

研究论文

串行流化床内气固流动控制

吴家桦, 沈来宏, 肖 军, 卢海勇

(东南大学洁净煤发电及燃烧技术教育部重点实验室, 江苏 南京 210096)

摘要: 针对化学链燃烧分离 CO₂ 技术特点, 在一串行流化床 (循环床+喷动床) 冷态实验装置上, 以 CaSO₄ 载氧体为实验原料 ($d_p = 0.6$ mm), 研究串行流化床气固流动特性。基于床内压力分布特征, 提出将循环床 (空气反应器) 沿床高方向划分为鼓泡段和快速流化段 2 个流型区域, 将喷动床 (燃料反应器) 沿床高方向划分为喷动段、鼓泡段和悬浮段 3 个流型区域, 得出串行流化床内气固流动控制机理。研究并考察了循环床流化风速度、喷动床喷动风速度对串行流化床内反应器间 (空气反应器和燃料反应器) 气体串混、颗粒循环速率以及床层压降的影响。研究结果表明, 流化风是床内颗粒循环的驱动力, 流化风速度应控制在 $3.77 \sim 4.05$ m · s⁻¹; 喷动风速度对床内颗粒循环以及系统稳定运行起着关键作用, 建议将喷动风速度控制在 $0.42 \sim 0.56$ m · s⁻¹。

关键词: 串行流化床; 流化速度; 气体串混; 颗粒循环速率

中图分类号: TQ 052

文献标识码: A

文章编号: 0438-1157 (2007) 11-2753-06

Hydrodynamics of interconnected fluidized beds for chemical-looping combustion

WU Jiahua, SHEN Laihong, XIAO Jun, LU Haiyong

(Key Laboratory of Clean Coal Power Generation and Combustion Technology of Ministry of Education, Southeast University, Nanjing 210096, Jiangsu, China)

Abstract: The hydrodynamics of an interconnected fluidized bed (circulating bed and spouted bed) with CaSO₄ oxygen carriers ($d_p = 0.6$ mm) was investigated experimentally. Based on vertical pressure distribution, two zones of different flow regimes (bubbling zone and fast fluidization zone) in the circulating bed (air reactor) and three zones of different flow regimes (spouting zone, bubbling zone, and freeboard) in the spouted bed (fuel reactor) were found to exist. The effects of fluidizing and spouting gas velocities on gas leakage, solids circulating rate and pressure drop were studied. On the basis of experiments, reasonable operation parameters were recommended, which can be used as a reference for further study.

Key words: interconnected fluidized bed; fluidizing velocity; gas leakage; solids circulating rate

引 言

化学链燃烧 (chemical-looping combustion,

CLC) 作为一种崭新的燃烧理念^[1-3], 其原理是以载氧体在两个反应器 (空气反应器和燃料反应器) 之间的循环交替反应来实现燃料的燃烧过程; 在一

2007-01-24 收到初稿, 2007-04-23 收到修改稿。

联系人: 沈来宏。第一作者: 吴家桦 (1983—), 男, 博士研究生。

基金项目: 国家自然科学基金项目 (20590367、90610016、50376010); 国家重点基础研究发展计划项目 (2006CB20030201); 国家高技术研究发展计划项目 (2006AA05Z318); 江苏省自然科学基金项目 (BK2005204)。

Received date: 2007-01-24.

Corresponding author: Dr. SHEN Laihong. **E-mail:** Lhshen@seu.edu.cn

Foundation item: supported by the National Natural Science Foundation of China (20590367, 90610016, 50376010), the National Basic Research Program of China (2006CB20030201), and the High-tech Research and Development Program of China (2006AA05Z318).

