

研究论文

DOI: 10.11949/0438-1157.20190336

高碱煤燃烧过程中亚微米颗粒物 PM_{10} 的生成特性

赵京^{1,2}, 张玉锋^{1,2}, 魏小林^{1,2}, 李腾¹, 宾峰¹⁽¹⁾ 中国科学院力学研究所高温气体动力学国家重点实验室, 北京 100190; ⁽²⁾ 中国科学院大学工程科学学院, 北京 100049)

摘要: 高碱煤中通常具有较高的碱金属含量, 其是煤燃烧过程中形成亚微米颗粒物 PM_{10} 的主要前体。在一维高温沉降炉上, 研究了不同反应温度和取样位置对高碱煤燃烧过程中 PM_{10} 生成特性的影响, 并分析了其质量粒径分布、产量以及矿物元素组成。同时研究了不同反应温度下高岭土对 PM_{10} 高效吸附特性。结果表明: 随着反应温度的增加, 亚微米颗粒物 PM_{10} 生成量逐渐降低, 颗粒粒径向小粒径偏移。 PM_{10} 生成主要受到 Na、S 等矿物元素的影响, 随着温度升高, PM_{10} 中 Na、S 相对含量降低, Ca、Fe、Si 等相对含量增加。硅铝氧化物在高温条件下形成的氧活性位能够高效捕获 Na 蒸气, 进而抑制 PM_{10} 生成。 PM_{10} 生成特性主要受到高浓度的矿物元素均相成核、异相凝结沉积以及矿物元素蒸气与一些中间产物的相互作用的影响。

关键词: 煤燃烧; 碱金属; PM_{10} ; 前体; 质量粒径分布; 吸附剂

中图分类号: TQ 534.9

文献标志码: A

开放科学(资源服务)标识码(OSID):

文章编号: 0438-1157(2019)08-3113-08



PM_{10} formation characteristics during high-alkali coal combustion

ZHAO Jing^{1,2}, ZHANG Yufeng^{1,2}, WEI Xiaolin^{1,2}, LI Teng¹, BIN Feng¹⁽¹⁾ State Key Laboratory of High-Temperature Gas Dynamics, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China; ⁽²⁾ School of Engineering Science, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: High alkali coal generally has a high alkali metal content, which is the main precursor for the formation of submicron particulate matter PM_{10} during coal combustion. However, the alkali and alkaline earth metals (AAEMs), especially Na, result in a large amount of fine particulate matter (PM_{10}) formation during coal combustion. In this work, two kinds of typical Zhundong coal are selected, namely, ZD-1 and ZD-2. The pulverized coal is burned in an electrical heated drop-tube furnace with different temperature (1273 K, 1373 K, and 1473 K). The mass size distribution and concentration of the particulates are analyzed by low pressure impactor (LPI), and compositions are determined by energy dispersive spectrometry (EDS). The results indicate that the amounts of PM_{10} produced by the submicron particles gradually decreases with increasing the reaction temperature. The size of PM_{10} shifts to a smaller size. The formation of PM_{10} is mainly affected by mineral elements such as Na and S. As the temperature increased, the relative contents of Na and S decreases in PM_{10} , and the relative contents of Ca, Fe and Si increase. The mass concentrations of Na and S in the collected particles depend upon the particle size, which are proportional to $1/D_p^0$ for the particle sizes less than 0.4 μm . The PM_{10} formation characteristics are mainly affected by the homogeneous nucleation and heterogeneous condensation of high concentrations of mineral elements, and the

收稿日期: 2019-04-02 修回日期: 2019-06-19

通信作者: 魏小林(1967—),男,博士,教授,xlwei@imech.ac.cn

第一作者: 赵京(1992—),男,博士研究生,zhaojing@imech.ac.cn

基金项目: 国家自然科学基金项目(51736010)

引用本文: 赵京, 张玉锋, 魏小林, 李腾, 宾峰. 高碱煤燃烧过程中亚微米颗粒物 PM_{10} 的生成特性[J]. 化工学报, 2019, 70(8): 3113-3120

Citation: ZHAO Jing, ZHANG Yufeng, WEI Xiaolin, LI Teng, BIN Feng. PM_{10} formation characteristics during high-alkali coal combustion[J]. CIESC Journal, 2019, 70(8): 3113-3120

interaction between mineral elements with intermediate products during combustion. Active sites of oxygen formed by silicon-aluminum oxides at high temperature can efficiently capture Na vapor, thereby inhibiting PM_{10} formation. This is one of the main reasons for the reduction of PM_{10} at higher temperature.

Key words: coal combustion; alkali and alkaline earth metals; PM_{10} ; precursor; mass size distribution; sorbents

引 言

我国新疆准东地区具有较大的煤矿储量,其开采成本低且燃烧特性良好,是我国最重要的煤炭资源之一^[1-3]。在未来的一段时间内,准东煤发电厂将在我国电力输送中占据比较重要的地位。准东煤中含有较高的碱金属(Na、K)以及碱土金属(Ca、Mg),在其燃烧利用过程中将会以气相形式释放到烟气中,不仅会对换热设备高温受热面造成积灰、结渣、腐蚀等^[4-6],而且会促进微细颗粒物的生成^[7-10]。Li等^[11]在 25 kW 沉降炉系统中进行准东煤燃烧实验,发现 0.4 μm 以下颗粒物主要由碱金属 Na 的硫酸盐组成,随着粒径的增加,硅铝酸盐成为其主要组成。徐义书等^[12]在针对高氯准东煤中矿物元素对颗粒物生成的影响研究发现,细颗粒物主要由 Na、Cl 等元素组成,Ca 主要对粗颗粒生成有较大贡献。这表明亚微米颗粒物的生成与煤中碱金属等矿物元素的气化直接相关。细颗粒物 $PM_{2.5}$ 中富含有毒的重金属,会对环境以及人类健康造成危害^[13-15],其中 PM_{10} 是 $PM_{2.5}$ 重要组成之一^[16-17]。近些年,环境问题越来越受到民众的关注,而且国家和政府也大力要求燃煤电厂排放污染物以及颗粒物达到“超低排放”标准。因此开展准东煤燃烧过程微细颗粒物排放特性研究,将对准东煤清洁、高效利用具有重大意义。

