

不同煤种挥发氮析出过程的数值模拟与试验研究

周 昊, 翁安心, 岑可法, 樊建人

(浙江大学 能源清洁利用和环境工程教育部重点实验室, 浙江 杭州 310027)

摘 要: 采用数值模型研究了烟煤、贫煤和无烟煤等不同煤种热解、燃烧过程中挥发分氮的析出、中间含氮产物 HCN 的生成以及转变为 NO 的过程。利用有限体积方法对质量、化学组分、动量和热量守恒方程进行离散求解。计算获得了不同煤种的颗粒着火时间、热解过程、孔隙率、HCN 和 NO 生成率等数据, 并与沉降炉试验结果进行了比较、分析。

关 键 词: 燃料氮; 煤粉; 数值模拟

中图分类号: X701.3 文献标识码: A

1 引 言

氮氧化物是煤燃烧过程中产生的主要污染气体。通常根据燃料氮氧化物的来源不同, 分为挥发分氮氧化物和焦炭氮氧化物两类。煤粉进入炉膛后, 受热着火, 挥发分析出, 煤中的氮随挥发分析出, 挥发分氮析出后, 还有一部分氮留在焦炭中, 随焦炭燃烧生成 NO 释放, 这部分氮称为焦炭氮。相对而言, 比较容易通过燃烧优化等手段控制挥发分 NO_x 的生成^[1]。

挥发分氮离开煤粒表面进入烟气后, 可以用均相模型描述各含氮组分在炉内的转化规律, NO 转化过程的均相化学反应模型已比较成熟^[2], 研究主要集中在湍流条件下化学反应机理上。目前对单颗粒煤中挥发分氮析出转化过程的模型研究较少, 而通过该模型可以计算获得不同条件下离开颗粒表面的挥发氮的比例及成分, 以提高后续的炉内含氮组分均相反应模型的准确性, 进而提高炉内煤粉燃烧 NO_x 生成过程模拟的准确性。

本文对烟煤、贫煤和无烟煤等三种煤种采用数值方法分析了热解、燃烧过程中挥发分氮的析出、中间含氮产物 HCN 的生成以及转变为 NO 的过程。计算获得了不同煤种的颗粒着火时间、热解过程、孔隙率、HCN 和 NO 生成率等数据, 并与沉降炉试验结果进行了比较。

2 挥发氮析出转化模型

采用颗粒模型对挥发分氮的析出过程进行模拟。煤中挥发分氮转化中间产物主要有 HCN 和 NH_3 , 随煤种不同, 两种中间产物的比例不同, 对于煤化程度较高的煤种, HCN 为主要中间产物, 而褐煤等煤化程度较低的煤种, NH_3 占的比例较高^[1]。本文研究的煤种均为高煤化程度煤种, 经沉降炉热解试验表明, 挥发分 NO_x 的前驱物主要为 HCN^[6]。因此假设煤热解阶段中挥发分氮以 HCN 形式释放, HCN 穿过煤颗粒中的孔隙进入颗粒表面边界层再扩散到周围大气过程中, 其间发生一系列的反应: 在颗粒内部, 由于缺氧, 主要发生还原反应; 在边界层, HCN 与从挥发分火焰面扩散进来的 NO 发生反应; 在火焰面, HCN 与氧发生氧化反应形成 NO。火焰面处形成的 NO 同时向火焰面内外扩散。

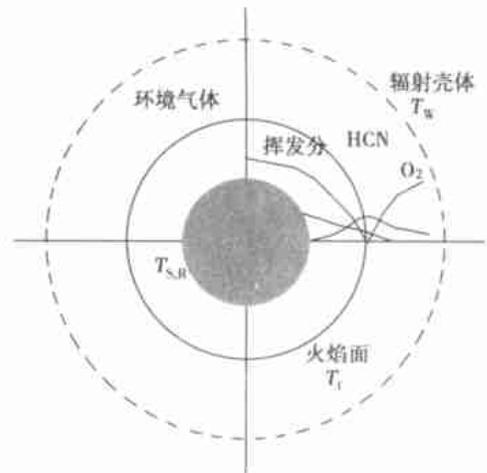


图 1 煤粉颗粒挥发分氮析出燃烧示意图

图 1 示出了颗粒模型的边界条件以及各化学组分可能的浓度分布^[3]。为模拟实际煤粉颗粒的炉内

收稿日期: 2003-06-17; 修订日期: 2003-11-03

基金项目: 国家重点基础研究专项经费资助(G 2001CB409600); 国家自然科学基金资助项目(50206018)

