

# 双流化床中煤的热解特性试验研究

吕清刚, 刘琦, 那永洁, 赵科, 贺军

(中国科学院工程热物理研究所, 北京市 海淀区 100080)

## Experimental Research on Pyrolysis Characteristics of Coal in Dual Fluidized Beds

LÜ Qing-Gang, LIU Qi, NA Yong-Jie, ZHAO Ke, HE Jun

(Institute of Engineering Thermophysics, Chinese Academy of Sciences, Haidian District, Beijing 100080, China)

**ABSTRACT:** Experimental researches of shenmu bituminous coal pyrolysis characteristics were completed in a dual fluidized beds test rig. Results show that carbon releases in gasifier, mostly, while hydrogen releases in pyrolyzer mostly. In the range of 450-850 °C of pyrolysis temperature, the pyrolysis products yield increases with temperature, the pyrolysis efficiency reaches the highest in 550 °C of pyrolysis temperature. The tar yield reaches the highest in 550 °C of pyrolysis temperature, the pyrolysis time has few impact on the pyrolysis process. The volume proportion of in the pyrolysis gas has a relation of  $H_2 > CH_4 > CO > CO_2$ , the heat value decreases while the gas yields increases with the temperature.

**KEY WORDS:** fluidized bed; pyrolysis; gas; tar

**摘要:** 在双流化床试验台上, 对神木煤的热解特性进行了试验研究。结果表明, 在试验温度范围内, 煤中的碳元素主要汇集于燃烧炉尾气, 氢元素主要汇集于热解炉产物中。在热解炉温度 450~850 °C 的范围内, 热解产品质量收率随着热解炉温度的升高而上升, 热解炉冷效率在 550 °C 达到峰值。试验条件下, 热解焦油质量收率在热解温度 550 °C 时达到峰值; 热解停留时间对热解焦油的产率影响不大。热解炉煤气各组分体积分数关系为:  $H_2 > CH_4 > CO > CO_2$ ; 随着热解炉温度升高, 热解气体热值降低, 热解气体产率升高。

**关键词:** 流化床; 热解; 煤气; 焦油

## 0 引言

双流化床技术是近年来兴起的一种新型技术, 主要用于煤和生物质等燃料的分级利用<sup>[1-4]</sup>。中科院过程工程研究所、中科院山西煤化所、浙江大学、清华大学、大连理工大学等多个单位先后开展了相应的研究<sup>[5-7]</sup>。中科院工程热物理研究所于 2005 年搭建了双流化床热态试验台, 并开展了煤的双流化床气化特性试验研究<sup>[8-9]</sup>。

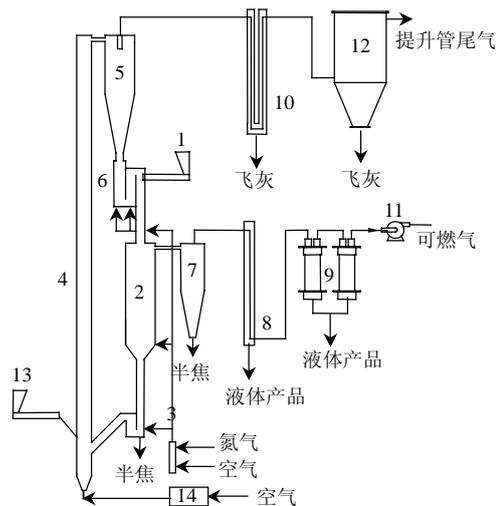
随着郭慕孙院士‘煤拔头’概念的提出, 利用

双流化床分离煤中高品质油产品的研究逐渐深入<sup>[10-12]</sup>。在气化试验基础上, 中科院工程热物理所改进了双流化床试验系统, 对煤的热解与部分燃烧综合工艺进行了研究, 并取得部分热态数据, 本文将对试验结果进行详细分析。

