

# 油页岩粉尘层着火的理论模型与实验研究

杨红霞, 李 刚, 苑春苗, 于立富  
(东北大学 资源与土木工程学院, 辽宁 沈阳 110819)

**摘 要:** 为了解油页岩粉尘着火爆炸危险性,利用化学反应动力学、传热学以及 Thomas 热自燃理论,建立了稳态条件下粉尘层着火的不对称理论模型. 利用热板测试装置测试了我国 4 大产地油页岩粉尘层的最低着火温度,结果介于 503 ~ 613 K,最低着火温度随粉尘层厚度的增加而降低,不同产地油页岩粉尘着火温度高低依次为:抚顺 > 桦甸 > 龙口 > 茂名,与油页岩挥发分含量成反相关. 利用测试结果确定了油页岩粉尘层燃烧动力学参数值,代入不对称着火理论模型,计算得到相应厚度粉尘层的临界着火温度,和实验结果对比,误差在 10% 以内,为预测生产过程油页岩着火危险性提供了可行的理论方法.

**关 键 词:** 油页岩;粉尘层;热板测试装置;着火温度;Thomas 模型

**中图分类号:** X 932      **文献标志码:** A      **文章编号:** 1005-3026(2016)12-1768-04

## Theoretical Model and Experimental Study on the Ignition of Oil Shale Dust Layer

YANG Hong-xia, LI Gang, YUAN Chun-miao, YU Li-fu  
(School of Resources & Civil Engineering, Northeastern University, Shenyang 110819, China. Corresponding author: LI Gang, E-mail: ligang@mail.neu.edu.cn)

**Abstract:** In order to study the fire risk of oil shale dust, an asymmetric model of dust layer ignition under steady-state condition was established by using chemical reaction kinetics, heat transfer and Thomas thermal ignition theory. The minimum ignition temperature of dust layer of 4 oil shale samples from the major producing areas of China was tested. The results showed that the minimum ignition temperature is between 503 ~ 613 K, and it decreases with the increasing layer thickness. The minimum ignition temperature order of the four samples is as follows: Fushun > Huadian > Longkou > Maoming, which is correlated reciprocally with volatile content. Using the theory model, the activation energy and critical ignition temperature corresponding to different thickness were calculated. It was found that the error between the calculation critical ignition temperature and experimental results is within 10%, which provides a feasible method on theoretical prediction of fire risk in the oil shale production process.

**Key words:** oil shale; dust layer; hot plate test apparatus; ignition temperature; Thomas model

油页岩主要由藻类低等浮游生物经腐化作用和煤化作用而生成,是一种固体可燃矿产<sup>[1-2]</sup>. 由于石油资源日益紧缺,油页岩的开发利用已愈来愈受到重视<sup>[3-4]</sup>. 在世界范围内,油页岩利用途径主要包括提炼页岩油、直接燃烧和发电等,利用过程中均会导致粉尘产生. 同煤尘一样,也存在火灾爆炸危险.

油页岩开发利用在我国起步较晚,有关其着火、爆炸研究的文献较少. 在着火理论方面,王国金等<sup>[5]</sup>采用化学反应动力学及传热学理论建立了油页岩颗粒在流化床中燃烧的非稳态渐近扩散模型,并开发了数值求解方法. 姜秀民等<sup>[6-7]</sup>利用热重分析测试仪、热显微镜和热天平等分析得到了氧浓度、粒径以及升温速率对油页岩着火的影响,依据传热学理论建立了油页岩颗粒在流化床中低温段均相燃烧以及高温段多相燃烧数学

模型.

据统计,德国近 1/3 的粉尘爆炸事故是由于设备热表面温度过高而导致堆积的粉尘层着火<sup>[8]</sup>. 本文首先建立粉尘层着火的理论模型,并利用专用测试装置,测试研究油页岩粉尘层的着火规律,然后利用测试结果计算得到粉尘层燃烧动力学参数值,进而得到相应厚度粉尘层的临界着火温度,验证模型对粉尘层着火问题的适用性,以便于生产过程中预测和评估堆积油页岩粉尘的着火危险性,为安全开发利用这种资源奠定基础.

