

# 基于动态自适应反应的煤粉无焰燃烧 燃料氮转化机理研究

刘 璐,李鹏飞,成鹏飞,刘耀蔚,胡 帆,柳朝晖,郑楚光

(华中科技大学 煤燃烧国家重点实验室,湖北 武汉 430074)

**摘 要:**无焰燃烧是近年来广受关注的新型高效清洁燃烧技术之一,具有容积式低反应速率燃烧区和典型中低温燃烧特性,需耦合详细反应机理并考虑湍流与化学反应交互,以提高无焰燃烧及其 NO 生成数值模拟精度。基于动态自适应反应机理对煤粉无焰燃烧和 NO 生成特性进行了高保真数值模拟研究。通过采用动态自适应机理简化算法,模拟过程实时对自主发展的含氮骨架机理进行本地简化。评估发现,相较于单纯采用骨架机理模拟,采用动态自适应反应可在不牺牲计算精度的条件下获得约 3 倍的计算加速,且对炉内 NO 生成的预测精度显著优于传统 NO 后处理模拟方法。基于经试验验证的模拟结果,还获得了 HCN 和 NH<sub>3</sub> 等典型含氮前驱体的炉内分布,并进一步分析了煤粉无焰燃烧燃料氮转化路径、炉内活跃组分和活跃反应等氮转化关键信息。结果表明,煤粉无焰燃烧 NO 生成主要取决于 NH<sub>3</sub>、HCN 和 N<sub>2</sub>O 中间体,而 NCO 和 HNO 是较为关键的中间组分。HCN 中间体主要通过 HNCO/CN 和 NCO 路径生成 NO。NH<sub>3</sub> 中间体由 HNCO 生成,并进一步转化为 NH<sub>2</sub> 和 HNO,最终生成 NO。N<sub>2</sub>O 路径主要参与 NO 还原,对 NO 生成贡献较低。CH<sub>3</sub>CN 也是生成 NO 的重要中间组分,可通过 NCO 路径生成 NO。

**关键词:**煤粉无焰燃烧;燃料氮;详细反应机理;动态自适应反应;数值模拟

中图分类号:TK16

文献标志码:A

文章编号:1006-6772(2021)04-0123-09

## Study on fuel nitrogen conversion mechanism in flameless combustion of pulverized coal based on dynamic adaptive chemistry

LIU Lu, LI Pengfei, CHENG Pengfei, LIU Yaowei, HU Fan, LIU Zhaohui, ZHENG Chuguang

(State Key Laboratory of Coal Combustion, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

**Abstract:** Flameless combustion is one of the new high-efficiency and low-pollutant combustion technologies widely concerned in recent years. Due to the volumetric combustion zone with relatively low reaction rate and typically medium or low temperature region in flameless combustion, it is necessary to consider the turbulence-chemistry interaction coupled with detailed reaction mechanisms in numerical simulations to improve the prediction accuracy of the combustion and NO formation. In this paper, the high-fidelity numerical simulations on the flameless combustion of pulverized coal and NO formation were performed based on the dynamic adaptive chemistry mechanism. The dynamic adaptive mechanism simplification algorithm was adopted to realize the local reduction of the in-house-developed nitrogen-containing skeletal mechanism during simulation. It is found that compared with the simulation with a skeletal mechanism, the dynamic adaptive chemistry can obtain nearly three times calculation acceleration without sacrificing the accuracy. And the prediction accuracy of in-furnace NO formation is significantly improved relative to the traditional NO post-processing simulation method. After experimental validation, the distributions of typical in-furnace nitrogen-containing precursors such as HCN and NH<sub>3</sub> were obtained. The key information on nitrogen conversion, such as fuel nitrogen conversion pathway, active species and reactions in the furnace, were further analyzed. The results show that the NO formation from pulverized coal flameless combustion mainly depends on NH<sub>3</sub>, HCN, and N<sub>2</sub>O intermediates, while

收稿日期:2021-04-27;责任编辑:白娅娜 DOI:10.13226/j.issn.1006-6772.CE21042701

基金项目:国家自然科学基金资助项目(52076095);国家重点研发计划资助项目(2018YFB0605300)

作者简介:刘 璐(1994—),女,黑龙江佳木斯人,硕士研究生,研究方向为无焰燃烧数值模拟。E-mail:m201871103@hust.edu.cn。通讯作者:李鹏飞,副教授,博士生导师,主要从事无焰燃烧与富氧燃烧研究。E-mail:pfli@hust.edu.cn

引用格式:刘璐,李鹏飞,成鹏飞,等.基于动态自适应反应的煤粉无焰燃烧燃料氮转化机理研究[J].洁净煤技术,2021,27(4):123-131.

LIU Lu, LI Pengfei, CHENG Pengfei, et al. Study on fuel nitrogen conversion mechanism in flameless combustion of pulverized coal based on dynamic adaptive chemistry[J]. Clean Coal Technology, 2021, 27(4): 123-131.



移动阅读

NCO and HNO are the key intermediate components. HCN is converted to NO mainly by the HNCO/CN and NCO paths.  $\text{NH}_3$  is converted from HNCO, and is further converted to  $\text{NH}_2$  and HNO, and finally leads to NO formation. The  $\text{N}_2\text{O}$  path mainly participates in the NO reduction and is insignificant to the NO formation.  $\text{CH}_3\text{CN}$  is also an important intermediate component for NO formation, which can be converted to NO by the NCO path.

**Key words:** flameless combustion of pulverized coal; fuel nitrogen; detailed reaction mechanism; dynamic adaptive chemistry; numerical simulation

## 0 引言

高效低污染燃烧技术作为从源头控制  $\text{NO}_x$  等污染物生成的方法,近年来受到广泛关注。我国已于“十三五”期间基本完成了现有电站锅炉的超低排放改造。目前,部分地区对污染物排放要求更加严格,如京津冀地区新建锅炉  $\text{NO}_x$  排放限值为  $30 \text{ mg/m}^3$ <sup>[1]</sup>。愈加严格的  $\text{NO}_x$  排放标准对  $\text{NO}_x$  调控机理和低氮燃烧技术的研究提出了新要求。

无焰燃烧是20世纪90年代提出的新型高效清洁燃烧技术<sup>[2]</sup>,其实现条件主要包括3方面:①高速射流的烟气强卷吸作用;②强烈的烟气内循环使反应物被充分稀释并弥散至整个燃烧区,形成局部低氧氛围;③反应混合物被再循环烟气加热至超过自燃点。无焰燃烧整体表现为容积式燃烧,燃烧稳定性好,无明显火焰锋面,峰值温度低,温度场、组分浓度场均匀,热力学性能好,噪音小, $\text{NO}_x$ 等污染物生成大幅降低<sup>[3-4]</sup>。