## 1 试验系统与过程

### 1.1 试验系统

双流化床煤热解-部分燃烧试验系统的工艺流程如图 1 所示。经过破碎筛分的煤颗粒通过螺旋给料机加入热解炉, 在其中与来自于燃烧炉的高温循环物料混合并被迅速加热, 煤在此过程中发生热解, 热解气体在辅助气的助推下迅速离开底部高温物料层, 并经过高温分离去除其中飞灰后被冷却, 可凝物成为液相产品被收集, 不可凝气体成为高热



1—螺旋给料机; 2—热解炉; 3—气动返料器; 4—燃烧炉; 5—主旋风分离器; 6—U型返料器; 7—热解炉旋风分离器; 8—一级水冷器; 9—二级水冷器; 10—燃烧炉水冷器; 11—抽气泵; 12—布袋除尘器; 13—启炉螺旋给料机; 14—空气预热器。

图 1 双流化床煤热解气化工序流程图

Fig. 1 Schematic diagram of dual fluidized beds system

值煤气做其他用途。热解半焦通过热解炉与燃烧炉之间的连接装置进入燃烧炉中，部分燃烧并放出热量加热循环物料，物料经燃烧炉进入热解炉开始新一轮循环。

双流化床煤热解-部分燃烧试验台本体由燃烧炉、热解炉通、上返料器和下返料器4个主要部分及连接管构成。燃烧炉尺寸为 $\phi 100\text{ mm}\times 3\ 000\text{ mm}$ ，热解炉尺寸为 $\phi 200\text{ mm}\times 900\text{ mm}$ ，燃烧炉和热解炉通过上返料器和下返料器连接。热态试验中，系统的循环倍率为4~8，并控制燃烧炉旋风分离器出口表压为零。

### 1.2 试验过程

热态启动前，向上返料器内加入河砂1.5 kg，向热解炉内加入河砂4.5 kg，向燃烧炉内加河砂2.5 kg，然后利用电炉和液化气燃烧产生的热量对燃烧炉进行预热。当燃烧炉被加热至400℃后，向燃烧炉投煤，系统改为自热式（煤在燃烧炉中燃烧）加热。待燃烧炉密相区温度达到800℃后，通过下返料器断续返料将热解炉内较冷的河砂逐步循环至燃烧炉进行加热。当热解炉密相区温度达到450℃时，将上返料器、下返料器、热解炉料位监测风全部切换为N<sub>2</sub>氛围并开始向热解炉内投煤，同时调节燃烧炉空气量到18 m<sup>3</sup>/h（对应表观风速2.3 m/s），停止燃烧炉给煤。当温度波动逐渐趋于稳定后，标志着进入热解工况。保持该工况2 h后，试验结束。

试验中，采用ICK-MAIHAK S710 煤气分析仪在线分析热解炉热解气中H<sub>2</sub>、CO、CO<sub>2</sub>和CH<sub>4</sub>的浓度。燃烧炉尾气成分在启炉过程中采用KM9106 便携式烟气分析仪在线分析，启炉完成并进入热解工况后，尾气成分改用ICK-MAIHAK S710 煤气分析仪在线分析。试验系统的温度、压力、螺旋给煤机转速和煤气成分均由计算机实时采集并记录，气体流量由人工读取并记录。

### 1.3 试验煤种

试验采用0.1~1 mm宽筛分粒径神木烟煤作为燃料，粒径分布见图2。该煤种为低灰、高发热量、高挥发分弱黏煤，葛金分析焦油产率为10.2%，其工业与元素分析结果见表1。

表1 神木烟煤工业分析与元素分析结果  
Tab. 1 Ultimate and proximate analysis of Shenmu bituminous coal

元素分析/%					工业分析/%				Q <sub>net,ar</sub> / (kJ/kg)
C <sub>ar</sub>	H <sub>ar</sub>	O <sub>ar</sub>	S <sub>ar</sub>	N <sub>ar</sub>	M <sub>ar</sub>	A <sub>ar</sub>	V <sub>ar</sub>	FC <sub>ar</sub>	
63.13	4.1	10.05	0.57	1.02	9.1	12.02	32.08	46.8	25 510

