

文章编号: 1001-8719(2020)06-1189-11

# 双循环流化床化学链燃烧反应器冷态实验研究

马璘晨<sup>1,2</sup>, 赵海波<sup>1</sup>, 黄振<sup>2</sup>, 魏国强<sup>2</sup>

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

2. 中国科学院 可再生能源重点实验室, 广东 广州 510640)

**摘要:** 针对化学链燃烧反应器, 特别设计了双循环流化床反应器。提出“鼓泡流化床/湍动流化床+提升管”的设计, 通过提升管提供颗粒循环的动力, 调整2个流化床反应器(空气反应器和燃料反应器)的流化气速以分别控制反应器的固体循环流量; 提出双向流动密封阀的设计, 形成对固体循环流量和床料量分布的柔性控制。建立了全尺寸双循环流化床冷态实验装置, 并进行了连续稳定的冷态运行, 实验研究了不同运行操作条件对反应器性能的影响。实验结果表明, 流动密封阀内压力差范围在955~1834 Pa, 固体循环流量范围在0.27~0.38 kg/s, 双循环流化床之间的气体泄漏率为0.10%~0.22%。冷态实验提供了流体动力学参量, 并验证了设计的可行性。

**关键词:** 化学链燃烧; 冷模; 双向流动密封阀; 固体循环流量

**中图分类号:** TK16 **文献标识码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1001-8719.2020.06.009

## Cold-Model Experiment of Dual Circulating Fluidized Bed Reactor for Chemical Looping Combustion

MA Jinchen<sup>1,2</sup>, ZHAO Haibo<sup>1</sup>, HUANG Zhen<sup>2</sup>, WEI Guoqiang<sup>2</sup>

(1. State Key Laboratory of Coal Combustion, School of Energy and Power Engineering, Huazhong University of Science &amp; Technology, Wuhan 430074, China; 2. Key Laboratory of Renewable Energy, CAS, Guangzhou 510640, China)

**Abstract:** The dual circulating fluidized bed reactor was designed for chemical looping combustion. The reactor was set as a turbulent bed or bubbling bed connected with a riser, respectively, which provided the driving force for the solid circulation. The solid circulation rate was adjusted by the gas velocity in the fluidized bed reactor. A two-way loop seal was configured to regulate flexibly the solid circulation rates and the mass distribution of the bed inventories in the system. A full scale cold-model dual circulating fluidized bed reactor was built. A continuous operation of the cold-model was investigated on the effects of the operational parameters on the performance of the reactor. The results show that the range of the pressure difference of loop seal is 955–1834 Pa, the solids circulation rate is 0.27–0.38 kg/s, and the gas leakage is 0.10%–0.22%. Our cold-model experiment provides the fluid dynamic parameters, and verifies the feasibility of the reactor design.

**Key words:** chemical looping combustion; cold-model; two-way loop seal valve; solid circulation rate

全球气候变暖已成为人们普遍关注的焦点问题, 因此 CO<sub>2</sub> 减排技术成为研究热点。目前主要的 3 种

CO<sub>2</sub> 捕捉技术为燃烧前 CO<sub>2</sub> 捕捉技术, 以整体煤气化联合循环发电(IGCC)为代表; 燃烧中 CO<sub>2</sub> 捕集,

收稿日期: 2020-07-08

基金项目: 国家重点研发计划项目(2018YFB0605402)、中国科学院可再生能源重点实验室项目(Y907ka1001)、中国博士后科学基金项目(2019M662618)基金资助

第一作者: 马璘晨, 男, 讲师, 博士, 从事化学链燃烧研究, E-mail: majinchen01@126.com

通讯联系人: 赵海波, 男, 教授, 博士, 从事化学链燃烧研究, E-mail: hzhao@hust.edu.cn

以富氧燃烧技术和化学链燃烧技术为代表;燃烧后  $\text{CO}_2$  捕捉技术,包括物理或化学吸附对尾气中的  $\text{CO}_2$  进行捕捉。化学链燃烧技术<sup>[1]</sup>因具有  $\text{CO}_2$  内分离特性,可低能耗低成本捕集  $\text{CO}_2$ ,因此成为研究焦点,其中研究关注点主要为反应器设计运行<sup>[2]</sup>和载氧体制备优选<sup>[3-4]</sup>。

Lyngfelt 等<sup>[5]</sup>首次提出化学链燃烧反应器设计方案并建造冷态模型验证,认为串行流化床反应器是最适合的化学燃烧反应器,通过非机械阀<sup>[6-7]</sup>/机械阀<sup>[8]</sup>建立系统固体循环。载氧体基于在空气反应器和燃料反应器中的循环传递晶格氧,实现能量梯级利用,提高燃料化学能利用效率<sup>[9]</sup>。双循环流化床技术是最适合的化学链燃烧反应器之一,目前已发展了不同规模( $0.1 \sim 1000 \text{ kW}_{\text{th}}$ )<sup>[7-8,10-14]</sup>、不同设计形式(移动床<sup>[15]</sup>、鼓泡流化床<sup>[16-17]</sup>、喷动流化床<sup>[18]</sup>、多级鼓泡流化床<sup>[19]</sup>等)、适合不同燃料类型<sup>[20-21]</sup>和不同化学链技术<sup>[22-24]</sup>的反应器。

反应器设计、冷模运行验证是化学链燃烧反应器发展的必要途径。冷态模型可对热态反应装置的流体动力学规律(系统压力平衡<sup>[25]</sup>、流动密封阀压力差<sup>[17]</sup>等)进行验证,探索相关操作参数(空气反应器和燃料反应器的操作气速)对于化学链燃烧反应器的关键技术指标(固体循环流率<sup>[26]</sup>、气体泄漏率<sup>[2]</sup>、物料平衡<sup>[26]</sup>)的影响;或者对独特设计形式的系统组件(煤基化学链燃烧反应器中的碳分离器<sup>[27]</sup>)进行测试验证,积累相关双循环流化床化学链燃烧反应器操作经验。Johansson 等<sup>[2]</sup>依据相似准则建造小于热态模型的  $10 \text{ kW}_{\text{th}}$  气体燃料化学链燃烧反应器,探索气体泄漏途径,发现从流动密封阀到燃料反应器的泄漏率大于 6%,可通过设计水蒸气/ $\text{CO}_2$  作为流化气减少此部分泄漏。随后建立较为复杂的  $100 \text{ kW}_{\text{th}}$  串行流化床冷态模型<sup>[26]</sup>,对床料平衡、系统压力降、停留时间等关键参数进行研究。在改变操作参数工况中,通过燃料反应器和空气反应器的压力差判定其中床料的稳定性,并且气速的改变对反应器内部床料量的影响甚微,系统有一定的操作余量,能连续稳定运行。通过拟合提升管的操作气速和固体循环流率可知,二者呈近似线性关系。Bischi 等<sup>[25]</sup>设计  $150 \text{ kW}_{\text{th}}$  化学链串行流化床冷态反应器,并建造 1:1 全尺寸冷模型的反应器,以减少壁面效应对流体动力学的影响。特别地,设计双向流动密封阀建立空气反应器/燃料反应器的内部循环,采用三室三路流化气分别控制整体与内部的固

