

基于响应面法的煤气化工艺优化

杨 洋¹ 郭芸菲² 邓 骥¹ 但小冬¹ 李林峰¹

(1. 西南石油大学 化学化工学院, 四川 成都 610500; 2. 西南石油大学 资源与环境学院, 四川 成都 610500)

摘要: 基于响应面法可在考虑因素间交互作用的基础上对煤气化工艺进行优化, 利用 Aspen Plus 建立了 Shell 气化炉模型, 采用 Box - Behnken 设计进行煤气化仿真试验, 构建了目标值与工艺参数间的响应曲面, 在考虑工艺参数交互作用的基础上对工艺进行多目标优化。结果表明: 氧煤比与蒸汽煤比的交互作用及氧煤比与压力的交互作用的影响能力大于蒸汽煤比与压力的交互作用, 且氧煤比对参数交互作用的影响能力有较大贡献。经试验验证确定煤气化性能指标多目标优化方案为: 氧煤比 0.784 kg/kg, 蒸汽煤比 0.0786 kg/kg, 压力 2.76 MPa。方案下的计算结果为: 煤气有效成分 97.75%, 冷煤气效率 84.25%, 煤气产率 1.92 m³/kg; 验证优化方案下的试验结果为: 煤气有效成分 98.04%, 冷煤气效率 85.20%, 煤气产率 1.93 m³/kg, 与计算结果的误差较小, 说明响应面模型计算精度较高, 优化方案合理。

关键词: 响应面法; Box - Behnken; 煤气化; 优化; 氧煤比; 蒸汽煤比; 压力

中图分类号: TD849; TQ546 文献标志码: A 文章编号: 1006 - 6772(2014)02 - 0060 - 04

Optimization of coal gasification process based on response surface method

YANG Yang¹, GUO Yunfei², DENG Ji¹, DAN Xiaodong¹, LI Linfeng¹

(1. College of Chemistry and Chemical Engineering, Southwest Petroleum University, Chengdu 610500, China;

2. College of Resources and Environment, Southwest Petroleum University, Chengdu 610500, China)

Abstract: Based on the response surface method (RSM), optimize the coal gasification considering the interaction between the factors of process. Establish Shell coal gasifier model with Aspen Plus. Using Box - Behnken design for coal gasification simulation and establish RSM model with the test data. Based on the performance of interaction of technological parameters, optimize the process. The results show that the interaction of oxygen - coal ratio and the steam - coal ratio and interaction of oxygen - coal ratio and pressure are more influential than the interaction of steam - coal ratio and pressure. Oxygen - coal ratio affect the interaction more than other factors. Considering the multi - objective optimization plan with verification, when the oxygen - coal ratio is 0.784 kg/kg, the steam - coal ratio is 0.0786 kg/kg, the pressure is 2.76 MPa, the performance is the best. The calculation of effective components of gas, cold gas efficiency, gas yield is 97.75 percent, 84.25 percent and 1.92 m³/kg. The test results is 98.04 percent, 85.20 percent, 1.93 m³/kg respectively. The difference between calculation results and experimental results is small, so the optimization is reasonable.

Key words: response surface method; Box - Behnken; coal gasification; optimization; oxygen - coal ratio; steam - coal ratio; pressure

0 引 言

煤气化是重要的洁净煤技术,是发展煤基化学品、煤基液体燃料、合成天然气、IGCC 发电等过程工业的基础,对实现煤炭清洁高效利用具有重要意义^[1-3]。煤气化工艺的优化有利于促进煤高效转化

利用,提高煤气化产品品质。化工仿真模拟是研究煤气化工艺优化的重要手段,具有一定的精确性,且成本较低。汪洋等^[4]利用 Gibbs 自由能最小化方法研究了高温高压下的气化炉模型,并通过参数分析得到了较理想的操作条件。郑煜鑫等^[5]对粉煤气流床气化炉进行数值模拟得到了有效气体含量最大

收稿日期: 2013 - 10 - 20; 责任编辑: 宫在芹 DOI: 10.13226/j.issn.1006-6772.2014.02.016

基金项目: 四川省教育厅重点项目(12ZA191)

作者简介: 杨 洋(1989—),男,河北廊坊人,硕士研究生,从事煤化工与天然气化工方面的研究。E-mail: 351680838@qq.com

引用格式: 杨 洋,郭芸菲,邓 骥,等.基于响应面法的煤气化工艺优化[J].洁净煤技术,2014,20(2):60-63,116.