## 1 粉尘层着火的理论模型

生产过程中粉尘层着火一般由于设备热表面温度过高而导致,且粉尘径向面积较大,而厚度较薄,因此建模过程中将粉尘层视为无限大平板,忽略粉尘层径向的传热,而仅考虑粉尘沿厚度方向的能量交换. 粉尘层底部受恒温热源加热,热量以热传导的方式垂直向上传递至粉尘层,粉尘层顶部只考虑自然对流换热.

假设粉尘层着火前反应物质量无损失,反应为遵从 Arrhenius 定律的一级反应. 由于自燃过程比较缓慢,可以假设温度在粉尘层内部的分布是稳态的,依 Fourier 导热定律<sup>[9]</sup>粉尘在恒温热板上的一维稳态能量守恒方程为

$$-\lambda \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} = A\Delta H_R \rho e^{\left(\frac{-E}{RT}\right)}. \quad (1)$$

式中: $\lambda$  为导热系数,依文献[10],4 种油页岩样品统一取导热系数为  $0.2 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ;  $A$  为指前因子,  $\text{s}^{-1}$ ;  $\Delta H_R$  为反应热,  $\text{J}/\text{kg}$ ;  $\rho$  为粉尘堆积密度,  $\text{kg}/\text{m}^3$ ;  $E$  为反应活化能,  $\text{J}/\text{mol}$ ;  $R$  为普适气体常数,  $8.314 \text{ J}/(\text{mol}\cdot\text{K})$ ;  $T$  为粉尘温度,  $\text{K}$ .

设  $T_A$  为环境温度,则粉尘温度可表示为  $T = T_A + \Delta T$ ,其中  $\Delta T$  为粉尘层与环境间的温差. 引入无量纲温度变量  $\theta$ , 设  $\theta = \left(\frac{E}{RT_A}\right)(T - T_A)$ , 因此, 式(1)可表示为

$$\frac{d^2 \theta}{dz^2} = -\delta \cdot e^{\theta}. \quad (2)$$

其中, $\delta$  为无量纲加热速率:

$$\delta = A\Delta H_R \rho \left(\frac{r^2}{\lambda}\right) \left(\frac{E}{RT_A^2}\right) \exp\left(\frac{-E}{RT_A}\right). \quad (3)$$

由 Thomas 边界条件<sup>[11]</sup>, 粉尘层内部温度先

增加后降低,在粉尘层底部至半高处的某点处达到最大值,公式表示为毕奥数:  $Bi = hr/\lambda$ , 其中  $h$

为对流换热系数,  $h \approx 4.13 \left[ \frac{T_s - T_A}{\pi^{1/2}(D/2)} \right]^{0.25}$ <sup>[12]</sup>. 恒

温热板上的粉尘层是厚度为  $2r$  ( $r$  为粉尘层半高) 的无限大平板,粉尘层底面与温度为  $T_p$  的恒温热板接触,另一面受牛顿冷却作用与环境接触. 设  $z$  为无量纲粉尘层厚度,在  $y = 0$  处,  $z = 0$ ;  $y = 2r$  处,  $z = 2$ ; 在粉尘层温度最大值处,  $z = z_m$ .

设  $T_s$  为粉尘层与环境接触表面的温度,则由 Thomas 边界条件:

$$z = 0, T = T_p, \theta = 0, \quad (4a)$$

$$\theta = \theta_m, d\theta/dz = 0, \quad (4b)$$

$$z = 2, -\lambda(dT/dz)_s = h(T_s - T_A). \quad (4c)$$

对于边界条件(4c), 粉尘层顶部温度的变化由热板向上导热引起,即

$$\lambda \left(\frac{dT}{dy}\right)_s \approx \frac{\lambda}{2r}(T_p - T_s). \quad (5)$$

将以上各方程联立可得无量纲加热速率:

$$\delta = A\Delta H_R \rho \left(\frac{r^2}{\lambda}\right) \left(\frac{E}{RT_p^2}\right) \exp\left(\frac{-E}{RT_p}\right). \quad (6)$$

由式(2)知, $\delta$  最大时的温度为粉尘层理论临界着火温度. 因此,将以上各式联立计算,对于非线性方程,利用 C 语言编程,采用 Newton 迭代法<sup>[13]</sup>计算,多次迭代至  $|x_{k+1} - x_k| < \varepsilon$  (本文取  $\varepsilon = 10^{-5}$ ),可以求得不同  $r$  下的各参数值.