定的温度下，载氧体在空气中进行氧化反应，将空气中的氧置换出来，然后与燃料进行还原反应，气相反应产物只有 CO_2 和 H_2O （汽），凝结出水，得到高纯 CO_2 。另外，由于燃料不直接与空气接触，没有 NO_x 产生，且整个过程释放的总热量与燃料和氧气直接燃烧的放热量相同。因此，化学链燃烧可在没有额外能耗的前提下，将 CO_2 从燃烧产物中分离出来，同时消除其他污染物的生成排放（如 NO_x 、 SO_x 等），是一种绿色燃烧方式。

根据化学链燃烧原理，本文提出一种基于 CaSO_4 载氧体的煤化学链燃烧分离 CO_2 方法^[4]，其原理如图 1 所示。将煤和水蒸气送入高温燃料反应器（fuel reactor）内，进行还原态下水煤气反应，同时水煤气产物（ H_2 、 CO ）与 CaSO_4 进行还原反应，气相反应产物只有 CO_2 和 H_2O （汽），凝结后得到纯净的 CO_2 ； CaSO_4 被还原成 CaS 后，进入空气反应器（air reactor），与空气接触进行氧化反应，完成硫酸钙的再生过程，即载氧过程。

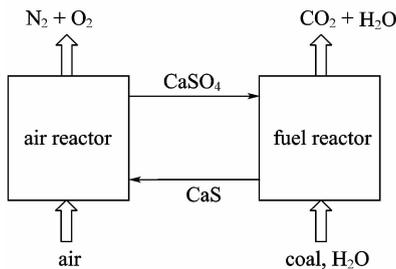


图 1 基于 CaSO_4 煤化学链燃烧原理图
Fig.1 Chemical-looping combustion of coal with CaSO_4 oxygen carrier

如何实施化学链燃烧，是实现 CO_2 从燃烧产物中分离的关键，其技术有着更为广泛的社会效益和工业应用前景。串行流化床是在循环流化床技术^[5-7]基础上发展起来的一种新型气固反应装置，是目前世界上公认的、实施化学链燃烧的最佳反应器^[8]。本文提出的串行流化床由循环床（空气反应器）、旋风分离器以及喷动床（燃料反应器）串联组成（见图 2），与瑞典 Chalmers 大学现有串行流化床^[9]相比，结构更为简单，燃料反应器由鼓泡流化床向喷动床的转变使得反应器内固体颗粒混合更加迅速，返料装置的简化降低了颗粒循环阻力，使得固体颗粒可以像流体一样在两个反应器之间循环流动，易于化学链燃烧过程的组织和控制。

目前，国外对串行流化床的研究多集中在床内反应器间气体串混以及颗粒循环速率等方面^[10-14]；

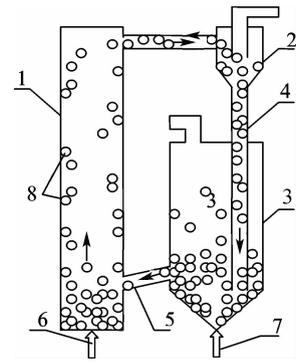


图 2 串行流化床示意图

Fig.2 Interconnected fluidized beds

- 1—riser (air reactor); 2—cyclone;
- 3—spouted bed (fuel reactor); 4—downcomer;
- 5—orifice; 6—fluidizing gas;
- 7—spouting gas; 8—oxygen carriers

国内对该技术的研究尚未开展。本文建立了串行流化床冷态实验研究装置、多路差压信号采集以及数据处理系统，以 CaSO_4 载氧体为实验原料（ $d_p = 0.6 \text{ mm}$ ），对串行流化床的宏观流体动力学规律进行了研究，探讨了多种操作参数对串行流化床气固流动特性的影响，研究成果为下一步热态实验研究提供了理论依据和参考数据，对串行流化床的认识与发展具有重要的意义。

