

# 煤焦颗粒群异相反应特性的数值模拟研究

张泽武<sup>1,2</sup>, 乐笑宇<sup>1,2</sup>, 李小姗<sup>1,2</sup>, 邬凡<sup>1,2</sup>, 罗聪<sup>1,2</sup>, 张立麒<sup>1,2</sup>

(1. 华中科技大学 煤燃烧国家重点实验室, 湖北 武汉 430074; 2. 华中科技大学 能源与动力工程学院, 湖北 武汉 430074)

**摘要:**煤焦异相反应是煤粉燃烧区别于气体燃料燃烧或液体燃料燃烧的特征之一, 其反应过程占整个煤粉燃烧时间约90%, 对煤粉高效燃烧至关重要。通常情况下, 煤粉颗粒以稠密相而非以稀疏相或单颗粒形式进入炉膛, 颗粒间的相互作用会影响煤焦异相反应, 因此, 深入开展煤焦颗粒群异相反应行为研究对于煤的高效利用十分必要。采用准稳态的数值模拟方法研究煤焦颗粒群的异相反应行为, 对比分析了煤焦单颗粒和煤焦颗粒群的反应特性, 相比于煤焦单颗粒, 煤焦颗粒群燃烧峰值温度升高约300 K, 颗粒表面温度降低约100 K, 碳消耗速率降低56%~65%, 说明颗粒间作用影响了煤焦颗粒的燃烧反应进程。对3种典型分散形式下煤焦颗粒群燃烧反应特性进行研究, 随着颗粒间距的增加, 各分散形式的煤焦氧化反应占比增加0.22%~2.20%, 碳消耗速率随之增大9.8%~26.1%, 较大颗粒间距有利于O<sub>2</sub>分子在颗粒间的扩散, 促进了氧化反应以及煤焦消耗。探究了不同反应气氛下煤焦颗粒群的燃烧反应特性, 相比于空气气氛, 高CO<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>O气氛下燃烧群峰值温度增加4%~30%, 颗粒表面温度升高0.5%~3.7%, 其中30% O<sub>2</sub>/70% H<sub>2</sub>O工况的碳消耗速率最大, 较空气气氛高80%。综合对比, 各颗粒间作用、颗粒间距和反应气氛工况下3种颗粒群分散形式的煤焦燃烧碳消耗速率依次为: 形式C > 形式B > 形式A(形式A: 颗粒群呈正方形分散; 形式B: 颗粒群呈正菱形分散; 形式C: 颗粒群呈正三角形分散), 因此颗粒与气流之间的扰动作用对煤焦的消耗产生不可忽视的影响。

**关键词:** 异相反应; 煤焦颗粒群; 燃烧; 颗粒温度; 碳消耗速率

中图分类号: TK16 文献标志码: A 文章编号: 0253-9993(2024)04-2076-10

## Numerical study on heterogeneous reaction characteristics of coal char particle group combustion

ZHANG Zewu<sup>1,2</sup>, LE Xiaoyu<sup>1,2</sup>, LI Xiaoshan<sup>1,2</sup>, WU Fan<sup>1,2</sup>, LUO Cong<sup>1,2</sup>, ZHANG Liqi<sup>1,2</sup>

(1. State Key Laboratory of Coal Combustion, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China; 2. School of Energy and Power Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

**Abstract:** The reaction of coal char is a unique feature of pulverized coal combustion, which is differed from that of gas or liquid fuels combustion. Since the heterogeneous reaction process accounts for about 90% of the entire time for pulverized coal combustion, it is very important for the efficient utilization of pulverized coal. In general, pulverized coal particles are carried into the furnace in the form of dense phase rather than sparse phase or single particle, and the interaction between particles will affect the heterogeneous reaction of coal char. Therefore, it is necessary to deepen the understandings on the heterogeneous reaction behavior of coal char particles for the efficient utilization of pulverized coal. This

收稿日期: 2023-11-09 修回日期: 2024-01-11 责任编辑: 张晓宁 DOI: 10.13225/j.cnki.jccs.2023.1472

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(52306137); 中国博士后科学基金资助项目(2022M711239)

作者简介: 张泽武(1992—),男,湖北黄冈人,助理研究员,博士。E-mail: zwzhang@hust.edu.cn

通讯作者: 张立麒(1972—),男,江西吉安人,教授,博士。E-mail: lqzhang@mail.hust.edu.cn

引用格式: 张泽武, 乐笑宇, 李小姗, 等. 煤焦颗粒群异相反应特性的数值模拟研究[J]. 煤炭学报, 2024, 49(4): 2076-2085.

ZHANG Zewu, LE Xiaoyu, LI Xiaoshan, et al. Numerical study on heterogeneous reaction characteristics of coal char particle group combustion[J]. Journal of China Coal Society, 2024, 49(4): 2076-2085.



移动阅读

study carries out a two-dimensional numerical simulation with the pseudo-steady state approach to study the reaction characteristics of coal char particle group. Firstly, the reaction characteristics of coal char single particle and coal char particle group are analyzed by the comparison, compared with the single particle, the peak temperature of the particle group increases by about 300 K, the surface temperature of the particle decreases by about 100 K, and the carbon consumption rate decreases by 56%–65%, which indicates that the interaction between particles affects the combustion reaction process of coal char particles. Then, the combustion characteristics of the coal char particles dispersed with three typical modes are studied. With the increase of particle spacing, the proportion of coal char oxidation reaction in each dispersion mode increases by 0.22%–2.20%, and the carbon consumption rate increases by 9.8%–26.1%. A larger particle spacing is beneficial to the diffusion of  $O_2$  molecules between particles, and the oxidation reaction and carbon consumption are promoted. Finally, the reaction characteristics of coal char particles under different reaction atmospheres are explored. Compared with the air cases, the peak temperature of the particles under high  $CO_2$  and  $H_2O$  concentration atmospheres increases by 4%–30%, and the surface temperature of the particles increases by 0.5%–3.7%, among which the carbon consumption rate under the condition of 30%  $O_2$ /70%  $H_2O$  is the largest, which is 80% higher than that under the air atmosphere. By comprehensive comparison, the order of carbon consumption rate of coal particles dispersed with three modes under the conditions of interaction between particles, particle spacing and reaction atmosphere is as follows: Mode C > Mode B > Mode A (Mode A: particle group is rectangular dispersed; Mode B: particle group is diamond dispersed; Mode C: particles are dispersed in a regular triangle). Thus, the disturbing effect between the particles and the air flow on the consumption of coal char cannot be ignored.

