей Кузбасса марок ДГ, Г, Ж и К. Для получения экспе-

**Таблица 1.** Результаты технического анализа углей, %

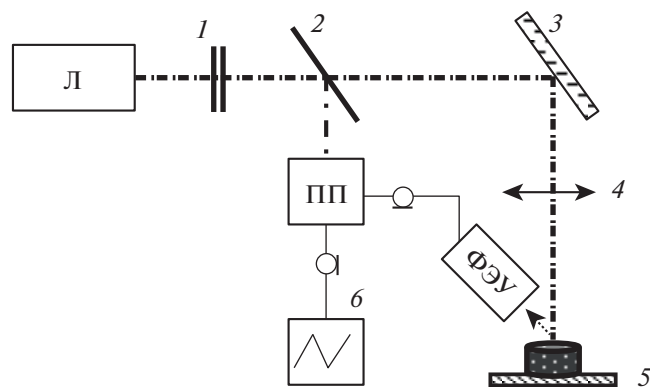
Марка угля	$W^a$	$A^d$	$V^{daf}$	$C^{daf}$
ДГ	4.0	4.6	40.2	79
Г	2.8	28.6	42.7	81
Ж	1.2	4.8	34.1	88
К	1.0	4.9	21.2	90

риментальных образцов проводился помол углей всех исследуемых марок на щековой мельнице, затем – просеивание через сито с ячейкой 63 мкм. Просеянные порошки собирались в специальной посуде, закрытой для доступа воздуха. Был проведен технический анализ образцов на содержание влаги  $W^a$ , зольности  $A^d$ , летучих веществ  $V^{daf}$  и углерода  $C^{daf}$  согласно ГОСТ-Р53357-2013. Результаты представлены в табл. 1.

В экспериментах использовались прессованные образцы в виде таблеток с плотностью  $\rho = 1 \text{ г/см}^3$ , диаметром 5 мм и толщиной 2 мм. Схема эксперимента приведена на рис. 1.

Зажигание углей осуществлялось при помощи единичных импульсов излучения первой гармоники ( $\lambda = 1064 \text{ нм}$ ) YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазера (Л), работающего в режиме модуляции добротности с длительностью импульса  $\tau_i = 14 \text{ нс}$  и энергией в импульсе до 1 Дж.

Регулирование энергии излучения осуществлялось с помощью стеклянных нейтральных светофильтров (1) с известным коэффициентом ослабления. Для контроля энергии часть излучения (8%) отводилась прозрачной стеклянной пластиной (2) на пироэлектрический приемник *Ophir Photonics PE50BF-C* (ПП). При помощи фокусирующей линзы (4) с фокусным расстоянием  $F = 25 \text{ см}$  и поворотного зеркала (3) излучение на-



**Рис. 1.** Схема эксперимента: 1 – нейтральные светофильтры; 2 – светоделительная пластинка; 3 – поворотное зеркало; 4 – линза; 5 – образец; 6 – осциллограф. Л – лазер; ПП – пироэлектрический приемник; ФЭУ – фотозэлектронный умножитель.

правлялось на образец (5), находящийся на массивном основании. Диаметр лазерного пятна на образце составлял  $d = 2.5 \text{ мм}$ . Свечение образца регистрировалось при помощи фотозэлектронного умножителя *Hamamatsu H 10707-09* (ФЭУ) и осциллографа *LeCroy WY332A* (6).

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В работе проведены исследования порогов воспламенения всех указанных марок углей и кинетических характеристик их свечения в зависимости от плотности энергии лазерного импульса.

Для определения пороговых характеристик последовательно облучались 10 образцов единичным импульсом лазера определенной энергии и регистрировались кинетики свечения с помощью фотоумножителя. Вероятность воспламенения определялась как  $p = n/10$ , где  $n$  – число зарегистрированных вспышек. Далее плотность энергии увеличивалась, и эксперимент повторялся. Таким образом, измерялась вероятность появления вспышки от плотности энергии лазерного импульса. За порог воспламенения принимали плотность энергии, соответствующую 50%-ной вероятности появления вспышки.

