

The Effect of Different Pulverized Coal Diameter Ratio on the Emission Concentrations of CO and NO with Oxy-Fuel Combustion

Chaoqun Zhou, Yongchun Sun, Bao Zhang, Dianfu Liu*

School of Energy and Environment, Anhui University of Technology, Ma'anshan Anhui
Email: *dianfuliu@ahut.edu.cn

Received: Nov. 16th, 2018; accepted: Nov. 28th, 2018; published: Dec. 5th, 2018

Abstract

The pulverized coal combustion experiments were conducted in the lab-scale tube furnace. The real-time on-line measurement system was adopted to measure the CO and NO emission concentrations during the combustion processes. The effects of different pulverized coal particle diameter ratio on CO and NO concentrations were investigated. The experiment results showed that the peak value of CO concentration increased with the increase of the fine particle mass fraction. The increasing of the fine particle mass fraction scarcely affected the peak value of NO concentration. While the total NO emission value decreased with the increase of the fine particle mass fraction.

Keywords

Tube Furnace, Oxy-Fuel Combustion, CO and NO Emission

富氧燃烧不同煤粉粒径配比对CO、NO浓度影响

周超群, 孙雍春, 张保, 刘典福*

安徽工业大学, 能源与环境学院, 安徽 马鞍山
Email: *dianfuliu@ahut.edu.cn

收稿日期: 2018年11月16日; 录用日期: 2018年11月28日; 发布日期: 2018年12月5日

*通讯作者。

摘要

在实验室中采用管式炉进行不同直径煤粉颗粒的燃烧实验，通过在线实时测量燃烧过程中CO、NO排放浓度，研究富氧气氛下不同煤粉粒径对比对燃烧过程中CO、NO排放特性的影响。实验结果表明，随着煤粉中细颗粒质量分数增大，燃烧时CO峰值随着增大；细颗粒煤粉质量分数增加对NO峰值影响不大；NO总排放量随细颗粒煤粉质量分数增加而降低。

关键词

管式炉，富氧燃烧，CO和NO排放

Copyright © 2018 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

煤炭作为我国最基本的一次能源，主要通过燃烧方式加以利用，在其燃烧过程中会排放多种污染物。富氧燃烧技术使用O₂/CO₂作为助燃气体代替空气进行燃烧，能够有效降低燃烧过程中多种污染物的产生与排放。将燃烧后产生的烟气进行脱水处理，CO₂质量分数可达95%以上，能够达到CO₂富集、减排目的。同时，该技术还能够抑制NO_x排放及高效回收SO₂，从而引起各国研究者的广泛关注。Hu [1]在动态工况下研究富氧气氛中煤粉燃烧过程中NO_x的析出情况，研究结果发现随温度升高，NO_x排放量增加；富燃料区NO_x在高温和低温下排放处于相同水平。Yamada [2]在工业规模的试验炉上比较空气气氛和富氧气氛煤粉燃烧时NO_x的排放，结果表明富氧工况下NO_x排放量大大降低，仅为空气气氛下1/4左右。

煤粉经过细化处理后制得粒径≤20 μm的颗粒称为超细颗粒，超细颗粒与常规颗粒相比具有着火速度快、燃烧效率高、燃尽效果好、火焰稳定性好等特性，从而引起研究者广泛关注，并进行深入系统研究[3]-[12]。研究的重点集中在颗粒粒径、氧气浓度、矿物质成分和Ca、Mg、Na、K元素等因素对空气气氛和富氧气氛下超细颗粒的着火特性、燃尽特性、NO_x、SO₂、排放特性的影响，得到一些有用结论。而对于O₂/CO₂气氛下超细煤粉和常规煤粉的混合燃烧特性的研究当前还处于初级阶段，相关文献报道较少。为此，采用管式炉实验方法，对颗粒直径为16 μm和82 μm煤粉按照一定比例混合后的混合煤粉的燃烧特性进行燃烧实验，通过计算机在线实时测量煤粉燃烧过程中燃烧产物的浓度场，以探讨不同粒径对比对混合煤粉燃烧过程中NO、CO排放特性的影响。

2. 实验设备和方法

2.1. 实验设备

本实验采用管式电阻炉为HR-3A型，管式炉水平长600 mm，恒温区长度约为200 mm，整个实验系统示意图如图1所示，主要包括加热电炉、温度控制仪、石英管、烟气分析测量装置等。采用800 mm长石英管作为反应器，可在1100℃以下长期使用，短期使用温度可达1500℃。在使用时为了防止外界空气干扰，提高精度，在石英管的入口和出口处使用玻璃塞进行全封闭。实验中采用的测温仪器为双铂铑热电偶，该型热电偶抗氧化性强、热电性能稳定，可在氧化性气氛中连续使用，其最高使用温度为1800℃。