提高  $\text{NO}_x$  生成预测的准确性是无焰燃烧数值模拟的关键<sup>[5-6]</sup>。煤挥发分氮和焦炭氮具有不同的  $\text{NO}_x$  生成路径<sup>[7-9]</sup>,由于氮转化机理尤其是燃料氮生成路径较为复杂,目前绝大部分研究者在煤粉燃烧模拟中采用简化的半经验  $\text{NO}_x$  后处理模型。该模型将燃烧氧化反应与  $\text{NO}_x$  生成过程解耦计算,无法考虑初始 NO 对着火的加速作用及湍流-燃烧-NO 生成之间的相互影响,通常只能用于 NO 生成的趋势性预测,未经详细验证时无法精确定量预测含氮组分转化<sup>[10]</sup>。无焰燃烧具有容积式低反应速率燃烧区,具备典型中低温燃烧特性,因此有限速率化学反应对燃烧过程的影响不可忽略,燃烧模拟过程需采用耦合含氮详细机理的有限速率模拟方法,考虑湍流-化学-氮转化反应交互作用,以提高 NO 预测精度。然而受计算资源限制,大型含氮详细反应机理的组分数和反应数过多,如 Glarborg 等<sup>[11]</sup> 开发的最新版本的 PG2018 含氮详细反应机理,含有 151 种组分和 1 397 步反应,难以直接应用于三维有限速率反应的计算流体力学(CFD)模拟。须在不显著降低计算精度的条件下进行机理简化并耦合计算加速

算法,以提高计算效率。

燃烧过程的组分分布在不同反应区域差别很大,因此无需在模拟全程使用相同的化学反应机理。动态自适应机理简化算法可将详细机理在反应区当地实时简化为精确子机理,以此在每个反应局部位只需耦合适合该反应区的最小组分与反应数的简化机理进行有限速率反应积分运算,以此实现计算加速。当前已有耦合动态自适应机理简化算法的气体及液体燃料燃烧数值模拟研究<sup>[12-14]</sup>,而基于动态自适应反应的煤粉燃烧数值模拟鲜有报道。

为了提高煤粉无焰燃烧的模拟精度和计算效率,研究煤粉无焰燃烧燃料氮转化机理,本文首先介绍动态自适应机理简化算法的原理,而后耦合自主发展的含氮骨架机理并采用动态自适应机理简化算法,进行煤粉无焰燃烧燃料氮转化有限速率模拟,经过模拟结果系统验证后,进行煤粉无焰燃烧燃料氮转化动力学分析。

## 1 基于动态自适应反应的数值模拟方法

### 1.1 动态自适应机理简化算法

化学反应流模拟需要求解偏微分方程组。大多数反应流求解器基于算子分裂法求解组分和能量输运方程,化学反应源项和输运项(对流和扩散)使用流体力学时间步长  $\Delta t$  迭代求解。假设一个反应机理含有  $k$  个组分,其化学反应源项可表示为一组刚性常微分方程(ODE):

$$\begin{cases} \text{d}y_1/\text{d}t = f_1(T, P, y_1, \dots, y_k) \\ \vdots \\ \text{d}y_k/\text{d}t = f_k(T, P, y_1, \dots, y_k) \\ \text{d}T/\text{d}t = f_{k+1}(T, P, y_1, \dots, y_k) \end{cases}, \quad (1)$$

其中,  $T$ 、 $P$ 、 $y$  分别为温度、压力和组分质量分数。给定一个特定的热化学状态  $\Phi$ , 动态自适应机理简化可在该条件下消除反应机理中对放热速率和目标产物生成速率影响极小的组分及反应。ODE 方程组中相应组分的方程式被消除,从而可求解简化后的低维方程组。动态自适应机理简化算法能在特定时间内基于每组当地瞬时热化学状态参数进行快速响应并计算简化。动态自适应机理简化算法连续响应

的时间间隔为反应流计算中流体动力时间步长。

本研究采用的动态自适应机理简化通过直接关系图法(DRG)实现<sup>[15]</sup>,该方法可较好地评估复杂机理中不同组分之间的耦合关系。简化前首先需要确定目标组分和简化阈值,目标组分通常确定为燃料主要成分及燃烧过程中的关键组分,简化阈值需综合考虑简化效果和计算误差。然后通过直接关系图方法在每个网格内量化非目标组分B对目标组分A总生成量的贡献 $r_{AB}$ ,即

$$r_{AB} = \frac{\max_i |v_{A,i} \omega_i \delta_{B,i}|}{\max_i (v_{A,i} \omega_i)} v_{A,i}, \quad (2)$$

$$\delta_{B,i} = \begin{cases} 1, & \text{如果第 } i \text{ 步反应包含组分 B} \\ 0, & \text{其他} \end{cases}$$

其中, $\omega_i$ 为基元反应*i*的化学反应速率; $v_{A,i}$ 为反应*i*中A组分的化学计量数。当 $r_{AB} > \lambda$ ( $\lambda$ 为简化阈值)时,B组分被保留在机理中。对每个非目标组分,均需通过计算该组分对目标组分总生成量的贡献来确定其对目标组分的直接影响。

采用相同方法确定目标组分的间接贡献组分,当B组分包含于对目标组分直接贡献较大的组分集合中,其余组分K需计算出其对组分B的贡献 $r_{BK}$ ,且当 $r_{BK} > \lambda$ 时保留该组分。对所有组分执行上述操作,可确定最终保留在简化机理中的组分。

最后将所有与保留组分无关的反应从机理中去除,即可得到最终简化机理。通过求解简化后的低维常微分方程组,可显著缩短计算时间。因此,当 $\lambda$ 值较大时,保留的组分及反应数减少,计算效率提高,但可能增大模拟误差。

在当地自适应建表法(ISAT)的基础上结合动态自适应机理简化(DAC)算法(即ISAT-DAC),可进一步提高基于详细机理有限速率模拟的计算效率<sup>[16]</sup>。DAC算法在模拟过程中根据当地温度、组分浓度等条件进行实时机理简化,因此ISAT-DAC方法可充分发挥2种方法优势。ISAT-DAC方法中设置ISAT简化阈值为 $10^{-4}$ ,DAC简化阈值为 $10^{-2}$ ,计算精度不会显著降低。DAC算法的目标组分选用 $\text{CH}_4$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{NO}$ 和 $\text{HO}_2$ 和 $\text{NO}$ ,其中 $\text{CH}_4$ 为燃料挥发分析出的主要组分, $\text{CO}$ 和 $\text{NO}$ 为燃烧过程中需要精确预测的关键组分, $\text{HO}_2$ 为着火过程的关键组分。ISAT-DAC方法的计算流程如图1所示。

ISAT在检索某时刻的热化学状态 $\Phi_q$ 时,若 $\Phi_q$ 需要直接积分计算,将先采用DAC方法基于当地热化学状态和目标组分集合对机理进行简化,然后再进行积分计算。ODE求解器将求解一个简化集合 $R(\Phi_q^a)$ ,且ISAT基于ODE求解结果可建立一个空间

