

行政院原子能委員會
委託研究計畫研究報告

氣化程序反應器分析模型建置與運轉參數研究

**Development of the analytic model of the gasification reactor and
study of operating parameters**

計畫編號：1012001INER040

受委託機關(構)：國立成功大學航空太空工程研究所

計畫主持人：江滄柳

聯絡電話：06-2757575-63676

E-mail address：jiang@mail.ncku.edu.tw

核研所聯絡人員：陳銘宏

報告日期：101 年 11 月 30 日

目 錄

目 錄.....	I
圖目錄.....	II
表目錄.....	IV
誌謝.....	V
中文摘要.....	VI
ABSTRACT.....	VII
壹、計畫緣起與目的.....	1
一、研究背景.....	1
貳、文獻回顧.....	9
參、研究方法與過程.....	28
一、連續相-守恆方程式.....	28
二、分離相-傳輸方程式.....	31
三、煤粒之相關性質.....	35
四、紊流反應模式及操作參數分析.....	36
五、FREDM 運算之概念.....	37
六、CHEMKIN 之格式.....	39
七、反應動力參數.....	40
八、氣化爐-幾何尺寸與入口條件.....	42
肆、主要發現與結果討論.....	45
一、不同紊流反應模式之比較.....	46
二、不同紊流反應模式之爐內分佈探討.....	48
三、不同水氣轉換反應參數值之影響.....	54
四、不同 O ₂ /C 之氣化效能評估.....	56
五、不同煤種之氣化效能評估.....	58
六、不同操作壓力之氣化效能評估.....	60
七、不同含水量之氣化效能評估.....	64
伍、結論.....	67
參考文獻.....	69

圖目錄

圖 1-1. 整合型氣化複循環發電系統[8]	3
圖 1-2. 整合型氣化複循環燃料電池系統[9]	4
圖 1-3. 單煤粒受熱分解示意圖[18]	6
圖 1-4. 三種典型氣化爐示意圖[20]	7
圖 3-1. 實驗之氣化爐及示意圖	43
圖 4-1. 網格獨立測試	46
圖 4-2. 不同紊流反應模式之出口成份比較圖	47
圖 4-3. 不同紊流反應模式之出口溫度(實驗無出口溫度)	48
圖 4-4. 非預混之平衡模式 (A)CO (B)H ₂ (C)CO ₂ (D)H ₂ O (E)溫度圖	50
圖 4-5. 氣化爐內 (A) CO (B) H ₂ (C)CO ₂ (D)H ₂ O (E)溫度圖	52
圖 4-6. 有限速率渦流消散模式 (A)CO (B)H ₂ (C)CO ₂ (D)H ₂ O (E)溫度圖	54
圖 4-7. 不同水氣轉換反應參數值對 FREDM 出口產物預測之改變	55
圖 4-8. 不同水氣轉換反應參數值之煤焦轉換率	55
圖 4-9. 不同氧碳比之出口比較圖	57
圖 4-10. 不同 O ₂ /C 之出口溫度	58
圖 4-11. 不同煤種之出口成份比較	59
圖 4-12. 不同煤種之 CGE 比較	60
圖 4-13. 不同煤種之碳轉換率比較	60
圖 4-14. 不同操作壓力之出口成份比較	61
圖 4-15. 不同操作壓力之煤碳轉換率比較	61
圖 4-16. 不同操作壓力之 CGE 比較	62

圖 4-17(A). 不同操作壓力之異相反應的反應速率平均值比較.....	63
圖 4-17(B). 不同操作壓力之異相反應的反應速率平均值比較.....	63
圖 4-17(C). 不同操作壓力之異相反應的反應速率平均值比較.....	64
圖 4-18. 不同操作壓力之出口溫度比較.....	64
圖 4-19. 不同含水量之出口成份比較.....	65
圖 4-20. 不同含水量之出口溫度比較.....	65
圖 4-21. 不同含水量之 H ₂ 出口流率比較.....	66

表目錄

表 3-1. 煤成份之元素分析與工業分析[61]	36
表 3-2. 氣相反應式單位.....	40
表 3-3. 異(固)相反應式單位	40
表 3-4. 化學動力參數表.....	41
表 3-5. 快速水氣轉換反應參數值.....	42
表 3-6. 氣化爐操作條件.....	44
表 4-1. 澳洲煤(COAL A)與印尼煤(COAL B)之組成比較.....	58