**Key words:** heterogeneous reaction; coal char particle group; combustion; particle temperature; char consumption rate

根据国际能源署 (International Energy Agency, IEA) 发布数据显示, 2021 年全球煤炭利用过程中  $CO_2$  排放占总  $CO_2$  排放 42%<sup>[1]</sup>, 大量  $CO_2$  排放引起的全球气候变暖成为世界关注的问题, 探寻燃煤过程中的碳减排技术已经势在必行。富氧燃烧技术能够大规模减少燃煤电厂  $CO_2$  排放, 被认为是最具有发展前景和优势的碳捕集技术之一<sup>[2-3]</sup>。该技术采用高纯氧代替助燃空气, 利用烟气循环调节传热特性, 进而获得体积分数高达 90% 的  $CO_2$  烟气<sup>[4]</sup>。

煤粉燃烧与气体或液体燃料燃烧之间的区别在于煤焦异相燃烧<sup>[5]</sup>, 即  $O_2$ 、 $H_2O$ 、 $CO_2$  在煤焦颗粒表面发生异相反应<sup>[2,6-11]</sup>, 煤焦颗粒表面的碳反应活性位点与  $O_2$ 、 $H_2O$  分子 (颗粒附近) 发生反应生成  $CO$ 、 $H_2$ , 并在颗粒表面附近形成  $CO$ 、 $H_2$  薄层。随着反应进行,  $O_2$  会在薄层上发生反应而形成火焰层, 还有部分  $O_2$  会穿过薄层, 在煤焦颗粒表面继续发生反应, 直至煤焦被完全消耗<sup>[2]</sup>。考虑到煤焦与  $O_2$ 、 $CO_2$  和  $O_2$  异相反应是气固反应, 颗粒间的气体扩散会影响其反应速率, 进而影响煤焦的燃烬。煤焦燃烧时间约占整个煤粉燃烧过程 90%<sup>[12]</sup>, 揭示煤焦颗粒群异相反应行为对于调控煤粉燃烬具有十分重要意义。

近年来, 国内外学者开展了大量有关煤焦燃烧反应特性的研究。KARLSTRÖM 等<sup>[13-14]</sup>利用等温塞流式反应器研究了反应温度在 1 223 ~ 1 673 K、氧气体积分数在 4% ~ 12% 条件下无烟煤和烟煤燃烧反应特

性, 发现无烟煤的氧化反应级数接近 0.5, 而烟煤的氧化反应级数接近 1。SHEN 等<sup>[15]</sup>研究了二维反应域内煤焦颗粒群浓度对燃烧特性的影响, 发现颗粒群浓度越高, 整个颗粒群的燃烧时间越长, 这归因于颗粒群间相互作用迟滞了氧气扩散, 导致煤焦消耗速率降低。

由于实验测量的局限性, 难以准确获取颗粒反应速率等参数, 且随着计算机水平发展, 基于计算流体力学的数值模拟手段在煤焦颗粒燃烧研究得到了广泛应用。NIU 等<sup>[16-17]</sup>采用 CBPMK(Char Burning and Particulate Matter Kinetics) 模型研究了  $CO_2$  和  $H_2O$  的理化性质对煤焦燃烧的影响, 在反应初期, 煤焦  $H_2O$  气化反应对碳耗率的影响为抑制, 在反应后期则为促进; 煤焦  $CO_2$  气化反应对碳耗率的影响随着  $CO_2$  体积分数的增加先减小后增大。NIKITYUK 等<sup>[18]</sup>通过对单煤焦颗粒非均相动力学进行二维数值模拟计算, 发现异相动力学参数的选择会导致煤焦碳质量通量结果产生 300% ~ 400% 的差异。XUE 等<sup>[6-7]</sup>在探索了颗粒尺寸和孔隙率对煤焦单颗粒燃烧的影响, 随着煤焦颗粒增加 (最大 2 mm), 孔隙率对煤焦颗粒碳耗率和燃烧温度的影响逐渐降低。ZHANG 等<sup>[7,10]</sup>研究了水蒸气体积分数、氧气体积分数、颗粒运动形式对煤焦单颗粒燃烧的影响; LU 等<sup>[11]</sup>模拟研究了富氧气氛下运动碳颗粒的反应速率特点, 均发现迎风侧碳颗粒总碳耗总是大于背风侧的碳颗粒。ZHANG 等<sup>[19]</sup>开展了滴管炉内煤粉燃烧实验和数值模拟研究, 发现在

富氧气氛下增强气化反应会降低炉内燃烧温度,当氧气体积分数提升至 30% 时,富氧燃烧工况下炉内温度和空气工况相持平。MAO 等<sup>[20]</sup>发现,随着水蒸气体积分数升高,煤焦水蒸气气化反应对碳消耗的贡献增加,削弱了煤焦氧气反应,同时水蒸气对燃烧温度也产生显著影响。

然而,现有煤焦燃烧反应特性研究,主要关注于组分、来流速度、反应温度等外界因素和孔隙率、颗粒尺寸等内在因素对燃烧温度和污染物生成的影响,而未深入了解煤焦反应行为特性,尤其是颗粒群燃烧行为。实际的煤粉燃烧过程中煤粉以密相输入炉膛<sup>[21]</sup>,颗粒群间存在相互作用,关于颗粒间相互作用对煤焦燃烧的具体影响尚不清晰。

为此,笔者对比分析了煤焦单颗粒和煤焦颗粒群的燃烧行为,探究了不同颗粒群分散形式、颗粒群间距、反应气氛等工况下煤焦颗粒群的燃烧反应行为,分析温度分布云图、燃烧温度、煤焦消耗速率以及各

异相反应,为深入理解煤焦颗粒群异相反应行为提供新认知,并为煤高效清洁利用提供科学指导依据。

## 1 数值计算模型

### 1.1 研究对象

选取典型煤焦单颗粒燃烧模型在作者前期的相关研究中已有详细介绍<sup>[7,10]</sup>。对于煤焦颗粒群燃烧,选取 3 种典型的煤焦颗粒群分散形式,如图 1 所示,其中,分散形式 A(形式 A)为煤焦颗粒在空间区域内呈正四边形分布,此时来流穿过颗粒群内部;分散形式 B(形式 B)为煤焦颗粒在空间区域内呈正菱形分布,此时来流绕过前面颗粒后受后面颗粒的二次绕流影响;分散形式 C(形式 C)为 3 个煤焦颗粒在空间区域内呈正三角形分布,此时来流绕过前面颗粒而不受后面颗粒的影响。颗粒间的球心间距,即颗粒间距  $L$ ,并设定  $L = 0.5D$ 、 $D$ 、 $1.5D$ ( $D$  为颗粒直径,取  $2\text{ mm}$ )<sup>[7,10]</sup>。

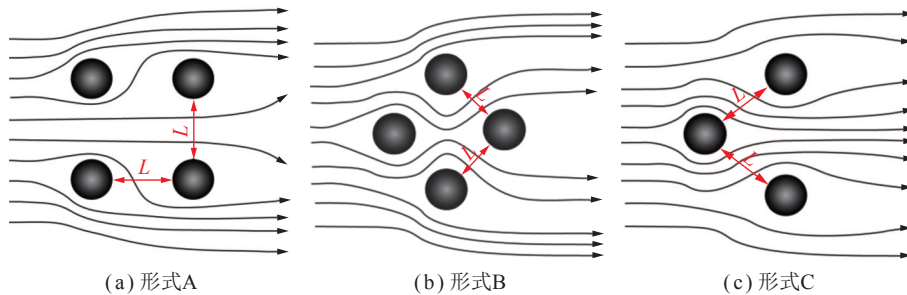


图 1 3 种典型的煤焦颗粒群分散形式

Fig.1 Three typical distribution types for coal char particle group

### 1.2 网格划分

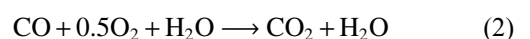
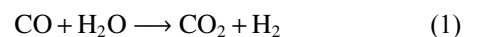
选用典型的煤焦单颗粒模型进行网格划分<sup>[7,10,18]</sup>,在此基础上,对煤焦颗粒群建模与网格划分,煤焦单颗粒和煤焦颗粒群所在的流域空间保持一致,入口长度为  $40D$ ,颗粒上游长度为  $30D$ ,下游长度为  $100D$ ,如图 2(a)、(d) 所示。采用二维正四边形结构化网格对计算域进行网格划分,对颗粒附近区域的网格进行加密处理,煤粉单颗粒模型的网格数量为 87 388,前期工作对其网格独立性进行过验证<sup>[7]</sup>,满足计算精度,如图 2(b)、(c) 所示。采用相似的网格划分策略,对煤焦颗粒群模型进行网格划分,3 种颗粒群分散形式的网格数量均约为 160 000,形式 A、B、C 对应的网格数分别为 160 588、160 588 和 168 399 个,如图 2(e)、(f) 所示。