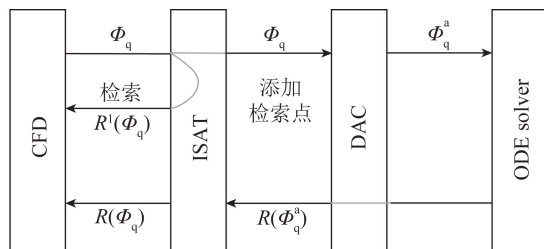


图1 ISAT-DAC 计算流程

Fig.1 ISAT-DAC calculation flow chart

映射 $R(\Phi_q)$ 。与DAC结合的ISAT需要在可变维度的成分空间(可变活跃组分)中操作和存储化学点,当检索后需要增长新的存储点时,ISAT将存储基于活跃组分集合计算得出的映射,并扩展到整个空间,因此当活跃组分数量发生变化时,可能不需要在二叉树中添加新的点。

## 1.2 CFD模拟对象

煤粉无焰燃烧模拟研究对象为国际火焰研究基金会(IFRF)燃烧炉<sup>[17]</sup>。以高挥发分Guasare煤为燃料,其元素分析、工业分析及热值结果见表1。炉膛几何结构如图2所示,燃烧器中心射流为二次风,直径为125 mm。煤粉管直径为27.3 mm,距中心二次风280 mm对称分布。燃烧炉测点分布于7个截面,沿*x*轴方向距离分别为0.150、0.440、0.735、1.320、2.050、3.220和4.970 m。炉内试验测量数据为轴向速度、温度、组分及炉膛出口烟气组成,其中速度采用激光多普勒测速(LDV)探针测量,温度采用B型热电偶(Pt 6%Rh/Pt 30%Rh)测量,组分浓度通过烟气取样枪取样结合气体分析仪测量。

炉膛燃烧功率为0.58 MW,试验工况参数见表2。一次风速为26 m/s,风温为313 K。二次风速为65 m/s,预热温度为1 623 K。二次风 $\text{O}_2$ 含量为22%, $\text{NO}$ 含量为 $89 \times 10^{-6}$ 。本文研究对象IFRF煤粉无焰燃烧试验采用高速直喷一、二次风射流,高动量射流存在强烈的射流扩散和卷吸作用,在整个燃烧区内引起了大尺度烟气内循环,反应混合物被再循环烟气稀释并加热至超过自燃点,实现了无焰燃烧。

由于试验炉具有对称性,为节约模拟消耗,仅对1/4燃烧炉进行模拟。采用三维六面体结构化网格,经网格独立性分析,选用网格总数约60万。

## 1.3 煤粉无焰燃烧CFD模型

本计算采用含氮详细反应机理并将燃烧氧化过程与氮转化过程耦合,以模拟煤粉无焰燃烧 $\text{NO}_x$ 生成。Glarborg等<sup>[11]</sup>基于近几十年来含氮化学机理的研究成果和最新进展开发了PG2018机理,该机理更

表1 Guasare 煤燃料分析<sup>[17]</sup>  
Table 1 Fuel analysis of Guasare coal<sup>[17]</sup>

元素分析/%					工业分析/%				$Q_{\text{net,ar}}/$
$C_{\text{daf}}$	$H_{\text{daf}}$	$N_{\text{daf}}$	$O_{\text{daf}}$	$S_{\text{daf}}$	$M_{\text{ar}}(378\text{ K})$	$V_{\text{ar}}$	$A_{\text{ar}}$	$FC_{\text{ar}}$	$(\text{MJ} \cdot \text{kg}^{-1})$
81.6	5.5	1.5	10.7	0.6	2.9	37.1	56.7	3.3	31.74

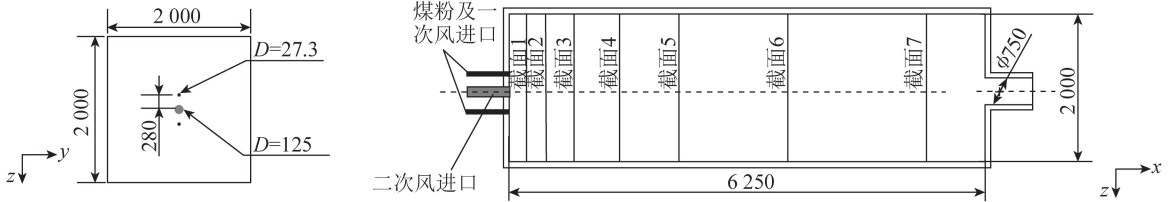
图2 IFRF 炉膛几何结构<sup>[17]</sup>Fig.2 IFRF furnace geometry structure<sup>[17]</sup>

表2 IFRF 试验工况<sup>[17]</sup>  
Table 2 IFRF experimental conditions<sup>[17]</sup>

项目	质量流量/ $(\text{kg} \cdot \text{h}^{-1})$	速度/ $(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	温度/K	热流量/MW	含量/%
煤粉	66	26	313	0.58	—
一次风	130	26	313	—	$\text{O}_2: 23, \text{N}_2: 77$
二次风	675	65	1 623	0.30	$\text{O}_2: 22, \text{H}_2\text{O}: 9.5, \text{CO}_2: 12.5, \text{NO}: 89 \times 10^{-4}, \text{N}_2: 56$

新了含氮组分的相关热力学参数,主要包括热力型 NO、快速型 NO、燃料型 NO、 $\text{N}_2\text{O}$  中间路径、NNH 路径以及 NO 再燃还原,PG2018 原始反应机理包含 151 种组分和 1 397 步基元反应。笔者对多种广泛使用的含氮详细反应机理进行了机理评估、发展与简化,发现 PG2018 机理相较于其他含氮详细机理在氮转化模拟精度方面具有显著优越性<sup>[10]</sup>。笔者在保证模拟精度的条件下,基于 PG2018 机理发展和简化得到仅含 35 种组分和 259 步反应的骨架反应机理<sup>[10]</sup>。本研究数值模拟中,使用该高精度骨架反应机理,并耦合 DAC 算法以实现计算加速,以应用于煤粉无焰燃烧模拟。

数值模拟基于 Fluent 平台。湍流模型采用标准  $k-\varepsilon$  模型,并将模型系数  $C_{\varepsilon 1}$  由 1.44 修正为 1.60 以提升圆管射流的预测精度。采用化学渗透脱挥发分(CPD)模型模拟挥发分析出<sup>[18-19]</sup>。采用离散坐标法(DO)求解辐射传递方程,同时引入灰气体加权和(WSGG)气体辐射模型<sup>[20]</sup>,WSGG 模型中总发射率的空间变化是气体成分和温度的函数。采用涡耗散概念模型(EDC)耦合笔者团队自主发展的 PG2018 含氮骨架机理(35 种组分和 259 步反应)模拟均相燃烧和燃料氮转化,采用 ISAT 算法,结合 DAC 算法实现计算加速。速度-压力耦合采用 SIMPLE 算法,方程离散采用高阶 QUICK 格式。