YANG Yang, GUO Yunfei, DENG Ji, et al. Optimization of coal gasification process based on response surface method[J]. Clean Coal Technology, 2014, 20(2): 60 - 63, 116.

时的工艺参数。宋志春等^[6]利用 Aspen Plus 在对流程算法改进的基础上模拟了煤气化过程并得到最佳氧煤比。张宗飞等^[7]对神华、沾化和天碱等煤种的气化过程进行模拟并分析了操作参数对产物组成的影响。徐越等^[8]通过仿真模拟得到了气化炉冷煤气效率的最佳值。迄今为止,大多数关于煤气化工艺优化的研究都是基于单因素分析方法,该法操作简单,但无法研究各因素对目标值的交互作用并在此基础上进行工艺优化。黄雪莉等^[9]研究表明,因素间的交互作用对煤气化过程的影响超过了单一因素的影响能力,因此在考虑因素间交互作用的基础上对煤气化工艺进行优化更为全面。

响应面法(Response Surface Methodology, RSM)是一种统计分析与试验设计相结合的回归建模方法,通过较少试验次数和较短时间可对试验参数进行全面研究。利用多元二次回归方程拟合因素与响应值之间的函数关系,通过对回归方程的分析可得到因素间交互作用对响应值的影响,并在此基础上得到最优工艺参数^[10-11]。笔者利用仿真软件 Aspen Plus 建立了 Shell 气化炉模型,采用 Box-Behnken 设计进行了煤气化仿真试验,构建了目标值与工艺参数间的响应曲面,在考虑工艺参数交互作用的基础上对工艺进行多目标优化。

1 Shell 气化炉模型

Shell 气化属于气流床气化工工艺,适于大规模生产,具有较强的煤种、粒度适应性及较高的碳转换效率等^[12]。Shell 气化过程大致分为 3 个阶段:煤的干燥、热裂解及挥发分的燃烧阶段,碳的燃烧及气化阶段和碳、气化剂及气化产物间的反应阶段^[13]。

Shell 气化炉模型如图 1 所示。对 Shell 煤气化过程第一阶段的模拟利用收率反应器模块实现,其主要功能是将煤分解成 C(固体)、S、H₂、N₂、O₂等单元素分子及灰分,并将裂解热导入吉布斯反应器,碳

的不完全转化会产生未燃尽碳,这部分碳不参与气化反应,在计算过程中将未燃尽碳视为灰分^[9]。Shell 煤气化过程的第二、三阶段利用吉布斯反应器模块进行模拟,通过 Gibbs 自由能最小化原理在考虑热损失的前提下进行计算,体系达到化学反应热平衡时体系的 Gibbs 自由能达到极小值。通过吉布斯反应器模块计算得到的物流中包含气相和固相,利用气固分离器模块对物流进行气固分离计算,得到粗煤气和固体杂质灰分。考虑到 Shell 气化是在高温高压条件下进行且气化产物多为轻气体,因此选择 RK-Soave 方程作为物性方程^[14]。

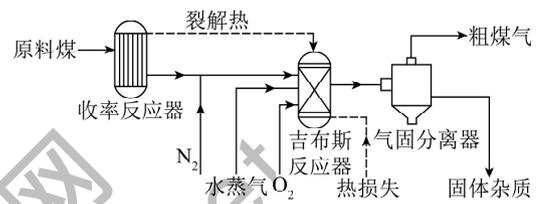


图 1 Shell 气化炉模型

使用 Shell 气化炉模型对文献[8]中原料煤在相同操作条件下的气化过程进行模拟,将模拟结果与 Shell 公司提供的数据进行对比,结果见表 1。

表 1 模拟值和 Shell 数据的对比 %

项目	H ₂ O	H ₂	CO	CO ₂	N ₂	H ₂ S	CH ₄
Shell 数据	0.28	30.55	62.48	1.75	2.96	1.17	0.03
模拟值	1.84	29.87	62.18	2.16	2.69	1.22	0.03

由表 1 可知,气化炉模型计算结果与 Shell 公司提供的数据吻合良好,说明该模型可较准确模拟煤气化过程。

2 试验方案与响应面建立

2.1 试验方案

以伊泰煤为原料煤,使用 Shell 气化炉模型对原料煤气化过程进行模拟计算。伊泰煤煤质分析见表 2。

表 2 伊泰煤煤质分析

工业分析/%				元素分析/%					Q _{net,d} /
M _d	A _d	V _d	FC _d	ω(C _d)	ω(H _d)	ω(N _d)	ω(S _d)	ω(O _d)	(MJ·kg ⁻¹)
3.91	6.74	33.24	60.02	74.34	4.27	0.82	0.19	13.64	28.22