作者简介: 周 昊(1973-)男, 江苏吴江人, 浙江大学副教授

过程, 模型假定煤粉颗粒被一个很远的辐射壳体包围, 设定辐射壳体温度为 T_w 。挥发氮析出后的转化过程采用 De Soete 机理描述^[7]。

质量守恒方程、能量守恒方程、各组分浓度分布方程等表示为通用控制方程的形式, 如式(1)所示, 式中各变量代表意义见表 1。

$$\frac{\partial(\rho_i \phi_i)}{\partial t} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r}(r^2 \rho_i V_i \phi_i) - \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r}(r^2 \Gamma_i \frac{\partial}{\partial r}(\phi_i)) = S_{\phi_i} \quad (1)$$

表 1 运输方程中各变量意义

ϕ_i	V_i	Γ_i	S_{ϕ_i}	备 注
1	V_g	0	$dm_s / (\Delta Vol dt)$	质量守恒方程
T_s	0	k / c_{ps}	0	固体颗粒能量方程
h_g	V_g	k_g / c_{pg}	$(q_{rad} + q_{chem})_{r=r_f}$	气体能量方程
Y_{O_2}	V_g	$\rho_g D_{O_2}$	0	O_2 组分守恒方程
Y_{HCN}	V_g	$\rho_g D_{HCN}$	$S_{NCN} - S_{NO} - S_{N_2}$	HCN 组分守恒方程
Y_{NO}	V_g	$\rho_g D_{NO}$	$S_{NO} - S_{N_2}$	NO 组分守恒方程

表 1 中, 求解的变量 ϕ_i ; 温度 T , K; 速度 V , m/s; 运输系数 Γ_i ; 源项 S_{ϕ_i} ; 煤粉颗粒质量 m , kg; 导热系数, k , W/(m·K); 比热 c_p , J/(kg·K); 单位体积热流 q , J/(m·s); 密度 ρ , kg/m³; 扩散系数 D , m²/s; 焓 h , J/kg; 时间 t , s; 半径 r , m; 质量相对浓度 Y_i , kg/kg; 体积 Vol , m³; 下标: 气体 g ; 固体颗粒 s ; 辐射 rad ; 化学反应 $chem$; 火焰 f 。

表 1 中, 着火前:

$$Q_{rad} = \int_{r=r_f} q_{rad} dVol = 0 \quad (2)$$

着火后:

$$Q_{rad} = \int_{r=r_f} q_{rad} dVol = - [A_s \epsilon_s \sigma (T_f^4 - T_{s,R}^4) + A_f \epsilon_f \sigma (T_f^4 - T_w^4)] \quad (3)$$

$$Q_{chem} = \int q_{chem} dVol = \frac{dm_s}{dt} \Delta H_c \quad (4)$$

根据挥发分的析出量, 假定 HCN 在颗粒内部形成, 表达式如下:

$$S_{HCN} = \frac{2(dm/dt) f_N MW_{HCN}}{MW_{N_2} \Delta Vol} \quad (5)$$

煤粉颗粒通过对流换热和辐射换热进行加热:

$$Q_p = Q_{rad} + Q_{conv} \quad (6)$$

在着火前, 空气允许扩散至煤粉颗粒内部; 着火后, 空气中的氧只能扩散至火焰面, 在火焰面内氧量等于零。燃烧产物从颗粒内部向外逃逸, 在颗粒内部 $r = 0$ 处:

$$\frac{\partial Y_{O_2}}{\partial r} = \frac{\partial Y_{HCN}}{\partial r} = \frac{\partial Y_{NO}}{\partial r} = 0 \quad (7)$$