誌謝

本研究計畫乃由行政院原子能委員會核能研究所補助經費(1012001INER040)。計畫執行中，承蒙核研所相關同仁之支持、指導及協助，方得以順利完成，謹此誌謝。

中文摘要

本研究採用商用型計算流體力學軟體 ANSYS-FLUENT，針對粉煤於挾帶床氣化爐之反應現象，進行不同紊流反應模式之比較及氣化反應模型建置。紊流反應模式比較方面，除了採用非預混平衡模式及非預混層流火焰模式外，還有有限速率之渦流消散模式。和實驗數據比較，平衡模式之出口產物偏向燃燒反應、有限速率之渦流消散模式則偏向氣化反應，而層流火焰模式在出口產物預測上和實驗值較吻合。在化學動力參數方面，水氣轉換反應參數在氣化程序中，扮演著極重要角色。如採用較快速之水氣轉換反應參數，會比採用慢速水氣轉換反應參數，在預測出口產物上失準，且誤差大。操作參數之測試包括：氧碳比、煤種、壓力與含水量，皆可獲得合理之預估結果。

關鍵字：挾帶床氣化爐、Flamelet、FREDM

Abstract

The model development and the investigation of different combustion models for the entrained-bed gasifier have been conducted by CFD software-ANSYS-FLUENT in this study. Three combustion models, i.e., the non-premixed-equilibrium model, non-premixed-flamelet model and finite-rate/eddy-dissipation model (FREDM) were also employed. Comparing to the experimental results, the equilibrium model resulted in more combustion while the FREDM led to stronger gasification. The results by the flamelet model were consistent with the experimental. The investigation of the chemical kinetic parameters indicated that the water gas shift (WGS) reaction was an important factor in the gasification process. Using fast WGS reaction parameters led to inaccurate outlet syngas composition, while consistent results could be obtained by using the slow WGS reactions parameters. Parametric study, i.e., O₂/C ratio, coal type, pressure and moisture contained, showed reasonable results.

Keywords: Entrained-bed gasifier, Flamelet, FREDM

壹、計畫緣起與目的

一、研究背景

在化石能源日益減少，科技發展腳步不曾終止且更加快速，這迫使人類開始積極尋找新的替代能源，並兼顧減少對環境之衝擊。1973年及1979年發生了第一次及第二次的能源危機，能源之開發與管理已成為各國工業發展之重要課題[1-3]。近年來石油及天然氣價格，因儲量日近匱乏而節節高升。倘若每年石油之消耗量不減，未來五十年內，石油耗盡將是不可避免之結果。根據 BP Statistical Review of World Energy 2012 調查報告指出，煤炭為全球蘊藏量最豐富之化石能源，其藏量/消耗比率為 112 年，遠高於天然氣的 63.6 年與石油的 54.2 年 [4]，這意味著煤炭將會成為能量的主要來源。相較於前二者，煤炭具有下面幾個優點：(1)價格便宜；(2)開採容易、儲量豐富，約有一百多年可開採；(3)粉煤使用效率不斷提高；(4)可作為化工原料，用途廣泛[5, 6]。以我國為例，能源利用煤炭的供給比例從 1988 年的 24.86%提高至 2010 年的 32.09%，平均年成長率約為 6.20% [7]。但目前燃燒煤炭最大之問題便是會產生高溫混合氣體，且其中包括二氧化碳、硫化物及氮氧化物，將造成全球暖化，對環境產生重大衝擊。抑制全球暖化現象現已成國際間重要的課題，如 1997 年 12 月，於日本京都簽訂「京都議定書(Kyoto Protocol)」，即明確規範工業國家

溫室氣體之減量目標。有鑑於此，各國皆積極進行淨煤技術(Clean Coal Technology)之發展，以符合環保與經濟並重之雙重要求。

所謂淨煤技術，旨在最大限度之開發煤炭作為能源之運用，同時又能達成最少污染物釋放，進而完成煤炭高效、淨潔使用之目標。較典型之淨煤技術包括壓力式流體化床 (PFBC, Pressurized Circulating Fluidized Bed)、超臨界粉煤鍋爐發電(SCPC, Super Critical Pulverized Coal)、整合型氣化複循環發電(IGCC, Integrated Gasification Combined Cycle)、整合型氣化複循環燃料電池(IGFC, Integrated Gasification Fuel Cell)等技術。其中 IGCC 系統之概念圖如圖 1-1[8]所示，而氣化燃氣複循環燃料電池 IGFC(Integrated Gasification Fuel Cell)系統之概念圖，如圖 1-2[9]所示。IGCC 是較先進之發電技術，具有發電效率高和淨潔燃料等優點，可使發電之淨熱效率增加至 43%(HHV)左右[10, 11]。