不同于传统半经验后处理方法对燃料型  $\text{NO}_x$  生成的近似模拟,本文考虑挥发分与焦炭燃料氮析出

并结合燃料氮转化机理(即 PG2018 含氮骨架机理),进行耦合燃烧氧化反应和燃料氮转化的有限速率详细反应机理模拟。煤粉挥发分组成采用 CPD 模型计算,并考虑为  $\text{CH}_4$ 、 $\text{H}_2$ 、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{NO}$  和  $\text{HCN}$  六种组分。挥发分氮均考虑以  $\text{HCN}$  形式释放<sup>[17]</sup>,焦炭氮以  $\text{NO}$  形式释放<sup>[21]</sup>。CPD 模型计算结果表明:该煤粉干燥无灰基焦炭质量分数为 42.6%,挥发分为 57.4%。由煤粉元素分析可知,挥发分中氮元素质量分数为 1.3%,焦炭中为 1.7%。综合以上信息计算可得:挥发分组成为  $\text{CH}_4: \text{H}_2: \text{CO}_2: \text{CO}: \text{NO}: \text{HCN} = 52.22\%: 2.25\%: 29.22\%: 11.24\%: 2.63\%: 2.44\%$ 。焦炭燃尽模型采用动力学/扩散控制模型,该模型假设焦炭表面反应速率由动力学或扩散速率影响,燃烧过程中颗粒尺寸不变,密度变化。

## 2 模拟结果与讨论

### 2.1 基于动态自适应反应的煤粉无焰燃烧模拟与试验验证

通过将耦合 ISAT-DAC 算法的模拟结果与试验数据进行对比,可验证 ISAT-DAC 算法在煤粉无焰燃烧数值模拟中的准确性和适用性。本模拟与试验进行了基于炉内轴向速度、炉内温度、 $\text{O}_2$  浓度、 $\text{CO}_2$  浓度、 $\text{CO}$  浓度和  $\text{NO}$  浓度及烟气排放数据的对比验证。

炉内轴向速度和温度的试验和预测结果对比如图 3 所示。总体而言,速度与温度场模拟结果与试

验吻合较好。速度模拟偏差主要出现在  $0 < z < 0.1$  m 处,在燃料喷嘴出口附近的射流核心区 ( $x/d=1.2$ ), 轴向速度应保持为射流初始速度(约为 65 m/s), 因此该试验测量值明显偏低<sup>[17]</sup>, Mei 等<sup>[22-23]</sup>、Vascellari 等<sup>[24]</sup> 和 Wang 等<sup>[25]</sup> 的模拟均发现了类似问题, 获得了

相似的速度场模拟结果, 并将误差归因于激光多普勒测速仪在射流核心区处的测量误差。

$O_2$ 、 $CO_2$  和  $CO$  组分试验与预测结果如图 4 所示。 $O_2$ 、 $CO_2$  和  $CO$  组分浓度预测结果与试验值总体吻合较好。

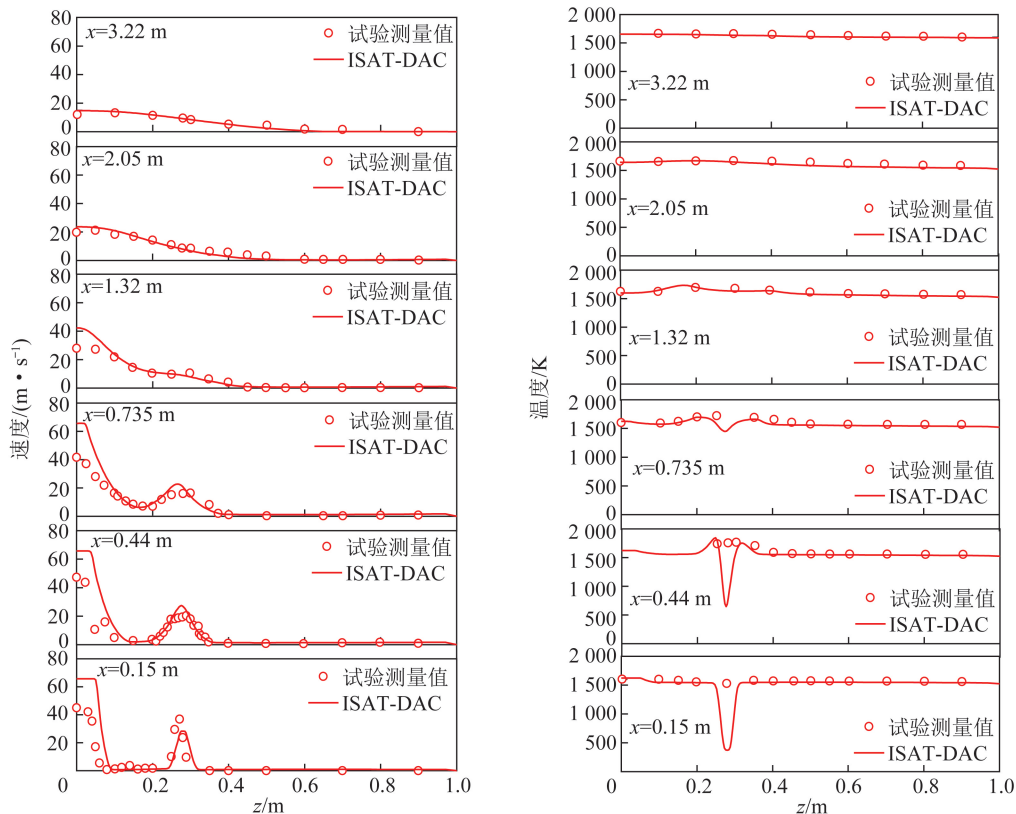


图3 炉内轴向速度与温度的预测结果与试验数据对比

Fig.3 Comparisons between the predicted and experimental axial velocity and temperature inside the furnace

基于 ISAT-DAC 算法的动态自适应反应 NO 模拟结果, 与常规后处理模拟及试验数据的对比结果如图 5 所示。可知基于后处理方法得到的 NO 预测结果精度不高, 在截面 3 且  $z \approx 0.3$  m 处对 NO 生成模拟偏高, 而在截面 4、5 和 6 且  $0 < z < 0.4$  m 位置对 NO 生成预测偏低。相较而言, 与基于含氮骨架机理耦合 ISAT-DAC 算法的 NO 预测结果与试验值吻合更好, 可以更好地预测炉内各截面的 NO 生成情况。基于含氮骨架机理耦合 ISAT-DAC 算法的 NO 预测结果相比于后处理模拟精度更高, 可从 3 方面解释: ① 相比于常规总包反应机理, 骨架反应机理可对煤粉燃料燃烧过程提供更精细地描述, 可获得精度更高的温度和组分分布场; ② 该含氮反应机理已经过详细验证, 精度较高, 而后处理模拟方法仅基于半经验模型, 其精度有限; ③ 相比于常规基于快速化学反应的 EDM 涡耗散燃烧模型, 本模拟采用 EDC 涡耗散概念燃烧模型, 可考虑湍流与反应交互