体循环流量。主要研究了在不同比例的一次风和二次风操作变量下,空气反应器和燃料反应器中固体循环流量和床料量容纳能力的变化。Pröll 等<sup>[28]</sup>设计了低床料、高通量的循环流化床化学链燃烧反应器,通过二次风的引入提高相应床料量的容纳能力。在冷模实验中,分析了双流化床反应器系统压力平衡,评估了流动密封阀气氛隔绝能力等。Sun 等<sup>[27]</sup>设计了依据不同颗粒密度差分离载氧体的炭分离器,并以不同密度的塑料珠和钛铁矿颗粒在冷态模型中验证设计的可行性。结果表明,操作气速是炭分离效率的关键因素,归因于高气速满足气流携带能力;认为充足的颗粒停留时间有利于提高炭转化率。Ding 等<sup>[29]</sup>设计与 Lyngfelt 等<sup>[5]</sup>相似的串行流化床化学链燃烧反应器冷态模型,并对其操作特性进行了相应的研究。

笔者在前期冷态模型研究<sup>[30-31]</sup>的基础上,设计燃料反应器为“下端扩大段+上端提升管”的形式,克服溢流口对固体循环流量的限制,以满足化学链燃烧技术高循环流量的工艺过程<sup>[32]</sup>。在此反应器系统中,空气反应器和燃料反应器的提升管均可提供颗粒循环的动力,因此反应器间的物料平衡成为亟待测试的点。针对于此,特设计了双向返料流动密封阀<sup>[33]</sup>,实现单循环流化床的内循环和双循环流化床的整体循环,以及双循环流化床的固体循环流量柔性控制。建造全尺寸双循环冷态实验装置,减少壁面效应对反应器内部流动的影响<sup>[25]</sup>,进行不同操作工况的研究,分析了不同工况下的系统压力分布、固体循环流量和气体泄漏率等对双循环流化床化学链燃烧反应器的运行特性影响。

## 1 双循环流化床反应器设计思路及参数

空气反应器(Air reactor, AR):下端扩大段设计为湍动流化床,保证相对均匀的气-固混合,提高传热效率。

燃料反应器(Fuel reactor, FR):下端扩大段采用鼓泡流化床,保证床料充足,延长燃料停留时间。

提升管:空气反应器和燃料反应器的上端设计为提升管,通过缩小截面积提高气速(或者补充二次风提高气速),气速操作区间为快速流态化,反应器内颗粒被气流携带,送至旋风分离器入口,在旋风分离器内进行气、固分离,分离后的固体颗粒进入流动密封阀,建立固体颗粒的循环。

流动密封阀:空气反应器到燃料反应器的物料

传输设计为非机械式流动密封阀(LS1),完成颗粒的运输和 2 个流化床间气氛的隔绝。燃料反应器到空气反应器之间的物料传输设计为双向流动密封阀(LS2)。LS2 设计有 3 个流化室,第一流化室与空气反应器的返料斜管相连,向空气反应器运输颗粒;第二流化室与燃料反应器的立管相连,储存固体颗粒形成料封;第三流化室与燃料反应器的返料斜管相连,从而形成燃料反应器的内循环,增长固体颗粒的停留时间。当 2 个反应器间的固体流量不匹配时,LS2 可以在一定范围内进行固体循环流量的调控。

基于上述设计思路,设计了双循环流化床反应器,如图 1 所示。根据热态装置原型建设全尺寸冷态模型,可以减少反应器的壁面效应的影响<sup>[25]</sup>。在冷态实验中,根据石英砂和 25 °C 常压下空气的物性参数,由式(1)~(5)计算石英砂最小流化速率( $U_{mf}$ , m/s)和鼓泡流态化向湍动流态化转变的临界速率( $U_c$ , m/s)<sup>[34]</sup>。由式(6)~(7)计算空气反应器和燃料反应器流化气速( $U_{AR}$ 和 $U_{FR}$ , m/s)。冷态反应器的相关设计参数如表 1 所示。

$$Ar = d_p^3 \rho_f (\rho_p - \rho_f) g / \mu_f^2 \quad (1)$$

$$Re_c = 1.243 \times Ar^{0.447} \quad (2)$$

$$U_c = Re_c \times \mu_f / (d_p \times \rho_f) \quad (3)$$

$$Re_{p,mf} = (33.72^2 + 0.0408Ar)^{0.5} - 33.7 \quad (4)$$

$$U_{mf} = Re_{p,mf} \times \mu_f / (d_p \times \rho_f) \quad (5)$$

$$U_{AR} = V_{AR} / A_{AR} \quad (6)$$

$$U_{FR} = V_{FR} / A_{FR} \quad (7)$$

式中: $Ar$ 为阿基米德数; $d_p$ 为石英砂平均粒径, m; $\rho_f$ 为空气流化气密度, kg/m<sup>3</sup>;  $\rho_p$ 为石英砂密度, kg/m<sup>3</sup>;

$g$ 为重力加速度, m/s<sup>2</sup>;  $\mu_f$ 为动力黏度, Pa·s;  $Re_c$ 为鼓泡流态化向湍动流态化转变的临界速率对应的雷诺数;  $Re_{p,mf}$ 为最小流化速率对应的雷诺数;  $U_{AR}$ 和 $U_{FR}$ 分别为空气反应器和燃料反应器流化气速, m/s;  $V_{AR}$ 和 $V_{FR}$ 分别为空气反应器和燃料反应器入口流化气体积流量, m<sup>3</sup>/s;  $A_{AR}$ 和 $A_{FR}$ 分别为空气反应器和燃料反应器的横截面积, m<sup>2</sup>。

## 2 双循环流化床反应器冷态实验部分

### 2.1 双循环流化床反应器冷态装置

双循环流化床反应器冷态装置如图 1 所示。冷态装置主要包含反应器系统、气路控制系统、测量系统、尾气在线检测系统。

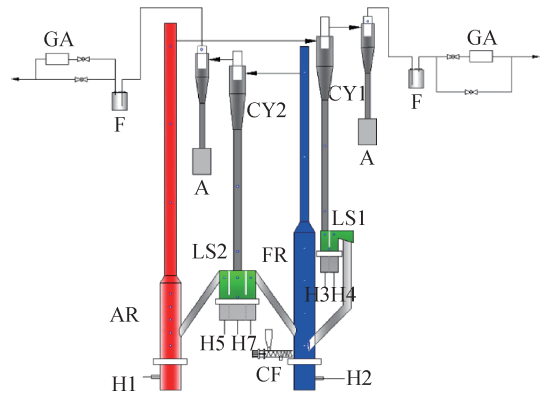


图 1 双循环流化床反应器示意图

Fig. 1 Sketch map of the dual circulating fluidized bed reactor

AR—Air reactor; FR—Fuel reactor; LS1—Upper loop seal; LS2—Two-way loop seal; CY1/CY2—Cyclone of AR/FR; H1—H7—Gas inlets for AR, FR, LS1 and LS2, respectively; CF—Coal feeder; A—Ash collector; F—Filter.