尾部烟气分析仪器使用德国公司生产的 testo 350PRO 型烟气分析仪, 可在线实时测量 NO_x 、 SO_2 、 CO 、 O_2 等气体组分含量, 精度较高, 所得测量结果由数据采集软件采集后直接输入计算机进行分析处理。

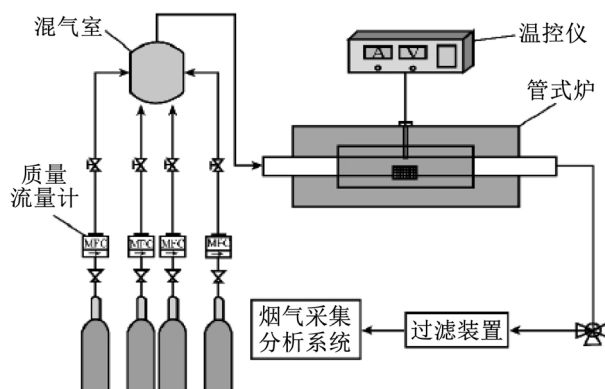


Figure 1. Experiment system diagram of tube furnace
图 1. 管式炉实验系统示意图

实验过程中, 来自高压气瓶的气体经减压阀和流量计后, 进入混气箱混合。混合之后的气体经过浮子流量计后进入石英管, 在石英管恒温区内与瓷舟中的煤粉发生燃烧反应, 反应后产生的烟气经过滤装置干燥过滤后进入烟气分析仪来分析测量。

2.2. 实验方法

实验时精确称量 1 g 煤粉作为实验燃料, 均匀平铺在经过灼烧后达到恒重的瓷舟中。作为反应煤样载体的瓷舟被置于石英管的恒温区域内, 每次试验都使用定位装置将瓷舟推入到石英管内的固定位置。试验过程中先将管式炉升温至设定温度, 等炉膛温度保持一段稳定时间后, 将装好煤粉的瓷舟迅速推入炉内恒温区, 之后封闭石英管使煤粉在炉内迅速升温着火燃烧。实验中送入石英管的气体体积流量为 6 L/min, 实验时间持续 10 min 左右, 选取的实验温度为 950℃ 和 1050℃。实验气氛设定为 21% O_2 /79% CO_2 , 两种粒径煤粉混合比例定为 16 μm 煤粉质量分数为 0%、30%、50%、70%、100% 五种工况。

2.3. 实验煤种

实验选用燃料为神华烟煤, 其性质分析如表 1 所示。

Table 1. The proximate analysis and ultimate analysis of coal
表 1. 煤的工业分析和元素分析

元素分析(%)					工业分析(%)			
C_{daf}	H_{daf}	O_{daf}	N_{daf}	S_{daf}	M_{ad}	A_{ad}	V_{ad}	FC_{ad}
75.89	5.07	17.60	1.11	0.33	12.26	4.31	25.84	57.59

3. 实验结果与讨论

图 2 所示为温度保持 950℃ 和 1050℃ 恒定时不同工况下测得 O_2 体积分数随时间的变化关系曲线。氧浓度的下降说明燃烧反应开始进行, 消耗一定量氧气, 一段时间之后 O_2 浓度恢复到稳定值则说明燃烧过程已经结束。煤粉被送入管式炉恒温区后, 煤粉颗粒在高温作用下, 迅速脱除水分, 之后挥发分快速析出并着火燃烧, 最后残余焦炭着火燃烧, 随着煤粉中挥发分和焦炭的迅速燃烧, 通入的 O_2 被大量消耗, 使得 O_2 体积分数快速下降, 很快达到 O_2 浓度最低点。然后随着煤粉的逐渐燃烧, O_2 的体积分数开始逐

渐回升, 经过一段时间之后恢复到一个稳定值。从图中可以看出不同温度对煤粉燃烧过程会产生一定的影响, 在 950℃ 工况时 O₂ 浓度最低点出现在 50 s 时, 最小值为 6.5%; 而在 1050℃ 时 O₂ 浓度的最低点则明显提前, 出现在 25 s 左右且最小值为 6.0% 左右, 说明炉温增加会使得 O₂ 浓度的最低点提前出现, 也意味着煤粉的着火燃烧时间提前, 这说明了提高炉温对于燃烧过程中煤粉的着火燃烧是非常有利的。