过程进行有限速率反应模拟, 可针对无焰燃烧的有限速率反应获得预测效果更好的结果。因此, ISAT-DAC 算法相比于后处理方案可提升炉内 NO 模拟精度。

最后对比炉膛烟气出口试验数据与预测结果, 具体见表 3 (dry)。可知排烟温度、烟气  $CO_2$ 、 $O_2$ 、 $CO$  和 NO 预测结果与试验值相对误差均在 5% 以内。

综合上述结果, 本模拟炉内各监测面及炉膛出口的预测结果与试验数据吻合较好, 模拟采用 PG2018 骨架机理及耦合的 ISAT-DAC 算法适用于煤粉无焰燃烧模拟, 且相比常规 NO 后处理模拟方法提升了对燃料氮转化的模拟精度。

## 2.2 煤粉无焰燃烧燃料氮转化分析

基于已经过试验验证的模拟结果, 进一步分析煤粉无焰燃烧燃料氮转化机理。

温度与燃料氮转化过程密切相关, 炉内温度分布云图如图 6 所示。可见煤粉无焰燃烧过程具备较

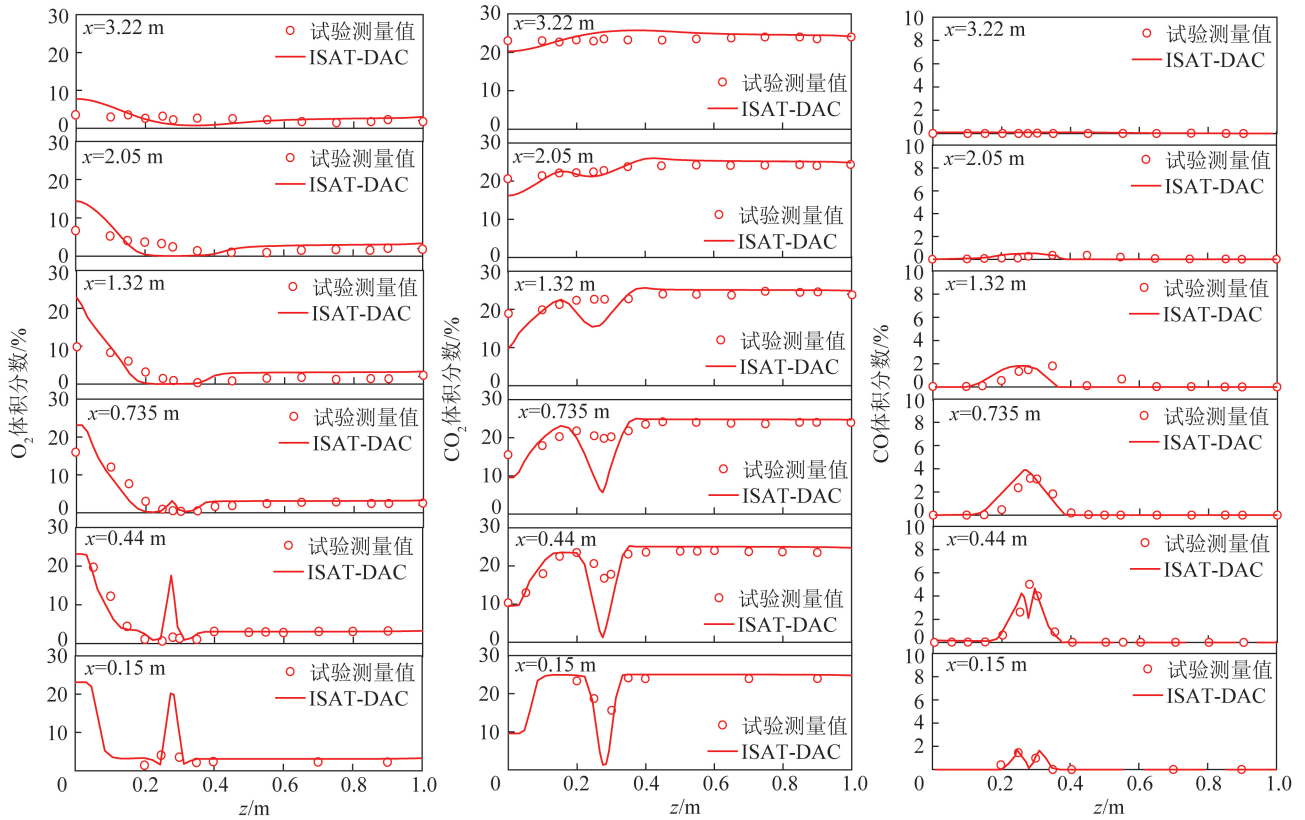
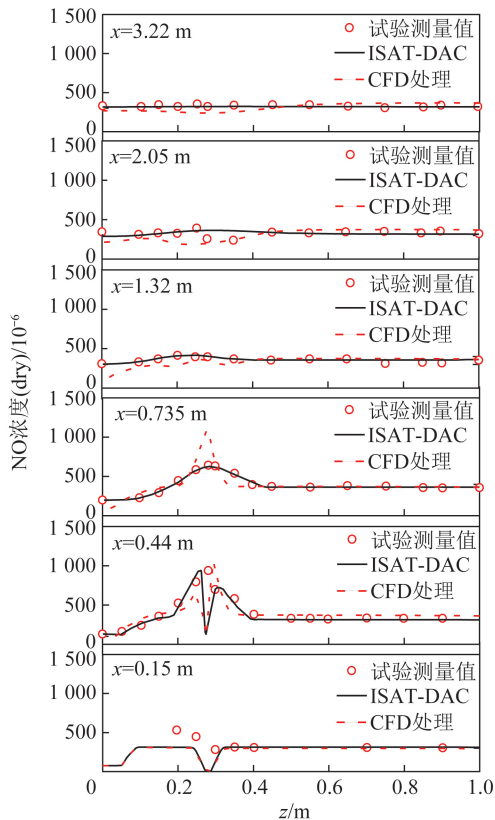
图4 炉内  $O_2$ 、 $CO_2$ 、 $CO$  浓度的预测结果与试验数据对比Fig.4 Comparisons between the predicted and experimental concentrations of  $O_2$ ,  $CO_2$  and  $CO$  inside the furnace图5 炉内  $NO$  浓度的预测结果与试验数据对比Fig.5 Comparisons between the numerical results and experimental data of  $NO$  concentration inside the furnace

表3 炉膛出口预测结果与试验数据对比

Table 3 Comparison between the simulation results and experimental data of furnace export