设煤粒初温为 373 K, HCN 和 NO 初始浓度为零, 颗粒内部空隙中气体初始压力为 1 个大气压。

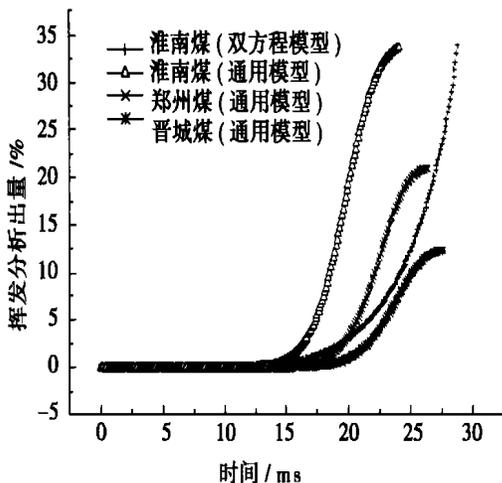


图 2 挥发分随时间析出的质量百分数对比

3 计算工况与煤质特性

将以上控制方程采用有限控制容积法来进行离散。在煤粉颗粒内部划分 50 个网格点, 在颗粒外部的的气体层划分 400 个网格点。选择淮南烟煤、郑州贫煤和晋城无烟煤进行了数值模拟和试验分析, 各煤质特性如表 2 所示。计算的标准工况为粒径 50 μm, 炉膛温度 1 573 K, 初始环境氧量为 21%。

各含氮组分的转化率定义为:

$$\eta_{HCN/NO} = \frac{\text{生成的 HCN (或 NO) 的质量}}{\text{所有燃料 N 转变成 HCN (或 NO) 的质量}} \quad (8)$$

总的 N 转化率定义为:

$$\eta_N = \eta_{HCN} + \eta_{NO} \quad (9)$$

表 2 煤质特性

煤种	工业分析 / %					元素分析 / %					发热量 / kJ·kg ⁻¹
	M _{ad}	A _{ad}	V _{ad}	FC _{ad}	C _{ad}	H _{ad}	O _{ad}	N _{ad}	S _{ad}		
淮南煤	0.69	29.65	25.45	44.21	60.74	3.82	3.62	1.13	0.35	24694.3	
郑州煤	0.56	23.65	14.11	61.68	67.00	3.86	1.30	0.72	2.91	27048.4	
晋城煤	0.52	22.16	7.32	70.00	68.98	3.02	1.09	0.43	3.80	26903.0	

4 计算结果与讨论

图 2 示出了不同煤种挥发分析出的质量百分数随时间的变化曲线。由图可见, 两种模型的挥发分析出质量的析出质量百分比差别比较大。应用通用热解模型对三种煤的热解过程进行模拟, 在挥发分析出结束时, 计算获得的挥发分析出量与煤的工业分析基本成正比, 随煤阶的升高, 挥发分开始析出的时间推后, 挥发分的析出也比较缓慢。图 3 是不同煤种煤粒的着火时间对比曲线。随着炉膛温度的升高, 煤粉颗粒的着火时间越短。煤粉颗粒挥发分含量越高, 着火时间越短。