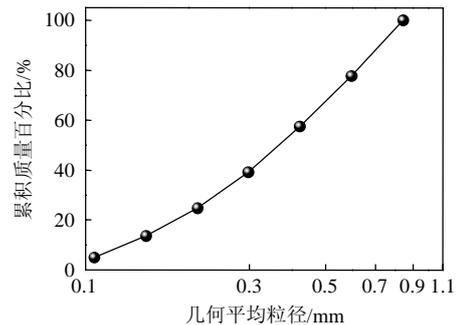


图2 试验煤种的粒径分布

Fig. 2 Particle size distribution of experiment coal

## 2 试验结果与分析

### 2.1 基本定义

在双流化床煤热解气化综合工艺中，高附加值的油产品和高热值煤气都在热解炉产生，燃烧炉主要作为辅助热源。本文中主要就热解炉展开研究，并在文中有如下定义：质量收率指产品的质量相对于给煤量的质量百分数；热解焦油效率、热解煤气效率分指热解焦油、热解煤气的化学能相对于给煤总化学能的百分比。

### 2.2 碳氢元素的汇集

物料在热解炉与燃烧炉之间进行循环，并形成了系统特殊的碳氢元素汇集情况。在热解温度550℃，热解停留时间187 s时，其结果如表2所示。

表2 碳元素在各种产物中的汇集

Tab. 2 Distribution of carbon in experiment products %

试验产物	热解焦油	热解煤气	燃烧炉尾气	热解水	半焦	飞灰
碳质量分数	10.76	7.6	49.3	—	21.54	10.8
氢质量分数	13.58	31.16	9.81	24.88	10.94	9.63

从表2可知，试验中碳元素主要进入了燃烧炉尾气中，而氢元素主要进入热解煤气和热解水。这说明氢元素主要在热解炉析出，而碳元素主要在燃烧炉析出。经过分析，从热解炉进入燃烧炉的半焦含碳量在85%左右，氢的含量约8%，部分解释了前面所述的现象。进一步观察证明，随着热解炉温度升高，热解炉中碳、氢元素的析出比例明显上升，即低温条件不利于碳元素的析出。

同时，飞灰中的碳氢元素残留比例偏高。这是由于试验中，热解炉旋风分离器分离下来的未热解煤颗粒被计入飞灰，造成了整体飞灰量的增加。如果能够将这部分颗粒回送炉膛，则系统的整体效率会有所提高。

### 2.3 热解炉温度对热解产物的影响

煤阶和温度是影响热解的2大要素<sup>[13]</sup>。温度的

变化影响煤中大分子的化学反应过程，并因此形成物化特性各异的各种热解产物。图 3 表明了热解炉温度对热解炉效率的影响。其中热解炉冷效率指热解焦油与热解煤气的效率总和，热解油气质量收率为热解焦油和热解煤气质量收率的总和。

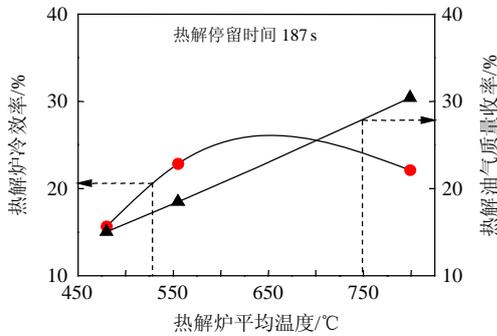


图 3 热解炉温度对热解炉冷效率的影响

Fig. 3 Effect of ultimate temperature on efficiency

由图看出，随着热解炉温度的升高，热解产物的质量收率近乎直线递增，说明高温有利于煤中挥发分的析出，这已被其他研究证实<sup>[14-15]</sup>。但是热解炉冷效率却先升后降，说明热解炉温度 550 °C 时，生成的热解产物中有更多高热值、高密度的产品。当以热解焦油与热解煤气作为主要产品时，双流化床系统的热解炉应当运行于此温度区域附近。