参数	试验测量值	模拟值	相对误差/%
排烟温度/K	1 503.0	1 512.1	0.5
烟气 $CO_2$ 含量/%	25.5	25.1	1.4
烟气 $O_2$ 含量/%	3.1	3.2	3.1
烟气 $CO$ 含量/ $10^{-6}$	<50.0	16.8	—
烟气 $NO_x$ 含量/ $10^{-6}$	320.0	316.7	1.0

均匀的炉内温度分布。进一步观察发现,炉内存在2个主反应区,一处是由于燃料向下游喷射并与氧气混合、反应形成,另一处位于煤粉喷管处并由高温烟气回流产生。

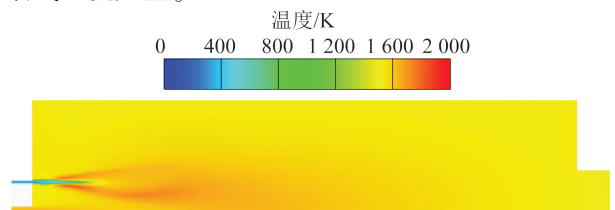


图6 炉内温度分布

Fig.6 Temperature distribution in the furnace

含氮详细(骨架)机理模拟方法可精确预测炉内  $NO$  分布,基于含氮骨架机理 ISAT-DAC 模拟和总包机理后处理模拟的  $NO$  分布云图如图7所示。

图7(a)中,高浓度NO分布在给粉管四周的高温区,炉膛下游虽存在高温区,但NO与碳氢燃料发生的强烈还原反应使NO浓度降低。图7(b)中,高浓度NO分布在给粉管出口位置,炉膛下游NO浓度预估偏低,与实际NO分布有偏差,不适于精确定量分析。

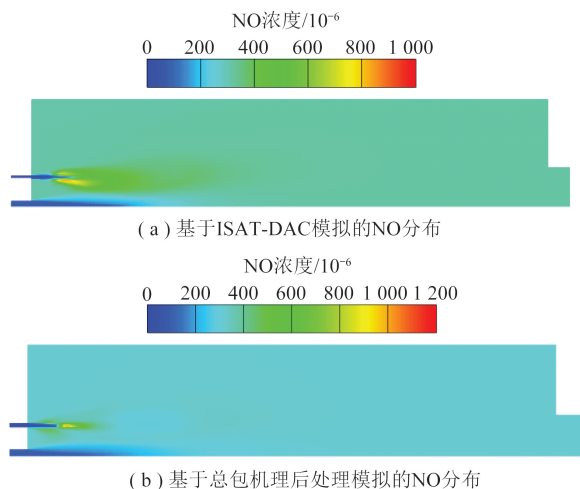
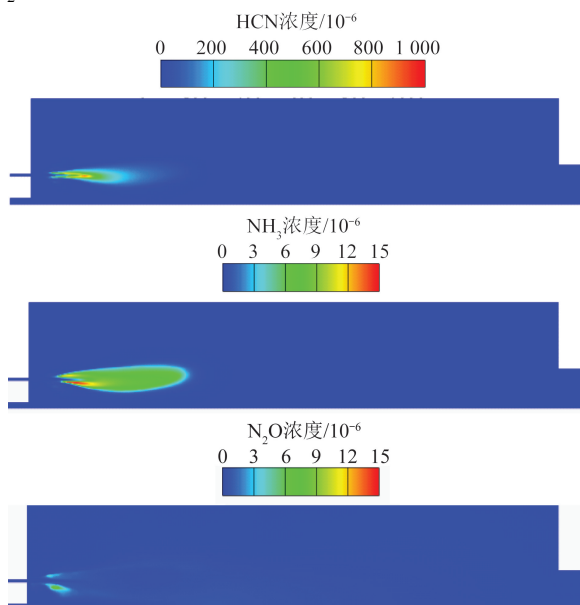


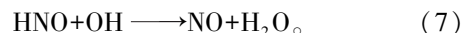
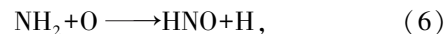
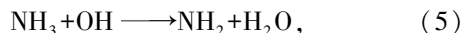
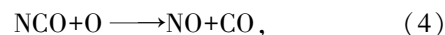
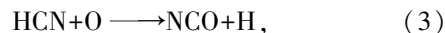
图7 炉内NO分布

Fig.7 NO distributions inside the furnace

基于含氮骨架机理ISAT-DAC算法的有限速率模拟,可得到机理中所包含的典型含氮中间组分在煤粉无焰燃烧过程的炉内分布情况。HCN、NH<sub>3</sub>和N<sub>2</sub>O中间组分的炉内分布云图如图8所示。炉内HCN含量较高,HCN转化为NH<sub>3</sub>的量较少,NH<sub>3</sub>含量较低且峰值仅有约15×10<sup>-6</sup>,N<sub>2</sub>O生成量更低。HCN和NH<sub>3</sub>主要分布在给粉管出口处,均由煤粉挥发分而来,N<sub>2</sub>O分布在高温区周围并参与NO的生成与还原。

图8 炉内HCN、NH<sub>3</sub>和N<sub>2</sub>O中间组分分布Fig.8 Distributions of HCN, NH<sub>3</sub> and N<sub>2</sub>O intermediates inside the furnace

基于含氮骨架机理ISAT-DAC算法的有限速率模拟不仅可预测不同含氮组分的生成量和炉内分布,还可分析煤粉无焰燃烧过程中的燃料氮转化路径。煤粉无焰燃烧燃料氮转化路径如图9所示,图中箭头颜色与数字表示各反应在整个计算域内体积加权平均后的反应速率。由图9可知,热力型NO生成受到显著抑制,燃料型NO生成主要取决于HCN、NH<sub>3</sub>和N<sub>2</sub>O中间体,且NCO和HNO是较关键的中间组分。HCN中间体主要通过HNCO/CN和NCO路径生成NO;NH<sub>3</sub>中间体由HNCO生成,并进一步转化为NH<sub>2</sub>、HNO,最终生成NO;N<sub>2</sub>O路径主要参与NO还原,对NO生成贡献较低。反应路径分析表明,CH<sub>3</sub>CN也是生成NO的重要中间组分,可通过NCO路径生成。因此,NO生成的关键反应有



由于模拟过程中耦合动态自适应机理简化法(DAC)和当地自适应建表法(ISAT)来实现计算加速,可得到经动态自适应机理简化后的炉内活跃组分分布云图,如图10所示。即采用ISAT-DAC简化法,可以在模拟过程中准确识别炉内的主要反应区,简化后的主反应区最多仅保留32种组分,其他区域组分数为0(无反应区域),从而节约计算成本。图10中主反应区位于给粉管下游,煤粉经给粉管射出后与高温二次风相遇并发生燃烧反应,主反应区与图6中的高温区对应。炉膛上方处的活跃组分主要是由于高温烟气回流所致。

