

# 流化床 $O_2/CO_2$ 气氛对烟煤焦反应速率的影响研究

王文康<sup>1</sup>, 卜昌盛<sup>1</sup>, 熊金琴<sup>1</sup>, 王昕晔<sup>1</sup>, 张居兵<sup>1</sup>, 朴桂林<sup>1</sup>, 张孝勇<sup>2</sup>

(1. 南京师范大学能源与机械工程学院, 江苏 南京 210042)

(2. 中国大唐集团科学技术研究院有限公司, 北京 102206)

**[摘要]** 流化床  $O_2/CO_2$  燃烧是实现煤炭清洁利用及近零碳排放的有效技术之一. 为进一步探究工业流化床  $O_2/CO_2$  燃烧条件下的煤颗粒燃烧机制, 本研究在小型流化床试验台上, 通过在线测量流化床出口烟气中  $O_2$  和  $CO$  的浓度, 深入考察了  $O_2/CO_2$  取代  $O_2/N_2$  后, 不同的床层温度 ( $800\sim 900\text{ }^\circ\text{C}$ )、 $O_2$  浓度 ( $4\%\sim 10\%$ ) 及颗粒粒径 ( $2\sim 8\text{ mm}$ ) 下的烟煤焦燃烧特性. 实验结果表明:  $O_2/CO_2$  气氛下, 煤焦反应速率随床层温度的升高、 $O_2$  浓度的升高和颗粒粒径的降低而增加; 煤焦燃烧反应由  $O_2$  扩散控制, 气化反应由反应动力学控制; 相较于  $O_2/N_2$  气氛, 低床温下,  $O_2/CO_2$  气氛下的  $O_2$  扩散速率降低是煤焦反应速率改变的主要原因; 高床温下, 除  $O_2/CO_2$  气氛下  $O_2$  的扩散速率降低外, 煤焦气化反应对煤焦反应速率的影响同样不可忽略.

**[关键词]** 流化床,  $O_2/CO_2$  燃烧, 烟煤, 燃烧, 气化

**[中图分类号]** TQ534.2 **[文献标志码]** A **[文章编号]** 1672-1292(2017)04-0053-06

## Investigation on Reaction Rate of Bituminous Coal-Char Particles in $O_2/CO_2$ Atmosphere in a Fluidized Bed

Wang Wenkang<sup>1</sup>, Bu Changsheng<sup>1</sup>, Xiong Jinqin<sup>1</sup>, Wang Xinye<sup>1</sup>,  
Zhang Jubing<sup>1</sup>, Piao Guilin<sup>1</sup>, Zhang Xiaoyong<sup>2</sup>

(1. School of Energy and Mechanical Engineering, Nanjing Normal University, Nanjing 210042, China)

(2. China Datang Corporation Science and Technology Research Institute, Beijing 102206, China)

**Abstract:** Oxy-fuel fluidized bed (FB) combustion is one of the promising technologies achieving the clean utilization of coal and nearly zero emission of  $CO_2$  from coal fired power plants. To obtain the oxy-fuel combustion characteristics of coal particles in the industry FB conditions, experimental study of combustion of bituminous coal particles is conducted in a bench-scale FB in  $O_2/CO_2$  and  $O_2/N_2$  atmospheres through continuously measuring the concentrations of  $O_2$  and  $CO$  in the exit gas at the bed temperatures of  $800\sim 900\text{ }^\circ\text{C}$ , the  $O_2$  concentrations of  $4\%\sim 10\%$  and the coal particle sizes of  $2\sim 8\text{ mm}$ . Results indicate that the combustion rate of bituminous coal-char particle increases with the increase of bed temperature,  $O_2$  concentration and the decrease of the coal-char size in  $O_2/CO_2$  atmosphere. Oxidation of coal-char is controlled by the diffusion of  $O_2$ , whereas gasification of coal-char is limited by the reaction kinetics. Compared with coal-char combustion in the  $O_2/N_2$  atmosphere, the decreased diffusivity of  $O_2$  in  $CO_2$  is the main reason for the changed reaction rate of coal-char particle in  $O_2/CO_2$  atmosphere at a low bed temperature. However, at a high bed temperature, in spite of the low diffusion rate of  $O_2$ , the effect of gasification on the coal-char reaction could not be ignored as consequence of the increased gasification rate.