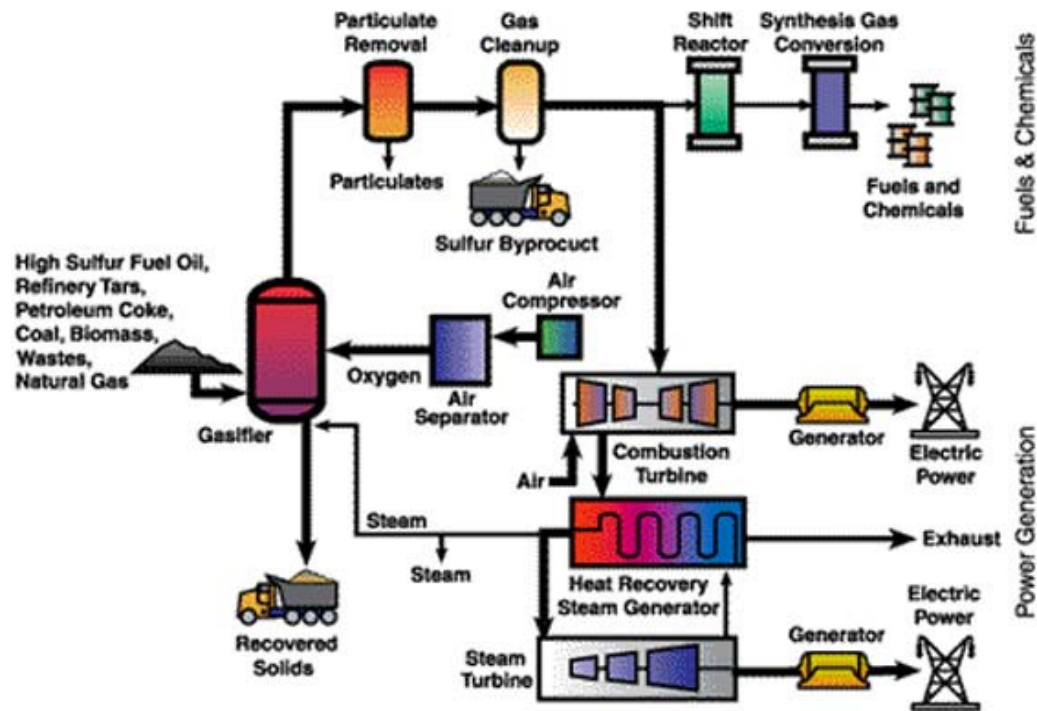


圖 1-1. 整合型氣化複循環發電系統[8]

隨著高效率渦輪機之商業化運轉成功，預期未來整廠效率可望提高到 50%(HHV)以上。而結合燃料電池(IGFC)更可將效率提昇至 60%(HHV)。根據美國能源部推估，整合型氣化複循環發電(IGCC)可以提高發電效率，比如：比起典型燃煤電廠，若氣化發電廠的效率為 60%時(IGFC)，可以減少 40%CO₂ 的產生[12]。此外，粉煤氣化其除硫率及除氮率可達及 99%，且 CO₂ 排放量較低；所以造成之環境污染很少，對煤質的要求也較低，低品位的煤炭亦可使用，可降低發電成本[13, 14]。