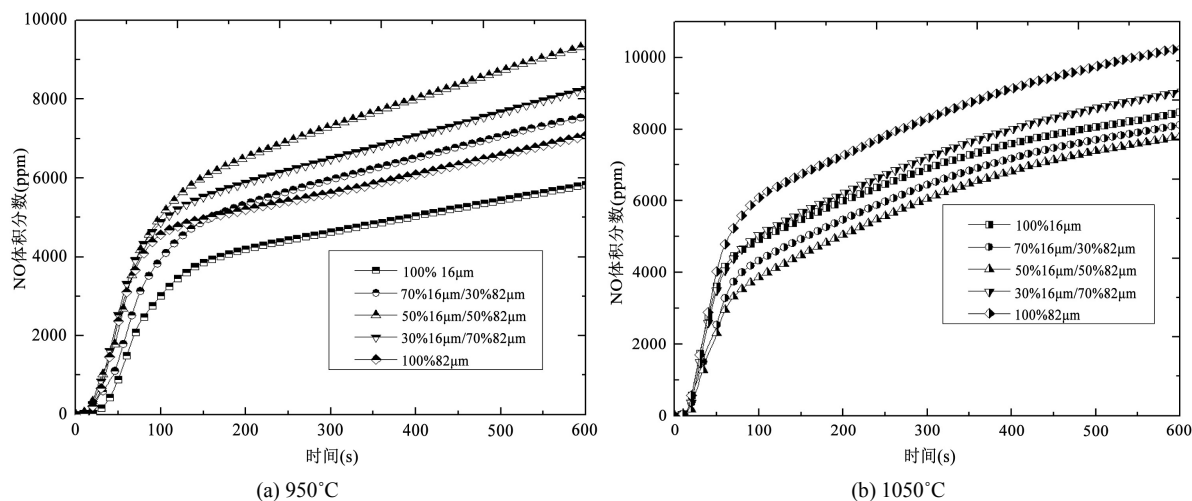


Figure 2. Cure of O₂ volume fraction versus time on 950°C and 1050°C

图 2. 950℃、1050℃时 O₂ 体积分数随时间变化曲线

温度保持 950℃ 和 1050℃ 恒定时不同工况下煤粉燃烧时烟气中 CO 浓度随时间的变化曲线如图 3 所示。由图中可以看出不同粒径煤粉燃烧时 CO 浓度都呈现先增加后减少最后达到稳定值的趋势。在两种温度下, 超细颗粒煤粉燃烧时 CO 的峰值均较混合煤粉的峰值要大, 并随着混合煤粉中粗颗粒质量分数增加, CO 峰值逐渐下降。产生这一现象的主要原因在于小粒径煤粉的加入使煤粉颗粒之间的间距减小, 密度增大, 反应比表面积也增大, 从而使煤粉着火温度降低, 燃烧提前, 燃烧强度加大, 造成 O₂ 消耗加剧, 形成低氧浓度区, 有利于 CO 的产生, 最终产生大量 CO。比较两种不同温度下 CO 峰值可看出, 低温时 CO 峰值为 20,000 ppm, 而高温仅为 12,000 ppm, 低温时的 CO 峰值明显高于高温时的, 主要原因是由于温度的升高, 使得煤粉受热速度加快, 挥发分析出及燃烧的完全程度均优于低温工况, 从而使得 CO 排放量在高温时低于低温工况。由此可见提高炉温有利于抑制 CO 的产生, 而小粒径煤粉颗粒的增加则对 CO 的生成是有利的。