**Key words:** fluidized Bed,  $O_2/CO_2$  combustion, bituminous coal, combustion, gasification

控制化石燃料利用过程中的  $CO_2$  排放已成为全人类共同关注的话题. 煤炭在未来的长时期内仍将是我国最为主要的一次能源, 其中燃煤电站用煤是煤炭消费的主体, 约占 64%, 发展燃煤电站  $CO_2$  减排技术迫在眉睫. 富氧燃烧(又称流化床  $O_2/CO_2$  燃烧)是通过利用空气分离所获得的  $O_2$  和部分循环烟气来代替

收稿日期: 2017-06-08.

基金项目: 国家自然科学基金青年基金(51606104)、江苏省高校自然科学研究面上项目(16KJB470010)、中国博士后科学基金面上项目(2016M591879)、安徽省科技重大专项计划(15czz02045).

通讯联系人: 卜昌盛, 博士, 讲师, 研究方向: 煤燃烧与气化. E-mail: csbu@njjnu.edu.cn

空气与燃料组织燃烧,可大幅提高烟气中的  $\text{CO}_2$  浓度,具备低成本、大规模减排  $\text{CO}_2$  的潜力<sup>[1]</sup>. 流化床富氧燃烧技术继承了流化床燃烧的技术优势,其相较于煤粉炉富氧燃烧在燃料选择的多样性、操作的灵活性等方面更具优势.

在流化床  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  燃烧条件下,探明  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  取代空气后对煤燃烧特性的改变机制,是掌握该技术的首要环节之一. 针对  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下煤粉反应动力学,Duan 等<sup>[2]</sup>、Naredi 和 Pisupati<sup>[3]</sup>、Wang 等<sup>[4]</sup> 在热重实验平台上对比研究了  $\text{O}_2/\text{N}_2$  与  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下多种煤样的燃烧过程,当反应温度较低时( $<800\text{ }^\circ\text{C}$ ), $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下的 DTG 曲线与  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下的基本重合;反应温度升高后( $>850\text{ }^\circ\text{C}$ ), $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下的失重速率显著增加;相较于  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛, $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下燃烧反应区域向高温区偏移. Liu 等<sup>[5]</sup> 采用热重及差示扫描量热法(TG-DSC)细致研究了  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  与  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下煤焦反应动力学,结果表明, $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下  $\text{CO}_2$  与  $\text{O}_2$  竞争煤焦表面的碳反应活性位点,而  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下  $\text{N}_2$  无化学吸附力,致使  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下  $\text{O}_2$  的吸附活性位点数量降低,燃料的燃烧反应性减弱. Scala 和 Chirone<sup>[6-7]</sup>、Saucedo 等<sup>[8]</sup>、Roy 等<sup>[9]</sup> 重点研究了流化床  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  燃烧条件下的煤焦- $\text{CO}_2$  气化反应特性及其对煤焦燃烧反应的影响,研究指出煤焦- $\text{CO}_2$  反应由化学反应动力学控制,反应速率较低.  $\text{CO}_2$  取代  $\text{N}_2$  后,除引发煤焦- $\text{CO}_2$  气化反应外, $\text{O}_2$  在  $\text{CO}_2$  气氛下的扩散速率也明显低于  $\text{N}_2$  气氛. 本文作者前期<sup>[10-14]</sup> 在高温可视化流化床试验平台上,细致研究了高  $\text{O}_2$  浓度下  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  取代  $\text{O}_2/\text{N}_2$  对我国典型煤种煤颗粒燃烧特性的影响规律,并建立了颗粒尺度的燃烧模型,定量分析了氧气扩散速率的改变和煤焦- $\text{CO}_2$  气化反应对燃烧特性的影响. 研究发现, $\text{CO}_2$  气氛下较低的  $\text{O}_2$  扩散速率是导致该气氛下燃烧特性(如燃烧速率降低、燃烧温度降低)相对于  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛改变的主要原因.

总体而言,当前有关流化床  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  燃烧的基础性研究,主要从探究  $\text{CO}_2$  取代  $\text{N}_2$  对煤燃烧特性改变的角度出发,分析改变机制. 然而,前期研究中选取的实验条件与工业流化床的燃烧条件差异较大. 在工业流化床锅炉内煤颗粒周围的  $\text{O}_2$  浓度长时间处于  $3\% \sim 7\%$ ,煤颗粒粒径为  $1 \sim 10\text{ mm}$ ,床层温度在  $800 \sim 900\text{ }^\circ\text{C}$ <sup>[15]</sup>. 为此,本研究将在小型流化床试验台上,通过模拟工业流化床锅炉内煤颗粒的燃烧条件,分析  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  和  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下烟煤颗粒的燃烧特性,加深对流化床  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  燃烧的认知,为流化床  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  燃烧锅炉的改造、设计及运行提供一定的理论支持.