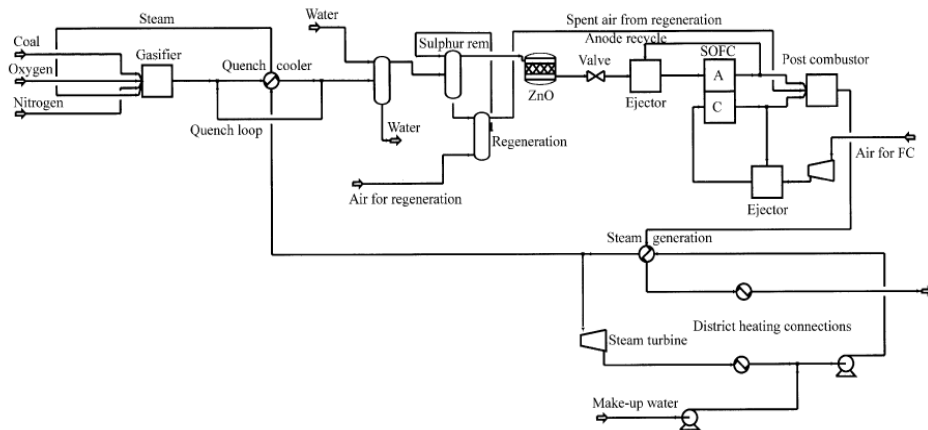


圖 1-2. 整合型氣化複循環燃料電池系統[9]

就國內目前的電廠狀況而言，由於興建新的核能電廠不易，再生能源的發展也未成熟，電力的主要來源仍以火力發電為主。在燃煤電廠方面，不但須耗費極大成本處理污染問題。煤礦的採購亦受到限於發電機組的適用性，僅能選擇較好的煤種。因此，為了避免因燃燒煤種、相關環保及營運成本等問題之衍生，在煤炭氣化發電的評估與設立計畫，實為刻不容緩。

二、氣化方式與原理

氣化(Gasification)是一種非催化之不完全氧化反應[15]，亦即利用貧氧燃燒之技巧進行不完全燃燒反應。主要目的是將固體燃料轉換成一氧化碳及氫氣，做為燃氣或其他化學物品之原料。在氣化技術應用之燃料選擇上，可使用化石燃料，也可以使用廢輪胎或稻穀等廢棄

物來處理，但經濟價值可能較低。所以含有較高熱值之化石燃料如煤炭等，仍是會被優先選擇[16]。煤炭燃燒與煤炭氣化不同點在於，煤炭燃燒是讓煤炭進行完全放熱反應提供熱能，故會產生大量之 CO_2 及 H_2O 。而煤炭氣化則是主要讓煤炭進行吸熱反應，使煤炭熱解並與氣化劑反應生成合成氣(可燃氣)，其中典型之合成氣有一氧化碳(CO)、氫氣(H_2)、甲烷(CH_4)等。然而現今大多數之製成產物多為 CO 及 H_2 [17]。判斷氣化結果之理想與否，通常以煤炭轉換率 (Coal Conversion Rate) 來表示。其定義為：反應後出口處氣相部分所含之碳重與反應前入口處固相部分所含之碳重的比值。煤炭轉換率愈高，表示氣化效果愈好。

煤炭之氣化過程十分複雜，其中包含兩個主要步驟，分別為煤炭之熱解與去揮發化(Pyrolysis and Devolatilization)以及煤焦氧化(Char Oxidation)。而去揮發化作用則是在氣化過程中，由於氣體與柏油類成份之易揮發性物質會隨著氣化溫度逐漸升高而從煤炭裡熱解釋放，此易揮發性物質之釋放為去揮發化作用 (Devolatilization)。圖 1-3 為煤粒受熱分解之示意圖[18]。揮發性物質經由氣體之氧化作用生成不同產物，有 CO_2 、 H_2O 、及 CO 等。而在去揮發化作用後生成之固態物焦炭(Char)，會與 CO_2 、 H_2O 及 H_2 進行氧化反應，最後所有

氣體經過淨化處理之後，即可取得所需之合成氣。

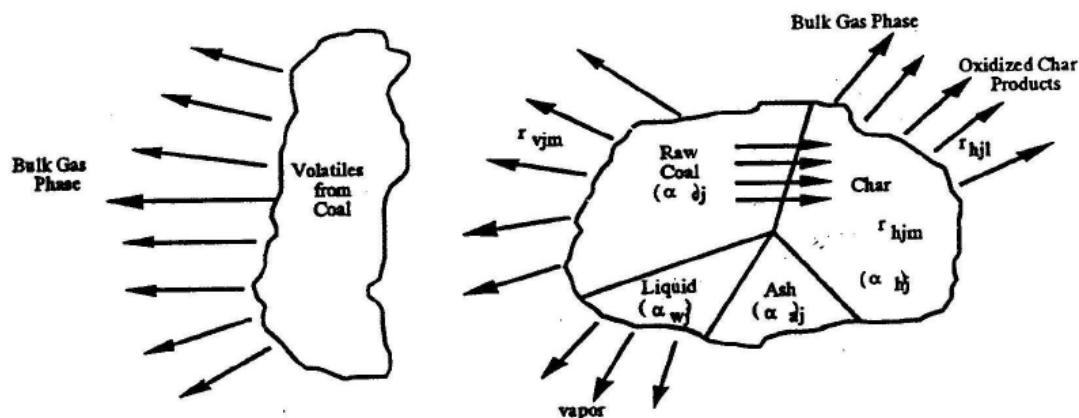


圖 1-3. 單煤粒受熱分解示意圖[18]