在双流化床系统中，不同热解炉温度对热解煤气的产率及热值影响如图 4 所示。由图知，在给煤量为 6 kg/h 时，随着热解炉平均温度的上升，热解煤气的热值由 20.46 MJ/m<sup>3</sup> 下降为 13.53 MJ/m<sup>3</sup>，热解煤气产率由 0.47 m<sup>3</sup>/h 上升至 1.83 m<sup>3</sup>/h。这表明高温环境促进了气体的形成。同时，高温下煤中的自由基更易形成性质稳定的小分子气体，而非形成分子量较大、热值较高的多碳烃类及油类产品。

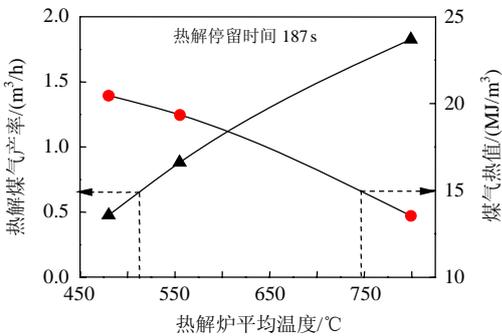


图 4 热解炉温度对热解煤气的影响 I

Fig. 4 Effect of ultimate temperature on pyrolysis gas I

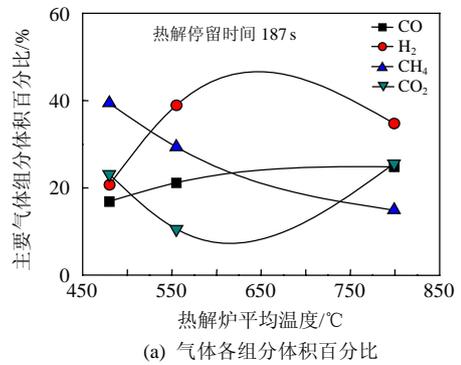
热解煤气主要组分随热解炉温度的变化如图 5 所示。

可以看出，随着热解温度的上升，CO 的体积百

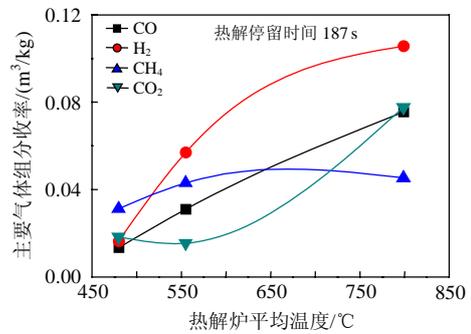
分比变化不大，但由于产气量的大幅提升，CO 质量收率明显上升，表明温度的升高促进了 CO 的形成<sup>[16]</sup>。CH<sub>4</sub> 的体积百分含量降低，但质量收率变化很小，说明 CH<sub>4</sub> 的产率受温度影响较小，主要取决于煤分子内的特殊结构。H<sub>2</sub> 的质量收率随温度增加而升高，这有 2 方面原因：1) 煤中的侧链在高温下断裂时更趋向于形成 H<sub>2</sub>；2) 热解焦油二次裂解反应在高温下更加强烈，其主要产物之一为 H<sub>2</sub><sup>[17]</sup>。CO<sub>2</sub> 的体积百分比与质量收率在试验中均呈现出先降后升的趋势，结合焦油产率随温度变化的特点，可以认为，O 元素在这个阶段更多的进入了焦油。

热解炉温度对焦油产率的影响如图 6 所示。

热解焦油的质量收率在 550 °C 左右达到系列



(a) 气体各组分体积百分比



(b) 气体各组分收率(煤基)