## 1 实验系统及工况

燃烧实验在一小型热态流化床试验系统上进行,如图 1 所示. 该系统主要由流化床本体、电加热器、配气装置、温度控制器及数据采集器等组成. 流化床本体为圆柱形石英玻璃,内径为  $30\text{ mm}$ ,高  $1\,250\text{ mm}$ ,中段布置多孔石英板作为布风板,布风板开孔率为  $0.3\%$ ,实测布风板阻力系数为  $0.26$ . 流化床本体外侧装有电加热元件并具有良好的保温,电加热元件的额定功率为  $4\text{ kW}$ . 流化床床温通过一根伸入床层内部的 K 型热电偶测量并通过 PID 自动调节控制.  $\text{O}_2$ 、 $\text{CO}_2$  和  $\text{N}_2$  气源由相应的钢瓶气供给,经质量流量计计量后进入混气器内,形成模拟的  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  和  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛,而后进入流化床本体. 流化床出口烟气经取样后进入 MRU 增强型烟气分析仪,在线检测烟气中  $\text{O}_2$  和  $\text{CO}$  的浓度并自动存储于计算机,烟气分析仪的测量相对误差在  $3\%$  以内.

选用粒径  $100 \sim 200\text{ }\mu\text{m}$  的石英砂作为床料,静料层高  $50\text{ mm}$ . 实验测量临界流化风速为  $0.01\text{ m/s}$ . 燃烧实验的流化风速设定在  $2.5$  倍临界流化风速,对应于鼓泡流态化. 烟气采样测量时,因烟气在取样测量管内流动会导致测量结果显示延迟. 在本试验系统中,通过空白实验测量得  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  和  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下烟气从取样至烟气分析仪测量结果稳定的时间为  $24\text{ s}$ (该段时间主要为气体流通时间). 因而,每工况下电脑采集的前  $24\text{ s}$  数据将不用于燃烧特性的分析.

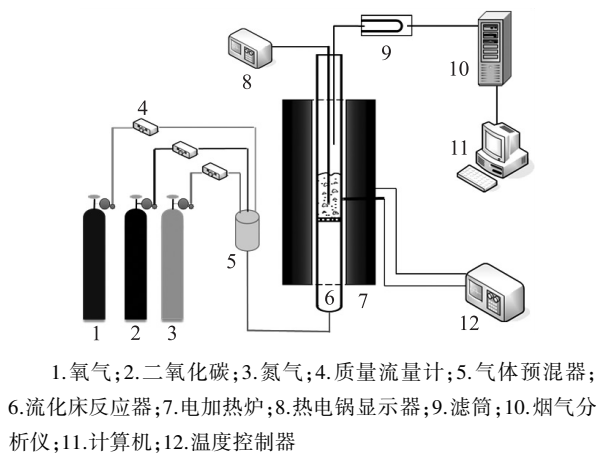


图 1 热态流化床试验系统

Fig. 1 Experimental system of fluidized bed unit

依据我国的煤炭分类标准 GB/T 5751-2009,本研究选取烟煤作为实验原料. 工业分析显示烟煤中挥发分含量为 12.8%<sub>ad</sub>,灰分含量为 38.5%<sub>ad</sub>,水分含量为 1.9%<sub>ad</sub>,固定碳含量为 46.8%<sub>ad</sub>;元素分析显示碳、氮、氢、硫、氧的含量分别为 82.21%<sub>daf</sub>、1.12%<sub>daf</sub>、4.31%<sub>daf</sub>、0.99%<sub>daf</sub>、11.37%<sub>daf</sub>.

为模拟工业流化床锅炉内燃料颗粒的燃烧条件,实验所制定的工况列于表 1. 每工况下,当床层达到设定温度并稳定后开始实验. 为保证流化床反应器内(烟煤颗粒周围)相对稳定的温度场和反应气氛,将已称重质量为  $m_0$  的单个烟煤颗粒加入流化床,同时开启烟气分析仪的采样通道. 每工况至少重复 6 次,以保证数据的可靠性.

