

褐煤地下气化特性的实验研究*

李文军¹⁾ 刘丽丽²⁾ 梁新星³⁾ 梁杰⁴⁾ 王伟⁵⁾

摘要 分别以富氧和富氧-水蒸气为气化介质,进行了大雁褐煤的地下气化模型实验.研究了鼓风量和汽氧比对煤气组成、气化稳定性以及煤层气化速率的影响,并进行了富氧-水蒸气地下气化过程的物料衡算.实验结果表明,通过采取合适的气化参数,大雁褐煤的地下气化过程可以稳定进行.

关键词 褐煤,地下气化,汽氧比,气化速率

中图分类号 TD841

0 引言

我国褐煤资源储量丰富,仅内蒙古东部的褐煤储量就达1 000多亿t,但由于褐煤灰分和水分高、发热量低、易风化和自燃、难于洗选和储存以及同时伴生着软岩顶板等特点,褐煤的开采和利用受到了很大的限制.煤炭地下气化是从根本上解决传统煤炭开采和使用方式存在的一系列技术、安全和环境问题的重要途径.^[1]将褐煤直接在地下气化可以综合利用的煤气,煤气用于民用、发电、提取纯氢或作为合成甲醇、二甲醚、柴油、汽油等原料气,将会开创一个褐煤利用的新前景.前苏联、美国对褐煤地下气化进行了大量的实验研究.^[2]我国对褐煤地下气化研究较少,为此对内蒙古大雁褐煤地下气化进行

模型实验,揭示了褐煤地下气化的基本特征和温度场发展规律,获得了大雁褐煤地下气化工艺参数.褐煤地下气化具有较高的可控性和稳定性,是最适宜地下气化开采的煤种.

1 大雁褐煤煤质特征和理想气化参数的计算

1.1 大雁褐煤煤质特征

将大雁送来的煤样送国家煤炭质量检验中心进行全面分析化验,化验项目有:工业分析、元素分析、全水分、发热量、全硫及硫形态分布、灰熔融性、灰成分分析、结渣性、CO₂反应性、黏结性、抗碎强度和热稳定性等.表1和表2为实验煤样煤质工业分析、元素分析和灰成分结果.

表1 大雁褐煤的元素分析和工业分析

Table 1 Proximate and ultimate analysis of Dayan lignite

Proximate analysis/%*							Ultimate analysis/%*				CRC/1-8	Q _{gr,ad} /(MJ·kg ⁻¹)
C _{daf}	H _{daf}	O _{daf}	N _{daf}	S _{pad}	S _{sad}	S _{oad}	M _t	M _{ad}	A _{ad}	V _{ad}		
74.4	4.8	18.3	1.4	0.06	0.00	0.42	27.0	19.5	31.6	23.1	1	14.27

* Percent of weight.

表2 大雁煤灰成分(%*)

Table 2 Residue compositions of Dayan lignite(%*)

SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	TiO ₂	SO ₃	K ₂ O
68.37	16.43	1.85	1.79	0.40	1.66	2.25	3.89

* Percent of weight.

大雁煤基本煤质特征是:全水分含量较高,内在水分含量中等,挥发分高,灰分高,燃点低,发热量较

低;焦渣特征指数显示煤样受热时无黏结和膨胀,实验结果也证明了这一点;含硫中等,硫形态主要是有机硫;灰组成中对煤的气化反应有催化作用的K₂O,Na₂O,CaO含量较高,灰熔融性温度中等,因灰分高,故煤样具有较强的结渣性;CO₂反应活性较高.抗碎强度和热稳定性化验结果均高于褐煤的一般指标范围,而发热量化验结果要低于褐煤的一

* 国家自然科学基金资助项目(50574096).

1) 博士生;2) 硕士生,中国矿业大学,100083 北京;3) 工程师,新奥气化采煤有限公司,065001 河北廊坊;4) 教授、博士生导师,新汶矿业集团有限责任公司,271233 山东泰安;5) 工程师,中石化胜利油田东辛采油厂,257049 山东东营

收稿日期:2008-09-23;修回日期:2008-10-28

般指标范围.从分析结果可知,大雁煤属高煤化程度褐煤,是较好的地下气化用煤.