图 5 热解炉温度对热解煤气的影响 II

Fig. 5 Effect of ultimate temperature on pyrolysis gas II

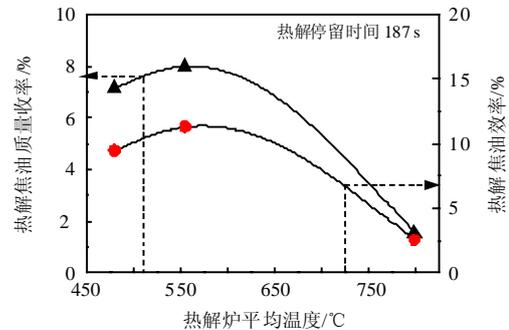


图 6 热解炉温度对热解焦油的影响

Fig. 6 Effect of ultimate temperature on pyrolysis tar  
试验的最高点 7.99% (占煤种葛金分析焦油产率的

78.3%)，随后迅速降低，热解平均温度达到 799 °C 时，热解焦油的质量收率已降至 1.54%。同样，热解焦油效率也在 550 °C 达到试验系列极高。这表明在双流化床系统中，热解温度对焦油的产率和效率都有显著影响，在 450~800 °C 区间内，存在一个系统最佳热解温度，此温度在 550 °C 附近，此时煤的焦油产率最高。这与李海滨<sup>[18]</sup>和 Tyler<sup>[19-20]</sup>等人得到的焦油产率-温度曲线类似，所不同的是各自的液体最大产率对应温度略有不同(Tyler: 500~606 °C; 李海滨 600~650 °C)。这可能是由于热解产物的二次裂解程度不同造成的。

#### 2.4 热解停留时间对热解产物的影响

热解停留时间是影响热解过程的另一个重要因素。根据前人研究，热解停留时间的增长有利于热解效率的提高，但会使焦油产率降低<sup>[17]</sup>。

热解炉温度 550 °C 时，在双流化床试验台中得到的结果如图 7 所示。随着热解停留时间的增加，热解煤气的产率逐渐增加，总的热解效率也有所提升。但热解焦油的产率随停留时间的增加变化不明显。这说明在试验条件下，双流化床系统的热解停留时间对热解焦油的影响较小。

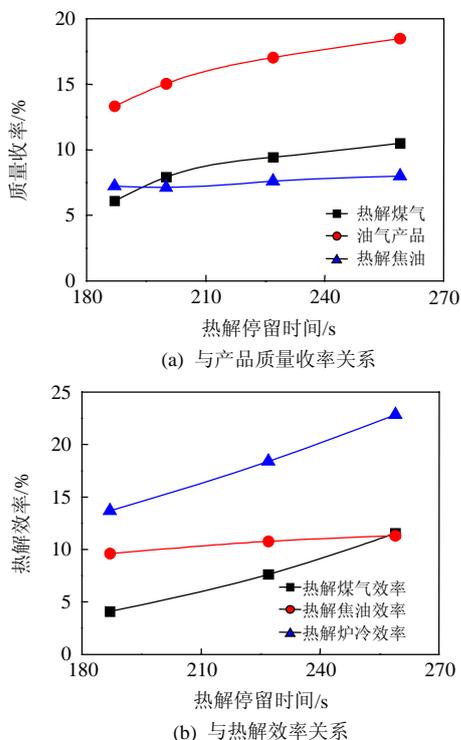


图7 热解停留时间对热解产物的影响

Fig. 7 Effect of residue time on pyrolysis products

由于试验煤种 $d_{50}=0.36$  mm，颗粒较细，煤热解生成的焦油分子能够相对迅速的到达煤颗粒表面；在工况条件下，热解炉运行于鼓泡床状态，气固间

的剧烈相对运动使得焦油分子很快进入气相区；由于热解炉气相区温度较低，焦油在气相区的二次裂解几率降低。综合以上分析，本试验中焦油产率主要取决于温度，相对而言停留时间对其影响不大。