Для примера на рис. 2 представлены осциллограммы свечения угля марки Ж при двух плотностях лазерного воздействия, из которых видна возможность выделения пороговых характеристик. За первый порог  $H_{cr}^{(1)}$  в дальнейшем принимали плотность энергии излучения, при которой вероятность появления осциллограмм равнялась 50% (рис. 2,а). За второй порог  $H_{cr}^{(2)}$  принимали плотность энергии, при которой вероятность появления осциллограмм равнялась 50% (рис. 2,б).

При достижении плотности энергии  $H_{cr}^{(1)}$  (рис. 2,а) кинетика свечения состоит из двух компонентов. Интенсивность первого компонента возрастает за время лазерного импульса и далее спадает за время  $\sim 20 \text{ нс}$  (рис. 2,а). Амплитуда второго компонента свечения возрастает за время  $\sim 50\text{--}100 \text{ нс}$  от начала импульса, далее следует релаксация интенсивности свечения в микросекундном временном интервале. Над образцом наблюдается вспышка пламени высотой  $\sim 2\text{--}3 \text{ мм}$ . При плотностях энергии, соответствующих  $H_{cr}^{(2)}$ , помимо описанных компонентов появляется компонент свечения во временном интервале  $\sim 150\text{--}1000 \text{ мкс}$ . При этом над образцами наблюдается вспышка пламени высотой до 3–4 см. Аналогичного типа осциллограммы свечения наблюдаются для всех исследованных марок углей. При определении  $H_{cr}$  проводились измерения на 10 образцах, вычислялись среднее значение  $H_{cr}$  и погрешность измерений по методу Стьюдента. Пороги зажигания

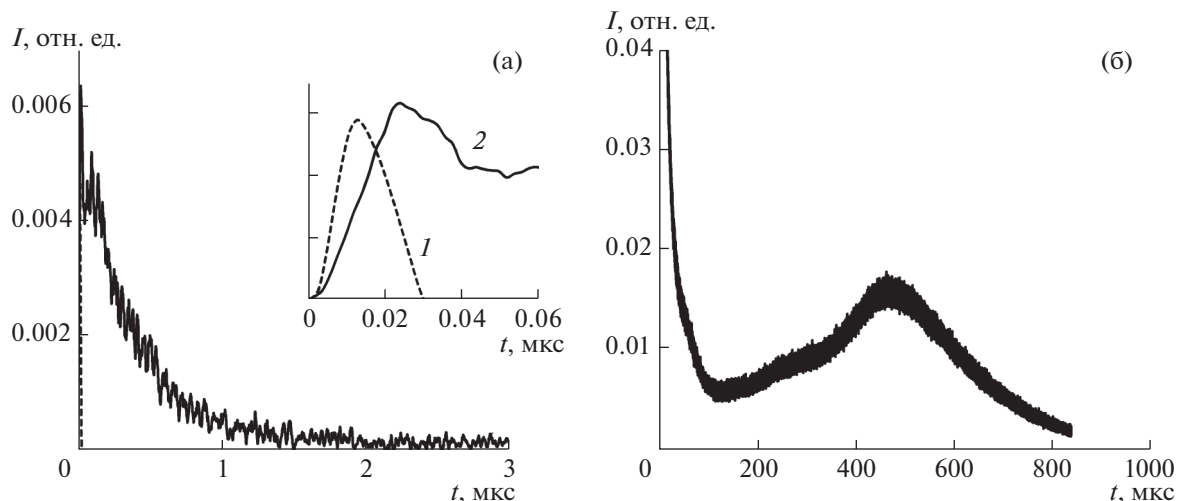


Рис. 2. Типичные кривые свечения образцов угля марки “Ж” при воздействии лазерных импульсов: 0.2 Дж/см<sup>2</sup>(а); 2.3 Дж/см<sup>2</sup> (б). На врезке: 1 – лазерный импульс, 2 – свечение образца.