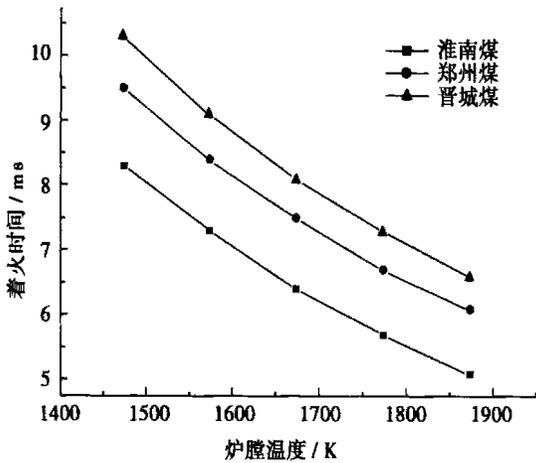


图 3 炉膛温度对着火时间的影响

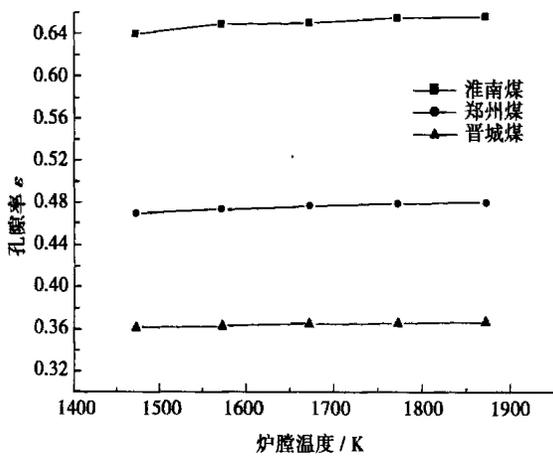


图 4 炉膛温度对孔隙率的影响

炉膛温度对颗粒的孔隙率影响较小, 如图 4 所示。但炉膛温度对 HCN、NO 转化率的影响很大。随炉温升高, NO 的转化率随之升高。由于煤中的 N

含量一定, 转化成 NO 的量越多, 相应地转化成 HCN 的量就越少, 因此图 5 中 HCN 的转化率随着炉温的升高而降低。图 6 示出了氧量对 HCN、NO 转化率的影响, 可见随着环境氧量的增加, 更多的 HCN 被氧化成 NO, 因此 NO 的转化率随环境氧量的增加而增加, 则 HCN 的转化率随着氧量的增加而降低。图 7 则示出了颗粒直径对 HCN 和 NO 转化率的影响。随着颗粒直径的增大, NO 的转化率也增大, 而对 HCN 转化率的影响, 先是增大, 大约在 200 μm, HCN 转化率又慢慢开始下降。

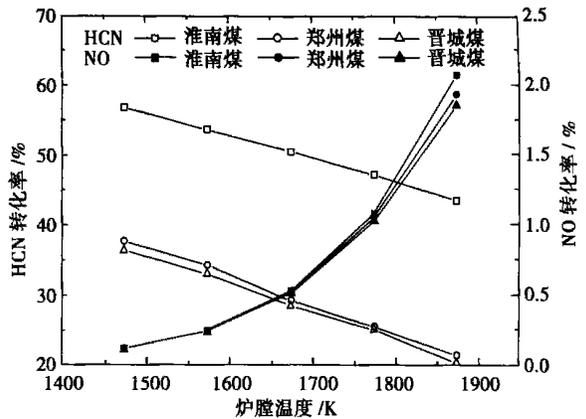


图 5 炉膛温度对 HCN、NO 转化率的影响

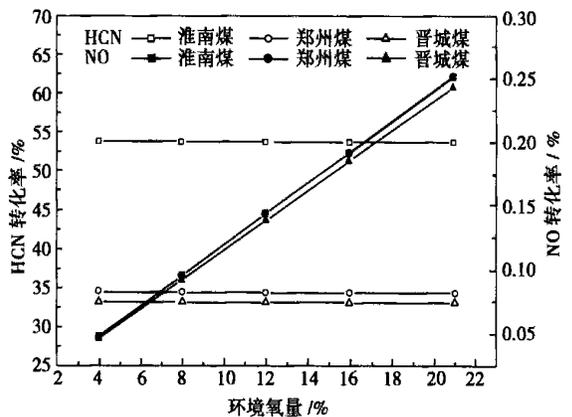


图 6 不同环境氧量下 HCN、NO 转化率对比

模型计算值与沉降炉实验获得 N 转化率对比见图 8。沉降炉试验时, 采用水冷探针沿程取样不同热解燃烧阶段的气体组分和固体颗粒, 测试气体成分以及颗粒元素分析以及颗粒孔隙率, 可获得任意热解燃烧时间的煤粒残留物的组成。由图 8 可知, 烟煤(淮南煤)由模型计算出的 N 转化率与实验值相差比较大, 从差值的大小来看, 通用热解模型的差值要比双方程模型的差值大。贫煤和无烟煤可采