表 1 实验工况表

Table 1 Operation conditions

工况	反应气氛	床层温度/℃	氧气浓度/%	颗粒粒径/mm
床层温度的影响	O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> 、O <sub>2</sub> /CO <sub>2</sub>	800、825、850、875、900	6	4
氧气浓度的影响	O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> 、O <sub>2</sub> /CO <sub>2</sub>	850	4、6、8、10	4
颗粒粒径的影响	O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> 、O <sub>2</sub> /CO <sub>2</sub>	850	6	2、4、6、8

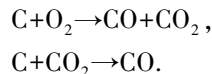
## 2 实验结果及讨论

图 2 显示了 O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 气氛下,床温 850 ℃,O<sub>2</sub> 浓度为 4%,粒径为 4 mm 的烟煤颗粒燃烧过程中流化床出口 O<sub>2</sub> 及 CO 浓度随时间的变化规律:烟煤颗粒加入流化床后,迅速与床料进行换热,颗粒温度升高,挥发分开始析出、燃烧消耗 O<sub>2</sub>,流化床出口 O<sub>2</sub> 浓度迅速降低,烟煤颗粒中 CO 的析出及部分挥发分的不完全燃烧致使出口烟气中 CO 的浓度升高. Stubington 等<sup>[16]</sup>实验拟合出流化床燃烧条件下煤颗粒脱挥发分时间  $t_{dev}$  (s) 与颗粒粒径  $d_p$  (mm) 的关系为  $t_{dev} = 1.84d_p^{1.5}$  (该式的预测误差在 30% 以内). 由该式,本工况下 4 mm 烟煤颗粒的脱挥发分

时间约为 15 s. 图 2 中虚线即代表煤颗粒脱挥发分结束的时刻(实际煤颗粒脱挥发分和焦炭燃烧并无准确分界,但为研究方便仍采用脱挥发分完成的时刻作为煤焦的起始反应时刻). 煤脱挥发分完成后,颗粒表面的焦炭开始燃烧消耗 O<sub>2</sub>,随着反应的进行,烟气中 O<sub>2</sub> 浓度先降低后逐渐升高,CO 浓度先升高后降低;当 O<sub>2</sub> 浓度回升至 4%,CO 浓度降低至 0%时,烟煤颗粒燃烧反应过程结束.

前期实验研究表明,流化床 O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 与 O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 气氛下的煤颗粒脱挥发分特性并无显著差异<sup>[11]</sup>. 本文将着重分析 CO<sub>2</sub> 取代 N<sub>2</sub> 后对烟煤焦炭燃烧特性的影响及影响机制.

焦炭燃烧阶段主要发生如下所示的煤焦-O<sub>2</sub> 燃烧反应和煤焦-CO<sub>2</sub> 气化反应:



依据焦炭燃烧反应过程中的碳、氧平衡关系,建立质量守恒方程:

$$\dot{m}_{\text{O}_2}^{\text{in}} + \frac{32}{44} \dot{m}_{\text{CO}_2}^{\text{in}} = \dot{m}_{\text{O}_2}^{\text{out}}(t) + \frac{16}{28} \dot{m}_{\text{CO}}^{\text{out}}(t) + \frac{32}{44} \dot{m}_{\text{CO}_2}^{\text{out}}(t), \quad (1)$$

$$\frac{12}{44} \dot{m}_{\text{CO}_2}^{\text{in}} + \dot{m}_{\text{C}}^{\text{cons}}(t) = \frac{12}{44} \dot{m}_{\text{CO}_2}^{\text{out}}(t) + \frac{12}{28} \dot{m}_{\text{CO}}^{\text{out}}(t). \quad (2)$$

式中,  $\dot{m}_{\text{O}_2}^{\text{in}}$  和  $\dot{m}_{\text{CO}_2}^{\text{in}}$  分别为流化床入口 O<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 的质量流量(g/s);  $\dot{m}_{\text{O}_2}^{\text{out}}(t)$ 、 $\dot{m}_{\text{CO}}^{\text{out}}(t)$  和  $\dot{m}_{\text{CO}_2}^{\text{out}}(t)$  分别为出口烟气中 O<sub>2</sub>、CO 和 CO<sub>2</sub> 的瞬时质量流量(g/s);  $\dot{m}_{\text{C}}^{\text{cons}}(t)$  为焦炭的瞬时反应速率(g/s).