1.2 理想气化参数计算

气化过程的物料衡算,主要用来预测出口煤气的组分及热值.从理论上讲,应对参加反应的每个元素进行平衡,而这样会使计算非常复杂.因此,本计算主要对几个重要的元素进行平衡,采用半理论计算方法.计算以实验气化用煤量及煤质分析指标为依据,具体步骤如下:

- 1) 综合计算法求得气化煤量中干馏煤气的数量.
- 2) 气化过程物料平衡方程:

$$\text{碳平衡方程} \quad n(\text{CO}) + n(\text{CO}_2) = n(\text{C})$$

$$\text{氢平衡方程} \quad n(\text{H}_2) + n(\text{H}_2\text{O}) = n(\text{W})$$

$$\text{氧平衡方程} \quad 2n(\text{CO}_2) + n(\text{CO}) = 2n(\text{O}_2) + n(\text{H}_2)$$

$$\text{平衡常数方程} \quad K_p = \frac{n(\text{CO})n(\text{H}_2\text{O})}{n(\text{CO}_2)n(\text{H}_2)}$$

式中: $n(\text{CO})$, $n(\text{CO}_2)$, $n(\text{H}_2)$, $n(\text{H}_2\text{O})$ 分别为气化煤气中一氧化碳、二氧化碳、氢气和蒸汽的量, kmol; $n(\text{W})$ 为进入气化区的水蒸气量, kmol; $n(\text{O}_2)$ 为进入气化区的氧气量, kmol; $n(\text{C})$ 为气化区的碳量, kmol; K_p 为经验常数,对已有煤炭地下气化组分数据进行统计,表明 K_p 为 2.10~2.26,本次计算取 2.25.

将上述方程联解即得气化煤气的数量,将干馏煤气量和气化煤气量加和,则可得到煤气的组分和热值.计算中假定在确定的范围内干馏煤气贮量的 20% 进入气化通道.根据上述物料平衡项目,编程计算,可得模型实验的计算结果(见表3).由表3可以

表3 理论计算结果(%*)

Table 3 Result of theoretical calculation and the oxygen/steam model test (%*)

Gas composition	H ₂	CO	CH ₄	CO ₂	N ₂
Theoretical	43.92	27.20	2.71	22.13	0.47
Model test	39.55	22.74	3.85	32.42	1.71

* Percent of weight.

看出,物料衡算结果基本可以用来预测煤气组分,但所得结果中 H₂ 与 CO 量较实验值偏高,这主要是因为经验常数 K_p 的选取与实际值存在一定的偏差,同时在物料平衡时考虑了其中的重要元素,而忽略了其他元素.

2 实验部分

2.1 实验系统

气化炉体:模型气化炉内膛尺寸长 4.45 m,宽 1.17 m,高 1.57 m.外设耐层、保温层、钢板密封层和钢筋混凝土承压层.炉体上设 4 个进(出)气孔、19 个温度测量孔、4 个燃空区、燃烧状态观测孔和 6 个压力测点.它具有三方面功能:1) 可以模拟不同煤质、煤层倾角、煤层厚度和煤层深度的地下气化过程;2) 可以进行不同气化工工艺如:正反向鼓风、辅助孔供风、压抽相结合等气化工工艺的试验;3) 可进行不同气化炉结构参数的实验.模拟煤层和气化炉结构示意图见图 1,气化盘区(煤层)尺寸为 4 m×1.1 m×0.5 m,倾角 17°,共装煤 2 448.76 kg.

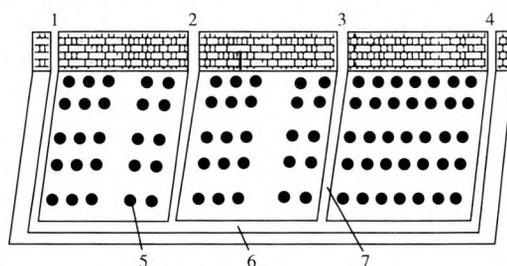


图1 模拟煤层和气化炉结构

Fig. 1 Simulated coal seam and gasification structure

1—Inlet hole; 2,3—Assistant hole; 4—Outlet hole;
5—Gaging temperature; 6—Gasification channel; 7—Flow channel

气化剂供给系统:包括供风、供氧和水蒸气发生系统.供风采用空气压缩机,氧气由氧气瓶提供,水蒸气制备采用 ZFQ-B 型医用水蒸气发生器.