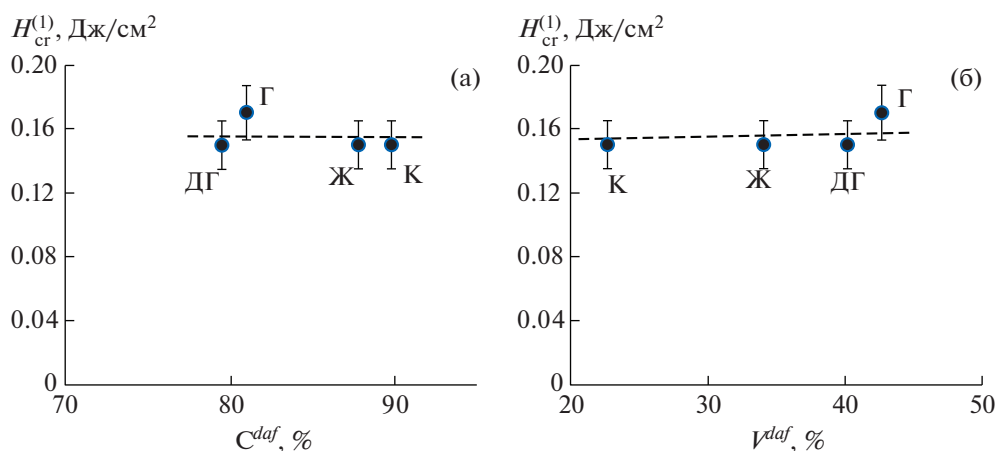


Рис. 3. Зависимости порога  $H_{cr}^{(1)}$  от степени углефикации (а) и содержания летучих веществ в образцах углей (б).

углей на различных стадиях представлены в табл. 2.

На рис. 3 представлены пороги  $H_{cr}^{(1)}$  в графическом виде в зависимости от их степени углефикации и содержания летучих веществ в образцах каменных углей. Аналогичные результаты представлены на рис. 4 для порогов  $H_{cr}^{(2)}$  для всех исследованных марок углей. На рис. 5 представлены амплитуды свечения всех марок углей в зависимости от плотности энергии лазерного излучения.

Отметим еще одну особенность воздействия наносекундных лазерных импульсов на таблетки углей. Если таблетка не закреплена, то после импульса происходит ее смещение из зоны облучения. Визуально на поверхности таблетки наблюдается кратер, свидетельствующий о выбросе части вещества. При воздействии лазерными им-

пульсами на образцы насыпной плотности ( $\rho = 0.5 \text{ г/см}^3$ ) наблюдается разлет частиц из зоны облучения, что свидетельствует о возникновении импульса отдачи при воздействии лазерного импульса.

Было проведено измерение акустического импульса, возникающего в угольной таблетке при

Таблица 2. Пороги зажигания углей на различных стадиях

Марка угля	$H_{cr}^{(1)}$ , Дж/см <sup>2</sup>	$H_{cr}^{(2)}$ , Дж/см <sup>2</sup>
ДГ	$0.15 \pm 0.02$	$3.2 \pm 0.3$
Г	$0.17 \pm 0.02$	$3.5 \pm 0.3$
Ж	$0.15 \pm 0.02$	$2.3 \pm 0.2$
К	$0.15 \pm 0.02$	$1.6 \pm 0.2$

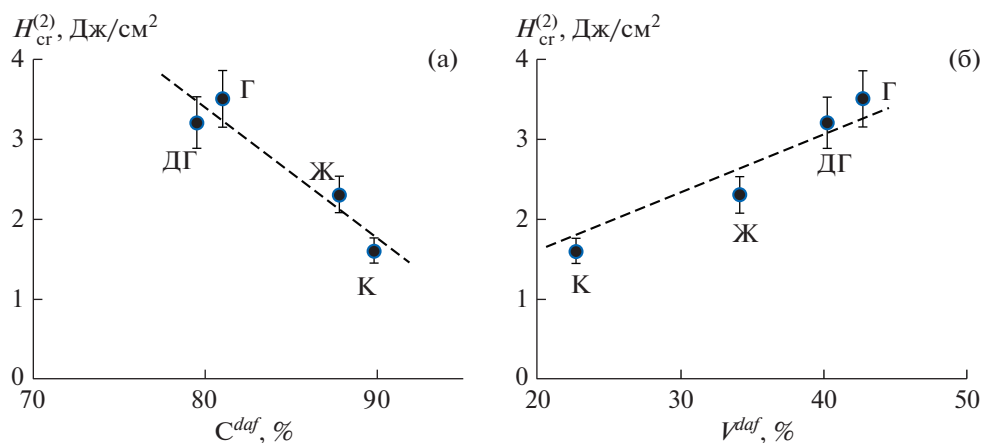


Рис. 4. Зависимости порога  $H_{cr}^{(2)}$  от степени углефикации (а) и содержания летучих веществ в образцах углей (б).