联立式(1)与式(2),求解焦炭的瞬时反应速率:

$$\dot{m}_{\text{C}}^{\text{cons}}(t) = \frac{12}{32} [\dot{m}_{\text{O}_2}^{\text{in}} - \dot{m}_{\text{O}_2}^{\text{out}}(t)] + \frac{3}{14} \dot{m}_{\text{CO}}^{\text{out}}(t). \quad (3)$$

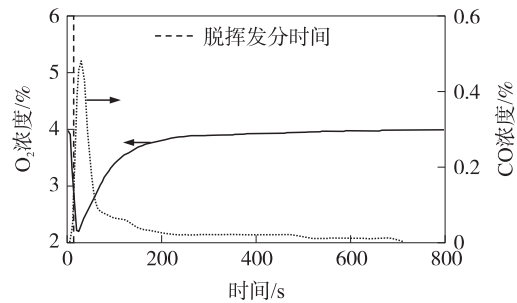
O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 气氛,床温 850 ℃,O<sub>2</sub> 浓度 4%,烟煤颗粒粒径 4 mm

图 2 典型试验条件下流化床出口烟气成分

Fig. 2 A typical example of gas profile in the exit gas

对式(3)在  $(t_{\text{dev}}, t_{\text{burn}})$  时间区域积分, 获得煤中固定碳量  $m_c$  (g):

$$m_c = \int_{t_{\text{dev}}}^{t_{\text{burn}}} \dot{m}_c^{\text{cons}}(t) dt. \quad (4)$$

式中,  $t_{\text{burn}}$  为煤颗粒燃尽时间(s).

依据实验煤样的初始质量  $m_0$ , 计算煤中固定碳的含量为  $m_c/m_0$ . 经统计分析, 本文在不同燃烧条件下  $m_c/m_0$  的计算值与工业分析测定的固定碳含量的差异均在 7% 以内, 表明烟气分析仪的测量结果准确可信.

下文将重点探讨不同流化床床层温度、不同  $\text{O}_2$  浓度和不同烟煤颗粒粒径下,  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下烟煤焦炭的反应速率与  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛的差异, 并分析烟煤焦的燃烧机制. 为便于数据的对比分析, 煤焦反应速率  $r$  及煤焦炭转化率  $x$  分别由式(5)和(6)计算:

$$r = -\frac{1}{m_0} \frac{dm_t}{dt} = -\frac{1}{m_0} \dot{m}_c^{\text{cons}}(t), \quad (5)$$

$$x = \frac{m_0 - m_t}{m_0}. \quad (6)$$

式中,  $r$  为煤焦反应速率;  $x$  为煤焦炭转化率;  $\frac{dm_t}{dt}$  为  $t$  时刻下煤焦的瞬时反应速率(g/s).

## 2.1 流化床床层温度的影响

$\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛和  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下,  $\text{O}_2$  浓度为 6%, 不同床温下, 粒径为 4 mm 的烟煤焦反应速率随煤焦炭转化率的变化如图 3 所示. 两种气氛不同床层温度下, 焦炭反应速率均随煤焦炭转化率呈下降趋势(图 4 和图 5 显示相同结论). 图 3(a) 显示, 当床层温度由 800 °C 增加至 900 °C,  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下的焦炭燃烧反应速率无明显改变, 表明焦炭的燃烧过程不受燃烧反应动力学控制; 而图 3(b) 显示  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下的煤焦反应速率随床温的增加而增加.

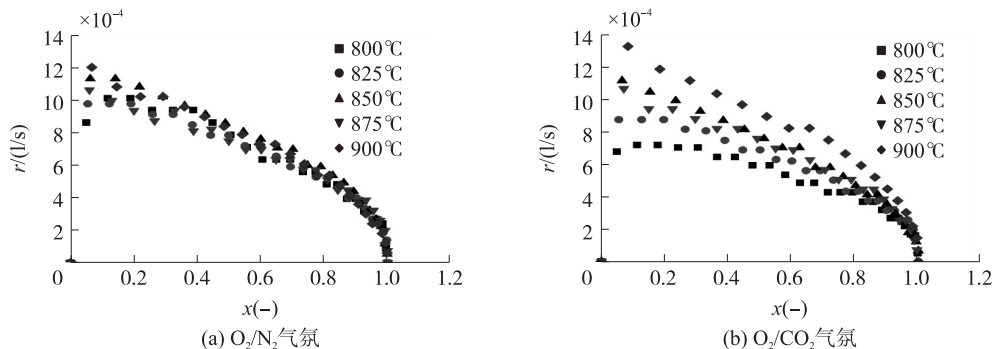


图 3 流化床条件下床层温度对烟煤焦反应速率的影响

Fig. 3 Effect of bed temperature on the reaction rate of bituminous coal char particle