针对温度对颗粒物生成特性的影响,国内外学者都进行了一定的研究。普遍认为超微米颗粒物形成主要受到煤焦颗粒、矿物质破碎以及矿物质的熔融聚合等因素的影响^[12-14,18-19],燃烧强度增加将会促进其形成。然而对亚微米颗粒物形成过程温度的影响并没有形成统一结论。Zhang 等^[17]在高温沉降炉上发现温度从 1473 K 升高至 1723 K 有利于矿物质气化形成亚微米颗粒物,并且粒径减小。Neville 等^[20]在高温沉降炉上进行褐煤颗粒物燃烧实验时发现,随着增大氧气浓度,炉膛反应温度逐渐升高,对应的亚微米颗粒物平均粒径以及总量也增加,其也发现随着温度升高,颗粒物中 Na 含量降低。Gallagher^[21]在自稳炉上针对 Loy Yang 以及 Beulah 两

种褐煤进行燃烧实验,其在 1535 K 以及 1615 K 两个温度下进行实验发现温度对灰颗粒的生成分布没有明显影响,但低温下颗粒物中更容易富集 Na。然而,曾宪鹏等^[22]在高温沉降炉上,在空气气氛下对 900 ~ 1300 $^{\circ}\text{C}$ 范围内准东煤燃烧生成颗粒物质量粒径分布以及含量进行研究发现,随着反应温度的升高,亚微米颗粒物生成量逐渐降低,形成颗粒物粒径向更小偏移,认为碱金属在高温下被捕获是 PM_{10} 降低的主要原因之一。上述研究针对温度对颗粒物生成特性的影响均不一致,表明煤种以及不同燃烧温度产生的反应气氛对微细颗粒物生成有很大的影响。因此,本文选取了 2 种典型的准东煤在高温沉降炉上针对 PM_{10} 生成特性进行了研究,以揭示 PM_{10} 在准东煤不同温度燃烧过程生成机制,并通过高岭土添加实验揭示了煤中灰分组成对 PM_{10} 生成的抑制机理。

1 实验材料和方法

1.1 材料

实验选取了两种典型的准东高碱煤,分别命名为 ZD-1 和 ZD-2,参照 GB 474—2008《煤样的制备方法》将样品破碎筛分,取粒径 120 ~ 180 μm 煤粉作为原样,其工业分析和元素分析如表 1 所示,灰分析结果如表 2 所示。从表中可以看出 2 种准东煤灰含量均比较高,且微量矿物元素 Na、Ca、Cl、S 等含量也较高。ZD-1 中 Si、Al 含量较低,Fe 含量相对较高,而 ZD-2 具有较高的 Si、Al 含量。本实验所使用的高岭土添加剂组分分析如表 3 所示,可发现其具有较高的 Si、Al 含量。

1.2 实验过程

准东煤燃烧过程微细颗粒物的生成特性的研究在一维高温管式电加热炉(DTF)中进行,实验系统如图 1 所示。DTF 由进料系统、电加热炉、控制柜和气体分配器组成。进料器是圆盘式振动微粉送料器,可以连续稳定的速率(为 0.26 g/min)将煤粉送至炉中。反应管为刚玉管,内径为 50 mm,长度为 2 m。实验温度分别设置为 1273、1373 和 1473 K。以 N_2

表1 煤样的工业分析及元素分析

Table 1 Proximate and ultimate analyses of coal samples

样品	工业分析/% (mass,ad)				元素分析/% (mass,ad)					
	M	A	V	FC	C	H	O	N	S	Cl
ZD-1	14.1	10.08	26.22	49.6	58.36	2.12	13.26	0.41	1.34	0.11
ZD-2	7.98	8.12	23.44	60.4	65.5	2.79	14.03	0.13	0.96	0.33

表2 煤样的灰分析

Table 2 Ash analyses of coal samples/%

样品	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	TiO ₂	SO ₃	P ₂ O ₅	K ₂ O	Na ₂ O
ZD-1	13.61	5.86	14.33	25.66	3.94	0.44	29.18	0.24	0.58	5.78
ZD-2	25.03	15.63	4.32	21.28	4.27	0.33	22.64	0.36	0.56	4.72

表3 高岭土成分分析

Table 3 Ash analyses of kaolin/%

SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	TiO ₂	SO ₃	P ₂ O ₅	K ₂ O	Na ₂ O
51.84	45.73	<0.01	0.22	0.69	<0.01	1.8	<0.01	0.67	0.69

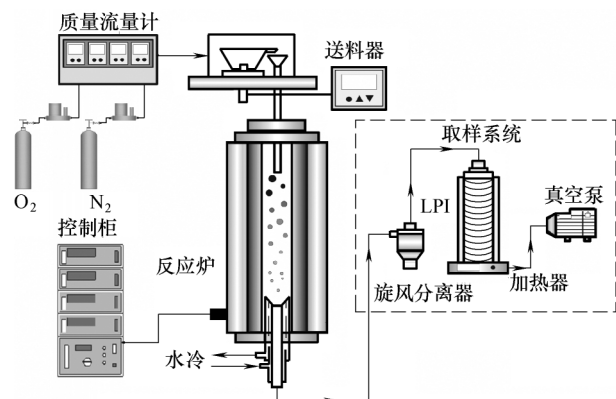


图1 高温沉降管炉示意图

Fig.1 Schematic diagram of high temperature drop tube furnace

(79%)和O₂(21%)模拟空气,其流量为8 L/min。气体将会携带煤粉进入反应区,在给定条件下,氧含量充足,可以保证煤粉几乎燃尽。

燃烧生成的颗粒物首先进入等速取样枪并被N₂(2 L/min)淬冷和稀释,以减少颗粒物之间的相互作用。随后颗粒物将进入采样系统^[2,23],其主要包括旋风分离器、Dekati 低压冲击器(LPI)、加热装置和真空泵。旋风分离器主要用于除去空气动力学直径大于10 μm的颗粒物,10 μm以下的颗粒物将通过LPI分为14个等级,其中PM₁被分为8个等级。使用涂有阿皮松脂的铝膜用于LPI各级颗粒物的采集^[22,24],并获得颗粒物的质量粒径分布以及含量。将旋风分离器、LPI和连接管加热并保持在393 K,以避免在系统运行期间SO_x和H₂O气态产物在烟道气中的冷凝沉积^[12,25]。将时间设定为约3 min,以避免由于长时间采样,颗粒从基板反弹。每次PM采样