图 4 为温度保持 950℃ 和 1050℃ 恒定时不同工况下 NO 浓度随时间变化。从图中可以看出 NO 的释放呈现出单峰现象, 煤粉刚开始燃烧时释放出来的 NO 量迅速增加, 并很快达到极值点, 之后则迅速下降。混合煤粉燃烧时 NO 的释放规律与粗颗粒煤粉(82 μm)燃烧时的规律基本一致, 而超细煤粉燃烧时 NO 的峰值要低于粗颗粒及混合煤粉的。这主要是由于煤粉粒径越小, 其堆积密度越大, 燃烧时产生的 CO 量更多, 形成还原性气氛更强, 大量 CO 的存在会使已经生成的 NO 发生还原反应, 从而导致 NO 的排放浓度变小。混合煤粉和 82 μm 煤粉由于粗颗粒煤粉加入而改善了煤粉颗粒之间的堆积密度, 相比超细煤粉, 煤粉完全燃烧程度增大, 产生的 CO 也变少, 对 NO 的还原反应随着减弱, 导致 NO 的产生量逐渐增加。从图中还可以看出炉温为 1050℃ 时 NO 的峰值比 950℃ 时要高, 并且峰值时间提前, 这主要原因在于炉膛温度的升高使煤粉燃烧更加剧烈, 煤粉内可燃物的剧烈燃烧使煤粉中氮的释放氧化提前, 燃料氮释放后氧化为 NO 的速率加快, 全部燃料氮释放所需时间大大缩短。同时对应炉温为 1050℃ 时的 CO 峰值明显低于 950℃ 时, 说明高温时 CO 对 NO 的还原作用要弱于低温时的, 这也是导致高温时 NO 排放