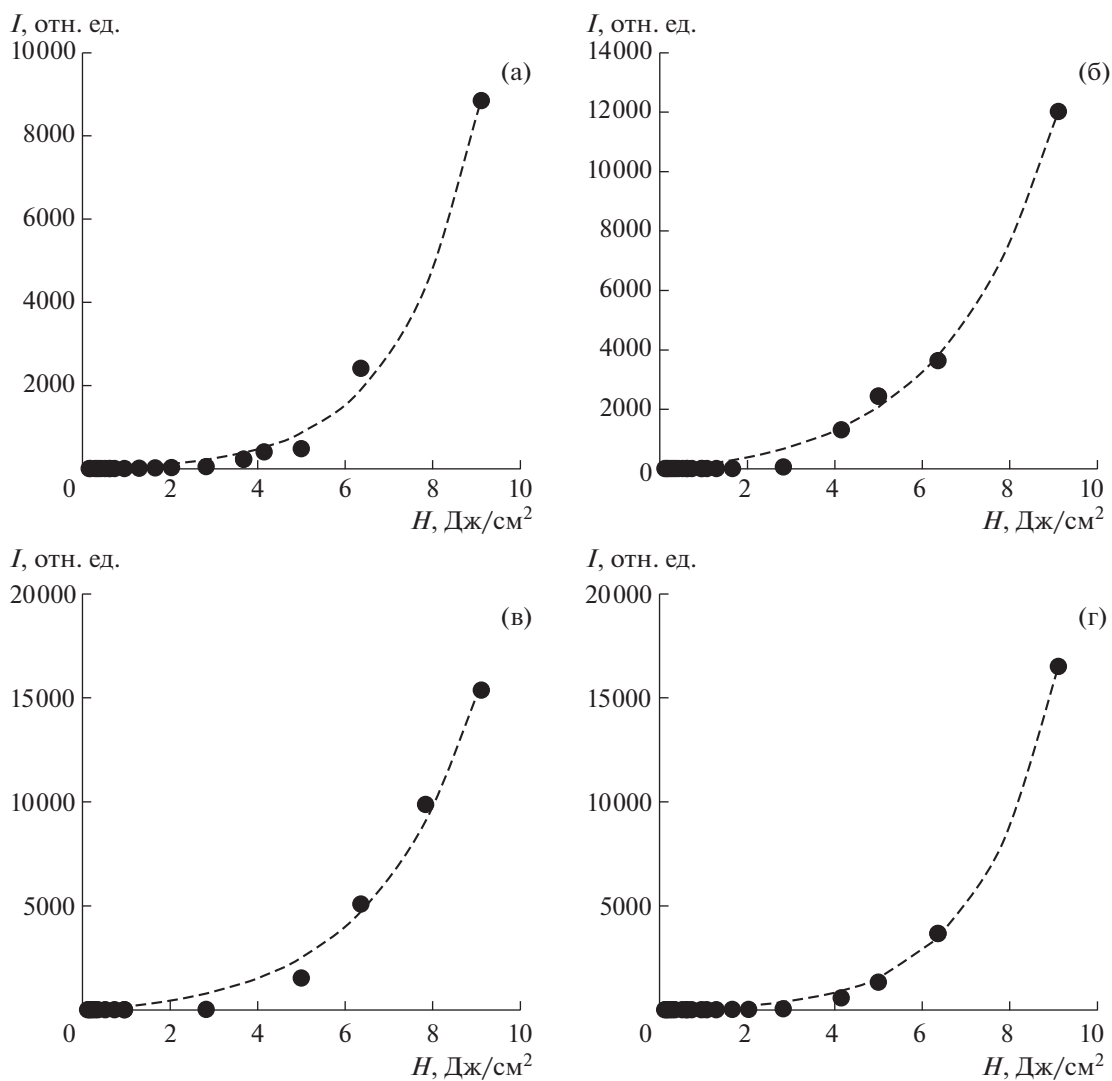


Рис. 5. Зависимости амплитуды свечения образцов от плотности энергии лазерных импульсов: уголь марки ДГ (а); уголь марки Г (б); уголь марки Ж (в); уголь марки К (г).

лазерном воздействии с использованием акустической методики, которую применили при исследовании таблеток взрывчатых образцов [12]. Результат представлен на рис. 6.

### ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Сравнение экспериментальных результатов с литературными данными [10, 11], в которых воздействие на угли проводилось лазерными импульсами длительностью  $\sim 10^{-4}$  с, показывает, что кинетика процессов, протекающих в углях при воздействии лазерных импульсов наносекундной длительности при близких значениях плотности энергии, значительно различается. Очевидно, что это различие связано с существенным различием мощности лазерных импульсов. В режиме свободной генерации диапазон использованных плотностей энергий составлял  $E \approx (0.4-4)$  Дж/см<sup>2</sup>, что при длительности импульса  $\tau = 120$  мкс соответствует диапазону плотности мощности  $W = (3-30) \cdot 10^3$  Вт/см<sup>2</sup>, а в данной работе плотность мощности больше на пять порядков  $W = (0.15-9) \cdot 10^8$  Вт/см<sup>2</sup>. В этом диапазоне интенсивностей лазерных импульсов с длительностью  $10^{-8}$  с при воздействии на непрозрачные материалы (например, графит, металлы) происходят процессы нагрева и испарения вещества [13, 14].