影响气流床气化工工艺的主要因素包括气化温度、气化压力、氧煤质量比(简称氧煤比)和蒸汽煤质量比(简称蒸汽煤比)^[15]。其中气化温度主要通

过改变氧煤比和蒸汽煤比进行调节^[16],因此选择气化压力、氧煤比和蒸汽煤比作为主要工艺参数。为实现煤气化工艺参数的全面优化,选择煤气有效成

分(CO + H₂)含量、冷煤气效率及煤气产率等多个目标值作为性能指标,构建工艺参数对各性能指标的响应面,分析工艺参数交互作用对煤气化过程的影响,并在此基础上进行多目标优化。工艺参数的因素水平见表 3。

表 3 工艺参数的因素水平

因素水平	氧煤比/ (kg · kg ⁻¹)	蒸汽煤比/ (kg · kg ⁻¹)	压力/ MPa
-1	0.60	0.03	2
0	0.80	0.09	3
1	1.00	0.15	4

2.2 响应面建立

基于 Box - Behnken 设计的正交试验结果见表 4,各试验点所对应的响应值(煤气有效成分含量、冷煤气效率及煤气产率)通过 Shell 气化炉模型计算得到。对表 4 数据进行回归分析得到响应面模型,各响应面模型的分析结果见表 5。

表 4 正交试验结果

氧煤比/ (kg · kg ⁻¹)	蒸汽煤比/ (kg · kg ⁻¹)	压力/ MPa	φ(CO + H ₂)/%	冷煤气效率/%	煤气产率/ (m ³ · kg ⁻¹)
-1	-1	0	96.0410	65.7604	1.5052
0	1	-1	93.4021	81.1395	1.9344
0	1	1	93.3615	81.0847	1.9328
0	0	0	96.8456	84.0978	1.9326
1	1	0	79.8980	59.3409	1.6550
1	0	1	82.8832	61.5519	1.6551
0	-1	1	98.1980	81.3861	1.8417
1	-1	0	86.1006	63.9369	1.6551
-1	1	0	91.2968	68.8333	1.6190
-1	0	-1	94.8300	69.5537	1.6036
1	0	-1	82.8838	61.5547	1.6551
-1	0	1	93.3105	67.0038	1.5555
0	-1	-1	98.4220	81.8383	1.8499

表 5 响应面模型分析

项目	φ(CO + H ₂)/%	冷煤气效率/%	煤气产率/ (m ³ · kg ⁻¹)
平方和 SS	474.92	1013.5	0.28
均方 MS	52.77	112.61	0.031
F 值	330.25	299.73	115.09
P 值	0.0002	0.0003	0.0012
信噪比	53.654	46.426	29.815
回归系数 R ²	0.9990	0.9989	0.9971

注:自由度 df 为 9

模型响应值与回归方程关系的显著性可通过 P 值判定,P 值越小则显著程度越高,P ≤ 0.05 说明影响显著,P ≤ 0.01 说明影响极显著^[17]。

由表 5 可知,各模型的 P 值比 0.01 低两个数量级,可知模型响应值与回归方程关系的显著水平较高。信噪比应大于 4,数值越大代表模型的计算结果越能更好地反映试验结果^[18]。表 5 中各模型的信噪比均远大于 4,说明模型有较高精确度。R²为响应面模型的回归系数,以冷煤气效率为响应值的模型为例,模型的 R²为 0.9989,说明冷煤气效率的变化 99.89% 来自所选工艺参数(氧煤比、蒸汽煤比、压力)的变化,该模型回归方程可较好地描述与响应值之间的真实关系。各模型的 R²均在 99% 以上,说明各响应面模型能够合理地试验进行模拟计算。

3 结果与讨论

3.1 工艺参数交互作用对煤气化性能指标的影响

通过响应面模型回归方程建立的响应曲面和等高线可较直观地分析出因素间交互作用对响应值的影响。各工艺参数间交互作用对煤气有效成分含量、冷煤气效率和煤气产率的影响如图 2 ~ 图 4 所示。由图 2 ~ 图 4 可知,图 a)、b) 中曲面的弯曲度明显大于图 c),图 a)、b) 中目标值(煤气有效成分含