1 实验系统

实验装置如图 3 所示，整个装置由串行流化床本体、测试系统和除尘装置组成。为便于观察床内的流动特性，串行流化床由厚度 10 mm 的有机玻璃制成，循环床内径 $\phi 81 \text{ mm}$ 、高 1600 mm，底部布风板上安装有 18 个防漏风帽，沿风帽四周开有 4 个 $\phi 3 \text{ mm}$ 小孔，开孔率 1.0%；喷动床内径 $\phi 160 \text{ mm}$ 、高 1325 mm，喷嘴内径 $\phi 32 \text{ mm}$ 、夹角 60° 。

实验过程以空气为流化介质。在循环床中心轴线上距布风板 72、320、1200、1350 mm 位置处的壁面分别开有 4 个测压孔，分别对应床层压力测点 $P_1 \sim P_4$ ；在喷动床中心轴线上距喷口 80、280、450、630、875、1169 mm 位置处的壁面分别开有 6 个测压孔，分别对应床层压力测点 $P_{10} \sim P_5$ 。压力信号引入量程为 $-10 \sim 10 \text{ kPa}$ 的 10 通道差压变送器，经 A/D 转换后由计算机采集。实验工况参数见表 1，其中最大喷动床高 H_m 按经验公式^[15]计算，流化风速度 U_f 、喷动风速度 U_s 均是按床层截面计算。

表 1 实验工况参数
Table 1 Experimental data

Particle	ρ_p /kg · m ⁻³	d_p /mm	Q /kg	H_{co} /mm	H_{so} /mm	H_m /mm	T /°C	U_f /m · s ⁻¹	U_s /m · s ⁻¹
CaSO ₄	2960	0.6	19	310	600	380	25	2.7—4.85	0.25—0.63

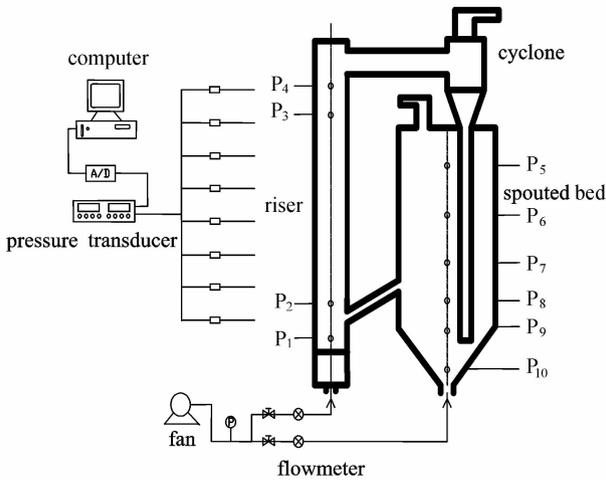


图 3 串行流化床实验装置示意图

Fig. 3 Schematic diagram of experimental system

本文采用压力信号与快速摄像图像分析相结合的方法，系统地考察了循环床流化风速度、喷动床喷动风速度对串行流化床内反应器间气体串混、颗粒循环速率以及床层压降的影响。

2 结果与讨论

2.1 串行流化床内压力分布特征与流型划分

压力沿床高分布是反映床内气固流动特性的主要参数之一，其特征是建立串行流化床气固流动模型的依据。图 4 (a) 和图 4 (b) 分别为本文各种典型工况条件下循环床和喷动床内压力均值沿床高分布曲线，图 5 (a) 和图 5 (b) 分别为循环床和喷动床流型示意图。基于床内压力分布特征和图像分析，本文将循环床沿床高方向划分为鼓泡段和快速流化段 2 个特征区域，将喷动床沿床高方向划分为喷动段、鼓泡段和悬浮段 3 个特征区域。

在循环床内，密相区大致位于测点 P₁、P₂ 之间，其气固流动状态具有鼓泡流态化或湍动流化态的特征；密相区上面为稀相区，在此区域内颗粒呈中心向上和边壁向下的环核流动，表现出明显的快速流化态特征。