实验工况至少重复三次,以保证结果的准确性。获得的每级颗粒物可通过EDS分析获得其元素组成及含量。

变取样温度实验,可通过改变取样枪位置实现,并通过K型热电偶进行取样温度的标定。分别将3%与5%的高岭土与煤粉通过研钵物理混合后,放入送料器内可进行高岭土添加剂实验。

2 实验结果与讨论

2.1 温度对PM₁生成特性的影响

2.1.1 不同反应温度下颗粒物质量粒径分布及生成量分析 图2为ZD-1和ZD-2燃烧生成颗粒物质量粒径分布曲线。一些研究已表明^[16,26],以1 μm为分界线颗粒物粒径分布呈现双峰结构,因此定义粒径小于1 μm的颗粒物为亚微米颗粒物,标记为PM₁。从图中可以看出,温度对两种准东煤颗粒物生成有着显著的影响。

对于ZD-1来说,当反应温度为1273 K时,亚微米颗粒物在0.5 μm附近出现峰值,峰值高度为3个温度下最大。随着反应温度升高至1373 K,亚微米颗粒物出峰高度降低,位置向更小的粒径迁移,出峰位置粒径为0.32 μm左右。当温度升高到1473 K时,相比于前者,出峰位置粒径进一步缩小到0.13 μm左右,峰高度也进一步降低。ZD-2与ZD-1展现出同样的结论,即随着反应温度的升高,出峰位置粒径变小,对应峰高度也降低。研究已表明^[27-28],亚微米颗粒物PM₁主要是由一些矿物元素(Na、K、Cl、S等)气化凝结形成,且其生成与元素蒸气浓度、团聚时间以及炉膛温度梯度密切相关^[22]。因此分析认为,相比于高温下反应,当温度较低时,煤粉在炉膛内燃烧反应强度较低,使得炉膛温度梯度也较小,因此气化生成的颗粒物有充足的时间团聚形成亚微米颗粒物。温度升高后,炉膛温度梯度增大,亚微米颗粒物停留时间减少,使得颗粒物凝结团聚形成亚微米颗粒物时间缩短,进而出现温度升高后,亚微米颗粒物出峰高度降低,位置向更小的粒径

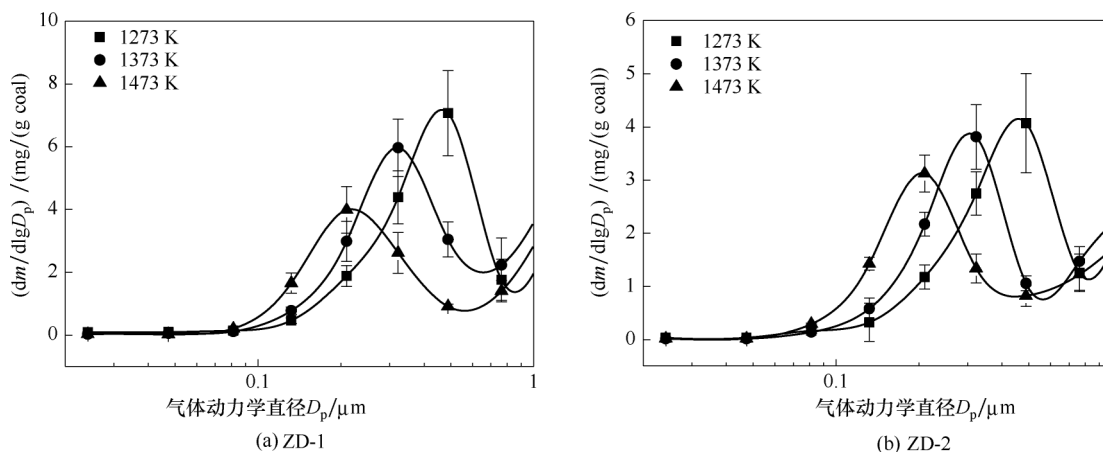


图 2 不同温度下 2 种准东煤燃烧生成颗粒物质量粒径分布曲线

Fig.2 Particle size distributions of PM from combustion of ZD-1 and ZD-2 at different temperature

迁移。

图 3 描述了 2 种准东煤在不同温度下的亚微米颗粒物 PM_{10} 的产量,其生成量在 1273 K 时最高,分别为 3.17 和 1.97 mg/(g coal),随着温度升高至 1473 K, PM_{10} 生成量分别降低至 1.7 和 1.28 mg/(g coal),减幅分别为 46.4% 和 35%。该结果与图 2 质量粒径分布推测结论一致,即随着温度升高, PM_{10} 生成量逐渐降低。但相比于 ZD-2, ZD-1 颗粒物生成量更大,表明颗粒物形成与煤质组成也有很大关系。通常准东煤燃烧时,首先释放容易气化的 Na、K、S 等元素,随着温度升高, Ca、Mg、Fe、Si 等难熔的元素也被气化,这些元素是亚微米颗粒物形成的主要前体。根据表 1 分析可知, ZD-2 比 ZD-1 固定碳含量高,水分含量低,因此其燃烧强度会更高,且其灰含量也相比于 ZD-1 低一些,因此其燃烧过程生成的颗粒物要低。此外,从表 2 也可以看出, ZD-2 灰中 Si、Al 含量相对较高,且 Fe 元素含量相对较低,因此其更容易形成粒径大于 1 μm 粗颗粒物,进而 PM_{10} 生成量降低。此外,硅铝氧化物能够捕获碱金属 Na 蒸气,也会抑制其形成 PM_{10} ,这将在下面章节中详细讨论。