用通用热解模型模拟, 获得的挥发分 N 转化率与实验值符合较好。

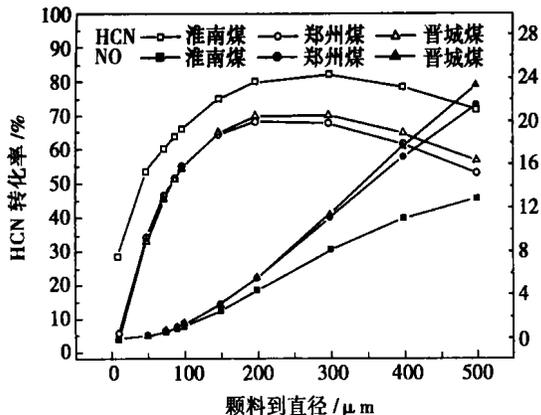


图 7 不同直径的煤粒 HCN、NO 转化率对比

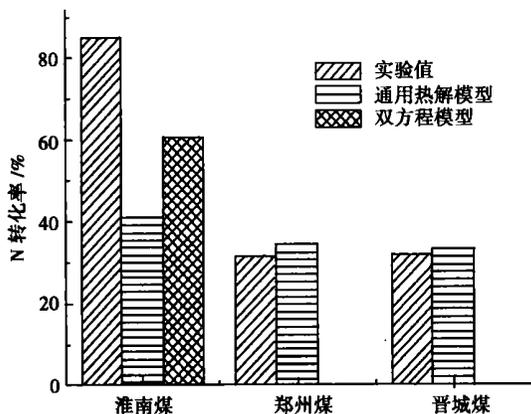


图 8 模型与实验 N 转化率的对比

热解、燃烧过程中挥发分氮的析出、中间含氮产物 HCN 的生成以及转变为 NO 的过程。利用有限体积方法对质量、化学组分、动量和热量守恒方程进行离散求解。计算获得了不同煤种的颗粒着火时间、热解过程、孔隙率、HCN 和 NO 生成率等数据。对煤种、炉温、环境氧量和煤粒直径等有关参数对挥发分氮转化过程的影响进行了定量分析。

参考文献:

- [1] IANS R P VAN DER, GLARBOR P, DAM-HOHANSEN K. Influence of process parameters on nitrogen oxide formation in pulverized coal burners [J] . *Progress in Energy and Combustion Science*, 1997, 23(4): 349-377.
- [2] MILLER JAMES A, BOWMAN CRAIG T. Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion[J] . *Progress in Energy and Combustion Science* 1989, 15(4): 287-338.
- [3] VISONA S P, STANMORE B R. Modeling NO_x release from a single coal particle I. Formation of NO from volatile nitrogen[J] . *Combustion and Flame* 1996, 105(1-2): 92-103.
- [4] KOBAYASHI H, HOWARD J B, SAROFIM A F. Coal devolatilization at High Temperatures[A] . In 16th Symposium (International) on Combustion[C] . Pittsburgh: The Combustion Institute, 1977. 411-425.
- [5] FU WEIBIAO, ZHANG YANGPING, HAN HONGQIAO. A general model of pulverized coal devolatilization [J] . *Fuel* 1989, 68(4): 505-510.
- [6] 茅建波. 沉降炉中不同煤种 NO_x 生成特性实验研究[D] . 浙江大学, 2001.
- [7] DE SOETEG G Overall reaction rates of NO and N₂ formation from fuel nitrogen[A] . In 15th Symposium International on Combustion [C] . Pittsburgh: The Combustion Institute, 1975. 1093-1102.