动态自适应机理简化法在去除对目标组分贡献较小的其余组分时,也去除了包含该组分的相关反应,从而得到图11的炉内活跃反应分布云图。活跃反应较多的区域与活跃组分较多的区域对应,主反应区内最多保留了240步反应,弱反应区依次递减至80步反应,烟气区域反应数为0(即无反应发生)。

统计计算时间发现,相比于基于骨架反应机理(35种组分和259步反应)耦合ISAT算法的燃烧模拟,本模拟进一步结合DAC算法后,可获得约3倍的计算加速。因该骨架反应机理(35种组分和259步反应)相比于原PG2018详细反应机理(151种组分和1397步反应)可获得约18.6倍加速效果。即采用骨架反应机理耦合ISAT-DAC算法,相比于原PG2018详细反应机理可实现近55倍的计算加速,且未牺牲计算精度。

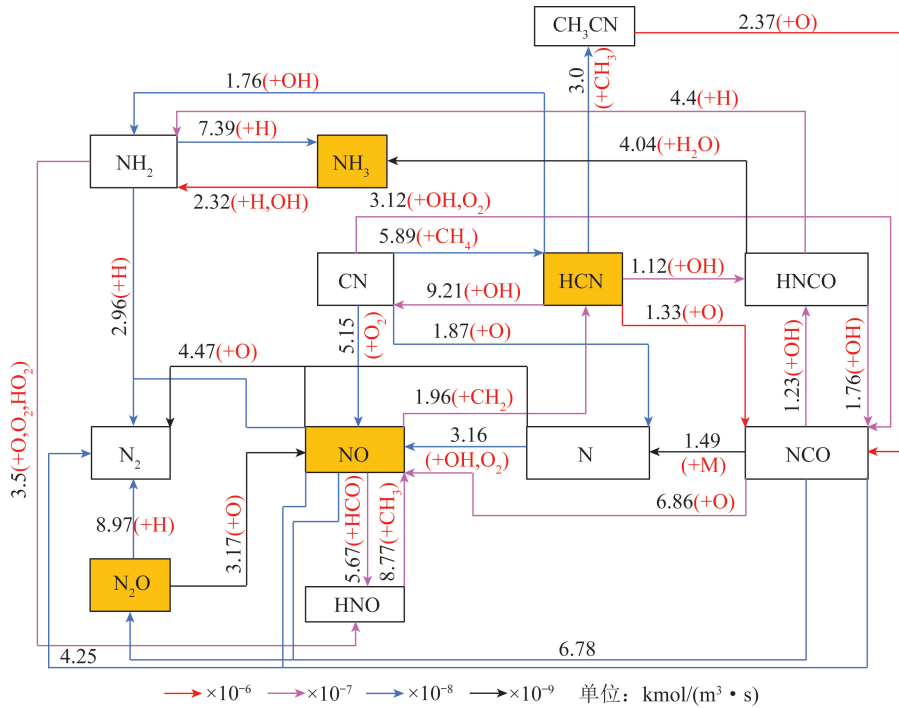


图9 煤粉无焰燃烧燃料氮转化路径

Fig.9 Fuel nitrogen conversion path of the flameless combustion of pulverized coal

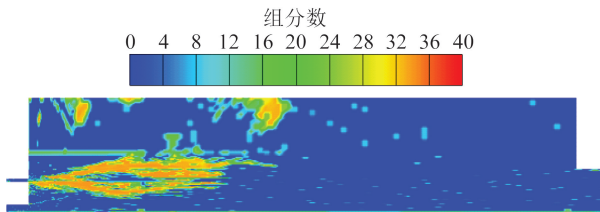


图10 炉内活跃组分分布

Fig.10 Distribution of active species in the furnace

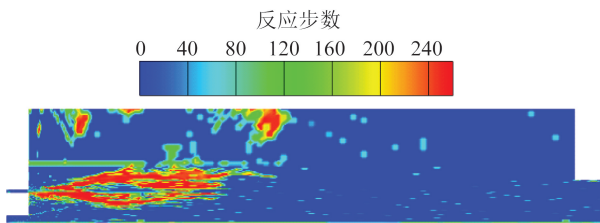


图11 炉内活跃反应分布

Fig.11 Distribution of active reactions in the furnace

### 3 结论

1) 本文基于 IFRF 0.58 MW 燃烧炉进行了煤粉无焰燃烧的含氮骨架机理有限速率模拟, 考虑了燃烧过程中的湍流-化学-氮转化反应交互, 并进一步耦合动态自适应反应机理简化法来实现计算加速。炉内监测面及炉膛出口的温度、速度、 $O_2$  浓度、 $CO_2$  浓度、NO 浓度预测结果与试验数据吻合较好, 验证了 PG2018 骨架机理及 ISAT-DAC 算法在煤粉无焰燃烧模拟中的准确性和适用性。且耦合 DAC 算法相较采用骨架机理模拟可实现近 3 倍的计算加速,

相较采用详细反应机理可实现近 55 倍加速效果。

2) 对煤粉无焰燃烧燃料氮转化特性和含氮关键中间组分的研究表明, NO 生成主要取决于 HCN、 $NH_3$  和  $N_2O$  中间体, 且 NCO 和 HNO 是较为关键的中间组分。HCN 中间体主要通过 HNCN/CN 和 NCO 路径生成 NO;  $NH_3$  中间体由 HNCN 生成, 并进一步转化为  $NH_2$ 、HNO, 最终生成 NO;  $N_2O$  路径主要参与 NO 还原, 对 NO 生成贡献较低。反应路径分析还表明,  $CH_3CN$  也是生成 NO 的重要中间组分, 可通过 NCO 路径生成 NO。

3) 基于经试验验证的煤粉无焰燃烧燃料氮转化模拟结果, 本研究首次获得了炉内燃料氮迁移转化的含氮关键中间组分 (HCN 与  $NH_3$ ) 分布及活跃组分与活跃反应分布, 可为 NO 减排技术的发展提供参考, 如根据炉内温度与组分分布, 针对性地提高炉内 NO 再燃与选择性非催化还原 (SNCR) 效果等。

### 参考文献 (References):

- [1] 北京市环境保护局, 北京市质量技术监督局. 锅炉大气污染物排放标准: DB 11/139—2015 [S]. 北京: 中国环境出版社, 2015.
- [2] MI Jianchun, LI Pengfei, WANG Feifei, et al. Review on MILD combustion of gaseous fuel: Its definition, ignition, evolution, and emissions [J]. Energy Fuels, 2021. DOI: org/10.1021/acs.energy-fuels.1c00511.
- [3] 成鹏飞, 李鹏飞, 胡帆, 等. 煤粉无焰富氧燃烧的数值模拟方法进展 [J]. 洁净煤技术, 2021, 27(2): 45-56.