在喷动床内，喷动段位于底部倒锥形区域，包括由中心喷嘴出口至射流顶端这一区间，根据喷动

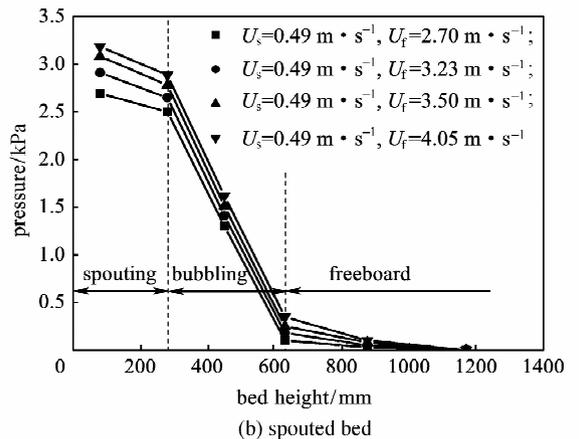
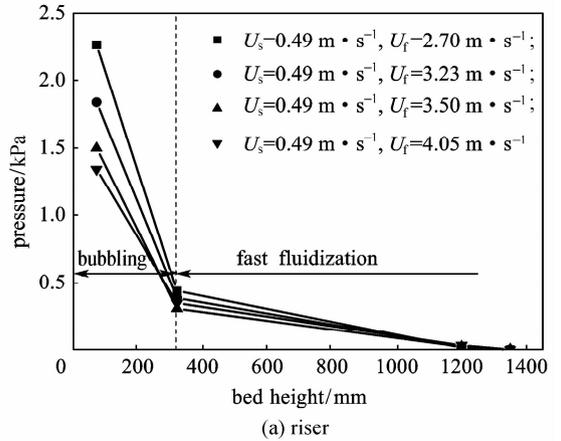


图 4 循环床和喷动床内压力沿床高分布

Fig. 4 Vertical pressure gradient in riser and spouted bed

床理论，又可将其分为中心射流区和周边环隙区，环隙区不存在气泡，颗粒平稳向下运动，由中心射流区渗入的气体向上流动，表现出移动床的特征。当喷动风以一定速度通过中心喷嘴进入床层形成射流，射流气体的初始速度较高，它将卷吸周边颗粒向上运动，颗粒与射流气体进行动量交换，使得射流气体速度逐渐降低，射流逐渐膨胀；当射流发展到一定高度时，射流发生收缩，在末端蜕变成气泡并与主流分离，形成的气泡向上穿过密相床层（即鼓泡段），进入自由空域（即悬浮段）。产生这一现象的原因是：小颗粒喷动床在静止床高 H_{so} 高于最大喷动床高 H_m 时，会由于喷射区顶部产生气泡而

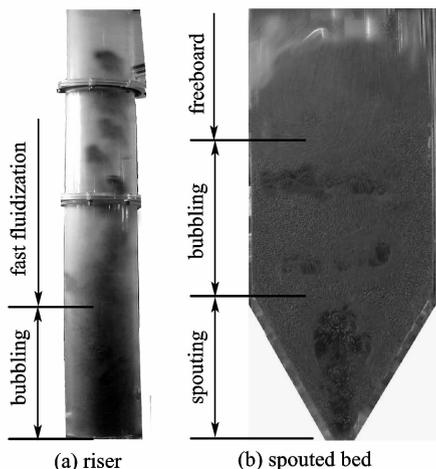


图 5 循环床和喷动床流型示意图

Fig. 5 Fluidization regimes of riser and spouted bed

中止喷动, 显性喷泉也随之消失, 此时, 无论如何调节喷动风风速都无法形成典型的喷动床流型^[15]。另外, 喷动床鼓泡段的存在使得中心射流不能穿透床层, 气体在床内的停留时间延长, 有利于气固反应的进行。