5 结 语

采用数值模型研究了不同煤化程度的三种煤的

(渠 源 编辑)

敬告读者和作者

21 世纪是信息时代, 热能动力工程杂志应在传播高新技术、专利产品等方面走在前列, 起到媒体宣传作用。

本刊从 2004 年起, 免费宣传新技术、新产品、学术会议、书讯各种技术简讯, 以期增加信息量, 为读者提供有价值的信息。

欢迎广大作者投稿。

——编辑部

of Bubble Physics & Natural Circulation under the Chinese Research and Design Institute of Nuclear Power Engineering, Chengdu, China, Post Code: 610041), SUN Qi, YANG Rui-chang (Thermal Power Engineering Department, Tsinghua University, Beijing, China, Post Code: 100084) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2004, 19(2). — 124 ~ 126, 174

Void fraction is one of the basic parameters in steam-liquid two-phase flows. To date, the study of methods for calculating subcooled-boiling void fraction mainly focused on high-mass flow rates. Moreover, a huge amount of technical literature now available on void fraction models is hardly suitable for low flow-rate subcooled-boiling operating conditions. Based on a theoretical model of NVG (net vapor generation) point in low flow-rate subcooled boiling the authors have developed a fitting model for calculating the distribution of subcooled-boiling void fraction. Within a relatively wide range of pressures, mass flow rates, heat flux density and flow path dimensions the results of model calculations are compared with the at present available void-fraction experimental data. Under low flow-rate operating conditions the data obtained from the model are in fairly good agreement with those of experiments. This shows that the model is well suited for low flow-rate subcooled-boiling operating conditions. **Key words:** two-phase flow, void fraction, subcooled boiling, net vapor generation

不同煤种挥发氮析出过程的数值模拟与试验研究 = **Numerical Simulation and Experimental Study of the Separation-release Process of Volatile Nitrogen from Various Sorts of Coal** [刊, 汉] / ZHOU Hao, WENG An-xin, CEN Ke-fa, FAN Jian-jun (Education Ministry Key Laboratory of Clean Utilization of Coal and Environmental Engineering under the Zhejiang University, Hangzhou, China, Post Code: 310027) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2004, 19(2). — 127 ~ 130

With the help of a numerical model a study was carried out regarding the following items. They include the separation-release of volatile nitrogen, the generation of intermediate nitrogen-containing product HCN and the process of the latter's transformation into NO. All the above took place in the course of pyrolysis and combustion of various types of coal, such as bituminous coal, lean coal and anthracite, etc. A finite volume method was utilized to perform a discrete solution for the equations of mass, chemical components, momentum and heat energy conservation. Through calculations a whole variety of data were obtained, such as the coal particle ignition time of various ranks of coal, pyrolysis process, porosity factor, HCN and NO formation rate, etc. In addition, the above data were also compared with the test results of a subsidence furnace followed by a pertinent analysis. **Key words:** pulverized coal, nitrogen fuel, numerical simulation

流化床密相区流动特性的数值模拟 = **Numerical Simulation of Flow Characteristics in the Dense-phase Zone of a Fluidized Bed** [刊, 汉] / XU Xiang, XIANG Wen-guo, QIN Chen-hu (Education Ministry Key Laboratory of Clean Coal Power Generation and Combustion Technology under the Southeastern University, Nanjing, China, Post Code: 210096) // Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. — 2004, 19(2). — 131 ~ 133

Gas-solid two-phase flows in a fluidized bed have always been a focused objective of experimental research and numerical simulation. Based on an Eulerian two-fluid model, the authors have set up a model for the gas-solid two-phase flow in a fluidized bed. By making use of FLUENT software a numerical simulation was conducted of the two-phase flow characteristics in the dense-phase zone of the fluidized bed, and the characteristic features of the generation, movement and explosion/cracking of in-bed gas bubbles. In the model a particle-phase is treated as continuous media. A mathematical model identical in form to the gas phase was established. By utilizing the dynamic theory of discrete media the concept of granular temperature was introduced to describe the viscous stress of a solid phase. Moreover, a gas-solid two-phase coupling