2.1.2 取样温度对 PM_{10} 颗粒物质量粒径分布及生成量的影响 将取样枪位置深入,可以提高取样温度,在 1373 K 反应温度下,针对 3 种不同取样温度 (373、573、773 K),研究了亚微米颗粒物 PM_{10} 质量粒径分布,结果如图 4 所示。从中可以看出,升高取样温度, PM_{10} 出峰粒径减小,对应峰高度降低。主要是因为高温下取样,缩短了煤燃烧过程释放的元素蒸气凝结团聚时间,进而降低亚微米颗粒物的生成。对于 ZD-2,发现在 773 K 取样温度获得颗粒物浓度略大于 573 K,表明除了上述两个原因外,还有其他

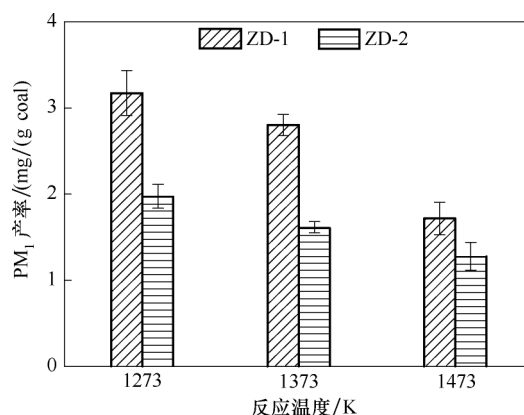


图 3 温度对 2 种准东煤亚微米颗粒物 PM_{10} 生成量的影响
Fig.3 Coal-based yield of ultrafine PM_{10} from combustion of ZD-1 and ZD-2

因素影响 PM_{10} 的生成。推断认为, ZD-1 中 Si、Al 含量较低,其对碱金属蒸气捕获效果不明显,因此颗粒物生成主要受团聚时间的影响。ZD-2 中较高的 Si、Al 含量能够有效捕获 Na 蒸气,当凝结团聚时间降低后,其对应捕获时间也可能相应降低,进而有可能造成颗粒物生成量增加,但出峰位置粒径仍然减小。

2.2 不同温度下 PM_{10} 的矿物组成分析

前面实验表明,温度以及取样温度对 PM_{10} 颗粒物质量粒径分布有较大的影响。为了深入揭示造成这种现象的原因,对 PM_{10} 主要矿物元素组成的平均含量进行了分析。结果如图 5 所示。反应温度较低时,生成亚微米颗粒物中主要以 Na、S 两种元素为主,在 ZD-1 和 ZD-2 中两者分别占总量的 74.1% 和 79.7%。随着反应温度升高至 1473 K,对应 Na 含量分别由 31.3% 与 33.8% 降低至 19.4% 与 19.1%,对应 S 含量分别由 42.8% 与 45.9% 降低至 27.2% 与

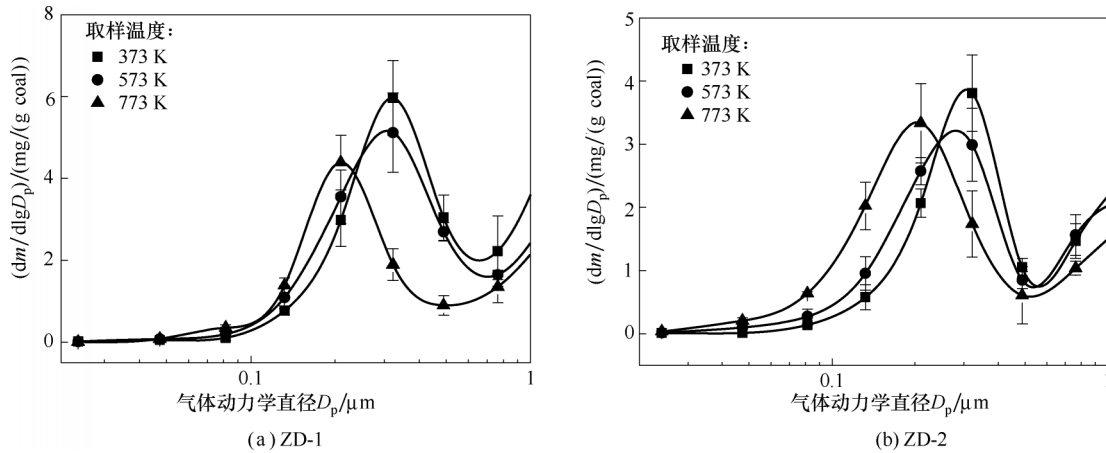


图4 不同取样温度下2种准东煤燃烧生成颗粒物质量粒径分布曲线

Fig.4 Particle size distributions of PM₁ from combustion of ZD-1 and ZD-2 at different sampling temperature