表 1 双循环流化床设计参数

Table 1 Design parameters of dual circulating fluidized bed

| $\rho_p / (\text{kg} \cdot \text{m}^{-3})$ | $m_{AR} / \text{kg}$ | $m_{FR} / \text{kg}$ | $U_c / (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$ | $U_{mf} / (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$ | $U_{AR} / U_c$ | $U_{FR} / U_c$ | $D_{AR} / \text{m}$ | $D_{FR} / \text{m}$ | $D_{R1} / \text{m}$ | $D_{R2} / \text{m}$ | $h_{AR} / \text{m}$ | $h_{FR} / \text{m}$ |
|--|----------------------|----------------------|--|---|----------------|----------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| 2868.60                                    | 5.00                 | 16.70                | 1.93                                   | 0.05                                      | 1.00           | 0.50           | 0.13                | 0.16                | 0.06                | 0.07                | 0.55                | 1.00                |

$\rho_p$ —Density;  $m_{AR}$ —Bed material in AR;  $m_{FR}$ —Bed material in FR;  $U_c$ —Turbulent gas velocity;  $U_{mf}$ —Minimal fluidization gas velocity;  $U_{AR} / U_c$ —Ratio of the superficial gas velocity in AR and turbulent gas velocity;  $U_{FR} / U_c$ —Ratio of the superficial gas velocity in FR and turbulent gas velocity;  $D_{AR}$ —Diameter of AR;  $D_{FR}$ —Diameter of FR;  $D_{R1}$ —Diameter of riser connected to AR;  $D_{R2}$ —Diameter of riser connected to FR;  $h_{AR}$ —Height of AR;  $h_{FR}$ —Height of FR

反应器系统由 2 个循环流化床(AR 和 FR)、流动密封阀(LS)和旋风分离器(CY)组成。气路控制系统主要由罗茨风机、气瓶、气体储存罐、玻璃转子流量计组成。测量系统包含压力传感器、标尺、

秒表。尾气在线检测系统由在线烟气分析仪(Gas analyzer, 武汉四方光电 3100)组成。

石英砂作为流化介质, 粒径范围为 150~250  $\mu\text{m}$ 。石英砂物性参数: 颗粒真密度为 2868.6 kg/m<sup>3</sup>(真

密度仪, 美国 Micromeritics 公司产品, AccuPyc 1330); 平均颗粒粒径为  $220 \mu\text{m}$  (激光粒度仪分析, Master Min, 英国 Malvern 公司产品)。

## 2.2 双循环流化床反应器冷态装置的测量方法

双循环流化床反应器冷态装置系统压力传感器的分布如图 2(b)所示。采用示踪气体测量法测定气体泄漏, 以  $\text{CO}_2$  作为示踪气体, 分别在 2 个循环流化床反应器的入口加入, 在 2 个反应器的布风板上端和旋风分离器气体出口处, 检测  $\text{CO}_2$  含量, 根据  $\text{CO}_2$  的质量平衡可以计算出反应器间的气体泄漏率<sup>[2]</sup>。在冷态实验中, 测量了不同反应器操作气速下的气体泄漏率。在不同的操作工况下, 进行了约 10 h 的连续运行。采用颗粒示踪法测定固体循环流量 ( $G_s$ , kg/s)。将 0.1 kg 黑色示踪颗粒加入反应器 (示踪颗粒由石英砂染色制成), 立管壁面刻有一定高度的标尺 (示踪颗粒运动距离,  $\Delta s = 0.5 \text{ m}$ ), 当立管中石英砂作匀速运动后, 测量颗粒运行此段距离所消耗的时间 ( $\Delta t$ , s), 根据式 (8)~(10) 计算 2 个立管中的固体循环流量。

$$G_s = \rho_p A_0 (1 - \epsilon_{mf}) U_{sd} \quad (8)$$

$$U_{sd} = \Delta s / \Delta t \quad (9)$$

$$\epsilon_{mf} = 0.58 \varphi^{-0.72} Ar^{-0.029} (\rho_g / \rho_p)^{0.021} \quad (10)$$

其中:  $A_0$  为下降管横截面积,  $\text{m}^2$ ;  $U_{sd}$  为移动颗粒的流动速率,  $\text{m/s}$ ;  $\epsilon_{mf}$  为最小流化速率下的颗粒空隙率 ( $\epsilon_{mf} = 0.52 \text{ m}^3/\text{kg}$ );  $\varphi$  为颗粒球形度 ( $\varphi = 0.97$ )。在稳定运行时, 每组实验工况下测量固体循环流量 10 次。

## 3 系统压力分布、固体循环流量和气体泄漏率对双循环流化床化学链燃烧反应器运行特性的影响

### 3.1 系统压力的分布特性

图 2 为在标准工况下 (见表 1) 的双循环流化床反应器冷态装置系统压力分布。压力测试点 (测压点) 1~5 位于空气反应器的扩大段; 测压点 6~8 位于空气反应器的提升管; 测压点 9~11 位于 LS1, 测压点 18~21 位于 LS2; 测压点 12~15 位于燃料反应器的扩大段; 测压点 16~17 位于燃料反应器的提升管。

除测压点 4 外 (受 LS2 返料出口压力的影响), 空气反应器扩大段 (测压点 1~5) 的各点压力差较小。实验中, 空气反应器内呈现相对均匀的气、固两相流, 说明空气反应器的流化区间处于湍动流态化。然而, 燃料反应器扩大段的测压点 12~15 的压力差为 1591 Pa, 处于鼓泡流态化区间。在此区间内, 燃料反应器的下端处于密相区 (测压点 12~13), 因此压力较高并且波动明显。这是由鼓泡床中气泡的不断生长和破灭导致的。

LS1 和 LS2 中测压点 10 和 11、19 和 20 的压力差分别为 1834 Pa 和 1320 Pa。测压点 11 和 12 压力明显高于连接空气反应器和燃料反应器的点 3 和 13 的压力。说明 2 个流动密封阀的料封足以克服 2 个反应器的压差, 起到气体隔绝的作用。在 LS2 中, 第三返料室测压点 21 压力高于返料管与 FR 连通位

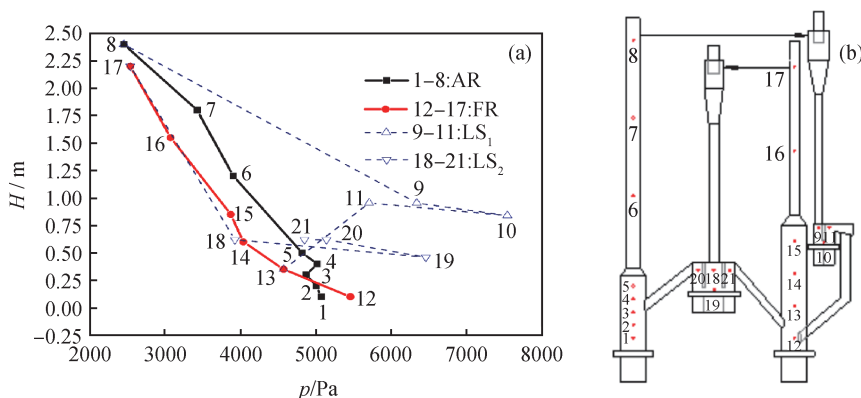


图 2 双循环流化床反应器冷态装置系统压力分布

Fig. 2 Pressure distributions in the cold-flow model dual circulating fluidized bed reactor

(a) Pressure value; (b) Pressure locations (1—21)