### 1.3 CFD 模型

采用常用的准稳态方法 (Pseudo-Steady State, PSS) 对煤焦单颗粒和颗粒群燃烧过程进行数值模拟<sup>[7,10,22]</sup>,考虑到颗粒群由多个单颗粒组成,其尺寸同

单颗粒相差不大,因此采用类似单颗粒模型的假设<sup>[7,10,18]</sup>:① 颗粒群中每个煤焦颗粒均为球形,且为纯碳颗粒;② 颗粒群处于层流流域内,其燃烧过程为准静态;③ 颗粒群中每个煤焦颗粒均不考虑孔隙,碳活性位点遍布在碳颗粒表面,异相反应在其上发生;④ 不计重力和浮力效应;⑤ 流场中的气体视为不可压缩理想气体。

采用基于雷诺平均的纳维尔-斯托克斯方程 (Reynolds-Averaged Navier Stokes, RANS) 对连续性方程、动量方程、能量方程进行封闭求解,采用 Laminar 模型描述层流流动,采用 P1 模型求解辐射方程。采用无湍流-化学相互作用的组分输运有限速率模型 (no-TCI Finite Rate) 对各组分方程进行求解,包括 3 个均相反应和 4 个异相反应<sup>[7,10]</sup>。



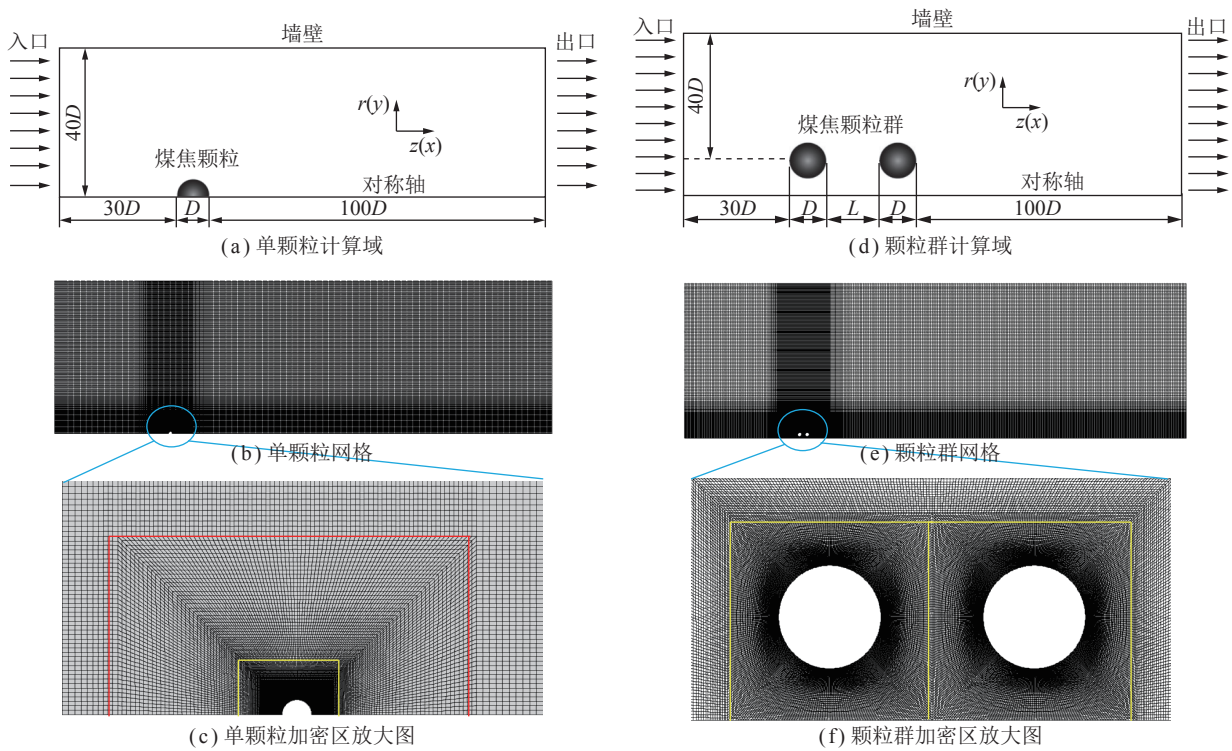
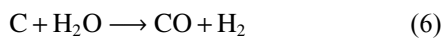
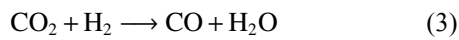


图2 几何模型和网格划分

Fig.2 Geometry model and the meshing scheme



上述反应的动力学反应速率  $k_r$  可用阿伦尼乌斯方程描述:  $k_r = A_r T^n \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$ , 其中,  $A_r$  为反应的指前因子;  $n$  为温度指数;  $T$  为反应温度;  $E_a$  为反应活化能;  $R$  为通用气体常数。本文采用的反应动力学参数见表1。

表1 各反应动力学参数<sup>[9,22-24]</sup>

Table 1 Kinetic parameters for the reactions<sup>[9,22-24]</sup>

反应式	$A_r$	$n$	$E_a/(10^8 \text{ J} \cdot \text{kmol}^{-1})$
1	$2.74 \times 10^9 \text{ m}^3/(\text{kmol} \cdot \text{s})$	0	0.836 8
2	$2.24 \times 10^{12} \text{ m}^{2.25}/(\text{kmol}^{0.75} \cdot \text{s})$	0	1.673 6
3	$9.98 \times 10^{10} \text{ m}^3/(\text{kmol} \cdot \text{s})$	0	1.205 0
4	$4.605 \text{ m}/(\text{K} \cdot \text{s})$	1	1.751 0
5	$300\ 700 \text{ m/s}$	0	1.493 7
6	$11.25 \text{ m}/(\text{K} \cdot \text{s})$	1	1.751 0
7	$593.83 \text{ m}/(\text{K} \cdot \text{s})$	1	1.496 5

### 1.4 边界条件

计算域入口边界为速度入口 (Velocity inlet), 速度设为定值 0.27 m/s, 对应的雷诺数  $Re$  约为  $100^{[7,10]}$ 。计算域出口采用常压压力出口 (Pressure outlet), 壁面和颗粒表面均设置为无滑移墙壁 (Wall), 异相反应发生在颗粒表面上, 环境温度设成 1 400 K。为确保与文献[7]保持一致, 各工况的入口气流中含额外 0.1% 水蒸气。各设计工况参数见表2。

表2 工况设计

Table 2 Summary of the considered cases

工况	单颗粒/颗粒群	颗粒间距	气氛
1	单颗粒	—	21% O <sub>2</sub> /78.9% N <sub>2</sub> /0.1% H <sub>2</sub> O
2~4	颗粒群A/B/C	0.5D	21% O <sub>2</sub> /78.9% N <sub>2</sub> /0.1% H <sub>2</sub> O
5~7	颗粒群A/B/C	D	21% O <sub>2</sub> /78.9% N <sub>2</sub> /0.1% H <sub>2</sub> O
8~10	颗粒群A/B/C	1.5D	21% O <sub>2</sub> /78.9% N <sub>2</sub> /0.1% H <sub>2</sub> O
11~13	颗粒群A/B/C	D	21% O <sub>2</sub> /78.9% CO <sub>2</sub> /0.1% H <sub>2</sub> O
14~16	颗粒群A/B/C	D	21% O <sub>2</sub> /78.9% CO <sub>2</sub> /0.1% H <sub>2</sub> O
17~19	颗粒群A/B/C	D	21% O <sub>2</sub> /79% H <sub>2</sub> O
20~22	颗粒群A/B/C	D	30% O <sub>2</sub> /70% H <sub>2</sub> O