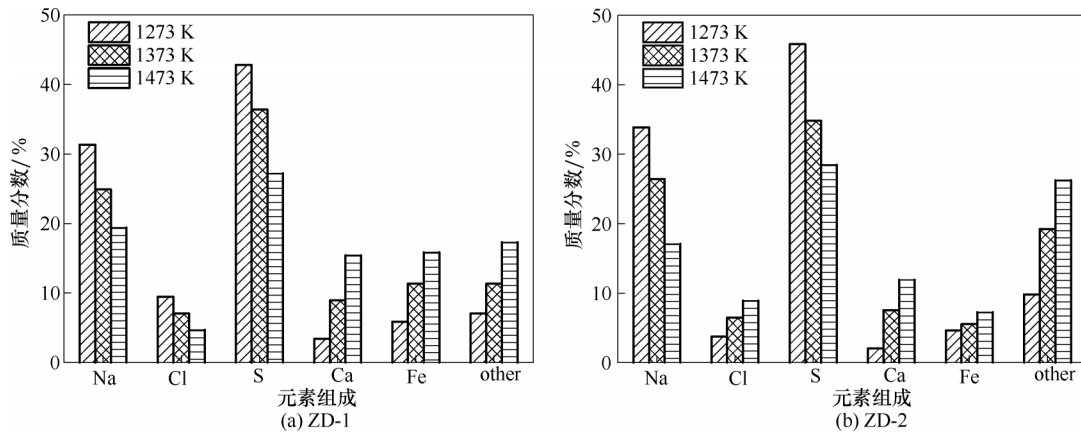


图5 不同温度下PM₁矿物元素组成

Fig.5 Elements compositions of PM₁ at different temperature

28.5%,对应的Ca、Fe、Si等元素含量开始增加。ZD-1中含有较高的Ca、Fe元素,温度升高后,其开始大量释放,并成为了PM₁形成的主要前体。ZD-2中Ca、Si、Al含量较高,因此对应PM₁组成中其相对占有比也增加。总体结论就是随着反应温度升高,碱金属Na、S等元素含量降低,对应碱土金属Ca、Mg以及Fe、Si等元素含量增加,这与大部分研究者所得到的结论是一致的^[11-12,20-22]。

因此,反应温度较低时,PM₁生成的主要前体可能是以Na₂SO₄蒸气为主,其在烟气中浓度较高。根据颗粒碰撞理论,其相互撞击形成大颗粒的频率增加,最终导致其形成的亚微米颗粒物粒径增大^[22,29]。温度较高时,Na、S蒸气浓度降低,对应其他元素浓度增加,使得亚微米颗粒物形成过程颗粒之间的相对碰撞频率降低,进而使得形成的亚微米颗粒物粒径减小,且浓度降低,进而出现了图2和图4所描述的质量粒径分布。准东煤中碱土金属主要以有机形式存在^[23],其在燃烧过程中会以Ca单质释放进而

被氧化形成CaO,经过冷凝、成核、团聚形成微细颗粒物。因此,随着反应温度升高,煤粉的燃烧反应加剧,将会促进有机结合Ca大量释放转化形成PM₁,这也解释了高温下PM₁中Ca等碱土元素含量增加。结合之前分析,影响亚微米颗粒物生成原因可归纳为:(1)高浓度的矿物元素均相成核与异相凝结沉积;(2)释放的矿物元素蒸气与燃烧过程中其他中间产物的相互作用。

此外,为了研究不同元素在不同粒径段的分布情况,针对PM₁各个粒径段进行了EDS分析,结果如图6所示。亚微米颗粒物主要由Na、Cl、S等易气化的矿物元素组成。ZD-1中较高的Fe含量也促进了PM₁的生成,而ZD-2中较高的Si含量也对PM₁生成有促进作用。之前研究表明,Na、S等元素的质量浓度分布与1/D_p⁰呈正比^[30]。在本实验中,在粒径小于0.4 μm时,准东煤燃烧生成的亚微米颗粒物Na、S含量基本不变,其质量浓度与1/D_p⁰呈正比,表明Na、S蒸气的均相成核/凝结在PM_{0.4}生成过程中起主要作

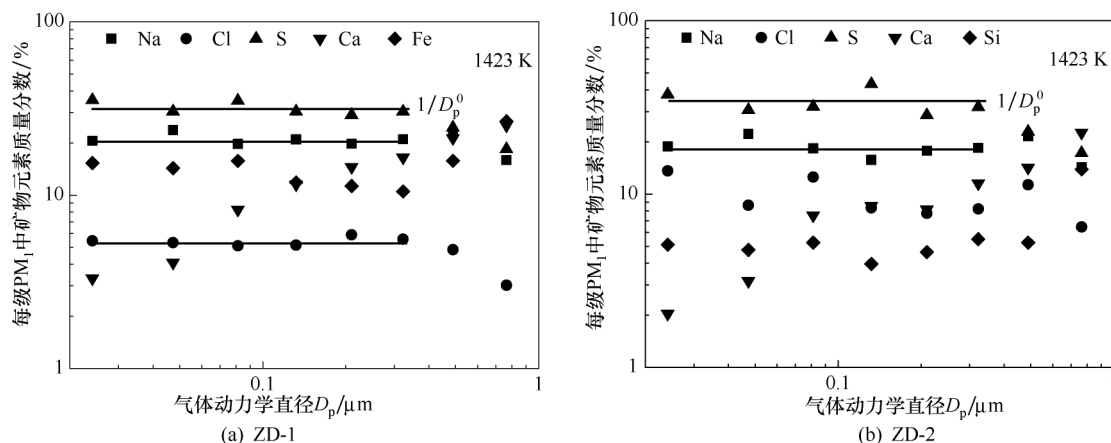


图 6 2种准东煤燃烧生成颗粒物组分分布

Fig.6 Composition size distribution of PM₁ generated from combustion of ZD-1 and ZD-2

用。粒径在 0.4 ~ 1 μm 之间, Na、S 的相对含量降低, 其他元素如 Ca、Si 等相对含量增加, 表明 Na、S 等蒸气主要通过表面反应被灰颗粒或者硅铝氧化物吸附到表面。因此添加高岭土等硅铝吸附剂将有利于对碱金属 Na、S 等关键元素蒸气的捕捉, 进而可以降低 PM₁ 颗粒物的生成。