H—Height; p—Pressure

置测压点 13, 说明 LS2 双向流动密封阀运行正常, 有能力阻止从燃料反应器到 LS2 的气体泄漏。

在改变空气反应器和燃料反应器流化气速的工况中, LS1 和 LS2 的返料管出口压力也会受到 2 个反应器压力波动的影响。因此, 在不同流化气速的工况中, 针对 LS1 和 LS2 的压力平衡进行研究。首先对 LS2 的压力平衡进行分析。实验中空气反应器流化气速( $U_{AR}$ )为  $(0.8 \sim 1.3)U_c$ , 燃料反应器流化气速稳定

在  $0.8U_c$ 。在空气反应器不同的流化气速下, LS2 的水平孔口(测压点 19)压力总是高于返料室测压点 20 和输运室测压点 18 的压力(如图 3 所示), 说明此种非机械流动密封阀具有较宽的调节能力, 立管中物料封高度足以满足克服压力差的需要。水平孔口测压点 19 和返料斜管出口与空气反应器的连接处测压点 4 的压力差在  $955 \sim 1424$  Pa 之间, 说明 LS2 也可稳定运行, 并起到气氛隔绝的作用。

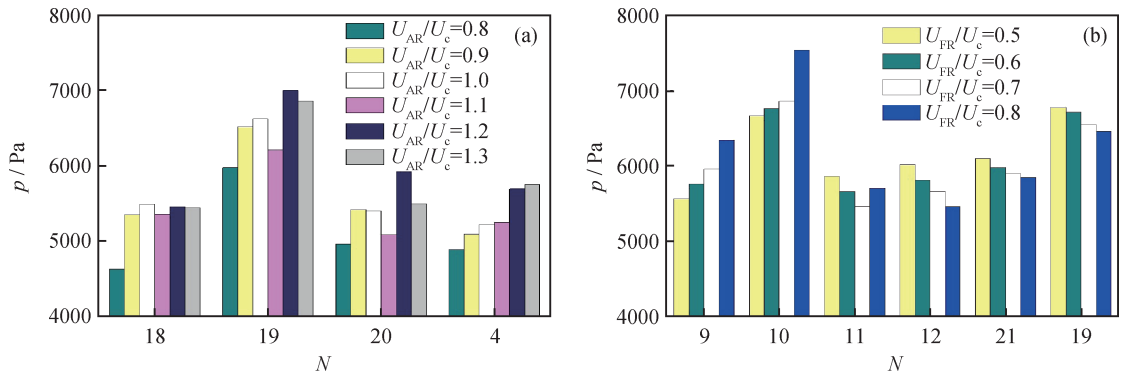


图 3 流动密封阀 LS1、LS2 压力分布  
Fig. 3 Pressure distribution of LS1 and LS2

(a) LS1; (b) LS2

N—Pressure points number

### 3.2 AR 和 FR 流化气速对固体循环流量的影响

在双循环流化床中, 空气反应器和燃料反应器的固体颗粒循环方式都是通过提升管作为颗粒运输的方式。因此, 虽然固体循环流量不再受到溢流口的约束, 但 2 个提升管不同固体循环流量的匹配是实验稳定运行的关键。

对双循环流化床反应器冷态装置系统各部分的固体循环流量定义如下: 从空气反应器到 LS1 的固体循环流量为  $G_{S1}$ ; 从 LS1 到燃料反应器的固体循环流量为  $G_{S1'}$ ; 从燃料反应器到 LS2 的固体循环流量为  $G_{S2}$ ; 从 LS2 到空气反应器的固体循环流量为  $G_{S2'}$ , 从 LS2 到燃料反应器的固体循环流量为  $G_{S2''}$ , 如图 4 所示。

#### 3.2.1 FR 流化气速对固体循环流量的影响

基于设计标准, 燃料反应器床料量为  $16.7$  kg, 空气反应器的标准设计流化气速为  $1.0U_c$ , 测量了不同燃料反应器流化气速对固体循环流量的影响。每组工况稳定运行  $30$  min。图 5 为固体循环流量随 FR 流化气速的变化曲线。当 FR 流化气速从  $0.5U_c$  增长到  $0.7U_c$  时,  $G_{S2}$  从  $0.27$  kg/s 到  $0.38$  kg/s 呈线性增长; 但当 FR 流化气速继续增加至  $0.8U_c$  时,

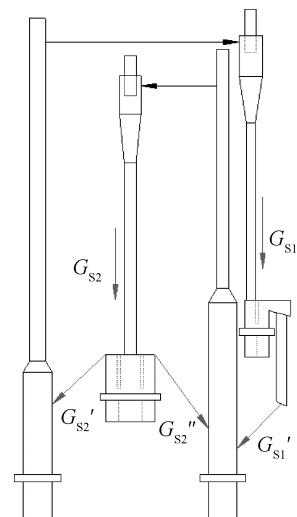


图 4 双循环流化床反应器冷态装置系统固体循环方式示意图

Fig. 4 Sketch map of solid circulation routes of the cold-flow model dual circulating fluidized bed reactor

$G_S$ —Solid circulation rate; 1—From AR to LS1; 1'—From LS1 to FR; 2—From FR to LS2; 2'—From LS2 to AR; 2''—From LS2 to FR

$G_{S2}$  却减小到  $0.36$  kg/s。其原因为: (1) 随着 FR 流化气速的增加, FR 床层表面提高, 被携带进入提

升管的颗粒增加,所以  $G_{S2}$  明显增加;(2)随着 FR 流化气速的增加,颗粒输运能力提高, $G_{S2}$  增加;(3)随着 FR 流化气速的增加,FR 内的床料量则会减少,FR 反应器底端的测压点 12 降低也与之一致。因此,当 FR 流化气速继续增加到  $0.8U_c$  时,由于 FR 中床料量的限制导致  $G_{S2}$  减小。

对于从 AR 到 LS1 的循环流量( $G_{S1}$ ),当 AR 流化气速稳定在  $1.0U_c$  时,近似认为 AR 中流化气速的携带能力相同,所以在此不讨论由于 AR 流化气速变化对  $G_{S1}$  的影响。当 FR 流化气速较低( $0.5U_c \sim 0.6U_c$ )时, $G_{S1}$  高于  $G_{S2}$ 。因为 FR 流化气速较低,无法提供满足固体循环流量的携带能力。随着运行时间的增加,AR 的床料量逐渐转移到 FR 中,使得  $G_{S2}$  增加。同时因为  $G_{S2} < G_{S1}$ ,AR 中床料量逐渐减小,引起  $G_{S1}$  呈下降趋势。随着反应器的继续运行, $G_{S2}$  逐渐提高并超过  $G_{S1}$ ,因此  $G_{S1}$  的下降趋势减小,并逐渐呈稳定趋势。

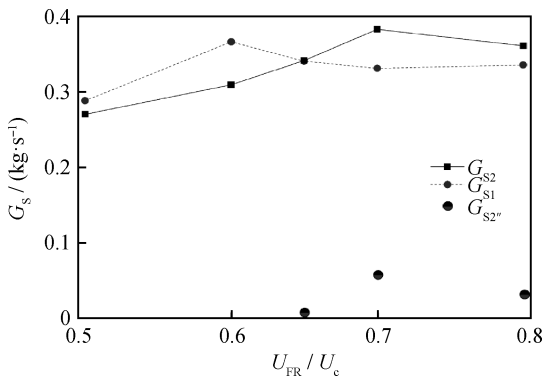


图 5 不同 FR 流化气速( $U_{FR}$ )下固体循环流量( $G_s$ )的变化

Fig. 5 Solid circulation rates ( $G_s$ ) vs. fluidization gas velocity in FR ( $U_{FR}$ )