## 2 结果与讨论

### 2.1 模型验证

由于目前鲜见文献报道煤焦颗粒群燃烧反应行

为,本文选择单颗粒燃烧的模拟结果与文献所报道结果进行对比(表3)。由表3可以看出,文献[7-8, 24]所报道的颗粒表面温度在1 580~1 645 K,本文的模拟结果为1 595 K;文献[7, 24]报道的碳颗粒消耗速率在0.008 65~0.010 50 kg/(m<sup>2</sup>·s),本文模拟结果为0.009 08 kg/(m<sup>2</sup>·s),可见,本文的模拟结果与文献报道接近,相对误差在5%以内。因此,本文所选计算模型可靠。

表3 本文与文献的结果对比

Table 3 Comparison of the predicted results for this work and the literature

设定参数	来源文献	颗粒表面温度/K	碳颗粒消耗率/(kg·(m <sup>2</sup> ·s) <sup>-1</sup> )
	[7]	1 622	0.008 65
入口温度 $T_{in}$ =1 400 K, 气氛为21% O <sub>2</sub> /79% N <sub>2</sub>	[8]	1 645	—
	[24]	1 580	0.010 50
	本文	1 595	0.009 08

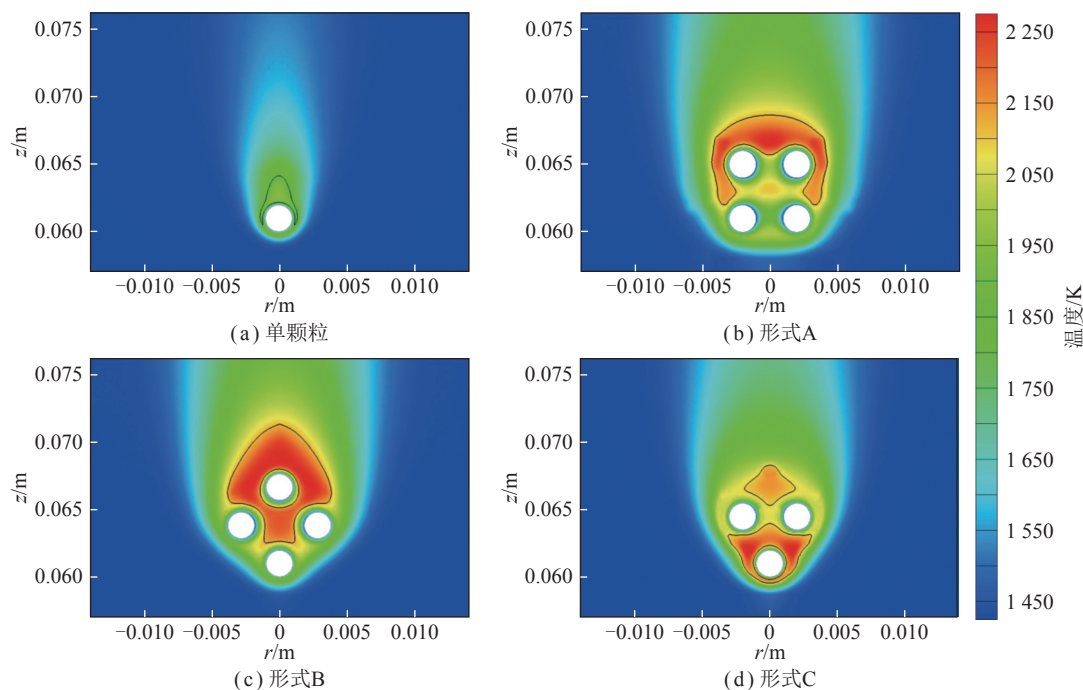


图3 煤焦单颗粒和颗粒群的温度云图

Fig.3 Temperature contours of the single particle and particle group combustion

如图4(a)所示,煤焦颗粒群峰值温度 $T_{max}$ 比单颗粒高约300 K,这是因为颗粒群中有更多的煤焦颗粒参与反应,并释放了更多热量。不同颗粒群分散形式的燃烧峰值温度基本保持不变,约为2 200 K。相比之下,颗粒群分散形式A的峰值温度最高,达2 241 K,而形式B的峰值温度最低为2 204 K,出现该现象的原因可用高温区的面积来解释,高温区面积越大,热量越分散,峰值温度越低。如图4(b)所示,煤焦颗粒群的颗粒表面温度 $T_{surf}$ 比单颗粒低约100 K,表明

## 2.2 颗粒群分散形式对煤焦燃烧的影响

煤焦单颗粒和颗粒群燃烧温度分布云图如图3所示,由于煤焦燃烧主要发生在颗粒附近的区域,因此只显示径向 $r = -0.013 \sim 0.013$  m、轴向 $z = 0.057 \sim 0.076$  m区域内的温度,同时,将燃烧高温区( $T \geq 0.8(T_{max} - T_{in}) + T_{in}$ ,  $T_{max}$ 为峰值温度)用黑实线标注,以清晰地反映出火焰层和高温区的位置。可以看出,单颗粒和颗粒群燃烧火焰形状均类似于纺锤形,但高温区的位置会发生明显变化。单颗粒燃烧高温区出现在颗粒的尾迹和颗粒表面两侧,温度较低。颗粒群燃烧高温区分布与颗粒群分散形式有关:形式A的高温区较为扁平,出现在颗粒群的外围区域;形式B的高温区形态类似纺锤形,出现在4个单颗粒高温区叠加的区域;形式C的高温区主要出现在迎风侧。3种颗粒群分散形式的燃烧高温区所处位置的差异说明颗粒空间分布对燃烧产生影响。

颗粒群间的相互作用阻碍气体扩散,降低了颗粒表面附近反应物浓度,尤其是氧气,进而降低异相反应速率。此外,煤焦颗粒群的碳消耗速率较单颗粒降低56%~65%,3种颗粒群分散形式的煤焦燃烧碳消耗速率依次为:形式C>形式B>形式A,如图4(c)所示,主要原因是颗粒表面温度降低以及氧气扩散速率受颗粒间相互作用的影响。与此同时,由图4(d)可以看出,相比于煤焦单颗粒,颗粒群的煤焦完全氧化反应(7)占比降低约1.5%,煤焦部分氧化反应(5)占