В паре, образующемся над образцом, процессы лавинной ионизации и оптического пробоя облегчаются [13]. Считается также, что снижается порог пробоя воздуха в слоях, прилегающих к нагретому до высокой температуры веществу [13]. Наличие акустического импульса и кратера на поверхности образца также позволяет сделать вывод, что происходит испарение и выброс вещества во время воздействия лазерного импульса.

Второй компонент — нарастание свечения за время  $\sim 50-100$  нс и с последующей релаксацией в микросекундном временном интервале по кинетике второго порядка, что свидетельствует о рекомбинационном характере свечения.

Порог  $H_{cr}^{(1)}$  в пределах погрешности измерений не зависит от степени углефикации и содержания летучих веществ:  $H_{cr}^{(1)} = 0.15-0.17$  Дж/см<sup>2</sup>. В работе [3] показано, что на поверхности угольных частиц имеются микровыступы, в окрестности которых напряженность поля при воздействии лазерных импульсов длительностью  $> 10^{-4}$  с происходит нагрев и воспламенение этих выступов. При воздействии лазерных импульсов наносекундной длительности, предположительно, во время импульса начинаются испарение вплоть до взрыва микровыступов и частичная ионизация пара в результате возникновения электронной лавины. Интенсивность этих процессов возрастает с увеличением  $H_{cr} > H_{cr}^{(1)}$ , о чем свидетельствует нели-

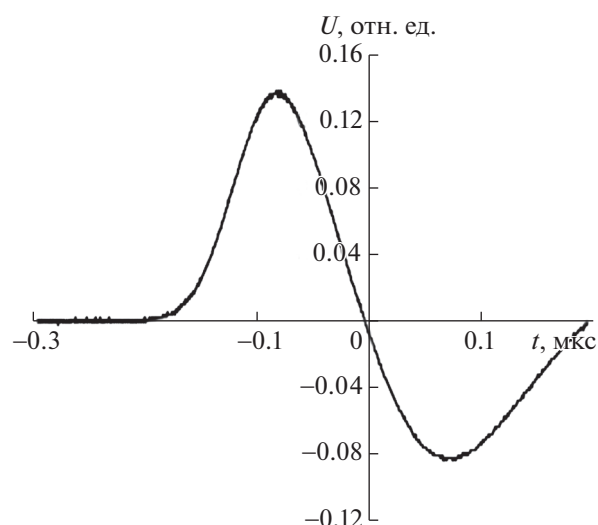


Рис. 6. Типичный оптико-акустический сигнал, возникающий в угольной таблетке при лазерном воздействии. Плотность энергии лазерного излучения  $0.5$  Дж/см<sup>2</sup>.