2.2 流化速度对串行流化床反应器间气体串混的影响

在燃煤串行流化床化学链燃烧分离 CO₂ 过程中, 若气体由喷动床(燃料反应器)经返料管混入循环床(空气反应器), 混入循环床的燃料气体(如水煤气产物 H₂、CO 等)会与空气进行氧化反应, 生成 CO₂ 和 H₂O(汽), 本文将其定义为气体正向串混; 若气体以相反方向由循环床经返料管混入喷动床, 混入的 N₂ 使得喷动床内 CO₂ 浓度下降, 本文将其定义为气体逆向串混。过高的气体串混量使得 CO₂ 分离效率降低、收集成本提高, 尤其在发生气体逆向串混时, 返料管内部流场被破坏, 喷动床内颗粒无法正常返回循环床, 从而影响床内颗粒循环以及整个系统稳定运行。因此, 必须对反应器间的气体串混量进行严格控制, 并有效阻止气体逆向串混发生。本文以床内 P₇、P₂ 两点之间的压差 Δp₇₂ 来表征气体串混量的大小, 并以压差 Δp₇₂ 的正、负来分别表示气体正向串混与气体逆向串混。

图 6 为在喷动风速度 U_s 固定的条件下, 流化风速度 U_f 与压差 Δp₇₂ 关系曲线。当 U_s = 0.35 m · s⁻¹ 时, 加入流化风后, 压差 Δp₇₂ 急剧减小, 而且很快转变为负值, 即在该工况条件下, 反应器间极易发生气体逆向串混; 此时, 若继续增加流化风速

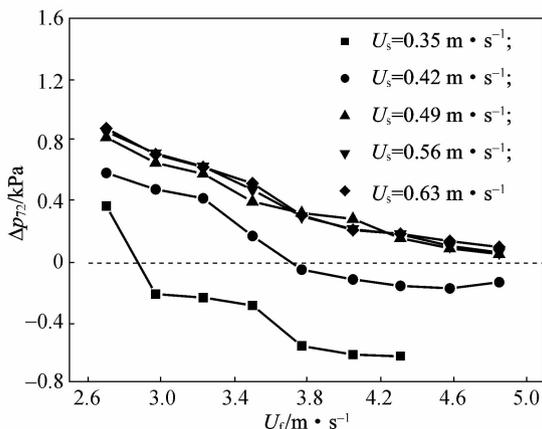


图 6 流化速度对串行流化床反应器间气体串混的影响

Fig. 6 Effect of gas velocities on gas leakage

U_f, 气体逆向串混量还会进一步加大。当 U_s = 0.42 m · s⁻¹ 时, 随着流化风速度 U_f 的增加, 反应器间气体逐渐由正向串混向逆向串混转变 (Δp₇₂ = 0 时, U_f = 3.77 m · s⁻¹)。当 U_s > 0.42 m · s⁻¹ 时, 压差 Δp₇₂ 随着流化风速度 U_f 的增加而逐渐减小, 气体正向串混量也逐渐降低, 此时, 反应器间不易发生气体逆向串混。因此, 为防止气体逆向串混发生, 喷动风速度 U_s 必须大于 0.42 m · s⁻¹, 在此基础上, 适当地增加流化风速度有利于气体正向串混量的控制。

2.3 流化速度对串行流化床反应器间颗粒循环速率的影响

有效控制与调节颗粒循环速率是实现串行流化床稳定操作的关键。在化学链燃烧过程中, 颗粒循环速率是由燃料反应器所需氧量和热量来决定的; 在串行流化床中, 颗粒循环速率与气体速度、物料特性以及循环床的几何结构等因素相关。本文通过改变流化风与喷动风速度来实现对颗粒循环速率的调节, 颗粒循环速率的大小可用 Johansson 等^[11] 给出的经验公式计算

$$G_s = \rho_{\text{exit}}(u - u_t) = -\frac{1}{g} \left(\frac{dp}{dh} \right)_{\text{exit}} (u - 0.25) \quad (1)$$