2.3 高岭土对 PM₁ 生成抑制机理分析

前面分析发现, 低温下燃烧强度较低, 煤中水溶态以及有机态碱金属 Na 释放出来后会与烟气中 SO₂、SO₃ 反应生成 Na₂SO₄, 随着温度的降低将会冷凝成核促进亚微米颗粒物的生成。此外, 当反应温度较高时, 除凝并团聚时间缩短外, 在较高的燃烧强度下, Na 蒸气也可能与硅铝氧化物发生反应^[31-32], 被捕捉形成 NaAlSi₂O₆ 等超微米颗粒物, 当碱金属 Na 被捕捉后, 形成 Na₂SO₄ 的概率降低, 进而降低 PM₁ 的生成量, 如图 2 所示。因此分析认为, 硅铝氧化物对亚微米颗粒物生成有好的捕捉作用, 其具体捕捉方式如图 7 所示。高温下 SiO₂ 与 Al₂O₃ 的 Si—O 键或 Al—O 键将会发生断裂, 可认为电子从 Si 或者 Al 转移到了 O 上面, 进而形成具有 -1 价氧活性位, 即 O⁻, 对 +1 价的 Na⁺ 有较强的吸收性。此外, 反应后生成的 Na₂SiO₃、NaAlSi₂O₆ 等熔点要远低于 SiO₂ 与 Al₂O₃, 将会在超微米颗粒表面形成一个 Na—Al—Si (T) 软化层^[16], 可以促进其对亚微米颗粒物黏附效果, 进而也进一步降低了 PM₁ 的生成。

目前研究发现, 高岭土对颗粒物具有较高的捕捉作用, 因此本文采用高岭土在不同反应温度下研究了其对 PM₁ 生成量的减少的机制。添加高岭土后, 准东煤在不同温度下燃烧生成颗粒物质量粒径分布曲线如图 8 所示。与图 2 相比, 不同粒径的亚

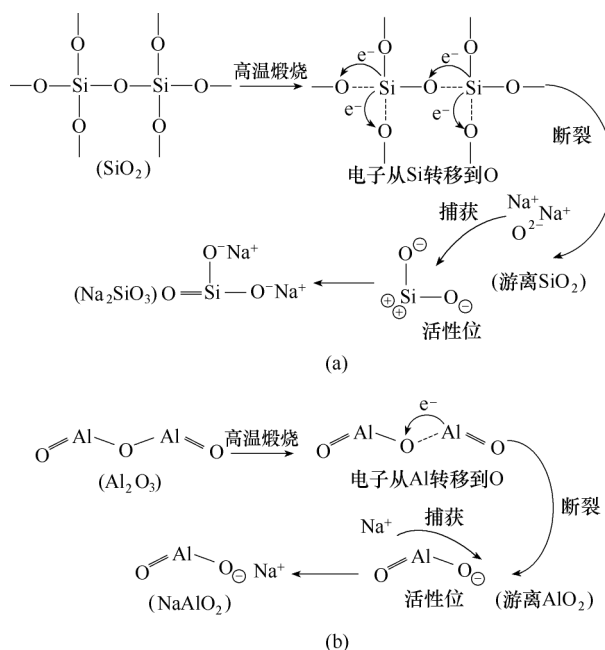


图 7 高岭土对碱金属 Na 的吸附机制

Fig.7 Adsorption mechanism of sodium by kaolin

微米颗粒物生成量显著降低, 表明高岭土能够有效抑制 PM₁ 的生成。高岭土的化学组成主要为硅铝氧化物, 根据上述分析可知, 其能够在准东煤燃烧过程, 对碱金属等矿物元素进行高效捕捉, 进而抑制其生成亚微米颗粒物。

图 9 描述了不同反应温度下高岭土对 2 种准东煤燃烧生成颗粒物的吸收比, 结果表明: 高岭土对两种准东煤燃烧生成的 PM₁ 均表现出较高的吸收比, 最佳吸附温度为 1373 K, 温度过高或者过低都不利于高岭土对 PM₁ 的吸附。反应温度较低时, 不利于碱金属蒸气与高岭土中硅铝氧化物的反应。当反应温度过高后, 高岭土的比表面积降低^[30-32], 而

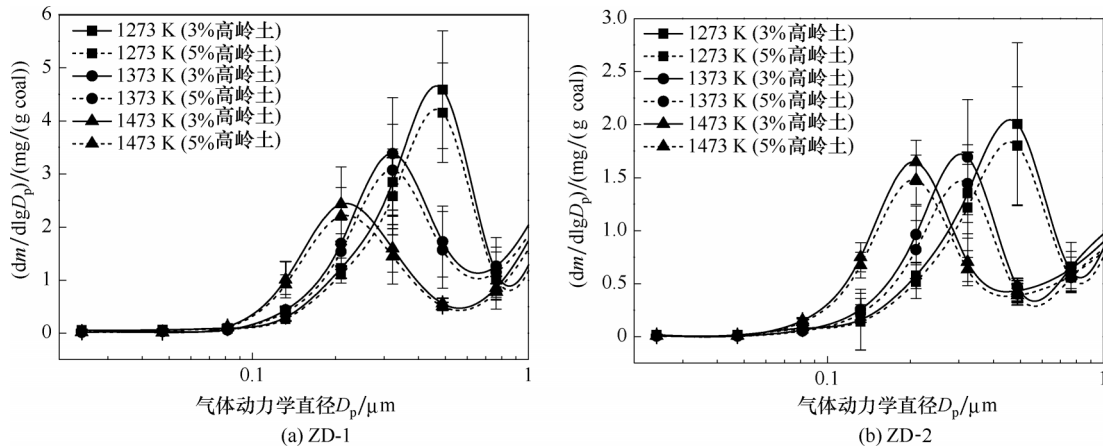


图8 添加高岭土后2种准东煤燃烧生成颗粒物质量粒径分布曲线

Fig.8 Particle size distributions of ZD-1 and ZD-2 with kaolin addition in different temperature