### 3 结论

在双流化床试验系统中进行了神木煤热解与部分燃烧综合工艺特性试验，并得出以下结论：

1) 工艺中，煤中的碳元素主要汇集于燃烧炉尾气，氢元素主要汇集于热解炉产物中；

2) 在热解炉温度 450~850 °C 的范围内，热解温度对热解产物有显著影响；随着热解炉温度的升高，热解产品质量收率上升，热解炉冷效率在 550 °C 达到峰值。

3) 试验条件下，热解焦油产率在 550 °C 达到峰值；热解焦油质量收率主要取决于温度，相对而言热解停留时间对热解焦油质量收率影响不大。

4) 热解炉煤气各组分体积分数关系为： $H_2 > CH_4 > CO > CO_2$ ；随着热解炉温度升高，热解气体热值降低，热解气体产率升高。

### 参考文献

- [1] Fan M, Luo Z. A multi-product cogeneration system using combined coal gasification and combustion[J]. Energy, 1998, 23(3): 203-212.
- [2] Pfeifer C, Rauch R, Hofbauer H. In-bed catalytic tar reduction in a dual fluidized bed biomass steam gasifier[J]. Industrial and Engineering Chemistry Research, 2004, 43(7): 1634-1640.
- [3] Thunman H, Åmand L E, Leckner B, et al. A cost effective concept for generation of heat, electricity and transport fuel from biomass in fluidized bed boilers-using existing energy infrastructure [R]. Proceedings of the 15th European Biomass Conference & Exhibition- From research to market Deployment, Berlin, 2007.
- [4] Sung Y K, Song J H, Bang B R, et al. A hydrodynamic characteristic of a dual fluidized bed gasification [C]. Proceedings of the 20th International Conference on Fluidized Bed Combustion, Xi'an, 2009: 664-668.
- [5] 王志锋, 梁鹏, 董众兵, 等. CFB 煤燃烧/热解双反应器中热解室对立管内气固流动特性的影响[J]. 燃料化学学报, 2004, 32(6): 711-716.  
Wang Zhifeng, Liang Peng, Dong Zhongbing, et al. Effects of pyrolysis chamber on gas / solid flow characteristics of the standpipe in a CFB combined with coal pyrolysis reactor system[J]. Journal of Fuel Chemistry and Technology, 2004, 32(6): 711-716(in Chinese).
- [6] Xu Gw, Murakami T, Suda T, et al. The superior technical choice for dual fluidized bed gasification[J]. Industrial and Engineering Chemistry Research, 2006, 45(7): 2281-2286.
- [7] 刘耀鑫, 李润东, 杨天华, 等. 流化床常压空气部分气化和半焦燃烧的试验研究[J]. 中国电机工程学报, 2008, 28(11): 11-17.  
Liu Yaoxin, Li Rundong, Yang Tianhua, et al. Experimental study on combining partial gasification with air on a fluidized bed at