式中 G_s 为颗粒循环速率, kg · m⁻² · s⁻¹; ρ_{exit} 为循环床出口处颗粒浓度, kg · m⁻³; u 为气体表观速度, m · s⁻¹; u_t 为颗粒的终端速度, m · s⁻¹; (dp/dh)_{exit} 为循环床出口处压力梯度, kPa · m⁻¹。

在喷动风速度 U_s 固定的条件下, 颗粒循环速率 G_s 随流化风速度 U_f 的变化关系如图 7 所示。U_s < 0.56 m · s⁻¹ 时, 颗粒循环速率随着流化风速度 U_f 的增加而逐渐加大, 这是循环流化床的经典

现象^[15]，表明流化风是床内颗粒循环的驱动力；但值得注意的是：当 $U_s \leq 0.42 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，颗粒循环速率随着流化风速度 U_f 的增长量相当低，增长速度也相当慢；当 $U_s = 0.49 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，一旦流化风速度 U_f 超过 $4.05 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ，颗粒循环速率急剧降低。 $U_s \geq 0.56 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，颗粒循环速率随流化风速度 U_f 缓慢增加，但与 $U_s = 0.49 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 所对应的颗粒循环速率相比明显偏低。

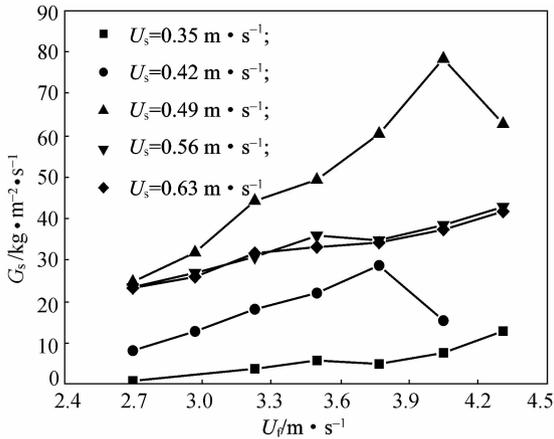


图 7 流化速度对串行流化床反应器间颗粒循环速率的影响

Fig. 7 Effect of gas velocities on solid circulating rate

分析其原因：当 $U_s = 0.35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，喷动床尚处于固定床阶段，床层处于静止流化状态，此时的喷动床无法将床料送回循环床；当 $U_s = 0.42 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，一旦流化风速度 U_f 超过 $3.77 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ，反应器间发生气体逆向串混（图 6），返料管内部流场被破坏，喷动床内颗粒无法正常返回循环床，导致循环床内床料量急剧减少 [图 8 (a)]，颗粒循环速率急剧降低；当 $U_s = 0.49 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，一旦流化风速度 U_f 超过 $4.05 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ，循环床内会有大量的颗粒被流化风带出，经旋风分离器分离后进入喷动床，而此时由喷动床返回的物料不足以平衡循环床床料的消耗，结果使得循环床内床料量急剧减少 [图 8 (a)]，颗粒循环速率急剧降低；当 $U_s \geq 0.56 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，过高的喷动风速度使得喷动床内颗粒与气流进入料腿而破坏旋风分离器内部流场，导致旋风分离器分离效率降低，少量的床料颗粒被气流直接带出床体；另外，根据本文实验观察和图像分析，此时在喷动床侧返料管附近（即鼓泡段），不断有大气泡产生，这也阻碍了喷动床内颗粒返回循环床。

可见，喷动风速度对串行流化床内颗粒循环起着非常关键的作用。为获得足够的颗粒循环量以及防止气体逆向串混发生，喷动风速度 U_s 应控制在 $0.42 \sim 0.56 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ，流化风速度 U_f 应小于 $4.05 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