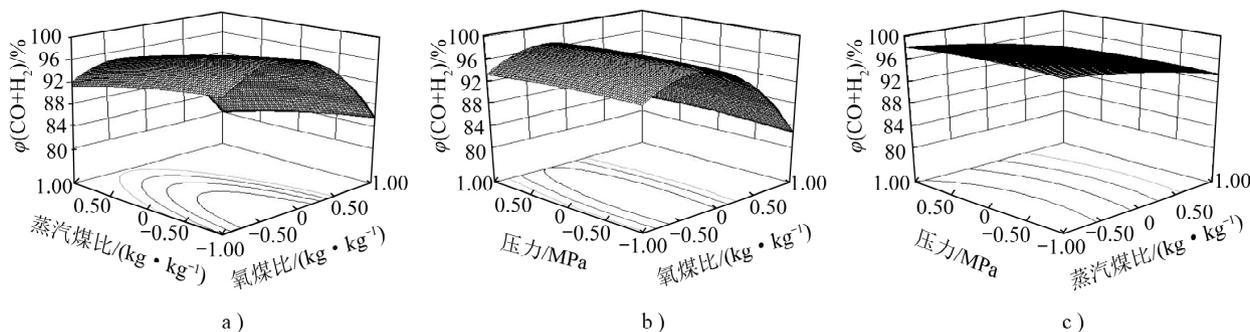


图 2 各工艺参数交互作用对煤气有效成分的影响

量、冷煤气效率、煤气产率) 的变化范围大于图 c) , 可知氧煤比与蒸汽煤比的交互作用及氧煤比与压力的交互作用对煤气化性能指标的影响大于蒸汽煤比与压力交互作用的影响。除图 2a) 、c) 外, 其余各图中等高线均呈椭圆形, 且最小椭圆的中心在 -1 ~ 1 内, 说明响应值即性能指标在参数设计范围内存在最大值。由图 2a) 、c) 中等高线走向可知, 等高线中最小椭圆的中心将会出现在蒸汽煤比的下水平方向上, 即随着蒸汽煤比的进一步减小, 煤气中有效成分含量进一步上升。但蒸汽煤比过小不符合实际工

况, 因此考虑蒸汽煤比为 -1 边界上的最大值较合适。当压力或蒸汽煤比保持不变时, 氧煤比改变引起的煤气化性能指标的变化量大于氧煤比不变时其余两参数改变引起的变化量。这主要是因为氧气量的增减会对气化炉中的燃烧反应和温度变化产生影响, 进而影响气化炉中各种反应, 使煤气有效成分含量及煤气产率发生变化。此外, 燃烧反应是造成冷煤气效率损失的主要原因^[19], 因此改变氧煤比也会对冷煤气效率产生较大影响。综上所述, 氧煤比在参数交互效应中较其他因素发挥了更大作用。