增加的原因之一。

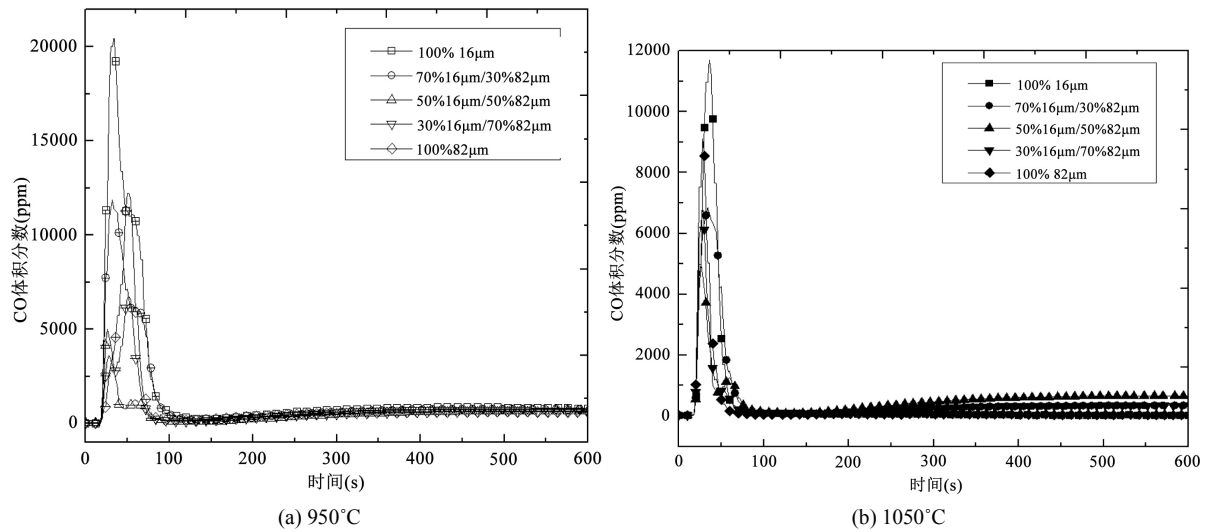


Figure 3. Cure of CO volume fraction versus time on 950°C and 1050°C

图 3. 950°C、1050°C时 CO 的体积分数随时间变化曲线

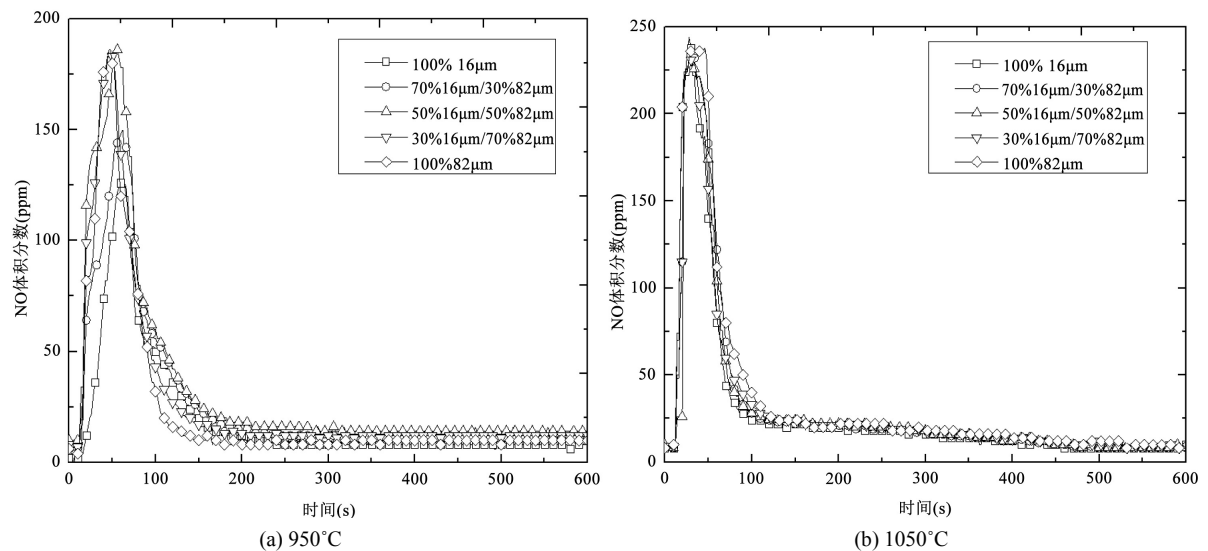


Figure 4. Cure of NO volume fraction versus time on 950°C and 1050°C

图 4. 950°C、1050°C时 NO 的体积分数随时间变化曲线

温度保持 950°C、1050°C 时不同工况下煤粉燃烧 NO 累积排放量如图 5 所示。从图中可以看出在较低温度(950°C)工况下,在 0~100 s 内,NO 生成量急剧增加,200 s 之后则增长放缓,并且混合煤粉 NO 的释放量比超细煤粉得要多,82 μm 煤粉产生的 NO 较少,超细煤粉产生的累计 NO 量最少。产生这种现象的主要原因在于超细煤粉在燃烧过程中会产生大量还原性气体 CO 使得 NO 发生还原反应,从而降低了 NO 的生成量。而大颗粒煤粉由于颗粒堆积密度较小,在燃烧初期会产生大量 CO,加上焦炭的异相还原 NO 反应,使得 82 μm 煤粉 NO 的生成量要小于混合煤粉。在温度较高工况时,大颗粒直径煤粉燃烧时 NO 释放量最大,而煤粉中 16 μm 煤粉质量分数为 50% 时,NO 累积排放量最小。在煤粉燃烧初期,由于温度较高,挥发分析出速度较快,燃料中挥发分氮转化为 NO 的速度也较快,随着煤中挥发分的耗

尽, NO 来源主要是焦炭氮的转换, 由于焦炭的异相反应速度较慢, 因此 NO 的产生速度也逐渐变慢。超细煤粉的存在促进了混合煤粉燃烧时 NO 向 N_2 的转化, 有效改善了煤粉的燃烧性能, 温度的升高使煤粉中的挥发分析出时间缩短, 析出量增加, 加强了 NO 还原, 最终降低 NO 的生成。这说明混合煤粉中超细煤粉质量分数并非越大越好, 本实验所采用煤种在 1050°C 工况时超细煤粉质量分数约为 50% 降低 NO 最佳, 对其他煤种则应在不同工况下视具体情况具体分析。

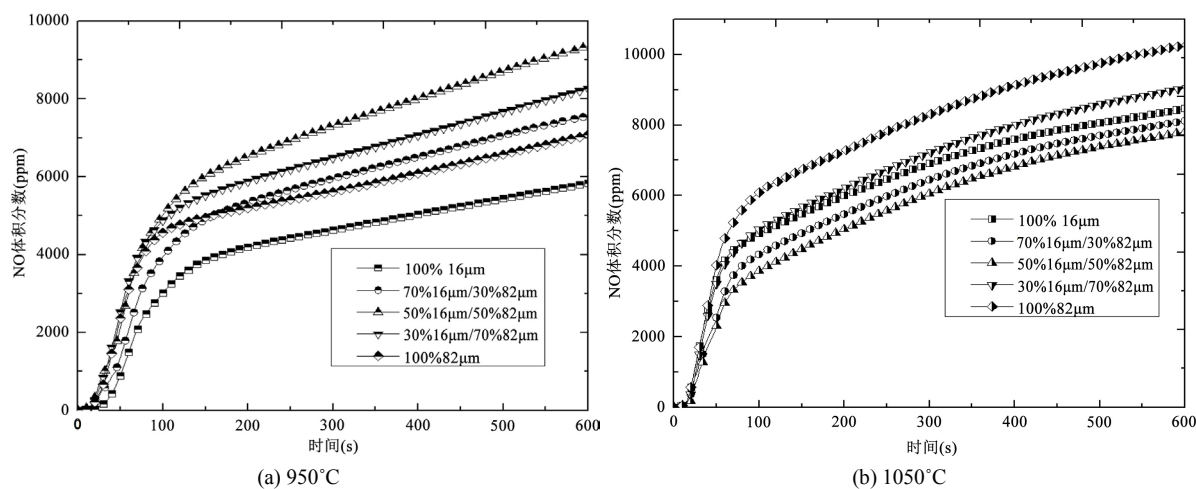


Figure 5. Cumulative emission of NO on 950°C and 1050°C
图 5. 950°C 、 1050°C 时 NO 累积排放量