2.4 流化速度对串行流化床床层压降的影响

床层压降是流态化床型设计与操作的重要参数，通过测量循环床与喷动床的床层压降可以分析串行流化床内物料运动情况。

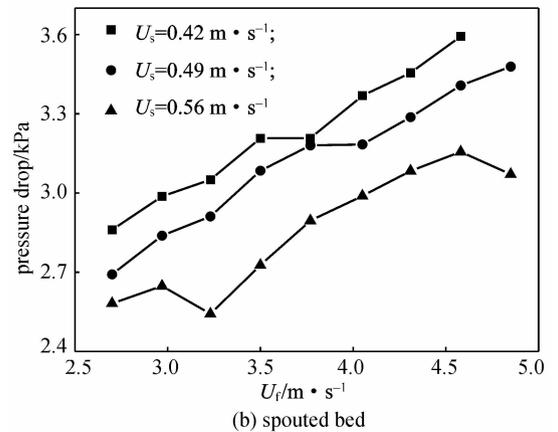
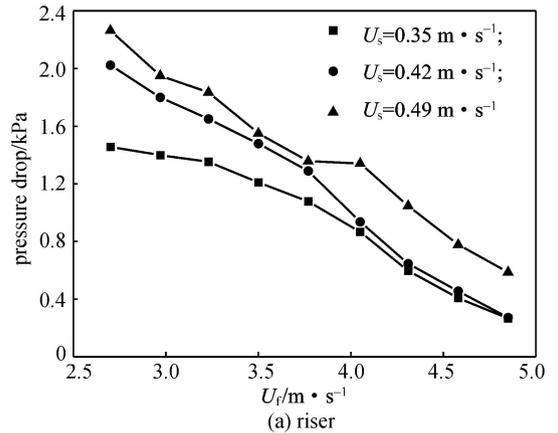


图 8 流化速度对循环床和喷动床床层压降的影响

Fig. 8 Effect of gas velocities on pressure drop

图 8 (a) 与图 8 (b) 分别为在喷动风速度 U_s 固定的条件下，流化风速度 U_f 与循环床和喷动床床层压降关系曲线。随着流化风速度 U_f 的增加，循环床床层压降逐渐降低，喷动床床层压降逐渐升高；在相同流化风速度 U_f 的条件下，增加喷动风速度 U_s ，循环床床层压降会升高，喷动床床层压降会降低，这些现象都是由串行流化床内物料运动所引起的（图 2）。当 $U_s = 0.49 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ， $U_f = 3.77 \sim 4.05 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，流化风与喷动风速度达到了良好的匹配关系，串行流化床内形成了足够的颗

粒循环量, 循环床与喷动床床层压降 (即床层料量) 均达到稳定平衡值; 当 $U_s = 0.56 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 喷动床床层变得极不稳定, 床内不断有大气泡产生, 气体在床内停留时间变短, 不利于气固反应的进行。因此, 为保持系统稳定运行, 喷动风速度必须小于 $0.56 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

3 结 论

(1) 本文采用床内压力信号, 研究串行流化床气固流动特性。基于床内压力分布特征, 提出将循环床 (空气反应器) 沿床高方向划分为鼓泡段和快速流化段 2 个流型区域, 将喷动床 (燃料反应器) 沿床高方向划分为喷动段、鼓泡段和悬浮段 3 个流型区域。

(2) 考察了循环床流化风、喷动床喷动风速度对串行流化床内反应器之间气体串混、颗粒循环速率以及床层压降的影响, 研究结果表明, 流化风是床内颗粒循环的驱动力, 应将流化风速度控制在 $3.77 \sim 4.05 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$; 喷动风速度对床层稳定运行以及床内颗粒循环起着非常关键的作用, 建议喷动风速度控制在 $0.42 \sim 0.56 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

符 号 说 明

d_p ——颗粒粒径, mm

H_{co} , H_{so} ——分别为循环床、喷动床的静止床高, mm

H_m ——最大喷动床高, mm

Δp_{72} ——床内测点 P_7 与 P_2 之间的压差, kPa

Q ——床料量, kg

T ——环境温度, $^{\circ}\text{C}$

U_t , U_s ——分别为循环床流化风、喷动床喷动风速度, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$