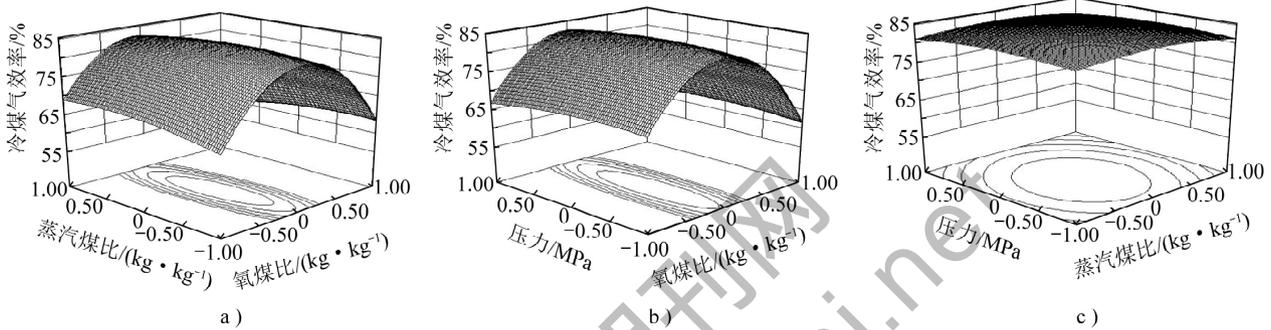


图 3 各工艺参数交互作用对冷煤气效率的影响

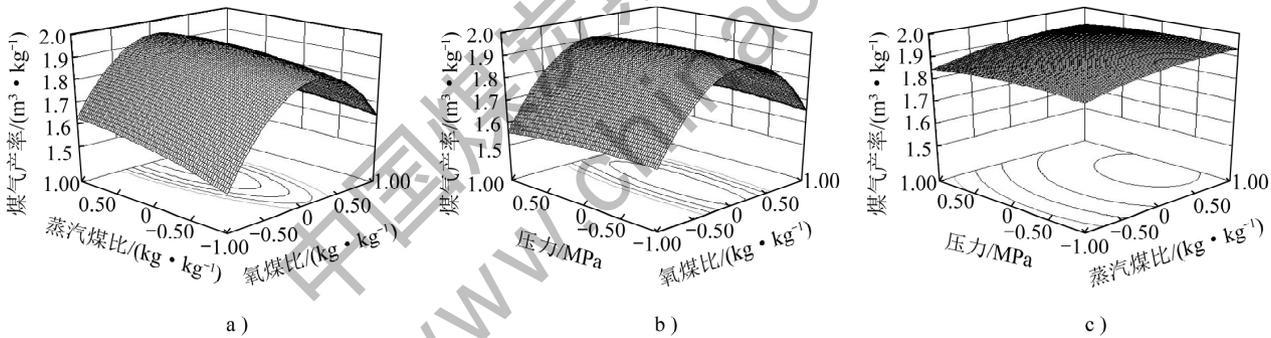


图 4 各工艺参数交互作用对煤气产率的影响

3.2 煤气化工艺多目标优化

利用 Design Expert 软件分析响应面模型, 对煤气有效成分、冷煤气效率及煤气产率进行同步优化, 得到煤气化性能指标多目标优化方案: 氧煤比 0.784 kg/kg, 蒸汽煤比 0.0786 kg/kg, 压力 2.76 MPa。

方案下的计算结果为: 煤气有效成分含量 97.75%, 冷煤气效率 84.25%, 煤气产率 1.92 m³/kg。验证优化方案下的试验结果为: 煤气有效成分含量 98.04%, 冷煤气效率 85.20%, 煤气产率 1.93 m³/kg, 与计算结果的误差分别为 0.3%、1.1%、0.5%, 误差较小, 说明响应面模型计算精度较高, 优化方案合理。

4 结 论

1) 响应面法可在考虑工艺参数交互作用的基础上对煤气化工艺进行多目标优化, 是一种较新的尝试, 经验证表明该方法具有一定的可靠性。

2) 氧煤比与蒸汽煤比的交互作用及氧煤比与压力的交互作用对煤气化性能指标影响较大, 蒸汽煤比与压力的交互作用对煤气化性能指标影响较小。此外, 氧煤比对参数交互作用的影响能力较其他参数有较大贡献。

3) 经试验验证确定煤气化多目标优化方案: 氧煤比 0.784 kg/kg, 蒸汽煤比 0.0786 kg/kg, 压力 (下转第 116 页)

从图5、图6可以看出,范围一中的燃料替代能效提高与有机物协同处理两项碳减排占总碳减排量的99%,外购电力节电碳减排只占1%。

3 结 论

1) 生物质水煤浆制浆燃烧集成系统协同处理生物质废弃物,具有很好的碳减排潜力,经碳减排分析评估,取代燃煤锅炉燃烧时,燃料替代能效提高与有机物协同处理两项碳减排占总碳减排量的99%,外购电力节电碳减排只占1%。如果在占67%的燃料替代能效提高方面,进一步采用生物质固体废弃物协同燃烧替代煤浆,则能取得更好的碳减排效果。

2) 生物质水煤浆制浆燃烧集成系统协同处理生物质废弃物,是中国CDM机制项目重点开发的领域,尤其适用于大中型化工、食品加工、医药中药等行业高浓度有机废液与固体废弃物协同处理的企业和工业园区,建设生物质水煤浆为依托的多能源互补、可燃有机废弃物协同处理的分布式能源站,实现资源、能源、环境一体化。

3) 生物质水煤浆制浆燃烧集成系统是中国中小型工业锅炉技术改造与新建锅炉的选择之一,发挥其高效节能效果需特定的资源、环境及运行管理

技术水平相匹配,应结合中国煤炭资源的分布及利用情况,并充分考虑实施地的煤炭运输条件及环境,选择合理、经济的系统集成技术和项目运作方式。

参考文献:

- [1] 水煤浆技术的概述[EB/OL]. [2001-12-19]. <http://www.cecol.com.cn/a/20120331/1533552.html>.
- [2] 申宝宏,赵路正.高碳能源低碳化利用途径分析[J].中国能源,2010(1):10-13.
- [3] 全国人大财经委“促进煤炭清洁生产与高效利用”课题组.促进煤炭清洁生产与高效利用推动“高碳能源”实现“绿色发展”[R].北京:中国发展基金研究会,2012.
- [4] 清洁发展机制[EB/OL]. [2013-12-10]. <http://baike.so.com/doc/5987261.html>.
- [5] 盛智中研经济研究院.2013—2018年中国清洁发展机制CDM市场投资策略指导研究报告[R].北京:北京亚博中研信息咨询有限公司,2013.
- [6] 贾抒.CDM“打包者”的环保之路[EB/OL]. [2010-01-19]. http://epaper.nfdaily.cn/html/2010-01/19/content_6813158.htm.
- [7] 宋然平,杨抒,孙森.能源消耗引起的温室气体排放计算工具指南[R].北京:世界资源研究所,2011.
- [8] IPCC.2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories[R].Geneva [s. n.] 2006.
- [9] 郭树才.煤化工工艺学[M].2版.北京:化学工业出版社,1992:143-144.
- [10] 海洪,汪坤,金文英等.Box-Behnken响应面法优化超声波提取蚕沙中叶绿素的工艺研究[J].食品工业科技,2009,30(3):207-209.
- [11] 崔大明,张益波,付璐等.响应面法优化超声法提取枸杞中总黄酮工艺[J].食品研究与开发,2011,32(3):55-59.
- [12] 夏鲲鹏,陈汉平,王贤华等.气流床煤气化技术的现状及发展[J].煤炭转化,2005,28(4):69-73.
- [13] 孙鸿,张子峰,黄健.煤化工工艺学[M].北京:化学工业出版社,2012:210-212.
- [14] 刘钧.煤间接液化工艺流程的模拟与优化[D].西安:西安科技大学,2009.
- [15] 徐京馨,鲍礼堂.流化床和气流床气化技术综述(下)[J].小氮肥设计技术,2002,23(2):5-16.
- [16] 贺永德.现代煤化工技术手册[M].北京:化学工业出版社,2004:509-510.
- [17] 徐向宏,何明珠.试验设计与Design-Expert、SPSS应用[M].北京:科学出版社,2010:155-156.
- [18] 吴波,陈长华,杨琳.洛伐他汀发酵培养基配方优化及15L罐放大[J].中国抗生素杂志,2007,32(7):409-413,437.
- [19] Botero C,Field R P,Brasington R D,et al.Performance of an IGCC Plant with Carbon Capture and Coal-CO₂-Slurry Feed: Impact of Coal Rank,Slurry Loading,and Syngas Cooling Technology[J].Industrial & Engineering Chemistry Research,2012,51(36):11778-11790.

(上接第63页)

2.76 MPa,此方案下试验结果为:煤气有效成分含量98.04%,冷煤气效率85.20%,煤气产率1.93 m³/kg。

参考文献:

- [1] 郭树才.煤化工工艺学[M].2版.北京:化学工业出版社,1992:143-144.
- [2] 高聚忠.煤气化技术的应用与发展[J].洁净煤技术,2013,19(1):65-71.
- [3] 钱卫,黄于益,张庆伟等.煤制天然气(SNG)技术现状[J].洁净煤技术,2011,17(1):27-32.
- [4] 汪洋,代正华,于广锁等.运用Gibbs自由能最小化方法模拟气流床煤气化炉[J].煤炭转化,2004,27(4):27-33.
- [5] 郑煜鑫,吴学红,张文慧等.粉煤气流床气化炉的数值模拟[J].煤炭转化,2010,33(3):34-37.
- [6] 宋志春,鲍卫仁,常丽萍等.气流床粉煤气化性能模拟分析[J].洁净煤技术,2010,16(3):39-43.
- [7] 张宗飞,汤连英,吕庆元等.基于Aspen Plus的粉煤气化模拟[J].化肥设计,2008,46(3):18.
- [8] 徐越,吴一宁,危师让.基于Shell煤气化工艺的干燥粉加压气流床气化炉性能研究[J].西安交通大学学报,2003,37(11):1132-1136.
- [9] 黄雪莉,刘娜.新疆准东煤气化过程的模拟优化[J].煤炭转化,2012,35(3):23-27.