

煤粉再燃过程再燃煤比脱硝量的实验研究

高正阳, 阎维平

(华北电力大学能源与动力工程学院, 河北省 保定市 071003)

Experimental Investigation on Specific NO Reduction Quantity for Coal Reburning Process

GAO Zheng-yang, YAN Wei-ping

(School of Energy and Power Engineering, North China Electric Power University, Baoding 071003, Hebei Province, China)

ABSTRACT: For coal reburning process, the NO reduced by unit mass of coal is defined as specific NO reduction quantity. Experiments on coal reburning were carried out on an entrained flow reactor. The comparisons of NO reduction efficiencies and specific NO reduction quantities under different conditions were made. The influences of oxygen, reburn fuel fraction and coal particle size on specific NO reduction quantity were analyzed. The result show that high NO reduction efficiency does not absolutely mean high specific NO reduction quantity; decreased oxygen content and increase reburn fuel fraction lead to increase NO reduction efficiency but not absolutely increase specific NO reduction quantity. The highest specific NO reduction quantity can be got under different conditions for coals with different particle sizes. The stoichiometric excess air region of 0.3~0.65 is a high specific NO reduction quantity region. Decreased coal particle size and increased reaction time lead to increased specific NO reduction quantity.

KEY WORDS: reburning; pulverized coal; entrained flow reactor; efficiency

摘要: 对于煤粉再燃过程, 定义单位质量再燃煤粉还原NO量为比脱硝量。在煤粉携带炉上进行再燃实验。对不同工况下NO还原效率与比脱硝量进行对比研究, 分析O₂浓度、再燃燃料比与煤粉细度对比脱硝量的影响规律。实验与分析结果表明: NO还原效率高并不意味比脱硝量高; NO还原效率随O₂浓度降低和再燃燃料比增加而单调增加, 但比脱硝量变化规律相对复杂。不同细度煤粉达到最高比脱硝量的工况不同。过量空气系数为 0.3~0.65 的范围为高比脱硝量区。煤粉粒径减小、反应时间增加导致NO还原效率与比脱硝量增加。

关键词: 再燃; 煤粉; 携带炉; 效率

0 引言

煤粉再燃技术是一种成本低、易实现并具有一定NO还原效率的低NO燃烧技术^[1-5]。由于煤的反应

性比较差, 且再燃燃料在炉内的停留时间远小于主燃煤粉, 因此尽管一般将再燃煤粉超细化, 其燃尽性能仍然不佳。而且由于该技术是将再燃煤粉投入到炉膛上部燃烧放热, 可能导致炉膛上部热负荷增加, 炉内负荷分布发生变化。

在目前再燃方面的研究中, 大多文献将NO还原效率(再燃区入口与出口NO浓度降低的相对值)作为再燃效果的评判依据^[6-11], 而以再燃燃料投入量为侧重点, 对单位质量再燃燃料所还原NO量进行分析的比较少。对于煤粉再燃过程, 单位质量再燃煤粉还原NO量能有效反应再燃煤粉的利用程度, 深入研究单位质量再燃煤粉还原NO量随各因素的变化规律, 对进一步揭示各因素对NO还原的影响机制, 更全面优化煤粉再燃过程具有重要意义。为论述方便, 本文称每克再燃煤粉还原NO量为再燃煤粉的比脱硝量。

本文根据高温煤粉携带炉上煤粉再燃实验数据, 对不同再燃条件下比脱硝量计算分析, 对NO还原效率与比脱硝量进行对比研究, 确定了不同影响因素对比脱硝量的影响规律。

1 再燃反应机理

煤粉再燃主要通过挥发分物质与NO间均相反应和煤焦与NO间异相反应2个途径还原NO。总体上挥发分含量高的煤再燃效果好。但也有研究表明褐煤煤焦还原NO的贡献比其挥发分更显著^[12]。

挥发分中C_nH_m、HCN、NH₃、H₂、CO均可以有效还原NO^[13-15]。HCN和NH₃可以与NO反应生成N₂, 也可被氧化生成NO。在贫氧条件下, HCN、NH₃还会分解生成N₂。C_nH_m分解产物CH_i(CH₃、CH₂、CH)与NO的反应十分迅速。CO、H₂主要是在煤焦和灰份的催化作用下还原NO^[16]。煤焦主要通过其