检测系统:流量测量采用涡轮流量计测量;进出口及炉体采用 PT200 压力变送器显示;煤层温度测量采用镍铬-镍硅热电偶、datataker 温度采集器及 detranfer ver2.0 采集软件进行数据采集,共布置 85 个温度测点;煤气组分采用北京分析仪器厂 GC-3420 型气相色谱仪分析,通过色谱工作站进入上位机.所有参数采用计算机在线采集、贮存、显示、打印和分析.

2.2 实验方法

在气化通道进气侧用电阻丝点火,鼓入空气或少量氧气预热气化炉,之后鼓入富氧使气化炉升温.待气化炉形成高温温度场后,先进行富氧连续气化过程实验,在不同供氧速率条件下,研究出口煤气组分的变化规律;然后进行富氧-水蒸气连续气化实验,按不同比例同时鼓入氧气和水蒸气,研究其各种工艺参数的变化规律.在不同气化工工艺条件下的不同气化时刻,记录气化煤层温度场、煤气组分及操作参数,并根据煤气组分及温度场的变化,及时调整气

化工艺,以获得合格煤气。

3 富氧连续气化

褐煤含水较高,首先进行富氧气化实验,研究最佳鼓氧量和稳定气化工工艺参数。

3.1 供 O₂ 量的影响

富氧气化阶段的鼓氧量直接影响煤气的组分,因此,在富氧气化阶段应该根据煤种的不同调整鼓氧量,以达到产生合格煤气的目的。CO、H₂ 和 CO₂ 随着鼓氧量变化的含量见图2。由图2可以看出,

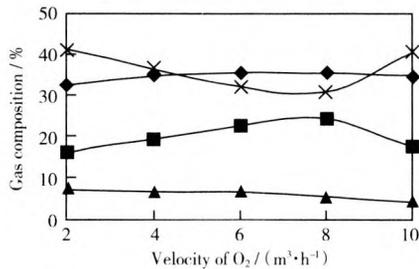


图2 煤气组分随着鼓氧量的变化趋势

Fig. 2 Change gas composition with velocity of O₂

◆—H₂; ■—CO; ▲—CH₄; ×—CO₂

H₂ 的含量随着鼓氧量的增加呈现增长的趋势,但是当氧气量增加到 8 m³/h 时, H₂ 含量趋于稳定; CO 的含量开始时也是随着鼓氧量的增加而增加,到鼓氧量达到 7.5 m³/h~8 m³/h 时, CO 的含量达到最大值,随后随着鼓氧量的增加,反而呈现下降的趋势;而 CO₂ 含量的变化趋势却和 CO 恰好相反,也就是说,鼓氧量的增加虽然有利于温度的升高和气化炉的蓄热,但是当氧气量超过了褐煤的反应能力,会使得气化炉内的气氛以氧化为主,加之褐煤本身的含氧基团高,如果氧气的鼓入量增加到一定程度,使得温度大大增加,就会使得含氧基团主要以 CO₂ 的形态脱落^[3],从而增加了煤气中 CO₂ 的含量,减少了 CO 的含量,并最终影响了煤气的热值。由图2可看出,实验条件下最佳鼓氧量为 8 m³/h,折算到气化通道里的最佳流速(常温、常压下)为 0.22 m/s。

3.2 富氧连续气化实验

根据图2,选择鼓氧量在 7.5 m³/h~8 m³/h 条件下进行连续气化实验,图3是褐煤富氧连续气化 26 h 的煤气有效组分变化。由图3可以看出,由于褐煤的水分含量一般为 20%~50%^[4],因此反应一开始, H₂ 的含量就比较高,最高点达到了 38%,这