## 2 油页岩粉尘层最低着火温度实验研究

### 2.1 实验样品

实验样品分别取自辽宁抚顺、吉林桦甸、山东龙口及广东茂名四个油页岩主要产区现场,分别记为 FS, HD, LK, MM. 实验时先将块状油页岩原矿石破碎,再利用球磨机粉碎研磨,并在  $105^\circ\text{C}$  的烘干箱中烘干 1 h, 除去样品中的水分, 然后利用 200 目筛子进行筛分, 取筛下物作为实验样品. 实验样品工业分析、元素分析以及粒径分析结果如表 1 所示.

### 2.2 实验装置

根据国家标准 GB/T16430—1996 和 ASTM2021—09, 测试装置如图 1 所示.

表 1 油页岩样品的分析结果  
Table 1 Analysis results of oil shale samples

样品	含水率 /%	w(挥发分) /%	w(固定碳) /%	w(灰分) /%	$\Delta H_R$ $/(J \cdot g)^{-1}$	w(C) /%	w(S) /%	$D_{50}$ / $\mu m$	$\rho$ $/(kg \cdot m^{-3})$
LK	1.50	39.15	10.07	49.28	11 755	33.25	0.74	76.97	798.66
MM	2.87	29.47	<0.1	67.76	6 689	17.93	1.00	51.99	736.30
HD	3.87	27.11	<0.1	69.11	8 448	15.67	0.93	73.75	678.36
FS	1.89	22.73	1.08	74.30	4 516	13.03	0.59	80.31	835.16

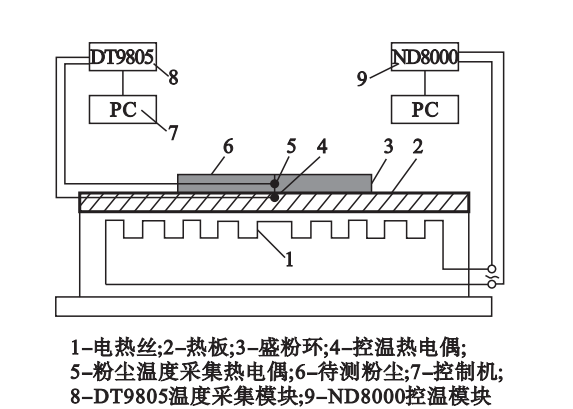


图 1 粉尘层最低着火温度测试装置  
Fig. 1 Minimum ignition temperature of dust layer test apparatus

盛粉环置于热板上,用于盛装待测样品,分别采用高度为 2,5,12.5 和 20 mm,直径100 mm环体进行测试.温控模块确保热板在测试过程中保持恒定的预设温度,测温热电偶以及温度采集模块用于测试并记录粉尘层在受热过程中温度的变化.

2.3 实验结果及分析

4 种油页岩粉尘的测试结果如图 2 所示,随粉尘层厚度的增大,最低着火温度逐渐降低;相同厚度不同产地油页岩粉尘层的最低着火温度不同,由高到低依次为 FS > HD > LK > MM. 依牛顿冷却定律,粉尘层顶部对流散热系数与粉尘层厚度有关,粉尘层厚度越小,对流换热系数越大,从而散热率越大,粉尘层着火所需时间和温度也就越大. 导致各产区油页岩不同着火温度的原因很复杂,但油页岩成分应该是主要因素,对比四者的挥发分含量(表 1)高低依次为 LK > MM > HD > FS,与粉尘层最低着火温度的变化规律基本相反,即挥发分含量越高的油页岩粉尘层的最低着火温度越低. 这一规律对于 MM 和 LK 略有不同,MM 油页岩含硫量大于 LK,而物质中硫含量的增加会降低着火温度.