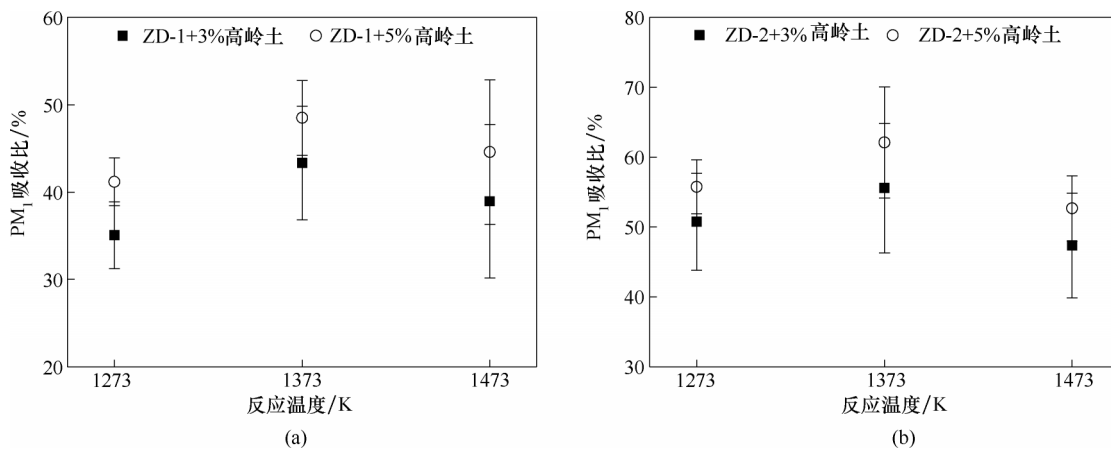


图9 高岭土对2种准东煤燃烧生成颗粒物的吸收比

Fig.9 PM_{10} reduction percentages of ZD-1 and ZD-2 with kaolin addition in different temperature

且其晶体结构也将会发生改变,进而使高岭土的活性降低,抑制了高岭土对亚微米颗粒物的捕获。此外,高温下形成的Na-Si-Al化合物可能会发生分解,这也不利于其对 PM_{10} 的吸附作用。对于ZD-2,其灰中含有较高的硅铝氧化物,其在燃烧过程中对 PM_{10} 生成有较好的抑制作用。因此,尽管ZD-2中Na、S元素含量与ZD-1相差不大,但其生成的 PM_{10} 相对含量要低于ZD-1。

3 结论

本文使用2种不同的准东高碱煤,研究了不同温度下亚微米颗粒物 PM_{10} 的生成特性。主要结论如下。

(1) 温度对准东煤燃烧过程亚微米颗粒物生成有较大影响,随着反应温度升高,所形成 PM_{10} 浓度降低,出峰位置向更小的粒径偏移。

(2) 准东煤燃烧过程释放的Na、S蒸气是形成

PM_{10} 的主要成分。燃烧强度较高时,将会缩短颗粒物凝并团聚时间,并促进灰颗粒中硅铝氧化物对Na蒸气的捕获,进而将抑制 PM_{10} 生成。此外,在颗粒粒径小于 $0.4 \mu m$ 的亚微米颗粒物中,Na、S含量与 $1/D_p^0$ 呈线性关系。

(3) 高岭土添加剂在高温下形成的氧活性能够有效地捕获Na蒸气并在表面形成熔融的软化层,促进对 PM_{10} 的吸收,最佳捕获温度为1373 K。

参考文献

[1] 张守玉,陈川,施大钟,等.高钠煤燃烧利用现状[J].中国电机工程学报,2013,33(5):1-12.
Zhang S Y, Chen C, Shi D Z, et al. Situation of combustion utilization of high sodium coal[J]. Proceedings of the CSEE, 2013, 33(5): 1-12.

[2] 樊斌,于敦喜,曾宪鹏,等.准东煤燃烧中矿物质转化行为的CCSEM研究[J].化工学报,2016,67(5):2117-2123.
Fan B, Yu D X, Zeng X P, et al. Mineral transformation during Zhundong coal combustion by CCSEM[J]. CIESC Journal, 2016, 67(5): 2117-2123.