中活性C基与NO反应，能够促进活性C基生成的物质，如焦碳N^[17]、矿物质^[18]、O₂、CO和CO₂等均对煤焦还原NO有催化作用。

对于挥发分，O₂含量决定了挥发分物质的反应方向。对于煤焦，O₂与煤焦可反应生成CO，CO可参与还原NO。但O₂也会消耗C，削弱煤焦对NO的还原，氧还会与焦碳N反应生成NO。

2 实验系统及计算方法

本文采用的携带炉实验系统见文献[19]。实验在 1300℃ 下进行，采用 15%、20%、25% 3 种再燃燃料比 r_{RFR} (再燃燃料量占总燃料量的比例) 和 2%、4%、6% 3 种再燃区初始 O₂ 体积浓度 $\varphi(O_2)$ 。实验煤种煤质分析见表 1。实验取粒径小于 71、56、45 μm 3 种细度煤粉进行。

表 1 实验用煤的工业分析和元素分析

Tab. 1 Approximate and ultimate analysis of the coal

元素分析/%					工业分析			
C _{ad}	H _{ad}	O _{ad}	N _{ad}	S _{ad}	Q _{net,ar} /(kJ/kg)	V _{ad} /%	W _{ad} /%	A _{ad} /%
64.05	4.17	16.26	0.73	0.49	23250	28	4.8	9.5

以 $M_{NO,1}$ 表示再燃区初始 NO 质量流量， $M_{NO,2}$ 表示反应一段时间后 NO 质量流量， M_c 表示再燃煤粉给煤率。NO 还原效率 η_{NO} 与比脱硝量 η_c 的计算公式为

$$\eta_{NO} = (M_{NO,1} - M_{NO,2}) / M_{NO,1} \quad (1)$$

$$\eta_c = (M_{NO,1} - M_{NO,2}) / M_c \quad (2)$$

3 实验结果与分析

3.1 O₂与 r_{RFR} 对反应的影响规律

O₂ 体积浓度 $\varphi(O_2)$ 与 r_{RFR} 改变对再燃的影响有交叉之处，但不完全相同。O₂ 主要影响再燃区氧煤比， r_{RFR} 则不仅影响氧煤比，还影响到再燃区初始再燃煤粉与初始 NO 量比例。

图 1、2 分别为不同工况下 NO 还原效率与比脱硝量图，图中数据是反应时间为 1 s 时的数据。可以看出，对于 3 种细度的煤粉，随 $\varphi(O_2)$ 降低、 r_{RFR} 增大，NO 还原效率单调增高。但比脱硝量的变化规律相对复杂。对于粒径为 71 μm 煤粉，在 $\varphi(O_2)=2\%$ 时， $r_{RFR}=20\%$ 条件下比脱硝量最高，为 0.032；在 $\varphi(O_2)=4\%$ 时，最高的比脱硝量则出现在 $r_{RFR}=25\%$ 条件下；在 $\varphi(O_2)=6\%$ 下，3 个不同的 r_{RFR} 对应的比脱硝量基本相同。此外，总体上 $\varphi(O_2)$ 越高，比脱硝量越低。粒径为 56 μm 煤粉的比脱硝量随 O₂ 与 r_{RFR} 的变化规律与粒径为 71 μm 煤粉相似。粒径为 45 μm

煤粉与上述 2 种煤不同， $\varphi(O_2)=2\%$ 时， $r_{RFR}=15\%$ 对应比脱硝量最高，为 0.041； $\varphi(O_2)=4\%$ 时， $r_{RFR}=20\%$ 、 $r_{RFR}=25\%$ 对应比脱硝量相同； $\varphi(O_2)=6\%$ 时， $r_{RFR}=25\%$ 对应比脱硝量最高，为 0.026。