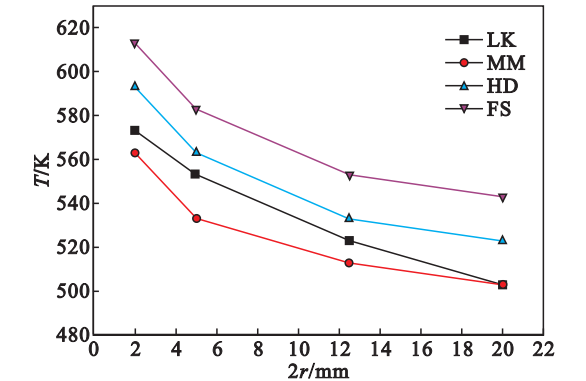


图 2 粉尘层最低着火温度测试结果  
Fig. 2 Test results of dust layer's MIT

3 粉尘层着火的特征参数求解

3.1 利用实验结果计算活化能

由式(6)可知,  $\ln \frac{\delta_{crit} T_p^2}{r^2} \sim \frac{1}{T_p}$  为线性关系,对其拟合可得如图 3 所示的拟合曲线. 拟合曲线的斜率等于  $-E/R$ ,因此,  $E = -K_{line} \cdot R$ ,由拟合结果可得 4 种油页岩粉尘层燃烧的活化能分别为 77.95 kJ/mol(LK), 102.98 kJ/mol (MM), 97.73 kJ/mol(HD), 104.77 kJ/mol(FS).

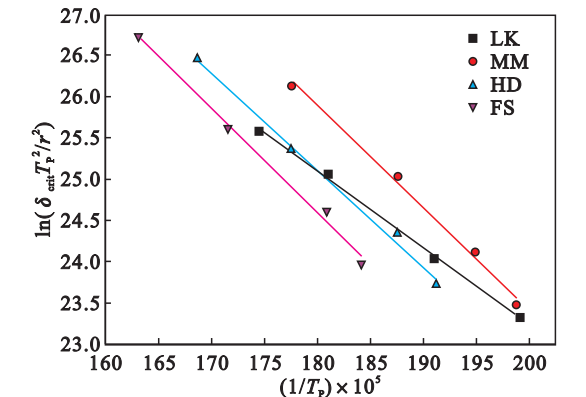


图 3 活化能拟合结果  
Fig. 3 Fitting results of activation energy

3.2 最低着火温度理论计算结果及分析  
将以上计算结果代入式(6),利用 C 语言计

算可以得到理论临界着火温度  $T_p$  数据. 油页岩粉尘着火温度理论分析结果与实验值对比见表 3.

表 3 理论值与实验值对比  
Table 3 Comparison of theoretical and test results

粉尘厚度/mm	结果比较	着火温度/K			
		FS	HD	LK	MM
2	实验结果	613	593	573	563
	理论值	641. 19	628. 91	630. 83	598. 74
	误差/%	4. 60	6. 06	10. 09	6. 35
5	实验结果	583	563	553	533
	理论值	582. 95	568. 66	570. 66	545. 52
	误差/%	0. 01	1. 01	3. 19	2. 35
12. 5	实验结果	553	533	523	513
	理论值	529. 09	513. 77	508. 1	501. 33
	误差/%	4. 32	3. 61	2. 85	2. 27
20	实验结果	543	523	503	503
	理论值	512. 13	496. 76	480. 54	481. 44
	误差/%	5. 69	5. 02	4. 47	4. 29

由表 3 可见,实验值与理论值随粉尘层厚度的变化规律是一致的,由于理论分析忽略了粉尘层径向的传热,导致预测结果略低于实测数据,理论值与实验值误差在 10% 以内,该理论模型可用于分析工业生产过程中不同厚度粉尘层的着火问题.