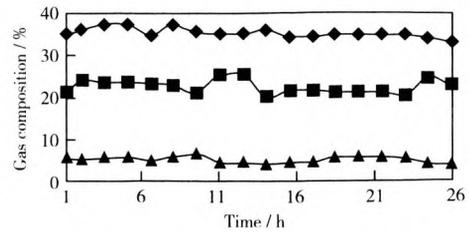


图3 富氧连续气化过程煤气有效组分的变化

Fig. 3 Change of gas composition in continuous oxygen gasification process

◆—H₂; ■—CO; ▲—CH₄

对于保持地下气化的煤气的热值是非常有意义的,但随着气化过程的进行,煤层中水分的蒸发, H₂ 含量呈下降趋势; CO 含量相对较低,反之 CO₂ 的含量比较高,这主要是由于褐煤含氧量高,且大部分是以含氧官能团的形式存在的^[5],这些含氧官能团以酚羟基(—OH)为主,其次是羧基(—COOH)、羰基(=CO)及甲氧基(—OCH₃)。因此,在反应的开始蓄热阶段鼓入了大量的氧气,温度迅速升高(达到 1 600 ℃),煤气组分中 CO₂ 的含量较大,煤气热值因此受到了影响。富氧气化阶段,气化炉属于蓄热阶段,同时也是煤的热解气化阶段,由于褐煤的挥发分含量高^[6],因此在这一阶段 CH₄ 的含量很大,但随着反应的进行,挥发分含量减少, CH₄ 在煤气中的组分呈下降的趋势。

4 富氧-水蒸气连续气化

当煤气中 H₂ 含量下降时,则向炉内供入水蒸气,进行富氧(93%,经济制氧浓度)-水蒸气连续气化实验,研究最佳汽氧比。

4.1 汽氧比的影响

汽氧比是气化过程中水蒸气和氧气的耗量比,它是控制气化温度的重要操作条件。随着汽氧比的增加,气化温度将降低,水蒸气分解率下降,水蒸气耗量增加,因此汽氧比直接会影响到煤气的组成。不同煤种因其反应活性不同,要求不同的反应温度,相应地选择不同的汽氧比。^[7]第23页图4为煤气组分随着汽氧比的变化趋势图。由图4可以看到,随着汽氧比的增加,水蒸气的浓度增加, H₂ 的含量呈现增长的趋势,但是随着水蒸气的增加,气化炉的温度下降,不利于水煤气的反应和 CO₂ 的还原反应,因此煤气中 CO 的含量呈现出先增后减的趋势,而 CO₂ 的含量却呈现出先减后增的趋势。但是不同的煤种

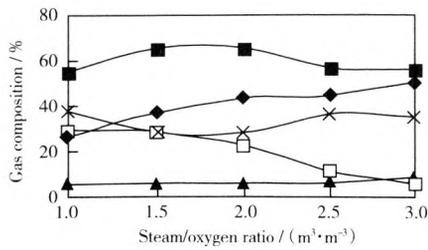


图 4 煤气组分随汽氧比的变化

Fig. 4 Change of gas composition with the $H_2O(g)/O_2$ ratio

◆— H_2 ; □— CO ; ▲— CH_4 ; ×— CO_2 ; ■— H_2+CO

对应的合适的汽氧比不同,因此,根据不同的煤种选择合适的汽氧比对于煤气的组成和热值有重要的意义.但是在气化的第二阶段(水蒸气气化)CO的含量明显上升, CO_2 的含量明显降低,两者的含量在两种情况下恰好相反,这说明大部分 CO_2 和水蒸气发生了还原反应,而转化成为 CO,从而证明了地下气化炉在蓄热方面是非常有效的.

4.2 煤气产率和气化效率及比消耗量

煤气产率是指 1 kg 原料煤气化后制得的煤气量^[8],干煤气产率可按下式计算:

$$V = \frac{V_1}{G_c}$$

式中: V_g 为干煤气产率, m^3/kg ; V_1 为干煤气总产量, m^3 ; G_c 为气化煤消耗量, kg.