对比图 3(a) 与 (b), 床温 800 °C,  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下的煤焦反应速率低于  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛; 升高床温至 900 °C 时,  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下的煤焦反应速率高于  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛.  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下, 除发生煤焦燃烧反应外, 同时发生煤焦气化反应. 但低床温下煤焦气化反应的速率较低<sup>[13]</sup>, 如 800 °C 时  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下煤焦主要发生燃烧反应, 由于  $\text{O}_2$  在  $\text{CO}_2$  中的扩散速率低于在  $\text{N}_2$  中的扩散速率, 燃烧反应速率相较  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛降低, 同时也表明焦炭燃烧反应速率受  $\text{O}_2$  的扩散控制; 升高床温后, 由于气化反应由反应动力学控制<sup>[17]</sup>,  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛下的煤焦气化反应速率增加, 提高了煤焦整体的反应速率(燃烧反应加气化反应), 气化反应对煤焦整体反应速率的贡献不可忽略.

## 2.2 $\text{O}_2$ 浓度的影响

图 4 显示了  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  和  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下, 床层温度 850 °C, 不同  $\text{O}_2$  浓度下, 4 mm 烟煤焦反应速率随碳转化率的变化规律. 如图 4 所示, 由于焦炭燃烧反应受  $\text{O}_2$  的扩散速率控制,  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  和  $\text{O}_2/\text{N}_2$  气氛下的焦炭反应速率均随着  $\text{O}_2$  浓度的增加而显著增加. 作者前期在流化床试验平台上通过热电偶测量了  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  气氛 10%  $\text{O}_2$  浓度下烟煤颗粒燃烧过程中的颗粒温度变化, 发现颗粒温度接近于床温<sup>[12]</sup>. 因而, 本研究



中, $O_2/CO_2$  气氛下当  $O_2$  浓度由 4% 升高至 10% 时,颗粒燃烧温度同样会接近于床温  $850\text{ }^\circ\text{C}$ ,气化反应的变化基本可以忽略. 因而,图 4(a) 和(b) 显现出相似的燃烧规律.

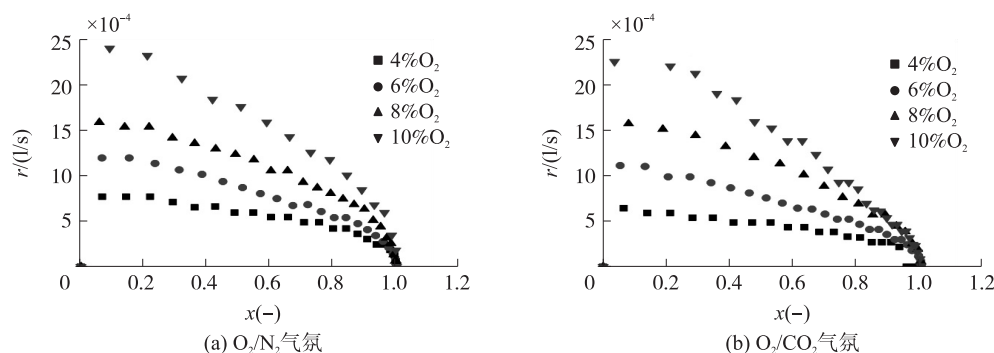


图 4 流化床条件下  $O_2$  浓度对烟煤焦反应速率的影响

Fig. 4 Effect of  $O_2$  concentration on the reaction rate of bituminous coal char particle

对比图 4(a) 与(b), 相同  $O_2$  浓度下  $O_2/CO_2$  气氛下的焦炭反应速率低于  $O_2/N_2$  气氛, 且表现出两者差异随  $O_2$  浓度的增加而降低的趋势. 此外, 当  $O_2/CO_2$  气氛下的  $O_2$  浓度高于  $O_2/N_2$  气氛时,  $O_2/CO_2$  气氛下的燃烧反应速率明显高于  $O_2/N_2$  气氛 (例如  $O_2/CO_2$  气氛 6%  $O_2$  浓度下的煤焦燃烧速率高于  $O_2/N_2$  气氛 4%  $O_2$  浓度下的煤焦燃烧速率). 这一结论也解释了中试流化床富氧燃烧条件下<sup>[18]</sup>, 通过适当提高入炉  $O_2$  浓度可获得与空气气氛相近的燃料燃烧特性.