比增加约 0.5%, 煤焦 CO<sub>2</sub> 气化反应 (4) 占比增加约 1.0%。3 种颗粒群分散形式的煤焦燃烧各异相反应占

比相较于单颗粒的变化依次为: 形式 A ≈ 形式 C > 形式 B。

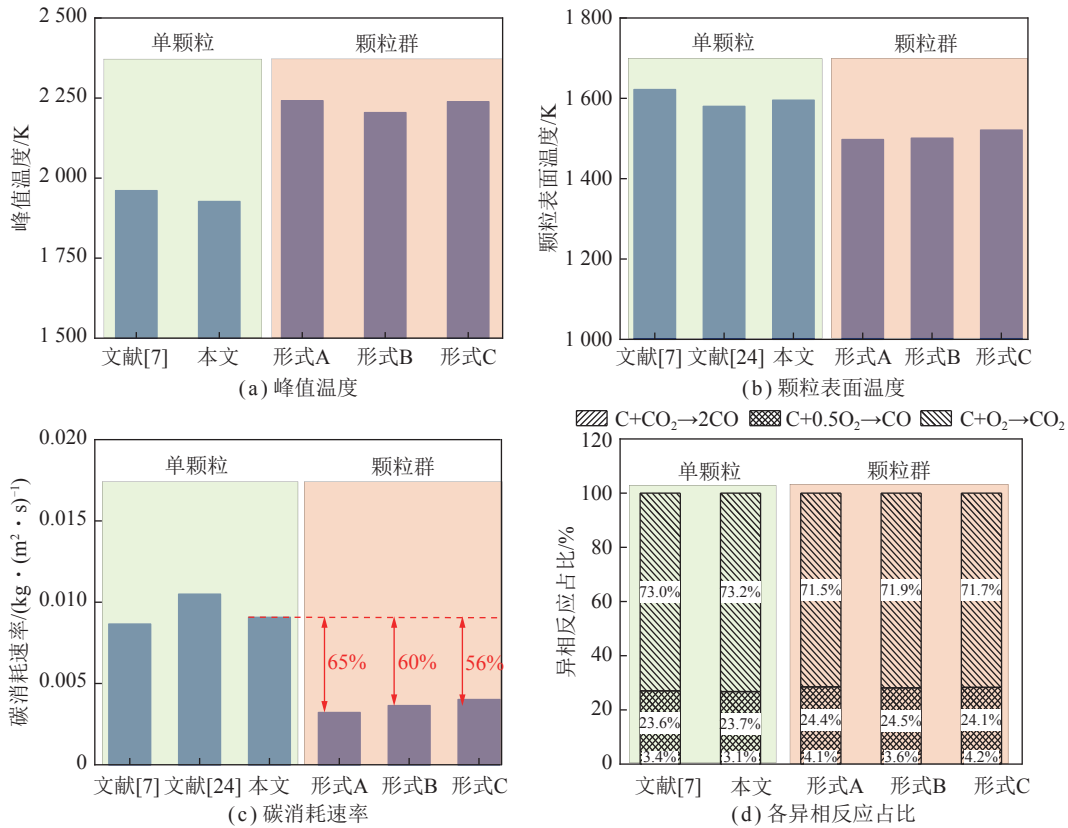


图4 煤焦单颗粒和颗粒群的燃烧反应特性对比

Fig.4 Comparison between the char single particle and particle group combustion

### 2.3 颗粒间距对煤焦燃烧的影响

图5对比了不同颗粒间距下3种颗粒群分散形式的煤焦燃烧反应特性。如图5(a)所示,随着颗粒间距由0.5D增至1.5D,颗粒燃烧的峰值温度降低142~188 K,这是由于较大的颗粒间距有利于燃烧反应释放的热量更好地在反应区扩散。在相同颗粒群间距情况下,3种颗粒群分散形式的煤焦燃烧温度基本相同,但其随颗粒间距的增大而下降的趋势不同,形式A、C的燃烧温度起初下降幅度小,分别为44、63 K,随后降低幅度加大,分别为98、125 K;形式B的燃烧温度先下降93 K,后下降67 K。如图5(b)所示,随着颗粒间距增加,颗粒表面温度几乎不随与颗粒间距的改变而发生变化,形式A、C的颗粒表面温度分别下降13、16 K,而形式B则上升4 K。如图5(c)所示,各工况下,3种颗粒群分散形式的煤焦消耗速率依次为:形式C>形式B>形式A。当颗粒间距0.5D增至1.5D,3种颗粒群分散形式下的煤焦消耗速率依次增加26.1%、9.8%、18.4%,其主要原因是较大的颗粒间距有利于O<sub>2</sub>分子在颗粒间的扩散,促进了氧化反应速率,且由于氧化反应速率大于气化反应速率,

因此煤焦燃烧得以促进。煤焦颗粒群间距的增加,可等效视为单位区域面积内颗粒浓度的降低,因而反应速率降低,这与文献[15]一致。

不同颗粒群间距下3种颗粒群分散形式的煤焦异相反应占比如图6所示,随着颗粒群间距由0.5D增至1.5D,形式A的煤焦完全氧化反应(7)占比增加0.87%,部分氧化反应(5)占比增加1.43%,煤焦CO<sub>2</sub>气化反应(4)占比降低2.20%;形式B的异相反应(7)、(5)占比分别增加0.14%和0.09%,异相反应(4)占比降低0.22%;形式C的异相反应(7)、(5)占比分别增加0.71%和0.96%,异相反应(4)占比降低1.67%。

随着颗粒间距的增加,氧气能扩散到颗粒群内部或后方,使颗粒表面平均氧气体积分数增大。氧气体积分数对煤焦CO<sub>2</sub>气化反应的影响是双重的:一方面,随着氧气体积分数增加,燃烧温度升高,有利于吸热的气化反应;另一方面,氧气体积分数增加,加大了氧分子和活性位点的接触,与CO<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>O产生竞争关系,进而抑制了煤焦CO<sub>2</sub>气化反应。由图5(b)可知,随着颗粒间距增加,增强了氧分子扩散,但颗粒表面温度基本上无变化,因此煤焦氧化反应增强,煤气

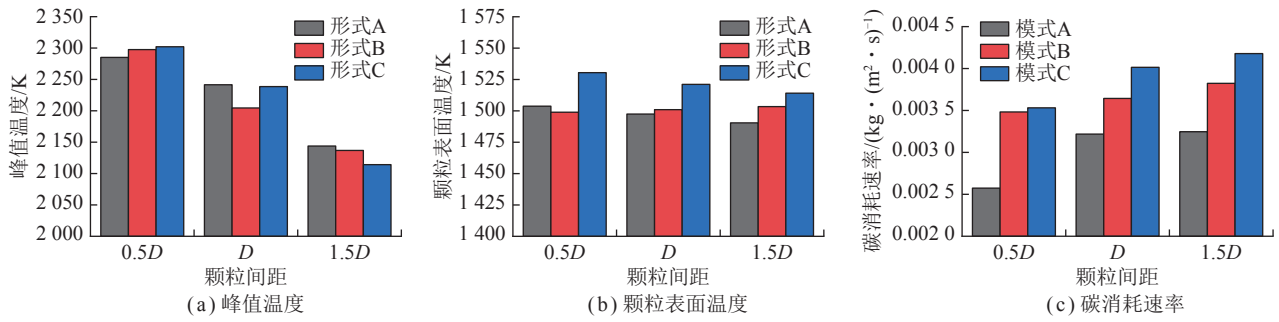


图 5 不同颗粒间距下 3 种颗粒群分散形式的煤焦燃烧特性

Fig.5 Particle group combustion with the different the distances between the particles