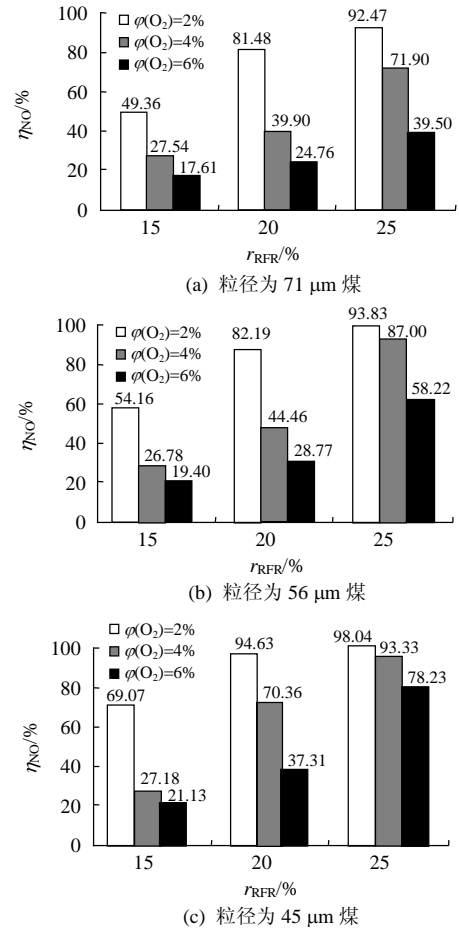
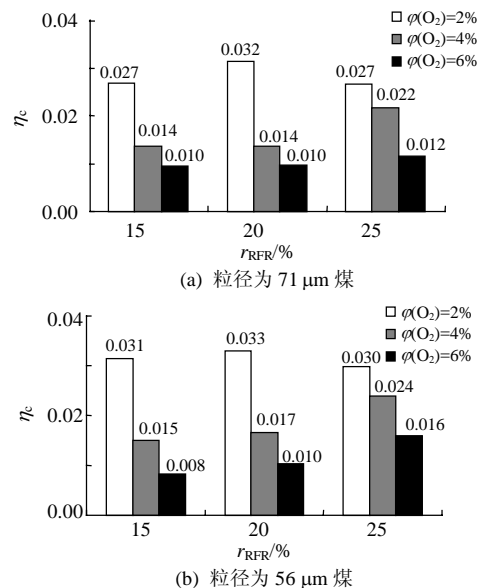


图 1 不同工况下 NO 还原效率

Fig. 1 NO reduction efficiencies under different conditions



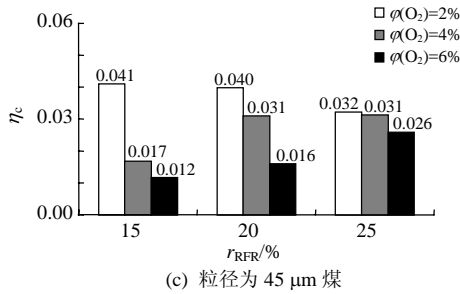


图 2 不同工况下比脱硝量

Fig. 2 Specific NO reduction quantities under different conditions

对比图 1(a)与图 2(a)可以发现,在实验条件下,粒径为 76 μm 煤最大 NO 还原效率出现在 $\varphi(O_2)=2\%$ 和 $r_{RFR}=25\%$ 条件下,但最大比脱硝量则出现在 $\varphi(O_2)=2\%$ 和 $r_{RFR}=20\%$ 的条件下。另外, $\varphi(O_2)=2\%$ 和 $r_{RFR}=25\%$ 条件下 NO 还原效率远高于 $\varphi(O_2)=2\%$ 和 $r_{RFR}=15\%$ 条件,但 2 个条件下比脱硝量却基本相同。这说明最高的 NO 还原效率并不意味着最高的比脱硝量。

在固定煤质和反应温度条件下,决定 NO 还原的因素主要有 3 个: 1) 氧煤比,氧煤比决定了再燃区与 NO 相关反应的进行方向; 2) 煤与 NO 比,煤与 NO 比越大,提供给单位质量 NO 的还原物质就越多,NO 还原效率会增加,但由于可供单位质量煤粉还原的 NO 减少,可能造成比脱硝量下降; 3) 煤颗粒的粒径。