### 2.3 烟煤焦颗粒粒径的影响

$O_2$  浓度 6%, 床层温度  $850\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $O_2/CO_2$  气氛和  $O_2/N_2$  气氛下, 不同粒径的烟煤焦反应速率随煤焦炭转化率的变化如图 5 所示.  $O_2/CO_2$  和  $O_2/N_2$  气氛下, 煤焦反应速率随颗粒粒径的增加而降低, 进一步验证了煤焦燃烧反应由  $O_2$  的扩散控制. 工业流化床条件下, 适当降低煤颗粒粒径有助于提高  $O_2/CO_2$  气氛下煤焦的反应速率.

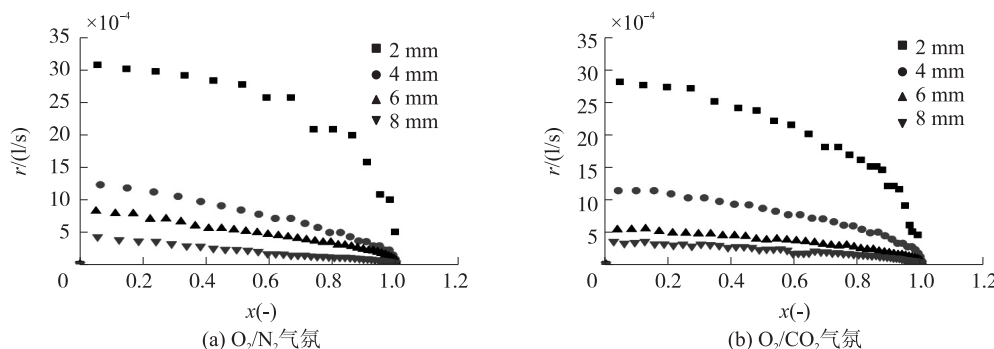


图 5 流化床条件下烟煤粒径对煤焦反应速率的影响

Fig. 5 Effect of the size of bituminous coal particle on its reaction rate

对比图 5(a) 与(b), 对于同一粒径的烟煤焦颗粒, 由于  $O_2/CO_2$  气氛下煤焦颗粒周围的  $O_2$  扩散速率低于  $O_2/N_2$  气氛下的值, 致使  $O_2/CO_2$  气氛下的燃烧速率降低.

## 3 结语

为进一步揭示工业流化床富氧燃烧条件下的烟煤颗粒燃烧特性, 在热态流化床试验台上, 通过在线测量  $O_2/CO_2$  气氛与  $O_2/N_2$  气氛下单个烟煤颗粒在燃烧过程中流化床出口  $O_2$  和  $CO$  的浓度, 研究分析了流化床床层温度 ( $800\sim 900\text{ }^\circ\text{C}$ )、 $O_2$  浓度 (4%~10%) 和烟煤颗粒的粒径 (2~8 mm) 对煤焦反应速率的影响规律及燃烧机制. 研究表明:

(1) 煤焦燃烧反应由  $O_2$  扩散控制, 气化反应由反应动力学控制.  $O_2/CO_2$  气氛下煤焦的反应速率随流化床床温的增加而增加, 而  $O_2/N_2$  气氛下的煤焦反应速率不随床温发生改变. 低流化床床温下 ( $800\text{ }^\circ\text{C}$ ), 由于  $O_2/CO_2$  气氛下的  $O_2$  扩散速率低于  $O_2/N_2$  气氛, 煤焦反应速率低于  $O_2/N_2$  气氛; 随流化床床温的升

高,  $O_2/CO_2$  气氛下煤焦气化反应速率显著增加, 高床温下(900 ℃)煤焦反应速率高于  $O_2/N_2$  气氛, 气化反应对煤焦反应速率的影响不可忽略。