在地下气化模型实验中,根据实际的煤气产量及气化炉解剖后得到的实际气化煤量,可以求得地下气化的干煤气产率,由此可进一步求得气化效率,即单位重量气化原料的化学热转化为所产生的煤气化学热的比例.

$$\eta = \frac{Q_g}{Q_c} = \frac{V_g \times H_g}{Q_c}$$

式中: Q_c 为气化煤产生的化学热, MJ/kg ; V_g 为干煤气产率, m^3/kg ; H_g 为干煤气的热值, MJ/m^3 ; η 为气化效率, %.

大雁褐煤富氧-水蒸气气化条件下的煤气产率、气化效率及比消耗量见表 4. 模型实验时煤层气化率可达到 81.98%.

表 4 大雁煤地下气化的煤气产率和气化效率及比消耗量

Table 4 Gas rate, gasification efficiency and ratio consumption of UCG for Dayan coal

Gas production rate/ ($m^3 \cdot kg^{-1}$)	Gasification efficiency/ %	Specific consume amount/ ($m^3 \cdot m^{-3}$)	
		O_2	H_2O
1.36	81.98	0.26	0.43

5 气化速率

在煤炭地下气化过程中,了解地下煤气发生炉中煤的燃烧气化状态,尤其是火焰工作面移动位置是至关重要的.^[9]而煤的气化速率是正确估计火焰工作面移动位置的重要依据.气化速率包括火焰工作面沿着气化通道向前移动的速率和煤层的横向燃烧速率.

1) 水平气化速率:火焰工作面向前移动的速率,可以根据在不同时刻气化炉内最高温度点所处的位置来确定,即把两个不同时刻最高温度点的间距除以这一段时间内的净鼓风时间,就可以算出其平均移动速率.图 5 给出了火焰工作面沿气化通道方向移动速率的变化情况.

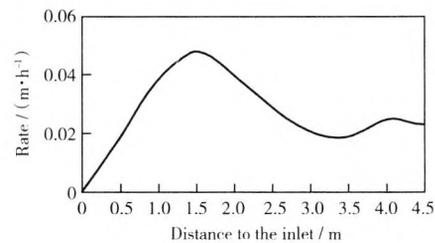


图 5 水平气化速率变化曲线

Fig. 5 Change of gasification velocity in horizontal

2) 横向气化速率:在不同时刻煤层燃烧范围边界的扩展速率,就相当于煤层的横向燃烧速率.假定以采集到的 800 °C 以上的煤层温度为基准,则根据热电偶测出的不同时刻的温度场分布情况,可定出每一时刻煤层的燃烧范围.假设在燃烧区边界处,两个热电偶间的温度分布为线性的.如果燃烧区域内的测点温度为 $T_1 (>800 \text{ } ^\circ\text{C})$,区域外的测点温度为 $T_2 (<800 \text{ } ^\circ\text{C})$,则温度等于 800 °C 的位置可以用线性插值法确定.根据实验时所测试的温度数据,可以计算出在不同时刻、不同位置煤层的燃烧高度 800 °C 等温线.由此可计算出横向燃烧速率,即通道扩展速率(见图 6).

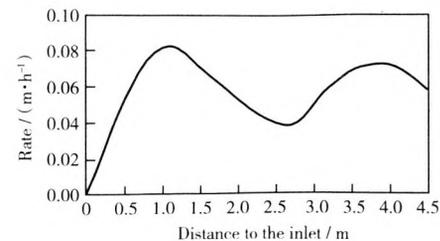


图 6 横向气化速率变化曲线

Fig. 6 Change of gasification velocity in extending

计算结果表明,平均水平及横向气化速率分别为 0.404 m/h 和 0.069 m/h,最大值分别为 0.9 m/h 和 0.18 m/h. 在供风点附近,纵向和横向燃烧速率均达到最大值,这是因为在供风点附近,气流的压力大, O_2 与煤壁的接触状态好,燃烧反应剧烈,气化速率最快. 在距供风点稍远处,即气化煤层的中部,气化速率最低. 这期间,温度场相对稳定,炉内静压变化平缓,气化反应过程趋于均衡,这是炉内稳定产气阶段. 随着气化过程的进行,燃空区逐渐增大,进、出口被燃空区中空隙或煤灰灰渣层裂隙连通,导致气流短路,引起还原气体燃烧,于是提高了出气口的温度,致使煤层燃烧,形成高温带. 在进行反向供风实验后,该段又成为距进风孔最近的燃烧区, O_2 充足,因此这部分煤层燃烧速率增大,导致燃烧速率曲线上二度出现峰值.