4. 结论

通过以上分析讨论, 可以得出以下结论:

- 1) 粒径大小对煤粉燃烧过程中 CO、NO 的生成有较大影响, 煤粉中超细颗粒质量分数越大, 燃烧时 CO 的峰值越大, 随着煤粉中超细煤粉质量分数的增加, NO 的累积释放量降低, 温度增加时, 超细煤粉降低 NO 排放的效果明显。
- 2) O_2/CO_2 气氛下煤粉燃烧时温度对 NO 的产生影响较大, NO 的累积生成量在高温时要高于低温时, 炉膛温度较高时, 燃料氮的转化率会升高, 使 NO 累积量高于低温时。

基金项目

科技部国家重点研发计划资助项目(2016YFB0601503)。

参考文献

- [1] Hu, Y.Q., Kobayashi, N. and Hasatani, M. (2001) The Reduction of Recycled-NO in Coal Combustion with O_2 /Recycled Flue Gas under Low Recycled Ratio. *Fuel*, **80**, 1851-1855. [https://doi.org/10.1016/S0016-2361\(01\)00048-5](https://doi.org/10.1016/S0016-2361(01)00048-5)
- [2] Yamada, T., Kiga, T., Okaua, M., et al. (1998) Characteristics of Pulverized Coal Combustion in CO_2 Recovery Power Plant Applied O_2/CO_2 . *JSME International Journal*, **41**, 1017-1022. <https://doi.org/10.1299/jsmeb.41.1017>
- [3] Alvarez, L., Gharebaghi, M., Jones, J.M., et al. (2013) CFD Modeling of Oxy-Coal Combustion: Prediction of Burnout, Volatile and NO Precursors Release. *Applied Energy*, **104**, 653-665. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2012.11.058>
- [4] Mackrory, A.J. and Tree, D.R. (2012) Measurement of Nitrogen Evolution in a Staged Oxy-Combustion Coal Flame. *Fuel*, **93**, 298-304. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2011.10.039>

- [5] 马标, 顾明言, 楚化强, 等. O₂/CO₂ 气氛超细煤粉与常规粒径煤粉混合燃烧特性[J]. 安徽工业大学学报(自然科学版), 2013, 30(4): 356-360.
- [6] 黄庠永, 刘加勋, 姜秀民. O₂/CO₂ 气氛中超细煤粉着火特性[J]. 中国电机工程学报, 2010, 30(11): 50-56.
- [7] 魏砾宏, 李润东, 李爱民, 等. 超细煤粉着火特性的热重分析[J]. 煤炭学报, 2008, 33(11): 1292-1295.
- [8] 姜秀民, 魏砾宏, 黄庠勇, 等. 超细煤粉在氧化条件下 NO_x 的释放特性实验研究[J]. 环境科学, 2008, 29(3): 583-586.
- [9] 魏砾宏, 姜秀民, 李爱民, 等. 矿物成分对超细化煤粉燃烧特性影响的实验研究[J]. 中国电机工程学报, 2007, 27(8): 5-10.
- [10] 魏砾宏, 姜秀民, 李爱民. 矿物成分对超细化煤粉燃烧硫转化影响的实验研究[J]. 环境科学, 2006, 27(9): 1722-1726.
- [11] 魏砾宏, 姜秀民, 杨天华, 等. 矿物成分对超细化煤粉燃烧过程中氮转化的影响[J]. 环境科学学报, 2006, 26(11): 1780-1784.
- [12] 金晶, 张忠孝, 李瑞阳, 等. 超细煤粉燃烧氮氧化物释放特性的研究[J]. 动力工程, 2004, 24(5): 716-721.

知网检索的两种方式:

1. 打开知网页面 <http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD>
下拉列表框选择: [ISSN], 输入期刊 ISSN: 2334-332X, 即可查询
2. 打开知网首页 <http://cnki.net/>
左侧“国际文献总库”进入, 输入文章标题, 即可查询

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: cce@hanspub.org