- atmospheric pressure and semi-coke combustion[J]. Proceedings of the CSEE, 2008, 28(11): 11-17(in Chinese).
- [8] Fan Xiaoxu, Lü Qinggang, Na Yongjie, et al. Experimental study on coal multi-generation in dual fluidized beds[J]. Journal of Thermal Science, 2007, 16(3): 277-282.
- [9] 吕清刚, 刘琦, 范晓旭, 等. 双流化床煤气化试验研究[J]. 工程热物理学报, 2008, 29(8): 1435-1439.  
Lü Qinggang, Liu Qi, Fan Xiaoxu, et al. Experimental study on gasification in dual fluidized beds[J]. Journal of Engineering Thermophysics, 2008, 29(8): 1435-1439(in Chinese).
- [10] 王杰广, 吕雪松, 姚建中, 等. 下行床煤拔头工艺的产品产率分布和液体组成[J]. 过程工程学报, 2005, 5(3): 241-245.  
Wang Jieguang, Lü Xuesong, Yao Jianzhong, et al. Liquid composition and products yields of coal topping process in downer [J]. The Chinese Journal of Process Engineering, 2005, 5(3): 241-245(in Chinese).
- [11] 许光文, 刘新华, 高士秋. 固体燃料联合热转化方法及装置: 中国, 200710098713.6 [P]. 2008-10-29.  
Xu Guangwen, Liu Xinhua, Gao Shiqiu. A method and an equipment of thermal transition for solid-fuel combines: CN, 200710098713.6 [P]. 2008-10-29(in Chinese).
- [12] Wang Baoqun, Dong Li, Wang Yin, et al. Process analysis of lignite circulating fluidized boiler coupled with pyrolysis topping [C]. Proceedings of the 20th International Conference on Fluidized Bed Combustion, Xi'an, 2009: 706-711.
- [13] 谢克昌. 煤的结构与反应性[M]. 北京: 科学出版社, 2002: 21.  
Xie Kechang. Construction and reactivity of coal[M]. Beijing: Science Press, 2002: 21(in Chinese).
- [14] 杨海平, 陈汉平, 鞠付栋, 等. 热解温度对神府煤热解与气化特性的影响[J]. 中国电机工程学报, 2008, 28(8): 31-36.  
Yang Haiping, Chen Hanping, Ju Fudong, et al. Influence of temperature on coal pyrolysis and char gasification[J]. Proceedings of the CSEE, 2008, 28(8): 31-36(in Chinese).
- [15] 王俊琪, 方梦祥, 骆仲泱, 等. 煤的快速热解动力学研究[J]. 中国电机工程学报, 2007, 27(17): 18-22.  
Wang Junqi, Fang Mengxiang, Luo Zhongyang, et al. Research on fast thermolysis kinetics of coal[J]. Proceedings of the CSEE, 2007, 27(17): 18-22(in Chinese).
- [16] 李海滨, 王洋, 张碧江. 煤在流化床中的热解 I. 浓相温度对煤脱挥发分行为的影响[J]. 燃料化学学报, 1998, 26(3): 238-242.  
Li Haibin, Wang Yang, Zhang Bijiang. Pyrolysis of coal in a fluidized bed reactor I. effect of temperature on the devolatilization behaviour of coal[J]. Journal of Fuel Chemistry and Technology, 1998, 26(3): 238-242.
- [17] Zhao R F, Huang W, Chang L P. Pyrolysis simulation of three kinds of coals, part(I) the composition and evolution of gaseous products[J]. Coal Conversion, 2000, 23(4): 37-41.
- [18] 李海滨, 房倚天, 王洋, 等. 二次反应对煤热解产品组成的影响[J]. 化学工业与工程, 1997, 14(4): 45-62.  
Li Haibin, Fang Yitian, Wang Yang, et al. The effects of secondary reaction on the product composition of coal pyrolysis[J]. Chemical Industry and Engineering, 1997, 14(4): 45-62(in Chinese).
- [19] Tyler R J. flash pyrolysis of coals: devolatilization of a Victorian brown coal in a small fluidized bed reactor[J]. Fuel, 1979, 58(9): 680-686.
- [20] Tyler R J, Schafer H N S. Flash pyrolysis of coals: influence of cations on the devolatilization behavior of brown coals[J]. Fuel, 1980, 59(7): 487-494.



吕清刚

收稿日期: 2009-07-16。

作者简介:

吕清刚(1963—), 男, 博士, 研究员, 博士生导师, 长期从事循环流化床燃烧及多种燃料的热解气化技术方面的研究, qglu@mail.etp.ac.cn;

刘琦(1980—), 男, 中国科学院研究生院博士研究生, 主要从事煤的循环流化床热解气化技术方面的研究, liuqi@mail.etp.ac.cn。

(责任编辑 王庆霞)