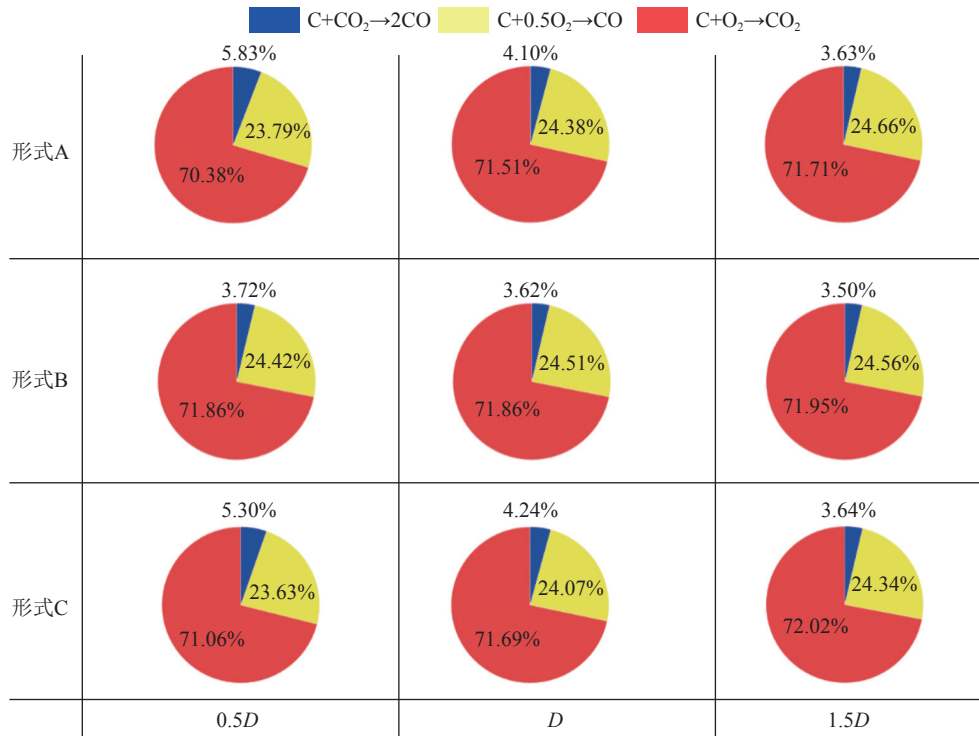


图 6 不同颗粒间距下 3 种颗粒群分散形式的煤焦各异相反应占比

Fig.6 Contribution of each heterogeneous reaction for the particle group combustion with the different the distances between the particles

CO<sub>2</sub> 气化减弱。

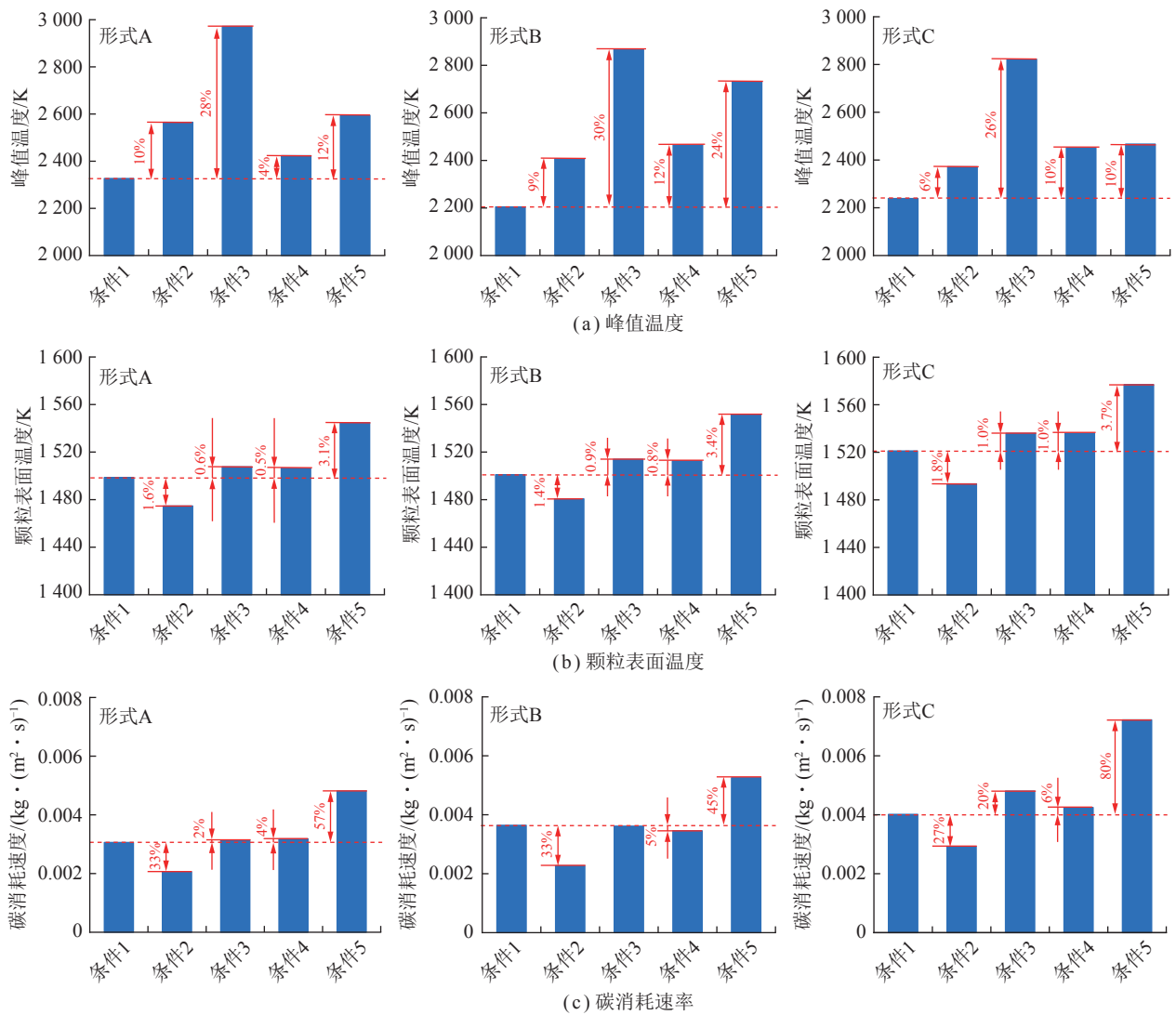
此外,相比之下,3种颗粒群分散形式的煤焦燃烧各异相反应占比受颗粒间距的影响依次为:形式A > 形式C > 形式B。

#### 2.4 环境气氛对煤焦燃烧的影响

图 7 为不同环境气氛下 3 种颗粒形式的煤焦燃烧特性。如图 7(a) 所示, O<sub>2</sub> 体积分数为 21% 时, N<sub>2</sub> 替换为 CO<sub>2</sub>, 颗粒群分散形式 A、B、C 的燃烧峰值温度分别增加 10%、9%、6%; N<sub>2</sub> 被 H<sub>2</sub>O 替代, 峰值温度则分别增加 4%、12%、10%, 这是因为气化反应产物 CO 和 H<sub>2</sub> 继续氧化, 释放热量, 导致燃烧温度升高。随着 O<sub>2</sub> 体积分数增至 30% 时, 在 CO<sub>2</sub> 工况下, 3 种颗粒群分散形式煤焦的峰值温度分别继续增加 18%、21%、20%; 在 H<sub>2</sub>O 工况下, 峰值温度则分别继续增加 8%、12%、0。这是因为提高氧气体积分数, 会同时加

强煤焦氧化反应以及 CO 氧化, 从而释放更多的热量。相比之下, H<sub>2</sub>O 工况下的燃烧温度变化幅度低于 CO<sub>2</sub> 工况, 这是由于 H<sub>2</sub>O 的比热容为 CO<sub>2</sub> 的 1.915 倍<sup>[2]</sup>, H<sub>2</sub>O 热效应导致峰值温度增幅降低。