ρ_b ——床料密度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$

References

- [1] Richter H, Knoche K. Reversibility of combustion processes. *ACS Symposium Series*, 1983, **235**: 71-86
- [2] Ishida M, Yamamoto M, Ohba Y. Experimental results of chemical-looping combustion with $\text{NiO}/\text{NiAl}_2\text{O}_4$ particle circulation at 1200°C . *Energy Conversion and Management*, 2002, **43** (9/10/11/12): 1469-1478
- [3] Cho P, Mattisson T, Lyngfelt A. Comparison of iron-, nickel-, copper- and manganese-based oxygen carrier for chemical-looping combustion. *Fuel*, 2004, **83**: 1215-1225
- [4] Shen Laihong (沈来宏). Chemical looping combustion of coal based on CaSO_4 oxygen carrier with inherent separation of CO_2 : CN, 200510040519.3. 2005
- [5] Liu Yang (刘阳), Lu Huilin (陆慧林), Liu Wentie (刘文铁), Zhao Yunhua (赵云华). Model and simulation of gas-solids flow with wide size distributions in circulating fluidized beds. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2003, **54** (8): 1065-1072
- [6] Luo Zhongyang (骆仲泱), Wu Xuecheng (吴学成), Wang Qinhui (王勤辉), Gao Qiong (高琼), Fang Mengxiang (方梦祥), Cen Kefa (岑可法). Particle rotation characteristics in CFB riser. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2005, **56** (10): 1869-1875
- [7] Chen Hengzhi (陈恒志), Li Hongzhong (李洪钟). Hydrodynamics in high-density downer reactor. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2005, **56** (3): 455-462
- [8] Snieders F F, Hoffmann A C, Chessman D, Yates J G, Stein M, Seville J P K. The dynamics of large particles in a four-compartment interconnected fluidized bed. *Powder Technology*, 1999, **101** (3): 229-239
- [9] Johansson E, Lyngfelt A, Mattisson T, Johnsson F. Gas leakage measurements in a cold model of an interconnected fluidized bed for chemical-looping combustion. *Powder Technology*, 2003, **134**: 210-217
- [10] Anders Lyngfelt, Bo Leckner, Tobias Mattisson. A fluidized-bed combustion process with inherent CO_2 separation; application of chemical-looping combustion. *Chemical Engineering Science*, 2001, **56** (10): 3101-3113
- [11] Eva Johansson, Anders Lyngfelt, Tobias Mattisson, Filip Johnsson. A circulating fluidized bed combustor system with CO_2 separation—application of chemical-looping combustion//Proceedings of 7th Int. Conf. On Fluidized Bed Combustion. Canada, Niagara Falls; 2002
- [12] Adanez J, Garia-Labiano F, Diego L F, Plata A, Celaya J, Gayan P, Abad A. Optimizing the fuel reactor for chemical-looping combustion, ASME paper FBC2003//17th International Fluidized Bed Combustion Conference. Jacksonville; 2003
- [13] Lyngfelt A, Kronberger B, Adanez J, Morin J A, Hust P. Development of oxygen carrier particles for chemical-looping combustion, design and operation of a 10 kW chemical-looping combustor//Proceedings of 7th Int. Conf. Greenhouse Gas Control Technology. Canada, Vancouver; 2004
- [14] Eva Johansson, Tobias Mattisson, Anders Lyngfelt, Hilmer Thunman. A 300W laboratory reactor system for chemical-looping combustion with particle circulation. *Fuel*, 2006, **85** (10/11): 1428-1438
- [15] Jin Yong (金涌), Zhu Jingxu (祝京旭), Wang Zhanwen (汪展文). Fluidization Engineering Principles (流态化工程原理). Beijing: Tsinghua University Press, 2001: 360-390