这里以粒径为 76 μm 煤为例分析比脱硝量随 O_2 与 r_{RFR} 的变化规律。在 $\varphi(O_2)=2\%$ 条件下, r_{RFR} 由 15% 增加到 20% 时,比脱硝量由 0.027 增加到 0.032; NO 还原效率由 49.36% 增大到 81.48%,比脱硝量与 NO 还原效率同步增长。 r_{RFR} 增加而 O_2 不变,导致氧煤比下降,煤与 NO 比增加。氧煤比下降,有利于促进 NO 还原,提高比脱硝量,但煤与 NO 比增加可能导致比脱硝量下降。比脱硝量与 NO 还原效率同步增长说明, $\varphi(O_2)=2\%$ 、 $r_{RFR}=15\%$ 下, O_2 相对多,煤粉提供的还原 NO 的物质不能完全与 NO 反应,因此提高 r_{RFR} ,可还原 NO 的物质增加,且由于 O_2 相对减少,还原性物质能更有效地与 NO 反应,NO 还原效率与比脱硝量均增加。 $\varphi(O_2)=2\%$ 条件下, r_{RFR} 由 20% 增加到 25% 时,NO 还原效率增大,但比脱硝量下降。可见 r_{RFR} 为 20% 时,氧煤比已经较低,还原性物质能较充分地、NO 反应,此时投入更多的煤粉,还原 NO 的物质进一步增加甚至过量,NO 还原效率必然增加,但由于部分还原性物质不能及时得到 NO 与其反应,比脱

硝量下降。

当再燃区初始氧量为 4%、6% 时,3 个细度煤粉的比脱硝量和 NO 还原效率均随 r_{RFR} 的增加而增大。这说明 $\varphi(O_2)=4\%$ 、 $\varphi(O_2)=6\%$ 条件下,烟气中 O_2 偏多,煤粉提供的还原 NO 的物质部分被 O_2 消耗,氧煤比成为制约比脱硝量的关键,提高 r_{RFR} ,比脱硝量随之提高。

再燃区氧量与 r_{RFR} 均影响到再燃区的氧煤比,本文采用过量空气系数表征再燃区的氧煤比,图 3 为比脱硝量随过量空气系数的变化曲线。图 3 曲线表明,在过量空气系数大于 0.5 时,过量空气系数增加,比脱硝量下降。过量空气系数小于 0.5 的时,过量空气系数增加,比脱硝量增大,过量空气系数为 0.3~0.65 的范围为高比脱硝量区。可见,由于 O_2 可以促进活性碳基和 CO 生成,一定 O_2 的存在有利于 NO 还原。

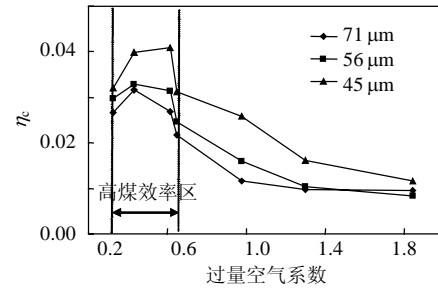


图 3 不同过量空气系数下比脱硝量

Fig. 3 Specific NO reduction quantities under different excess airs

3.2 粒径对反应的影响

煤焦与 NO 的总反应速率受到 NO 扩散速率和煤焦与 NO 反应速率控制。文献[2]的研究表明,将煤焦与 NO 的反应表示为一级反应,忽略煤焦孔隙中的反应,认为煤焦与 NO 的异相反应速率等于 NO 向颗粒表面扩散的速率,一定量煤焦与 NO 的反应速率与粒径的平方成反比。

图 1、2 数据表明,随煤粉粒径减小,NO 还原效率与比脱硝量均显著增加。这与式(3)表明规律是一致的。文献[20]的研究表明,挥发分的释放主要发生在 0.4 s 以前,而图 3 中数据为反应时间 1 s 时数据,因此,不同细度煤粉还原 NO 差主要是细度对煤焦反应速率的影响造成的。由此也可看出在本文实验中,煤焦异相还原 NO 对总 NO 的还原贡献是比较显著的。