如图 7(b) 所示, 在相同 O<sub>2</sub> 体积分数下, 将 N<sub>2</sub> 替换为 CO<sub>2</sub>, 3 种颗粒群分散形式的颗粒表面温度分别降低 1.6%、1.4%、1.8%; 将 N<sub>2</sub> 替换为 H<sub>2</sub>O, 表面温度则上升 0.5%、0.8%、1.0%。一般情况下, 煤焦气化反应的吸热效应强于气化产物氧化反应的放热效应, 因此在考虑气化反应时, 颗粒表面温度降低。然而, H<sub>2</sub>O 气氛中气化反应产物燃烧导致环境温度升高, 进而增加颗粒表面的温度, 该效应超过煤焦 H<sub>2</sub>O 气化反应导致颗粒表面温度降低的影响, 主要原因是 H<sub>2</sub>O 分子对反应  $\text{CO} + 1/2\text{O}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$  具有较强的促进效果, TURN 认为是 H<sub>2</sub>O 的“催化”效应<sup>[21]</sup>。因



注: 条件1为21% O<sub>2</sub>/79% N<sub>2</sub>; 条件2为21% O<sub>2</sub>/79% CO<sub>2</sub>; 条件3为30% O<sub>2</sub>/70% CO<sub>2</sub>; 条件4为21% O<sub>2</sub>/79% H<sub>2</sub>O; 条件5为30% O<sub>2</sub>/70% H<sub>2</sub>O。图8同。

图7 不同环境气氛下3种颗粒形式的煤焦燃烧特性

Fig.7 Particle group combustion under different atmospheres

此,在CO<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>O气氛下,该反应的反应速率不同,进而导致放热效应存在差异。

随着氧气体积分数上升至30%,CO<sub>2</sub>气氛下,颗粒群分散形式A、B、C的煤焦颗粒表面温度继续升高2.2%、2.3%、2.8%;H<sub>2</sub>O气氛下,表面温度继续升高2.6%、2.6%、2.7%。相比之下,对于同一颗粒群分散形式的煤焦颗粒表面温度,CO<sub>2</sub>气氛下的颗粒温度低于H<sub>2</sub>O气氛。

由图7(c)可以看出,在相同O<sub>2</sub>体积分数情况下,将N<sub>2</sub>替换为CO<sub>2</sub>,颗粒群分散形式A、B、C的碳消耗速率降低33%、33%、27%;将N<sub>2</sub>替换为H<sub>2</sub>O,碳消耗速率的变化为2%、-5%、6%。相比之下,煤焦CO<sub>2</sub>气化反应的增强,明显抑制了煤焦碳消耗速率;煤焦H<sub>2</sub>O气化反应的增强,则对煤焦碳消耗影响较小。随着O<sub>2</sub>体积分数由21%增至30%,CO<sub>2</sub>气氛下,颗

粒群分散形式A、B、C煤焦的碳消耗速率增加35%、33%、47%;在H<sub>2</sub>O气氛下,3种颗粒群分散形式煤焦的碳消耗速率相应增加了53%、50%、74%。这些现象说明增加氧气体积分数有利于促进煤焦燃烧,其主要原因在于:一是煤焦在高O<sub>2</sub>体积分数下,燃烧反应速率加快,进而快速释放热量,燃烧温度升高,同时促进了煤焦氧化反应和气化反应<sup>[7,10]</sup>。综合对比O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>工况,3种颗粒群分散形式的煤焦碳消耗速率受CO<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>O替换N<sub>2</sub>的影响大小依次为:形式C>形式A>形式B,且颗粒群分散形式C在30%O<sub>2</sub>/79%H<sub>2</sub>O工况下表现出最好的反应性。

图8为不同环境气氛下3种颗粒形式的煤焦各异相反应占比。可以看出,当O<sub>2</sub>体积分数相同时,随着N<sub>2</sub>分别被CO<sub>2</sub>取代,颗粒群分散形式A、B、C的煤焦异相反应(7)占比分别减少12.69%、12.51%、

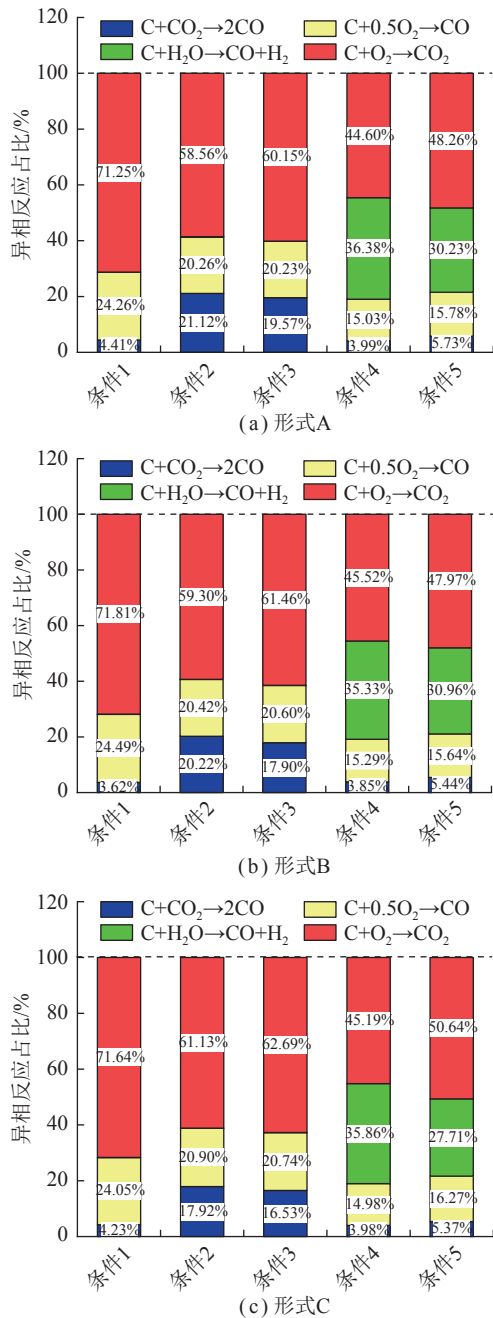


图8 不同环境气氛下3种颗粒形式的煤焦各异相反应占比

Fig.8 Contribution of each heterogeneous reaction for the particle groups under different atmospheres

10.51%, 反应(5)占比分别减少4.00%、4.07%、3.15%, 反应(4)占比分别增加16.71%、16.60%、13.69%; 随着 $N_2$ 被 $H_2O$ 取代, 颗粒群分散形式A、B、C的煤焦异相反应(7)占比分别减少26.65%、26.69%、26.45%, 反应(5)占比分别减少9.23%、9.20%、9.07%, 反应(4)占比变化了-0.42%、0.23%、-0.23%; 反应(6)占比分别增加36.38%、35.33%、35.86%。由此可见, 在相同环境气氛下不同颗粒群分散形式的煤焦异相反应占比分布基本一致, 随着 $CO_2$ 和 $H_2O$ 代替 $N_2$ , 煤焦气化反应增强, 均抑制了煤焦氧化反应。在 $O_2/H_2O$ 工况