- CHENG Pengfei, LI Pengfei, HU Fan, et al. Progress in numerical methods for flameless oxy-fuel combustion of pulverized coal [J]. *Clean Coal Technology*, 2021, 27(2): 45-56.
- [4] 潘飞, 朱建国, 刘敬樟. 循环流化床预热燃烧实验研究及数值模拟[J/OL]. *洁净煤技术*: 1-10. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.3676.TD.20201230.1041.003.html>.
- PAN Fei, ZHU Jianguo, LIU Jingzhang. Experimental study and numerical simulation of preheating combustion in circulating fluidized bed. [J/OL]. *Clean Coal Technology*: 1-10. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.3676.TD.20201230.1041.003.html>.
- [5] 段伦博, 任强强, 周骛, 等. CO<sub>2</sub>气氛对燃料N析出特性的影响[J]. *工程热物理学报*, 2011, 32(3): 517-520.
- DUAN Lunbo, REN Qiangqiang, ZHOU Wu, et al. Effect of CO<sub>2</sub> atmosphere on the fuel-N release characteristic [J]. *Journal of Engineering Thermophysics*, 2011, 32(3): 517-520.
- [6] 段伦博, 赵长遂, 卢骏营, 等. O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>气氛下煤燃烧SO<sub>2</sub>/NO析出特性[J]. *化工学报*, 2009, 60(5): 1268-1274.
- DUAN Lunbo, ZHAO Changsui, LU Junying, et al. SO<sub>2</sub>/NO emission characteristics during O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> coal combustion process [J]. *CIESC Journal*, 2009, 60(5): 1268-1274.
- [7] 曾光, 孙绍增, 赵志强, 等. 不同温度时煤热解中HCN/NH<sub>3</sub>的析出与CFB锅炉中NO<sub>x</sub>生成的关联性研究[J]. *中国电机工程学报*, 2011, 31(35): 47-52.
- ZENG Guang, SUN Shaozeng, ZHAO Zhiqiang, et al. Correlation study of HCN/NH<sub>3</sub> releasing during coal pyrolysis and NO<sub>x</sub> formation in a CFB boiler under different temperatures [J]. *Proceedings of the CSEE*, 2011, 31(35): 47-52.
- [8] 李军, 袁帅, 梁钦锋, 等. 煤及其模型化合物快速热解过程中HCN和NH<sub>3</sub>逸出规律的研究[J]. *高校化学工程学报*, 2011, 25(1): 55-60.
- LI Jun, YUAN Shuai, LIANG Qinfeng, et al. Formation of HCN and NH<sub>3</sub> during the rapid pyrolysis of coal and model compounds [J]. *Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities*, 2011, 25(1): 55-60.
- [9] 任鹏, 范卫东, 李宇, 等. 温度对燃煤挥发分和焦炭NO生成及相互关系的影响研究[J]. *锅炉技术*, 2013, 44(2): 74-80.
- REN Peng, FAN Weidong, LI Yu, et al. Effect of temperature and volatile-char interactions on ratio of volatile-char and char-NO during coal combustion [J]. *Boiler Technology*, 2013, 44(2): 74-80.
- [10] HU Fan, LI Pengfei, WANG Kai, et al. Evaluation, development, and application of a new skeletal mechanism for fuel-NO formation under air and oxy-fuel combustion [J]. *Fuel Processing Technology*, 2020, 199: 106256.
- [11] GLARBORG Peter, MILLER James A, RUSCIC Branko, et al. Modeling nitrogen chemistry in combustion [J]. *Progress in Energy & Combustion Science*, 2018, 67: 31-68.
- [12] YANG Hongtao, REN Zhuyin, LU Tianfeng, et al. Dynamic adaptive chemistry for turbulent flame simulations [J]. *Combustion Theory and Modeling*, 2013, 17(1): 167-183.
- [13] WU Kun, CONTINO Francesco, YAO Wei, et al. On the application of tabulated dynamic adaptive chemistry in ethylene-fueled supersonic combustion [J]. *Combustion and Flame*, 2018, 197: 265-275.
- [14] LIANG Long, STEVENS John G, RAMAN Sumathy, et al. The use of dynamic adaptive chemistry in combustion simulation of gasoline surrogate fuels [J]. *Combustion and Flame*, 2009, 156(7): 1493-1502.
- [15] LU Tianfeng, LAW Chung K. Toward accommodating realistic fuel chemistry in large-scale computations [J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2008, 35(2): 192-215.
- [16] CONTINO Francesco, JEANMART Herve, LUCCHINI Tommaso, et al. Coupling of in situ adaptive tabulation and dynamic adaptive chemistry: An effective method for solving combustion in engine simulations [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2011, 33(2): 3057-3064.
- [17] SCHAFFEL Natalia, MANCINI Marco, SZLE Andrzej, et al. Mathematical modeling of MILD combustion of pulverized coal [J]. *Combustion and Flame*, 2009, 156(9): 1771-1784.
- [18] LI Pengfei, WANG Feifei, MI Jianchun, et al. Effects of equivalence ratio and premixing pattern on flameless combustion [J]. *Journal of Engineering Thermophysics*, 2011, 32(9): 1592-1596.
- [19] 王鹏, 郭军军, 吴海波, 等. 烟气循环倍率对煤粉富氧燃烧影响数值模拟[J]. *热力发电*, 2019, 48(4): 90-95.
- WANG Peng, GUO Junjun, WU Haibo, et al. Numerical simulation on influence of flue gas recirculation ratio on oxy-coal combustion [J]. *Thermal Power Generation*, 2019, 48(4): 90-95.
- [20] 吴晓峰, 范卫东. 富氧燃烧中气体辐射模型对燃烧与换热数值模拟的影响[J]. *洁净煤技术*, 2021, 27(2): 150-160.
- WU Xiaofeng, FAN Weidong. Effect of gas radiation model on the numerical simulation of combustion and heat transfer in oxy-fuel combustion [J]. *Clean Coal Technology*, 2021, 27(2): 150-160.
- [21] STANMORE B R, VISONA S P. Prediction of NO emissions from a number of coal-fired power station boilers [J]. *Fuel Processing Technology*, 2000, 64(1): 25-46.
- [22] MEI Zhenfeng, LI Pengfei, WANG Feifei, et al. Influences of reactant injection velocities on moderate or intense low-oxygen dilution coal combustion [J]. *Energy & Fuels*, 2013, 28(1): 369-384.
- [23] MEI Zhenfeng, LI Pengfei, MI Jianchun, et al. Diffusion MILD combustion of firing pulverized-coal at a pilot furnace [J]. *Flow Turbulence & Combustion*, 2015, 95(4): 803-829.
- [24] VASCELLARI Michele, CAU Giorgio. Influence of turbulence-chemical interaction on CFD pulverized coal MILD combustion modeling [J]. *Fuel*, 2012, 101: 90-101.
- [25] WANG Xuebin, ZHANG Jiaye, XU Xinwei, et al. Numerical study of biomass co-firing under oxy-MILD mode [J]. *Renewable Energy*, 2020, 146: 2566-2576.