нейное возрастание амплитуды свечения (рис. 5), что характерно для лавинного процесса ионизации испаренного вещества.

При плотностях энергии  $H_{cr} > H_{cr}^{(1)}$  в результате нагрева угольных частиц до высоких температур, по-видимому, начинаются также выход и воспламенение летучих веществ. В результате образуется парогазопламенный факел высотой  $2-3$  мм, наблюдаемый визуально.

В случае выхода СО возможно его воспламенение по цепному механизму в присутствии паров воды [15], что также может объяснить наблюдаемую нелинейную зависимость амплитуды свечения. Вывод о происхождении парогазоплазменного факела, сделанный по результатам кинетических измерений, можно будет обосновать после проведения спектрально-кинетических измерений, аналогичных проведенным в работе [10].

Свечение, соответствующее  $H_{cr}^{(2)}$ , наблюдается во временном интервале  $\tau \sim 0.2-1$  мс (рис. 2,б) после лазерного импульса, т.е. возникает в результате протекания химических реакций в частицах углей. При этом, как указывалось выше, возникает пламя высотой  $3-4$  см, кроме того, наблюдается напыление сажи на поворотное зеркало (рис. 1, кривая 5). По аналогии с зажиганием углей микросекундными импульсами [10, 11] наблюдаемый эффект можно связать с зажиганием коксового остатка.

Уменьшение порога  $H_{cr}^{(2)}$  с ростом углефикации, по-видимому, связано с увеличением показателя поглощения излучения угольным веществом в ряду метаморфизма углей, что приводит к

увеличению скорости химических реакций и снижению  $H_{cr}^{(2)}$ .

При воздействии на таблетки углей марок ДГ, Г, Ж и К плотностью  $1 \text{ г/см}^3$  лазерными импульсами длительностью 14 нс, мощностью  $(0.15-9) \cdot 10^8 \text{ Вт/см}^2$  получены следующие результаты.

1. Выделены стадии, связанные с испарением, ионизацией пара и зажиганием углей. Первая связана с образованием пароплазменного факела, выходом и зажиганием летучих веществ; вторая стадия включает первую и воспламенение коксового остатка в микросекундном временном интервале. Измерены пороги зажигания обеих стадий для всех марок углей.

2. Амплитуда свечения  $I$  всех марок углей нелинейно возрастает с увеличением плотности энергии лазерных импульсов при  $H_{cr} > H_{cr}^{(1)}$ , что свидетельствует о лавинном нарастании концентрации центров свечения во время лазерного импульса.

3. При плотностях излучения  $H_{cr} > H_{cr}^{(2)}$  в миллисекундном временном интервале в результате протекания химических реакций в частицах углей возникает пламя, соответствующее горению коксового остатка. Порог зажигания  $H_{cr}^{(2)}$  уменьшается при возрастании степени углефикации и уменьшении содержания летучих веществ.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают благодарность А.Н. Заостровскому за предоставленные образцы углей, Н.И. Федоровой — за проведение технического анализа образцов.

#### ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена в рамках государственного задания ИУХМ ФИЦ УУХ СО РАН (проект АААА-А17-117041910150-2, руководитель Б.П. Адуев) на оборудовании ЦКП ФИЦ УУХ СО РАН.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Taniguchi M., Kobayashi H., Kiyama K., Shimogori Y.* // *Fuel*. 2009. V. 88. № 8. P. 1478.
2. *Yang Q., Peng Z.* // *Intern. J. Hydrogen Energy*. 2010. V. 35. № 10. P. 4715.
3. *Pogodaev V.A.* // *Combustion, Explosion, and Shock Waves*. 1984. V. 20. № 1. P. 46. <https://doi.org/10.1007/BF00749917>
4. *Chen J.C., Taniguchi M., Narato K., Ito K.* // *Combustion and flame*. 1994. V. 97. № 1. P. 107. [https://doi.org/10.1016/0010-2180\(94\)90119-8](https://doi.org/10.1016/0010-2180(94)90119-8)
5. *Воробьев А.Я., Либенсон М.Н.* // *Письма в ЖЭТФ*. 1990. Т. 16. № 19. С. 79. [*Vorobev A.Y., Libenson M.N.* // *JETP Letters*. 1990. V. 16. № 19. P. 79]
6. *Dodoo J.N.D., Ochran A.R.* // *Fuel*. 1994. V. 73. № 5. P. 773. [https://doi.org/10.1016/0016-2361\(94\)90023-X](https://doi.org/10.1016/0016-2361(94)90023-X)
7. *Norman F., Berghmans J., Verplaetsen F.* // *Chem. Engng Trans*. 2013. V. 31. P. 739. <https://doi.org/10.3303/CET1331124>
8. *Кузиковский А.В., Погодаев В.А.* // *Физика горения и взрыва*. 1977. Т. 13. № 5. С. 783. [*Kuzikovskii A.V., Pogodaev V.A.* // *Combustion, Explosion, and Shock Waves*. 1977. V. 13. № 5. P. 783].
9. *Qu M., Ishigaki M., Tokuda M.* // *Fuel*. 1996. V. 75. № 10. P. 1155. [https://doi.org/10.1016/0016-2361\(96\)00079-8](https://doi.org/10.1016/0016-2361(96)00079-8)
10. *Адуев Б.П., Нурмухаметов Д.Р., Ковалев Р.Ю., Крафт Я.В., Заостровский А.Н., Гудилин А.В., Исмагилов З.Р.* // *Оптика и спектроскопия*. 2018. Т. 125. № 2. С. 277. [*Aduев B. P., Nurmukhametov D.R., Kovalev R.Y., Kraft Y.V., Zaostrovskii A.N., Gudilin A.V., Ismagilov Z.R.* // *Optics and Spectroscopy*. 2018. V. 125. № 2. P. 293. <https://doi.org/10.1134/S0030400X18080039> <https://doi.org/10.21883/OS.2018.08.46373.29>
11. *Адуев Б.П., Нурмухаметов Д.Р., Нелюбина Н.В., Ковалев Р.Ю., Заостровский А.Н., Исмагилов З.Р.* // *Химическая физика*. 2016. Т. 35. № 12. С. 47. [*Aduев B.P., Nurmukhametov D.R., Nelyubina N.V., Kovalev R.Y., Zaostrovskii A.N., Ismagilov Z.R.* // *Russian Journal of Physical Chemistry B: Focus on Physics*. 2016. V. 10. № 6. P. 963. <https://doi.org/10.1134/S1990793116060154> <https://doi.org/10.7868/S0207401X16120025>
12. *Адуев Б.П., Нурмухаметов Д.Р., Белокуров Г.М., Нелюбина Н.В.* // *Оптика и спектроскопия*. 2018. Т. 124. № 3. С. 404. [*Aduев B.P., Nurmukhametov D.R., Belokurov G.M., Nelyubina N.V., Tupitsyn A.V.* *Optics and Spectroscopy*. 2018. Т. 124. № 3. P. 412. <https://doi.org/10.1134/S0030400X18030049> <https://doi.org/10.21883/OS.2018.03.45661.255>
13. *Делоне Н.Б.* *Взаимодействие лазерного излучения с веществом*. М.: Наука, 1989. 280 с.
14. *Гончаров В.К., Пузырев М.В., Ступакевич В.Ю.* // *Вестн. БГУ. Сер. 1. Математика. Физика. Информатика*. 2016. № 1. С. 79. [*Goncharov V.K., Puzurev M.V., Stupakevich V.Ju.* // *Vestnik BGU. Series 1: Physics. Mathematics. Information Science*. 2016. № 1. P. 79.
15. *Graven W.M., Lion F.J.* // *J. Amer. Chem. Soc.* 1954. V. 76. № 10. P. 2602.