下, 煤焦气化反应的抑制效果更加明显, 主要原因是煤焦与 $H_2O$ 气化反应较煤焦与 $CO_2$ 气化反应更易发生与进行, 与 $O_2$ 竞争碳反应活性位点更为明显。随着氧体积分数由21%增至30%,  $O_2/CO_2$ 工况下煤焦氧化反应(5)、(7)占比均有所增加, 煤焦 $CO_2$ 气化反应占比降低,  $O_2/H_2O$ 工况下煤焦完全氧化反应(7)有所增加, 部分氧化反应(5)占比基本保持不变, 煤焦 $H_2O$ 气化反应占比降低, 煤焦 $CO_2$ 气化反应略有增加。这说明随着 $O_2$ 体积分数增加, 煤焦燃烧速率变快, 热释放速率也随之加快, 导致燃烧温度升高。燃烧温度对煤焦燃烧的热效应和反应气氛对煤焦燃烧的浓度效应使得煤焦异相反应间关系更为复杂。

### 3 结 论

(1) 相较于单颗粒, 颗粒群的峰值温度升高约300 K, 颗粒表面温度降低约100 K, 碳消耗速率降低56%~65%。

(2) 随着颗粒间距增加, 颗粒群峰值温度下降142~188 K, 颗粒表面温度变化-16~4 K, 煤焦氧化反应占比上升0.22%~2.20%, 碳消耗速率随之增大9.8%~26.1%。

(3) 在高 $CO_2$ 和 $H_2O$ 气氛下, 燃烧群峰值温度较空气气氛增加4%~30%, 颗粒表面温度较空气气氛高0.5%~3.7%(21%  $O_2/79%$   $CO_2$ 工况除外), 30%  $O_2/70%$   $H_2O$ 工况碳消耗速率最大, 较空气气氛高80%, 21%  $O_2/79%$   $H_2O$ 工况煤焦气化反应(反应(4)和反应(6)之和)最大, 约为39%。

(4) 各颗粒间作用、颗粒间距和环境气氛工况下3种颗粒群分散形式的煤焦燃烧碳消耗速率依次为: 形式C > 形式B > 形式A, 主要原因是颗粒与气流之间的扰动作用对煤焦的消耗产生了影响。

### 参考文献(References):

- [1] IEA. Global energy review:  $CO_2$  emissions in 2021[EB/OL]. [2022-03-20]. <https://www.iea.org/reports/global-energy-review-co2-emissions-in-2021-2>.
- [2] ZHANG Z, ZHAO Z, ZHANG L. Recent progress in the gasification reaction behavior of coal char under unconventional combustion modes[J]. *Applied Thermal Engineering*, 2023, 220: 119742.
- [3] 黄强, 张立麒, 周栋, 等. 富氧燃烧烟气压缩净化的研究进展[J]. *化工进展*, 2018, 37(3): 1152-1160.  
HUANG Qiang, ZHANG Liqi, ZHOU Dong, et al. Research and development on the purification of oxy-fuel combustion flue gas in the process of compression[J]. *Chemical Industry and Engineering Progress*, 2018, 37(3): 1152-1160.
- [4] 胡其会, 李玉星, 张建, 等. “双碳”战略下中国CCUS技术现状及发展建议[J]. *油气储运*, 2022, 41(4): 361-371.

- HU Qihui, LI Yuxing, ZHANG Jian, et al. Current situation and development suggestions of CCUS technology in China under the “Double Carbon” strategy[J]. *Oil & Gas Storage and Transportation*, 2022, 41(4): 361–371.
- [5] 张泽武. 煤粉 MILD-Oxy 燃烧中  $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$  气化反应的影响机理研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2021.  
ZHANG Zewu. Influence mechanisms of  $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$  gasification during pulverized coal MILD-oxy Combustion[D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2021.
- [6] XUE Z, GUO Q, GONG Y, et al. Numerical study of a reacting single coal char particle with different pore structures moving in a hot  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  atmosphere[J]. *Fuel*, 2017, 206: 381–389.
- [7] ZHANG Z, ZHAO Z, WU F, et al. Reaction behaviors of a single coal char particle affected by oxygen and steam under oxy-fuel combustion[J]. *Fuel*, 2021, 291: 120229.
- [8] XUE Z, GONG Y, GUO Q, et al. Conversion characteristics of a single coal char particle with high porosity moving in a hot  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  atmosphere[J]. *Fuel*, 2019, 256: 115967.
- [9] RICHTER A, NIKRITYUK P A, KESTEL M. Numerical investigation of a chemically reacting carbon particle moving in a hot  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  atmosphere[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2013, 52(16): 5815–5824.
- [10] ZHANG Z, ZHONG Y, ZHAO Z, et al. Numerical study on heterogeneous reaction characteristics of a single coal char particle under air- and oxy-fuel combustion: Effects of particle motion[J]. *Fuel*, 2022, 320: 123919.
- [11] LU H, GUO Q, GONG Y, et al. Numerical simulation of double chemically reacting particles moving in hot  $\text{O}_2/\text{CO}_2$  atmospheres[J]. *Fuel*, 2023, 332: 126043.
- [12] 邹春. 基础燃烧学[M]. 武汉: 华中科技大学出版社, 2021: 172–178
- [13] KARLSTRÖM O, BRINK A, HUPA M, et al. Multivariable optimization of reaction order and kinetic parameters for high temperature oxidation of 10 bituminous coal chars[J]. *Combustion and Flame*, 2011, 158(10): 2056–2063.
- [14] KARLSTRÖM O, BRINK A, BIAGINI E, et al. Comparing reaction orders of anthracite chars with bituminous coal chars at high temperature oxidation conditions[J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2013, 34(2): 2427–2434.
- [15] SHEN Z, LIANG Q, XU J, et al. Study on the combustion characteristics of a two-dimensional particle group for coal char and petroleum coke particles[J]. *Fuel*, 2019, 253: 501–511.
- [16] NIU Y, LIU S, YAN B, et al. Experimental and kinetics studies on separate physicochemical effects of steam on coal char combustion[J]. *Combustion and Flame*, 2020, 220: 168–177.
- [17] LIU S, WEN L, NIU Y, et al. Separate physicochemical effects of  $\text{CO}_2$  on the coal char combustion: An experimental and kinetic study[J]. *Combustion and Flame*, 2022, 235: 111717.
- [18] NIKRITYUK P A, GRÄBNER M, KESTEL M. Numerical study of the influence of heterogeneous kinetics on the carbon consumption by oxidation of a single coal particle[J]. *Fuel*, 2013, 114: 88–98.
- [19] ZHANG J, PRATIONO W, ZHANG L, et al. Computational fluid dynamics modeling on the air-firing and oxy-fuel combustion of dried victorian brown coal[J]. *Energy & Fuels*, 2013, 27(8): 4258–4269.
- [20] MAO Z, ZHANG L, ZHU X, et al. Modeling of an oxy-coal flame under a steam-rich atmosphere[J]. *Applied Energy*, 2016, 161: 112–123.
- [21] TURNS S. An introduction to combustion [M]. 2nd ed. Boston: McGraw-Hill, 2000.
- [22] JONES W P, LINDSTEDT R P. Global reaction schemes for hydrocarbon combustion[J]. *Combustion and Flame*, 1988, 73(3): 233–249.
- [23] WU Y, SMITH P J, ZHANG J, et al. Effects of turbulent mixing and controlling mechanisms in an entrained flow coal gasifier[J]. *Energy & Fuels*, 2010, 24(2): 1170–1175.
- [24] NIKRITYUK P, MEYER B. Pseudo-steady-state approach for carbon particle combustion gasification, gasification processes: Modeling and simulation[M]. Wiley VCH, 2014: 205–40.