3.3 比脱硝量随时间的变化规律

图 4 为 71、56 μm 煤比脱硝量随时间变化曲线。从图中曲线可以看出,随反应时间的增加,

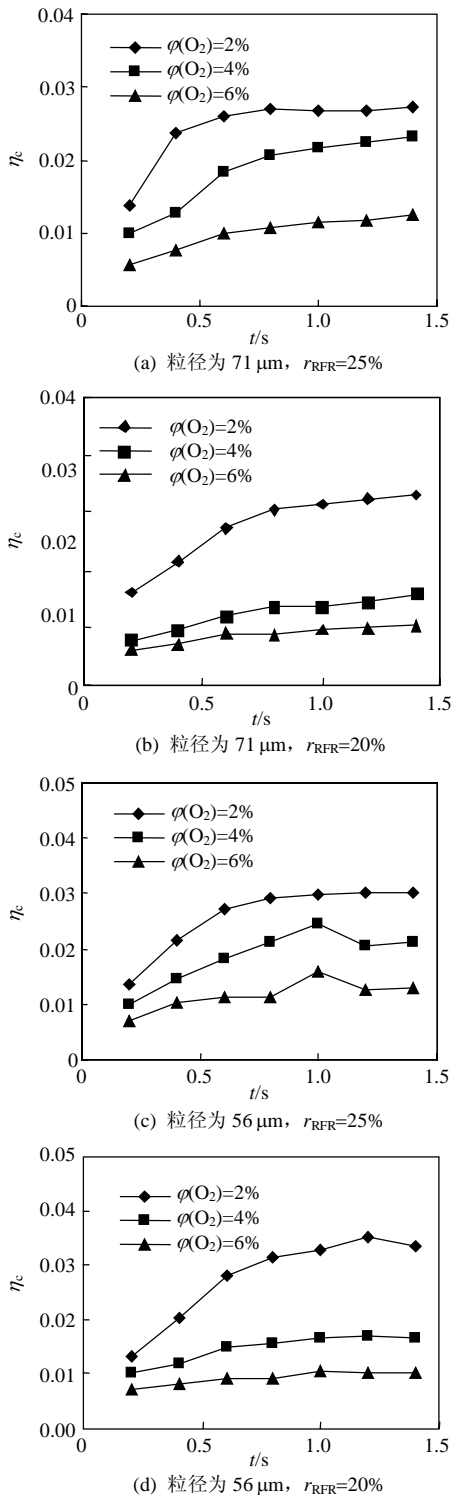


图 4 比脱硝量随时间变化曲线

Fig. 4 Specific NO reduction quantities under different reaction times

比脱硝量是增加的。在 $\varphi(O_2)=2\%$ 时，比脱硝量曲线随时间的变化可以分为 0.8 s 前的高斜率区与 0.8 s 以后的低斜率区。在 $\varphi(O_2)=4\%$ 、 $\varphi(O_2)=6\%$ 时，从 0.2 s 直到 1.4 s，比脱硝量曲线则保持了比较一致的增长斜率。

挥发分的释放主要发生在 0.4 s 以前，在低氧浓度情况下($\varphi(O_2)=2\%$)，挥发分物质被氧化份额比较小，挥发分可以充分参与还原 NO。挥发分物质不会在从煤中释放后瞬间消耗完全，其对 NO 的还原作用会延迟到 0.4 s 以后。此外，在低氧浓度条件下，有大量 CO 生成，烟气中的 NO 也会在 CO 与煤焦的共同作用下被迅速还原。因此，在 0.8 s 前，烟气中的 NO 在挥发分和煤焦的协同作用下被还原，还原速率高，曲线斜率大。

4 结论

1) NO 还原效率高并不一定意味比脱硝量高，NO 还原效率随 O_2 浓度及 r_{RFR} 的变化规律简单明了，比脱硝量变化规律相对复杂，不同细度煤粉达到最高比脱硝量的工况不同。

2) 粒径为 71 μm 煤粉在 $\varphi(O_2)=2\%$ 下， $r_{RFR}=20\%$ 对应的比脱硝量最高，为 0.032； $\varphi(O_2)=4\%$ 下， $r_{RFR}=25\%$ 对应比脱硝量最高，为 0.022。

3) 粒径为 45 μm 煤粉在 $\varphi(O_2)=2\%$ 下， $r_{RFR}=15\%$ 对应的比脱硝量最高，为 0.041； $\varphi(O_2)=6\%$ ， $r_{RFR}=25\%$ 对应比脱硝量最高，为 0.026。