6 结 论

1) 由于褐煤的特性,将其暴露在空气中,很容易产生龟裂、自燃且难于储存,同时长距离运输高水分,低热值的褐煤在经济上也是不合算的. 煤炭地下气化作为一种洁净煤技术对褐煤进行就地气化在经济及环境上都是非常有意义的.^[10]

2) 大雁褐煤富氧(富氧)-水蒸气地下气化可以获得合格的化工合成原料气, H_2 与 CO 含量之和稳定在 56%~65%之间, H_2 与 CO 比例在 1.5~2.0 范围内,煤气热值为 8.3 MJ/m³~9.5 MJ/m³.

3) 大雁褐煤富氧-水蒸气地下气化可以连续稳定进行,模型实验时煤层气化率可达到 81.98%.

4) 在气化过程中,须根据煤气组成变化,调节气化剂中水蒸气用量或氧气与水蒸气比例,使煤气组成中 H_2 与 CO 比例符合化工原料气的要求. 实验结果表明,水蒸气与氧气比例在 2:1 至 1.5:1 范围内调整为宜.

参 考 文 献

- [1] 刘淑琴,陈 思,李金刚等. 深部煤层地下气化及其运用前景[J]. 煤炭转化,2007,30(3):79-81.
- [2] 梁 杰,刘淑琴,余 力等. 煤炭地下气化过程稳定控制方法的研究[J]. 中国矿业大学学报,2002,31(5):358-361.
- [3] 朱廷钰,黄戒介,王 洋等. 煤温和气化研究及运用[J]. 煤炭转化,1998,21(1):7-14.
- [4] 郭树才. 年轻煤固体热载体低温干馏[J]. 煤炭转化,1998,21(3):51-54.
- [5] 金会心,王 华. 褐煤热解煤气的性质[J]. 金属学报,2000,36(4):441-444.
- [6] 杨景标,蔡宁生,张彦文. 催化剂添加量对褐煤焦水蒸气气化反应性的影响[J]. 燃料化学学报,2008,36(1):15-22.
- [7] 戢绪国,步学朋,邓一英等. 煤常压富氧及纯氧固定床气化的研究[J]. 煤气与热力,2005,25(4):9-12.
- [8] 梁 杰. 煤炭地下气化过程稳定性及控制技术[M]. 徐州:中国矿业大学出版社,2002:7.
- [9] 杨兰和. 急倾斜煤层移动点两阶段地下气化模型试验[J]. 东南大学学报(自然科学版),2001,31(5):72-75.
- [10] 李耀娟,田玉璋,于在平. 煤炭地下气化[M]. 沈阳:东北工学院出版社,1981:1-10.

EXPERIMENTAL STUDY ON THE CHARACTERISTICS FOR UNDERGROUND GASIFICATION OF LIGNITE

Li Wenjun Liu Lili Liang Xinxing* Liang Jie** and Wang Wei***

(China University of Mining and Technology Beijing, 100083 Beijing; * Xin'ao CGM Investment Company Limited, 065001 Langfang, Hebei; ** Xinwen Coal Mining Group Corporation Limited, 271233 Taian, Shandong; *** Information Center, Dongxin Oil Recovery Plant, SINOPEC Shengli Oil Field Company, 257049 Dongying, Shandong)

ABSTRACT With oxygen and oxygen-steam as gasification medium, the model test of underground gasification of Dayan lignite were conducted. The studies were focused on the influence of oxygen blast and steam/oxygen ratio on the gas composition, gasification stability and rate. In the same time, the mass balance of oxygen-steam gasification process was conducted. The results show that the underground gasification of Dayan lignite has high stability form to use suitable parameters.

KEY WORDS lignite, underground gasification, steam/oxygen ratio, gasification rate