- [3] Song G L, Song W J, Qi X B, et al. Transformation characteristics of sodium of Zhundong coal combustion/gasification in circulating fluidized bed[J]. *Energy Fuels*, 2016, **30**(4): 3473–3478.
- [4] 王礼鹏, 赵永椿, 张军营, 等. 准东煤沾污结渣特性研究[J]. *工程热物理学报*, 2015, **36**(6): 1381–1385.
Wang L P, Zhao Y C, Zhang J Y, et al. Research on the slagging and fouling characteristics of Zhundong coal[J]. *Journal of Engineering Thermophysics*, 2015, **36**(6): 1381–1385.
- [5] 陶玉洁, 张彦威, 周俊虎, 等. 准东煤在燃烧过程中的矿物演变过程及 Na、Ca 释放规律[J]. *中国电机工程学报*, 2015, **35**(5): 1169–1175.
Tao Y J, Zhang Y W, Zhou J H, et al. Mineral conversion regularity and release behavior of Na, Ca during Zhundong coal's combustion[J]. *Proceedings of the CSEE*, 2015, **35**(5): 1169–1175.
- [6] 张翔, 乌晓江, 陈楠. 新疆高碱煤沾污结渣特性中试试验研究[J]. *锅炉技术*, 2016, **47**(4): 44–47.
Zhang X, Wu X J, Chen N. Experimental study on Xinjiang high-alkali ash deposition and slagging behavior in a 3 MW_{th} pilot-scale test facility[J]. *Boiler Technology*, 2016, **47**(4): 44–47.
- [7] Xu M H, Yu D X, Yao H, et al. Coal combustion-generated aerosols: formation and properties[J]. *Proc. Combust. Inst.*, 2011, **33**(1): 1681–1697.
- [8] 张凯, 龚本根, 田冲, 等. 燃煤细颗粒物排放实验及形成机理[J]. *煤炭学报*, 2015, **40**(11): 2696–2701.
Zhang K, Gong B G, Tian C, et al. Formation mechanisms of fine particles generated from coal combustion[J]. *Journal of China Coal Society*, 2015, **40**(11): 2696–2701.
- [9] Liu X W, Xu Y S, Zeng X P, et al. Field measurements on the emission and removal of PM_{2.5} from coal-fired power stations (1): A case study for a 1000 MW ultra-supercritical utility boiler[J]. *Energy Fuels*, 2016, **30**(8): 6547–6554.
- [10] 王超, 刘小伟, 徐义书, 等. 660 MW 燃煤锅炉细颗粒物中次量与痕量元素的分布特性[J]. *化工学报*, 2013, **64**(8): 2975–2981.
Wang C, Liu X W, Xu Y S, et al. Distribution characteristics of minor and trace elements in fine particulate matters from a 660 MW coal-fired boiler[J]. *CIESC Journal*, 2013, **64**(8): 2975–2981.
- [11] Li G D, Li S Q, Huang Q, et al. Fine particulate formation and ash deposition during pulverized coal combustion of high-sodium lignite in a down-fired furnace[J]. *Fuel*, 2015, **143**: 430–437.
- [12] 徐义书, 刘小伟, 张鹏辉, 等. 高氯准东煤种典型矿物元素对颗粒物生成的影响[J]. *化工学报*, 2017, **68**(4): 1558–1565.
Xu Y S, Liu X W, Zhang P H, et al. Impacts of typical mineral matter in Zhundong coal on formation of particulate matter[J]. *CIESC Journal*, 2017, **68**(4): 1558–1565.
- [13] Wang A, Song Q, Tu G M, et al. Influence of flue gas cleaning system on characteristics of PM_{2.5} emission from coal-fired power plants[J]. *Int. J. Coal Sci. Technol.*, 2014, **1**(1): 4–12.
- [14] Wang J L, Zhang Y L, Shao M, et al. Quantitative relationship between visibility and mass concentration of PM_{2.5} in Beijing[J]. *J. Environ. Sci.*, 2006, **18**(3): 475–481.
- [15] Linak W P, Miller C A, Wendt J O. Comparison of particle size distribution and elemental partitioning from the combustion of pulverized coal and residual fuel oil[J]. *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 2000, **50**(8): 1532–1544.
- [16] Si J P, Liu X W, Xu M H, et al. Effect of kaolin additive on PM_{2.5} reduction during pulverized coal combustion: importance of sodium and its occurrence in coal[J]. *Appl. Energy*, 2014, **114**: 434–444.
- [17] Zhang L, Ninomiya Y, Yamashita T. Formation of submicron particulate matter (PM₁) during coal combustion and influence of reaction temperature[J]. *Fuel*, 2006, **85**(10/11): 1446–1557.
- [18] Gao X P, Li Y, Garcia-Perez M, et al. Roles of inherent fine included mineral particles in the emission of PM₁₀ during pulverized coal combustion[J]. *Energy Fuels*, 2012, **26**(11): 6783–6791.
- [19] Buhre B, Hinkley J, Gupta R, et al. Fine ash formation during combustion of pulverized coal – coal property impacts[J]. *Fuel*, 2006, **85**(2): 185–193.
- [20] Neville M, Sarofim A. The fate of sodium during pulverized coal combustion[J]. *Fuel*, 1985, **64**(3): 384–390.
- [21] Gallagher N B. Alkali metal partitioning in a pulverized coal combustion environment[D]. Arizona: The University of Arizona, 1992.
- [22] 曾宪鹏, 于敦喜, 樊斌, 等. 不同温度下准东煤燃烧颗粒物生成特性[J]. *煤炭学报*, 2015, **40**(11): 2690–2695.
Zeng X P, Yu D X, Fan B, et al. Particulate matter formation characteristics during Zhundong coal combustion at different temperatures[J]. *Journal of China Coal Society*, 2015, **40**(11): 2690–2695.
- [23] 阮仁晖, 谭厚章, 王学斌, 等. 高碱煤燃烧过程细颗粒物排放特性[J]. *煤炭学报*, 2017, **43**(4): 1056–1062.
Ruan R H, Tan H Z, Wang X B, et al. Characteristics of fine particulate matter released from burning coal with high content of alkali and alkaline earth metal[J]. *Journal of China Coal Society*, 2017, **43**(4): 1056–1062.
- [24] Sun W, Liu X W, Xu Y S, et al. Effects of the modified kaolin sorbents on the reduction of ultrafine particulate matter (PM_{0.2}) emissions during pulverized coal combustion[J]. *Fuel*, 2018, **215**: 153–160.
- [25] Yu Y, Xu M H, Yao H, et al. Char characteristics and particulate matter formation during Chinese bituminous coal combustion[J]. *Proc. Combust. Inst.*, 2007, **31**(2): 1947–1954.
- [26] Yu D X, Xu M H, Yao H, et al. Mechanisms of the central mode particle formation during pulverized coal combustion[J]. *Proc. Combust. Inst.*, 2009, **32**(2): 2075–2082.
- [27] Matsuoka K, Yamashita T, Kuramoto K, et al. Transformation of alkali and alkaline earth metals in low rank coal during gasification[J]. *Fuel*, 2008, **87**(6): 885–893.
- [28] 陆炳, 孔少飞, 韩斌, 等. 燃煤锅炉排放颗粒物成分谱特征研究[J]. *煤炭学报*, 2011, **36**(11): 1928–1933.
Lu B, Kong S F, Han B, et al. Source profile of TSP and PM₁₀ from coal-fired boilers[J]. *Journal of China Coal Society*, 2011, **36**(11): 1928–1933.
- [29] Ho C A, Sommerfeld M. Modelling of micro-particle agglomeration in turbulent flows[J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2002, **57**(15): 3073–3084.
- [30] Chen J, Yao H, Zhang P A, et al. Control of PM₁ by kaolin or limestone during O₂/CO₂ pulverized coal combustion[J]. *Proc. Combust. Int.*, 2011, **33**(2): 2837–2843.
- [31] Punjak W, Shadman F. Aluminosilicate sorbents for control of alkali vapors during coal combustion and gasification[J]. *Energy Fuels*, 1988, **2**(5): 702–708.
- [32] Gale T K, Wendt J O L. In-furnace capture of cadmium and other semi-volatile metals by sorbents[J]. *Proc. Combust. Inst.*, 2005, **30**(2): 2999–3007.