4) 过量空气系数在 0.3~0.65 的范围为高比脱硝量区，在过量空气系数小于 0.5 时，比脱硝量随过量空气系数的增加而增大，在过量空气系数大于 0.5 时，过量空气系数增加，比脱硝量下降。

5) 随煤粉粒径减小，NO 还原效率与比脱硝量均是显著增加的。对于异相还原 NO 作用越显著的煤种，细化煤粉对提高 NO 还原就越有效。

6) 随反应时间的增加，比脱硝量不断提高。在低氧浓度条件下，比脱硝量曲线随时间的变化可以分为高斜率区与低斜率区；在相对高的氧浓度下，从 0.2 s 直到 1.4 s，比脱硝量曲线则保持了比较一致的增长斜率。

参考文献

[1] 斯东波, 池作和, 黄郁明, 等. 200 MW 煤粉锅炉实施超细煤粉再燃的试验研究[J]. 中国电机工程学报, 2007, 27(26): 1-6.
Si Dongbo, Chi Zuohe, Huang Yuming, et al. Experimental study on micronized coal reburning for a 200 MW coal-fired boiler [J]. Proceedings of the CSEE, 2007, 27(26): 1-6(in Chinese).

[2] 高正阳, 阎维平, 刘忠. 再燃过程再燃煤粉燃料 C 释放特性的试验研究[J]. 中国电机工程学报, 2004, 24(10): 244-248.
Gao Zhengyang, Yan Weiping, Liu Zhong. Experimental investigation on fuel-C release characteristic of reburn fuel[J]. Proceedings of the CSEE, 2004, 24(10): 244-248(in Chinese).

[3] 郭永红, 孙保民, 康志忠. 超细煤粉再燃低 NO 燃烧技术的数值模拟[J]. 动力工程, 2005, 25(3): 422-426.