在 1780 年就曾出現以熾熱之煤炭通以水蒸氣得到水煤氣。1839 年則發展出應用空氣與泥炭不完全燃燒製得氣化氣。19 世紀中期，西門子製作了第一台常壓操作之固定床煤炭氣化爐。第一次世界大戰後，更出現以煤炭氣化技術生產甲醇、合成氨等合成化學工業。為了滿足對氣化氣產量之需求，1920 年便出現了流體化床煤炭氣化爐。隨著科技之發展，加壓技術及工業生產富氧技術之成功，30 年代出現了加壓氣化技術，50 年代便發展出挾帶床式粉煤氣化技術。一般之氣化反應器可分為三種類型，分別為固定床(移動床)式 (Fixed-Bed)、流體化床式 (Fluidized-Bed) 及挾帶床式 (Entrained-Bed) 氣化爐等[19]，如圖 1-4 所示。

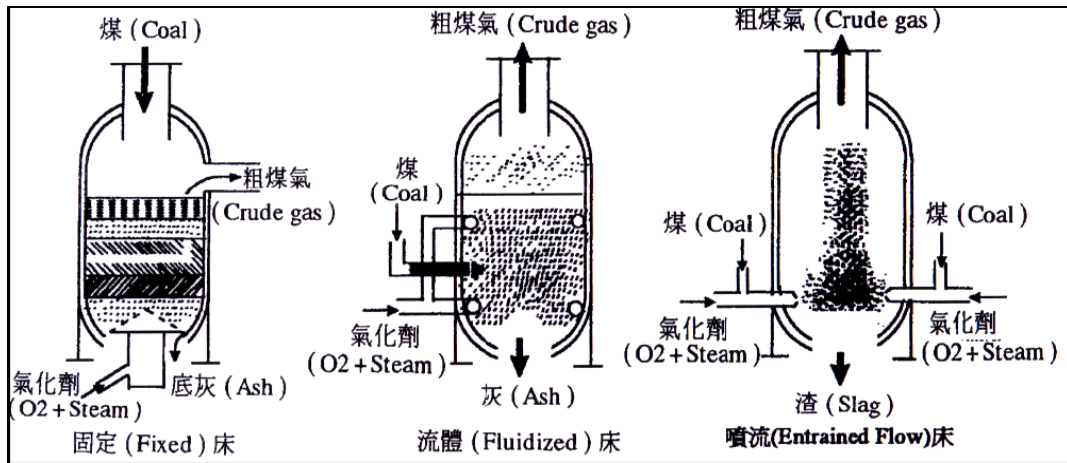


圖 1-4. 三種典型氣化爐示意圖[20]

固定床式氣化爐為最常見且最古老之氣化程序。其特點為構造簡單、可靠，具有高度之熱效益、煤料尺寸大，反應時間長(以小時計)，以及可在高壓操作與最少粉煤燃料預處理之要求，但單位容積處理量較小。固定床式氣化爐由下而上可概略分為四個反應區，分別為：燃燒區、氣化區、去揮發化區及乾燥區。如圖 1-4 所示，燃料由固定床式氣化爐上方進料孔進入，而由下方供應氧化劑。當流速低時，氧化劑只能從靜止煤粒間空隙穿過，均勻流通，此時相對於運動速度較大的氧化劑，煤粒床是靜止的，所以稱為固定床式氣化爐。燃燒區所產生之熱氣會與較冷之固態煤粒作熱能之交換。氣化區則為炭、蒸氣、CO₂、H₂ 作用之區域，吸熱作用產生了 CO 與 H₂，而 H₂ 與 C 作用之微放熱反應產生了 CH₄、CO 或 H₂ 可燃氣體，並於燃燒區與氧反應燃燒，而放熱燃燒反應提供後續之氣化吸熱反應與煤灰乾燥所需之能