另外,LS2 第三返料室流化气速对于  $G_{S1}$  和  $G_{S2}$  具有一定的调节能力。当 FR 流化气速为  $0.65U_c$  时, $G_{S1}$  与  $G_{S2}$  基本相当,为  $0.34 \text{ kg/s}$ 。此种工况下,没有测量到从 LS2 到 FR 的固体循环流量( $G_{S2'}$ )。当 FR 流化气速为  $0.7U_c$  和  $0.8U_c$  时,观测到 LS2 立管堆积颗粒高度不断增加,表明  $G_{S2} > G_{S1}$ ;逐渐增加 LS2 第三返料室流化气速,提高  $G_{S2'}$ ,观测到 LS2 立管堆积颗粒高度稳定不变后,LS2 第三返料室流化气速稳定。通过 LS2 的调控部分循环颗粒返回至 FR,可以平衡  $G_{S1}$  和  $G_{S2}$  不相匹配的工况。说明 LS2 的双向流动密封阀对于此双循环流化床系统运行稳定具有一定的调节能力。

### 3.2.2 AR 流化气速对固体循环流量的影响

固体循环流量随 AR 流化气速变化的结果如图 6 所示。实验工况为:FR 床料量  $16.7 \text{ kg}$ ,FR 流化气速稳定为  $0.8U_c$ 。首先,在 AR 流化气速处于  $0.8U_c \sim 1.0U_c$  之间时, $G_{S1}$  随着 AR 流化气速的增大而增加。主要因为随着 AR 流化气速的增大,床层高度升高,进入提升管的颗粒流量增加,提高了  $G_{S1}$ ;另外,随着 AR 流化气速的增加,提升管的流化气速增大,颗粒携带能力提高,所以  $G_{S1}$  增加。当 AR 流化气速超过  $1.0U_c$  时,AR 反应器中的流态化操作区间达到湍动流态化。实验中,观测到当 AR 流化气速未达到湍动流态化时,颗粒床层表面波动明显,较高的床层表面颗粒进入提升管被气流携带至旋风分离器进行循环;当转变为湍动流态化区间中,颗粒相与流化气相转变为均相流动,无法区分床层表面,颗粒均匀且连续地进入提升管。

当 AR 流化气速超过  $1.0U_c$  时,虽然 AR 流化风颗粒携带能力逐渐提高, $G_{S1}$  理论上应当增加,但仍有 3 个限制因素(AR 的床料量、LS2 返料管的出口压力、从 LS2 到 AR 的返料量(即  $G_{S2'}$ ))存在。为了研究 AR 床料量对  $G_{S1}$  的影响,当每组实验完成后,测量 AR 床料的堆积高度。实验结果表明,每次运行后 AR 的床料量基本稳定在初始高度,所以说明 AR 的床料量并不是对  $G_{S1}$  造成影响的原因。如图 3 所示。当 AR 流化气速为  $1.0U_c \sim 1.2U_c$  时,LS2 第一返料室斜管出口压力基本相等(图 3(a)),所以 AR 返料斜管出口压力并未对  $G_{S1}$  造成影响。由图 6 可见:当 AR 流化气速为  $1.0U_c \sim 1.2U_c$  时, $G_{S2}$  稳定在  $0.36 \text{ kg/s}$ 。因为  $G_{S2}$  一直高于  $G_{S1}$ ,所以开启第三返料室流化气,进行 FR 内循环。当 AR 流化气速从  $1.2U_c$  提高到  $1.3U_c$  时,LS2 第三返料室流化气气速稳定在  $0.3U_{mf}$ ,所以  $G_{S2'}$  未有明显变化;而  $G_{S2}$  逐渐减小,所以  $G_{S2'}$  减少。综上所述,当 AR 流化气速操作区间在湍动流态化区间内, $G_{S2'}$  为影响  $G_{S1}$  的主要因素。

在本实验中,FR 的流化气速恒定为  $0.8U_c$ ,所以 FR 对于载氧体的携带能力是基本一致的。 $G_{S2}$  的影响因素主要为  $G_{S1}$ 。因此,当 AR 流化气速从  $0.8U_c$  增长到  $1.0U_c$  时, $G_{S2}$  随着  $G_{S1}$  的增加而增加;当 AR 流化气速在  $1.0U_c \sim 1.3U_c$  范围内时, $G_{S2}$  随着 AR 流化气速的增大呈现较稳定的趋势。



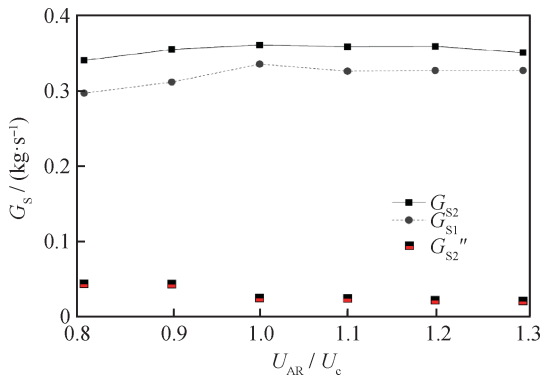


图 6 不同 AR 流化气速( $U_{AR}$ )下固体循环流量( $G_s$ )的变化

Fig. 6 Solid circulation rates ( $G_s$ ) vs. fluidization gas velocity in AR ( $U_{AR}$ )

在改变 AR 流化气速的过程中, 由于  $G_{S2}$  始终大于  $G_{S1}$ , 所以在 LS2 立管颗粒堆积后, 需调整 LS2 第三返料室流化气速, 使得一部分固体循环流量 ( $G_{S2}''$ ) 通过 LS2 第三返料室返回 FR 形成内循环。LS2 第三返料室流化气速范围为  $0 \sim 0.5U_{mf}$ 。同时观测 AR 底端测压点 1 的压力是否稳定, 若其稳定则说明 AR 中床料量维持在一个相对稳定的状态。双向流动密封阀设计可以在一定范围内调节 2 个反应器之间固体循环流量的不平衡 (通常为  $G_{S2} > G_{S1}$ ), 其中调节途径为通过 LS2 的第三返料室形成 FR 的内循环。

### 3.2.3 双循环流化床反应器冷态装置系统固体循环流量自平衡

研究双循环流化床反应器冷态装置系统在 100 min 的连续实验, 评价固体循环流量的变化趋势 (测量时间间隔为 10 min), 结果如图 7 所示。在实验的开始 30 min 内, 因为 FR 流化气速为  $0.8U_c$ , 所以  $G_{S2}$  大于  $G_{S1}$ 。通过调节 LS2 第一流化风室流化气速使得  $G_{S2}$  与  $G_{S1}$  相近。经过 20 min 的运行, 明显观测到 LS2 的立管物料堆积高度增加了 100 mm, 说明一部分 FR 的床料量转移到了 LS2 立管中。实验继续运行后, 由于 FR 的床料量减小,  $G_{S2}$  相应减小, 最终与  $G_{S1}$  相近; 在后续的 80 min 内, 2 个反应器的固体循环流量相近, 实验稳定运行。实验结果表明串行流化床具有一定的调节余量。