- Guo Yonghong, Sun Baomin, Kang Zhizhong. Numerical simulation of low NO_x reburn technique with micro-pulverized coal[J]. Power Engineering, 2005, 25(3): 422-426(in Chinese).
- [4] 金晶, 张忠孝. 超细煤粉分级燃烧中 NO_x 还原规律的研究[J]. 工程热物理论, 2006, 27(4): 699-701.
- Jin Jing, Zhang Zhongxiao. Research on the rule of NO_x reduction in the microzined coal reburning[J]. Journal of the Engineering Thermophysics, 2006, 27(4): 699-701(in Chinese).
- [5] 郭永红, 孙保民, 刘彤, 等. 褐煤的超细粉再燃中 NO_x 的生成与还原的数值模拟[J]. 中国电机工程学报, 2005, 25(9): 94-98.
- Guo Yonghong, Sun Baomin, Liu Tong, et al. Numerical simulation of NO_x formation with micro-pulverized coal reburning technology for lignite[J]. Proceedings of the CSEE, 2005, 25(9): 94-98(in Chinese).
- [6] 刘忠, 阎维平, 赵莉, 等. 超细煤粉的细度对再燃还原NO的影响[J]. 中国电机工程学报, 2007, 27(8): 22-25.
- Liu Zhong, Yan Weiping, Zhao Li, et al. Influence of the micro-pulverized coal char fineness on NO reduction by reburning[J]. Proceedings of the CSEE, 2007, 27(8): 22-25(in Chinese).
- [7] 胡满银, 刘忠, 王小敏, 等. 再燃中超细煤粉热解机理及挥发份释放的数值模拟[J]. 动力工程, 2005, 25(3): 427-432.
- Hu Manyin, Liu Zhong, Wang Xiaomin, et al. Numerical simulations of the pyrolysis chemism and the release process of volatiles during reburn of micronized coal[J]. Power Engineering, 2005, 25(3): 427-432(in Chinese).
- [8] 刘忠, 阎维平, 高正阳, 等. 煤种对超细煤粉再燃还原NO效率的影响[J]. 中国电机工程学报, 2004, 24(12): 273-276.
- Liu Zhong, Yan Weiping, Gao Zhengyang, et al. Effect of coal type on NO reduction by micro-pulverized coal reburning[J]. Proceedings of the CSEE, 2004, 24(12): 273-276(in Chinese).
- [9] 张忠孝, 姚向东, 乌晓江, 等. 气体再燃低 NO_x 排放试验研究[J]. 中国电机工程学报, 2005, 25(9): 99-102.
- Zhang Zhongxiao, Yao Xiangdong, Wu Xiaojiang, et al. Experimental study on low NO_x emission using gas reburning[J]. Proceedings of the CSEE, 2005, 25(9): 99-102(in Chinese).
- [10] 杨卫娟, 周俊虎, 刘茂省, 等. 煤粉再燃过程中飞灰含碳量的影响因素分析[J]. 中国电机工程学报. 2006, 26(18): 116-120.
- Yang Weijuan, Zhou Junhu, Liu Maosheng, et al. Analyzing factors of unburned coal in flyash during pulverized coal reburning[J]. Proceedings of the CSEE, 2006, 26(18): 116-120(in Chinese).
- [11] Hampartsoumian E, Folayan O O, Nimmo W, et al. Optimisation of NO_x reduction in advanced coal reburning systems and the effect of coal type[J]. Fuel, 2003, 82(4): 373-384.
- [12] Burch T E, Chen W Y, Lester T W, et al. Interaction of fuel-N with nitric oxide during reburning with coal[J]. Combustion and Flame, 1994, 98: 391-401.
- [13] Tan L L, Li C Z. Formation of NO_x and SO_x precursors during the pyrolysis of coal and biomass. Part I: effects of reactors configuration on determined yields of HCN and NH_3 during pyrolysis[J]. Fuel, 2000, 79(15): 1883-1889.
- [14] Tan L L, Li C Z. Formation of NO_x and SO_x precursors during the pyrolysis of coal and biomass. Part II: effects of experimental conditions on the yields of NO_x and SO_x precursors from pyrolysis of a victorian brown coal[J]. Fuel, 2000, 79(15): 1891-1897.
- [15] Li C Z, Tan L L. Formation of NO_x and SO_x precursors during the pyrolysis of coal and biomass. Part III: further discussion on the formation of HCN and NH_3 during pyrolysis[J]. Fuel, 2000, 79(15): 1899-1906.
- [16] Glarborg P, Kristensen P G, Johansen K D. Nitric oxide reduction by Non-hydrocarbon fuels. Implications for reburning with gasification gases[J]. Energy and Fuels, 2000, 14(4): 828-838.
- [17] Chambrion P, Suzuki T, Zhang Z G, et al. Xps of nitrogen-containing functional groups formed during the C-NO reaction[J]. Energy and Fuels, 1996, 11(3): 681-685.
- [18] Illán-Gómez M, Linares-Solano A, Radovic L R, et al. NO reduction by activated carbons 7. Some mechanistic aspects of uncatalyzed and catalyzed reaction[J]. Energy and Fuels, 1996, 10(1): 58-168.
- [19] 刘忠, 阎维平, 高正阳, 等. 超细煤粉的细度对再燃还原NO的影响[J]. 中国电机工程学报, 2003, 23(10): 205-208.
- Liu Zhong, Yan Weiping, Gao Zhengyang, et al. The effect of the micro-pulverized coal fineness on nitric oxide reduction by reburning[J]. Proceedings of the CSEE, 2003, 23(10): 205-208(in Chinese).
- [20] 高正阳, 阎维平, 刘忠. 再燃过程再燃煤粉燃料N释放特性的试验研究[J]. 中国电机工程学报, 2004, 24(8): 238-243.
- Gao Zhengyang, Yan Weiping, Liu Zhong. Experimental investigation on Fuel-N release characteristic of reburn fuel[J]. Proceedings of the CSEE, 2004, 24(8): 238-243(in Chinese).



高正阳

收稿日期: 2008-02-28。

作者简介:

高正阳(1972—), 男, 博士, 副教授, 主要从事煤粉清洁燃烧与环境污染控制方面的研究, gaozhyan@163.com;

阎维平(1955—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事高效低污染煤燃烧理论、新能源开发与利用、电站锅炉煤粉燃烬技术和锅炉安全经济运行方面的研究。

(编辑 张媛媛)