4 结 论

本文利用化学反应动力学、传热学以及 Thomas 不对称热自燃理论建立了油页岩粉尘层着火的理论模型,并利用专用装置测试了 2,5,12. 5 和 20 mm 厚度条件下四种油页岩粉尘样品的最低着火温度和变化规律,主要结论如下:

- 1) 不同地区油页岩最低着火温度随挥发分以及硫分的升高而降低;同一地区油页岩粉尘层最低着火温度随厚度的增加而降低.
- 2) 利用建立的油页岩粉尘层临界着火温度理论模型,求解得到了油页岩粉尘层燃烧表观活化能.
- 3) 理论着火温度与实验测试结果相比误差在 10% 以内,为预测生产过程粉尘层着火危险性提供了新的方法.

参考文献:

[ 1 ] Akash B A, Jaber J O. Characterization of shale oil as compared to crude oil and some refined petroleum products [ J ]. *Energy Sources*, 2003, 25: 1171 – 1182.  
[ 2 ] Burnham A K. Oil evolution from a self-purging reactor; kinetics and composition at 2 °C/min and 2 °C/h [ J ]. *Energy Fuels*, 1991, 5: 205 – 214.  
[ 3 ] Lin L X, Zhang C, Li H J, et al. Pyrolysis in indirectly heated

fixed bed with internals; the first application to oil shale [ J ]. *Fuel Processing Technology*, 2015, 138: 147 – 155.  
[ 4 ] Taciuk W. Does oil shale have a significant future? [ J ]. *Oil Shale*, 2013, 30( 1 ): 1 – 5.  
[ 5 ] 王国金,王剑秋,李术元,等. 油页岩颗粒燃烧释放二氧化硫的非催化气 – 固反应通用模型 [ J ]. *燃料化学学报*, 1996, 24( 1 ): 66 – 73.  
( Wang Guo-jin, Wang Jian-qiu, Li Shu-yuan, et al. General noncatalyzed gas-soild reaction model for sulphur dioxide release during oil shale particle combustion [ J ]. *Journal of Fuel Chemistry and Technology*, 1996, 24( 1 ): 66 – 73. )  
[ 6 ] 姜秀民,韩向新,刘德昌,等. 油页岩着火机理的研究 [ J ]. *发电设备*, 2002( 5 ): 1 – 4.  
( Jiang Xiu-min, Han Xiang-xin, Liu De-chang, et al. Research on the ignition mechanism of oil shale [ J ]. *Power Equipment*, 2002( 5 ): 1 – 4. )  
[ 7 ] 韩向新,姜秀民,崔志刚. 油页岩颗粒燃烧的高温段多相燃烧模型 [ J ]. *哈尔滨工业大学学报*, 2007, 39( 9 ): 1470 – 1472.  
( Han Xiang-xin, Jiang Xiu-min, Cui Zhi-gang. Heterogeneous combustion model for the high-temperature stage of oil shale particle combustion [ J ]. *Journal of Harbin Institute of Technology*, 2007, 39( 9 ): 1470 – 1472. )  
[ 8 ] Ulrich K, Willi H. Hazards arising from electrical devices surrounded by deposits of flammable dusts [ C ] // *Proceedings of 1994 International Colloquium on Safety Science and Technology*. Shenyang: Northeastern University Press, 1994.  
[ 9 ] Serth R W, Lestina T G. In process heat transfer [ M ]. Boston: Academic Press, 2014.  
[ 10 ] 王秋雯. 吉林桦甸油页岩热物理和电物理性质实验研究 [ D ]. 长春: 吉林大学, 2011.  
( Wang Qiu-wen. Experiment on thermal and electrical physical properties of oil shale in Jinlin Huadian area [ D ]. Changchun: Jilin University, 2011. )  
[ 11 ] Yuan C M, Huang D Z, Li C, et al. Ignition behavior of magnesium powder layers on a plate heated at constant temperature [ J ]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, 246: 283 – 290.  
[ 12 ] Bowes P C. Self-heating evaluation and controlling the hazards [ M ]. New York: Elsevier, 1984.  
[ 13 ] Zienkiewicz O C, Taylor R L, Fox D. Finite element method for solid & structural mechanics [ M ]. Oxford: Butterworth-Heinemann, 2014.