为研究 FR 床料量的影响, 进行了低 FR 床料量 (10.0 kg) 的 100 min 连续运行实验, 在此工况下, 对应的 AR 到 LS1 的固体循环流量 ( $G_{S1-1}$ ) 和 AR 到 LS2 的固体循环流量 ( $G_{S2-1}$ ), 如图 7 所示。在实验的初始 10 min 内,  $G_{S1-1}$  与  $G_{S2-1}$  相近, 约为

0.31 kg/s; 并且在随后的 90 min 运行中,  $G_{S1-1}$  和  $G_{S2-1}$  均在 0.30~0.31 kg/s 范围内。

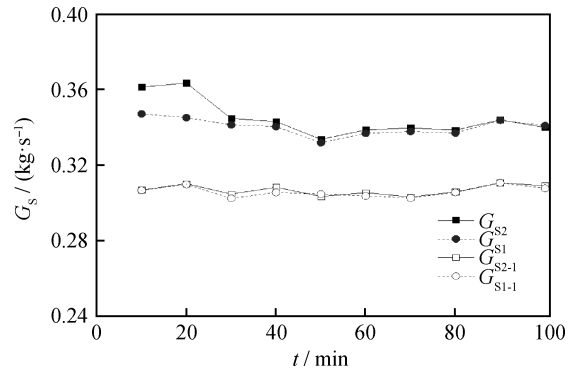


图 7 双循环流化床反应器冷态装置连续运行 100 min 固体循环流量 ( $G_s$ ) 的变化

Fig. 7 Variation of solid circulation rates ( $G_s$ ) under 100 min continuous running in the cold-flow model dual circulating fluidized bed reactor

双循环流化床反应器冷态装置系统的固体循环流量冷态实验结果表明, 串行流化床具有较高的适应性和宽广的操作性。在高床料量 (16.7 kg) 和 FR 流化气速  $0.8U_c$  的工况下, 从 FR 到 AR 的固体循环流量较高, 后期通过转移部分 FR 的床料到 LS2 立管系统可以达到稳定; 在高床料量 (16.7 kg) 和 FR 流化气速  $0.65U_c$  的工况下, 反应器系统在运行初期就可以达到稳定; 在低床料量 (10.0 kg) 和 FR 流化气速  $0.8U_c$  的工况下, 反应器系统在实验初期就可以达到稳定。

### 3.3 不同 AR/FR 流化气速下气体泄漏率的变化规律

在实际运行中, 由于从空气反应器到燃料反应器的气体泄漏会造成碳捕集效率和  $\text{CO}_2$  含量下降。从 AR 到 FR 的气体泄漏率 ( $L_{AR}$ ) 随 AR 和 FR 流化气速的变化规律如图 8 所示。当 FR 流化气速设定为  $0.8U_c$ 、AR 流化气速从  $0.8U_c$  增加到  $0.9U_c$  时,  $L_{AR}$  从 0.21% 降低到 0.19%; 当 AR 流化气速继续增加到  $1.0U_c$  时, 从  $L_{AR}$  降低到 0.10%; AR 流化气速继续增大,  $L_{AR}$  稳定在 0.10%。分析认为, 从 AR 到 FR 的气体泄漏途径有: (1) 示踪气体  $\text{CO}_2$  从 AR 到 LS2 进入 FR 的二级旋风分离器造成气体泄漏; (2) 示踪气体  $\text{CO}_2$  随着载氧体的循环方向进入 LS1 到 FR 造成气体泄漏。

对于气体泄漏途径 (1), AR 和 LS2 的压力差是造成气体泄漏的主要原因, 因为两者间的压力差不

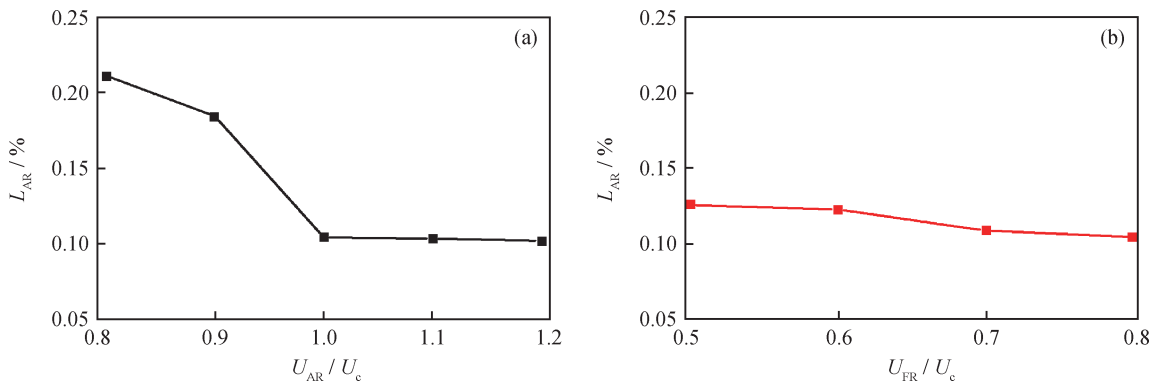


图 8 不同 AR/FR 流化气速下 AR 到 FR 的气体泄漏率( $L_{AR}$ )

Fig. 8 Gas leakage ( $L_{AR}$ ) from AR to FR vs. fluidization gas velocities in AR/FR

(a) AR,  $U_{FR}/U_c = 0.8$ ; (b) FR,  $U_{AR}/U_c = 1.0$

稳定导致 AR 与 LS2 之间气体双向运动, 当 AR 流化气速超过  $1.0U_c$  (从鼓泡床到湍动床的气速转变点<sup>[34]</sup>)时, AR 床层内的压力波动减小, AR 与 LS2 的压力差逐渐平稳, 所以  $L_{AR}$  降低。另外, 由于 AR 流化气速的提高, LS2 返料口的压力增大, 立管中堆积物料高度增加以克服 LS2 出口压力的增大。因此, 立管中物料堆积高度增加, 流动密封阀的料封能力增强, 所以示踪气体  $CO_2$  从 LS2 造成的气体泄漏量减少。对于气体泄漏途径(2), 因为 LS1 返料管出口压力直接影响 LS1 的运行, 所以 LS1 为关键因素。并且, 当改变 FR 流化气速时, LS1 出料口压力也随之改变。由图 8(b)可见, 当 AR 流化气速稳定在  $1.0U_c$ , FR 流化气速由  $0.5U_c$  增至  $0.8U_c$  时,  $L_{AR}$  从  $0.12\%$  降低到  $0.10\%$ 。因此, FR 流化气速对从 AR 到 FR 的气体泄漏影响较小。

综上所述, 示踪气体  $CO_2$  从 AR 通过 LS2 是造成泄漏的主要方式。因此, LS2 的稳定运行是减小气体泄漏的关键。

图 9 为从 FR 到 AR 的气体泄漏率( $L_{FR}$ )随 AR 和 FR 流化气速的变化规律。当示踪气体  $CO_2$  从 FR 通入, 因为 LS2 设计为双向流动密封阀, 所以气体泄漏途径有 3 条: (1) 示踪气体  $CO_2$  从 FR 到 LS1 造成气体泄漏; (2) 示踪气体  $CO_2$  随着载氧体的流动造成气体泄漏; (3) 示踪气体  $CO_2$  从 LS2 的第三流化风室进入第一流化风室造成气体泄漏。