(2)  $O_2/CO_2$  气氛与  $O_2/N_2$  气氛下煤焦反应速率随  $O_2$  浓度的增加和颗粒粒径的降低而增加。  $O_2/CO_2$  气氛下, 适当提高  $O_2$  浓度和降低煤焦的颗粒粒径是提高煤焦反应速率有效方式。

#### [参考文献] (References)

- [1] MATHEKGA H I, OBOIRIEN B O, NORTH B C. A review of oxy-fuel combustion in fluidized bed reactors[J]. Int J of Energy Res, 2016, 40: 878–902.
- [2] DUAN L B, ZHAO C S, ZHOU W, et al. Investigation on coal pyrolysis in  $CO_2$  atmosphere[J]. Energy fuels, 2009, 23: 3 826–3 830.
- [3] NAREDI P, PISUPATI S. Effect of  $CO_2$  during coal pyrolysis and char burnout in oxy-coal combustion[J]. Energy fuels, 2011, 25: 2 452–2 459.
- [4] WANG C, ZHANG X, LIU Y, et al. Pyrolysis and combustion characteristics of coals in oxyfuel combustion[J]. Appl Energy, 2012, 97: 264–273.
- [5] LIU Y, FU P, ZHANG B, et al. Study on the surface active reactivity of coal char conversion in  $O_2/CO_2$  and  $O_2/N_2$  atmospheres[J]. Fuel, 2016, 181: 1 244–1 256.
- [6] SCALA F, CHIRONE R. Combustion of single coal char particles under fluidized bed oxyfiring conditions[J]. Ind Eng Chem Res, 2010, 49: 11 029–11 036.
- [7] SCALA F, CHIRONE R. Fluidized bed combustion of single coal char particles at high  $CO_2$  concentration[J]. Chem Eng J, 2010, 165: 902–906.
- [8] SAUCEDO M A, BUTEL M, SCOTT S A, et al. Significance of gasification during oxy-fuel combustion of a lignite char in a fluidised bed using a fast UEGO sensor[J]. Fuel, 2015, 144: 423–438.
- [9] ROY B, BHATTACHARYA S. Combustion of single char particles from Victorian brown coal under oxy-fuel fluidized bed conditions[J]. Fuel, 2016, 165: 477–483.
- [10] BU C, LIU D, CHEN X, et al. Ignition behavior of single coal particle in a fluidized bed under  $O_2/CO_2$  and  $O_2/N_2$  atmospheres: a combination of visual image and particle temperature[J]. Appl Energy, 2014, 115: 301–308.
- [11] BU C, LECKNER B, CHEN X, et al. Devolatilization of a single fuel particle in a fluidized bed under oxy-combustion conditions. Part A: Experimental results[J]. Combust flame, 2015, 162: 797–808.
- [12] BU C, PALLARÈS D, CHEN X, et al. Oxy-fuel combustion of a single fuel particle in a fluidized bed: char combustion characteristics, an experimental study[J]. Chem Eng J, 2016, 287: 649–656.
- [13] BU C, GÓMEZ B A, CHEN X, et al. Effect of  $CO_2$  on oxy-fuel combustion of coal-char particles in a fluidized bed: modeling and comparison with the conventional mode of combustion[J]. Appl Energy, 2016, 177: 247–259.
- [14] 卜昌盛, 庄亚明, 刘道银, 等. 单颗粒流化床富氧燃烧特性研究[J]. 工程热物理学报, 2015, 36: 1 143–1 147.  
BU C S, ZHUANG Y M, LIU D Y, et al. Fluidized bed combustion of a single coal particle in oxy-fuel environments[J]. J Eng Thermophys, 2015, 36: 1 143–1 147. (in Chinese)
- [15] LECKNER B. Fluidized bed combustion: mixing and pollutant limitation[J]. Prog Energy Combust Sci, 1998, 24: 31–61.
- [16] STUBINGTON J F, NG K W K, MOSS B, et al. Comparison of experimental methods for determining coal particle devolatilization times under fluidized bed combustor conditions[J]. Fuel, 1997, 76(3): 233–240.
- [17] NILSSON S, GÓMEZ B A, CANO D F. Gasification reactivity of char from dried sewage sludge in a fluidized bed[J]. Fuel, 2012, 92(1): 346–353.
- [18] DUAN L, SUN H, ZHAO C, et al. Coal combustion characteristics on an oxy-fuel circulating fluidized bed combustor with warm flue gas recycle[J]. Fuel, 2014, 127: 47–51.

[责任编辑: 严海琳]