由图 9 可以看出, 当 FR 流化气速稳定在  $0.8U_c$  时, 随着 AR 流化气速的增加,  $L_{FR}$  从  $0.22\%$  降低到  $0.10\%$ 。因为, 随着 AR 流化气速的提高, 从 AR 到 LS1 和 FR 到 LS2 的固体循环流量均有所增加(如图 5 所示), 所以在立管中堆积的物料高度增

加, 料封能力提高, 气体泄漏率降低; 另外, 随着 AR 流化气速的提高, AR 压力波动减小, 对于 LS2 的运行影响减小, LS2 的气体隔绝效果提高, 气体泄漏降低。

当 AR 流化气速稳定在  $1.0U_c$  时, 随着 FR 流化气速的增加,  $L_{FR}$  从  $0.19\%$  降低到  $0.16\%$ , 降低幅度不大。因为 FR 流化气速操作区间( $0.5U_c \sim 0.8U_c$ )处于鼓泡流态化, FR 反应器内的压力波动明显会对 LS1 和 LS2 的运行造成较大的影响, 所以从 FR 到 AR 的气体泄漏相对较高。

对比相同工况的 2 个不同方向的气体泄漏率, 通常  $L_{FR} > L_{AR}$ 。仅当 AR 流化气速为  $1.2U_c$  和 FR 流化气速为  $0.8U_c$  时, 2 个气体泄漏率( $L_{AR}$  和  $L_{FR}$ )最低且相近, 约为  $0.10\%$ 。因此, 在双循环流化床中, 2 个反应器流化气速的匹配和流动密封阀的操作是整个系统运行的关键。

## 4 结 论

(1) 设计了双循环流化床作为化学链燃烧反应器, 并在全尺寸冷态反应器上进行系统性实验, 实验结果验证了反应器系统的稳定性和可操作性。在冷态实验中, 研究了系统压力分布、固体循环流量和气体泄漏率对双循环流化床反应器性能的影响。

(2) 系统压力分布展示了反应器在标准工况下的轴线压力分布趋势和不同操作条件下流动密封阀的压力分布情况。在改变 AR 和 FR 流化气速工况的运行中, 反应器内部的床料量变化会引起流动密封阀的压力变化; 流动密封阀内压力差范围在  $955 \sim 1834$  Pa。



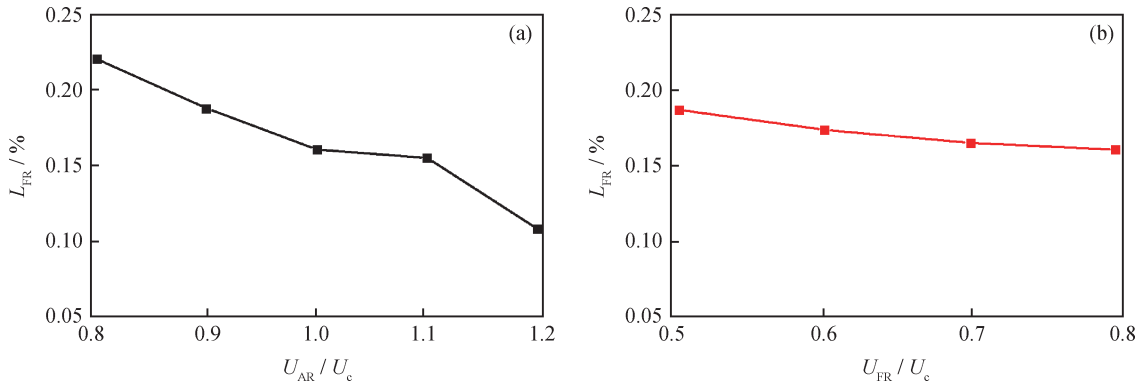


图 9 不同 AR/FR 流化气速下 FR 到 AR 气体泄漏率 ( $L_{FR}$ )

Fig. 9 Gas leakage ( $L_{FR}$ ) from FR to AR vs. fluidization gas velocities in AR/FR

(a) AR,  $U_{FR}/U_c = 0.8$ ; (b) FR,  $U_{AR}/U_c = 1.0$

(3) 固体循环流量最高可以达到 0.38 kg/s, 主要影响因素为空气反应器和燃料反应器流化气速, 具体表现在提升管内流化气速对于固体颗粒的携带能力。

(4) 空气反应器和燃料反应器间的气体泄漏率最低可至 0.10%; 流动密封阀的良好运行对降低气体泄漏率起关键作用。立管的料封能力增强可提高流动密封阀的气体隔绝能力。

#### 参 考 文 献

- [1] ISHIDA M, JIN H G. A new advanced power-generation system using chemical-looping combustion[J]. Energy, 1994, 19(4): 415-422.
- [2] JOHANSSON E, LYNGFELT A, MATTISSON T, et al. Gas leakage measurements in a cold model of an interconnected fluidized bed for chemical-looping combustion[J]. Powder Technology, 2003, 134(3): 210-217.
- [3] 安梅, 潘鑫, 胡修德, 等. 化学链气化过程中  $\text{CuFe}_2\text{O}_4/\text{SiO}_2$  载氧体的反应性能及次烟煤的结构演变[J]. 石油学报(石油加工), 2020, 36(4): 777-783. (AN Mei, PAN Xin, HU Xiude, et al. Reaction characteristics and structural evolution of coal with oxygen carriers  $\text{CuFe}_2\text{O}_4/\text{SiO}_2$  in chemical-looping gasification process[J]. Acta Petrolei Sinica (Petroleum Processing Section), 2020, 36(4): 777-783.)
- [4] ZHAO H B, TIAN X, MA J C, et al. Development of tailor-made oxygen carriers and reactors for chemical looping processes at Huazhong University of Science & Technology [J]. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2020, 93: 102898.
- [5] LYNGFELT A, LECKNER B, MATTISSON T. A fluidized-bed combustion process with inherent  $\text{CO}_2$  separation; Application of chemical-looping combustion [J]. Chemical Engineering Science, 2001, 56(10): 3101-3113.
- [6] MA J C, ZHAO H B, TIAN X, et al. Continuous operation of interconnected fluidized bed reactor for chemical looping combustion of  $\text{CH}_4$  using hematite as oxygen carrier [J]. Energy & Fuels, 2015, 29(5): 3257-3267.
- [7] SHEN T X, ZHU X, YAN J C, et al. Design of micro interconnected fluidized bed for oxygen carrier evaluation [J]. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2019, 90: 102806.
- [8] STRÖHLE J, ORTH M, EPPLE B. Chemical looping combustion of hard coal in a 1  $\text{MW}_{th}$  pilot plant using ilmenite as oxygen carrier [J]. Applied Energy, 2015, 157: 288-294.
- [9] 韩磊, 于旷世, 朱治平, 等. 双循环流化床冷态实验研究[J]. 锅炉技术, 2011, 42(1): 26-30. (HAN Lei, YU Kuangshi, ZHU Zhiping, et al. Cold experimental studies on dual circulating fluidized beds [J]. Boiler Technology, 2011, 42(1): 26-30.)
- [10] MA J C, ZHAO H B, TIAN X, et al. Chemical looping combustion of coal in a 5  $\text{kW}_{th}$  interconnected fluidized bed reactor using hematite as oxygen carrier [J]. Applied Energy, 2015, 157: 304-313.

- [11] MA J C, TIAN X, WANG C Q, et al. Performance of a 50 kW<sub>th</sub> coal-fuelled chemical looping combustor [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2018, 75: 98-106.
- [12] WANG X J, JIN B S, ZHU X M, et al. Experimental evaluation of a novel 20 kW<sub>th</sub> in situ gasification chemical looping combustion unit with an iron ore as the oxygen carrier [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2016, 55(45): 11775-11784.
- [13] ABAD A, GAYÁN P, PÉREZ-VEGA R, et al. Evaluation of different strategies to improve the efficiency of coal conversion in a 50 kW<sub>th</sub> Chemical Looping combustion unit[J]. *Fuel*, 2020, 271: 117514.
- [14] LINDERHOLM C, KNUTSSON P, SCHMITZ M, et al. Material balances of carbon, sulfur, nitrogen and ilmenite in a 100 kW CLC reactor system [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2014, 27(8): 188-202.
- [15] KIM R H, WANG D W, ZENG L, et al. Coal direct chemical looping combustion process: Design and operation of a 25 kW<sub>th</sub> sub-pilot unit[J]. *Fuel*, 2013, 108: 370-384.
- [16] BAO J H, LI Z S, SUN H M, et al. Continuous test of ilmenite-based oxygen carriers for chemical looping combustion in a dual fluidized bed reactor system[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2013, 52(42): 14817-14827.
- [17] MA J C, ZHAO H B, MEI D F, et al. Cold-flow model experiment of interconnected fluidized bed for chemical looping combustion of coal [J]. *Journal of Chinese Society of Power Engineering*, 2012, 32(12): 910-915.
- [18] SHEN L H, WU J H, GAO Z P, et al. Characterization of chemical looping combustion of coal in a 1 kW<sub>th</sub> reactor with a nickel-based oxygen carrier [J]. *Combustion and Flame*, 2010, 157(5): 934-942.
- [19] YAN J C, SHEN L H, JIANG S X, et al. Combustion performance of sewage sludge in a novel CLC system with a two-stage fuel reactor [J]. *Energy & Fuels*, 2017, 31(11): 12570-12581.
- [20] MOLDENHAUER P, RYDEN M, MATTISSON T, et al. Chemical-looping combustion with fuel oil in a 10 kW pilot plant [J]. *Energy Fuel*, 2014, 28(9): 5978-5987.
- [21] MENDIARA T, ADÁNEZ-RUBIO I, GAYÁN P, et al. Process comparison for biomass combustion: In-situ gasification-chemical looping combustion (iG-CLC) versus chemical looping with oxygen uncoupling (CLOU) [J]. *Energy Technology*, 2016, 4: 1130-1136.
- [22] WEI G Q, HE F, ZHAO Z L, et al. Performance of Fe-Ni bimetallic oxygen carriers for chemical looping gasification of biomass in a 10 kW<sub>th</sub> interconnected circulating fluidized bed reactor[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2015, 40(46): 16021-16032.
- [23] ZHAO H B, TIAN X, MA J C, et al. Chemical looping combustion of coal in China: Comprehensive progress, remaining challenges, and potential opportunities [J]. *Energy & Fuels*, 2020, 34(6): 6696-6734.
- [24] ABAD A, PÉREZ-VEGA R, de DIEGO L F, et al. Design and operation of a 50 kW<sub>th</sub> chemical looping combustion (CLC) unit for solid fuels [J]. *Applied Energy*, 2015, 157(1): 295-303.
- [25] BISCHI A, LANGRGEN O, SAANUM I, et al. Design study of a 150 kW<sub>th</sub> double loop circulating fluidized bed reactor system for chemical looping combustion with focus on industrial applicability and pressurization[J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2011, 5(3): 467-474.
- [26] MARKSTR M P, LYNGFELT A. Designing and operating a cold-flow model of a 100 kW chemical-looping combustor[J]. *Powder Technology*, 2012, 222: 182-192.
- [27] SUN H M, MAO C, LI Z S, et al. Riser-based carbon stripper for coal-fueled chemical looping combustion[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2016, 55(8): 2381-2390.
- [28] PRÖLL T, RUPANOVITS K, KOLBITSCH P, et al. Cold flow model study on a dual circulating fluidized bed (DCFB) system for chemical looping processes [J]. *Chemical Engineering & Technology*, 2009, 32(3): 418-424.
- [29] DING N, WANG W R, ZHENG Y, et al. Development

and testing of an interconnected fluidized-bed system for chemical looping combustion[J]. Chemical Engineering & Technology, 2012, 35(3): 532-538.

[30] ZHANG S H, MA J C, HU X T, et al. Reactor design, cold-model experiment and CFD modeling for chemical looping combustion[A]//Cleaner Combustion and Sustainable World [C]//Berlin, Heidelberg: Springer, 2013: 1209-1217.

[31] 马进晨, 赵海波, 梅道锋, 等. 煤基化学链燃烧串行流化床的冷态试验研究[J]. 动力工程学报, 2012, 32(12): 909-915. (MA Jinchun, ZHAO Haibo, MEI

Daofeng, et al. Cold-flow model experiment of interconnected fluidized bed for chemical looping combustion of coal[J]. Journal of Chinese Society of Power Engineering, 2012, 32(12): 909-915.)

[32] STRÖHLE J, ORTH M, EPPLE B. Design and operation of a 1 MW<sub>th</sub> chemical looping plant [J]. Applied Energy, 2014, 113: 1490-1495.

[33] 赵海波, 马进晨, 郑楚光. 一种可变循环流化床化学链燃烧装置: CN, 2012104757026[P]. 2013-03-13.

[34] 郭慕孙, 李洪钟. 流态化手册[M]. 北京: 化学工业出版社, 2008.

## 《石油炼制与化工》征订启事

《石油炼制与化工》(原名《石油炼制》, (ISSN 1005-2399; CN 11-3399/TQ), 创刊于1957年), 月刊, 国内外公开发行, 是中文核心期刊, 被国内外多家著名检索系统收录。在1992年和1996年分别获国家科委、中宣部和国家新闻出版署联合评比颁发的全国优秀科技期刊二等奖和一等奖; 2000年荣获国家新闻出版署组织评比的首届全国期刊奖; 2003年、2005年分别获得第二届、第三届国家期刊奖提名奖; 在国家新闻出版署和科技部批准的中国期刊方阵中属双高期刊; 2009年荣获“新中国60年有影响力的期刊”称号, 是炼油和石化行业获此殊荣的唯一期刊。连续多次获得中国石油化工总公司、中国石油化工集团公司优秀科技期刊一等奖。

《石油炼制与化工》主要报道炼油、石油化工专业科学研究、应用研究与工程技术开发的新成果, 交流企业技术创新和提高经济效益、社会效益的新经验, 介绍国外新技术和发展动态。主要栏目有催化剂、加工工艺、基础研究、产品与添加剂、环保、分析、计算机应用、技术经济等。

**欢迎订阅! 欢迎投稿!**

邮发代号: 2-332 联系地址: 北京市海淀区学院路18号 邮政编码: 100083

网址: <http://www.sylzyhg.com> 电话: (010)62311582、82368292 E-mail: [sylz.ripp@sinopec.com](mailto:sylz.ripp@sinopec.com)