量。由於氣化區已將所有氧氣消耗完畢，因此在氣化區上方的燃料只能受熱而產生熱解現象，而熱解通常伴有去揮發化作用，所以氣化區上方稱為去揮發化區。由於熱解需要相當多之熱能，所以乾燥區只剩少許的熱量能將燃料中的水份烘乾。

流體化床式氣化爐使用尺寸較小的煤粒及較快之氧化劑流速，氣體易於煤粒空隙處流通，並使煤粒在一定區間內浮動，讓煤料像流體一樣有自由流動之特質。其特點為煤粒與氧化劑接觸面積大，反應速度快（以分計算），單位時間處理之燃料較多。

挾帶床式氣化爐之最大特點則為，氧化劑流速可再進一步提高，使用更小粒徑之燃料。而且，進料與進氣口皆位於相同位置，使用主進料口（Primary）及次進料口（Secondary）進氣道同時噴出混合之設計，讓燃料及氧化劑能在進入反應器時達到最佳之預混狀態。其反應速率為三種氣化技術中最佳者（以秒計），單位時間處理之燃料也最大。目前國外著名之 Shell、Texaco（現為 GE）、E-Gas 及 Mitsubishi 等氣化程序，皆採用挾帶床式氣化爐。因此，挾帶床式氣化爐氣化程序將是未來大型氣化爐之主流。

貳、文獻回顧

在煤炭氣化之理論模式研究方面，首先關於煤炭熱解的部分，Anthony 與 Howard [20]曾針對煤炭熱解及碳氫氣化的理論模式作了詳細之探討。在高加熱率環境下，煤粒將產生比近似分析(Proximate Analysis) 所得之比率還要高的揮發物，同時該文也對等溫及非等溫、一階或高階的熱解率模式作一完整之介紹，並提供了熱解時化學動力模式之主要架構。Agarwal [21]則針對單一煤粒之熱解模式，指出煤粒熱解主要受到化學動力及熱傳因素之影響。對於較大之煤粒而言 ($d_p > 1\text{mm}$)，熱傳成為主要之控制因素，煤粒內部任意點之熱解量僅為此點溫度之函數。Ni 等人[22]曾針對挾帶床式氣化爐提供了經簡化後之動能參數來描述 16 種不同反應之變化，並考慮反應時之質量平衡。Biba 等人[23]提出靜止床(Stationary Bed)加壓下之煤炭氣化之數學模式，此數值模式之理論基礎包含了質量與能量守恆定律，藉由使用硬體 TESLA 200 之電腦，來計算出其濃度與溫度分佈。Ruprecht 等人[24]及 Vamvuka 等人[25]曾分別針對挾帶床式氣化爐發展出一維穩態之數學模式，提供了經簡化後之反應動能模式，並對炭焦之組成結構方面，提供了許多訊息。

Smoot[26]對煤炭氣化理論做了更詳細的定義，考慮了更完整之

氣化物理及化學過程，其過程有：

反應物紊性混合 (Turbulent Mixing)

煤粒紊性散佈 (Turbulent Dispersion)

煤粒熱對流加熱 (Convective Coal Particle Heatup)

煤粒熱輻射加熱 (Radiative Coal Particle Heatup)

煤炭去揮發化作用 (Devolatilization)

生成揮發物之氣體反應 (Gaseous Reaction of Volatiles)

煤焦中之異相反應 (Heterogeneous Reaction of Char)

煤渣 (Ash/Slag) 之形成與殘留 (Residue)

Smoot [26]並針對不同之反應時間、壓力、煤種及氣化後之污染物，作了詳細之理論分析。煤炭之反應過程包含了同相反應 (Homogeneous Reaction) 及異相反應 (Heterogeneous Reaction)。而不同成分間之反應包含了煤炭與 O_2 、 CO_2 及 H_2O 間之反應，其中壓力、煤種、溫度、煤炭性質及氧化劑濃度之不同，皆會影響其反應速率之變化。在高溫之操作條件下，將可增加反應速率及減少氣體及固體之殘留時間，生成較多之合成氣及較少之甲烷氣生成量。在高壓之條件下，可增加煤炭之轉換率及能量釋放之效率。雖然高溫高壓之氣化反應爐具有較好之反應效能，但在反應爐之設計上會有較高之困難

度及較多之成本。

Wen 與 Chaung [27]及 Govin 與 Shah [28]分別針對 Texaco 挾帶床氣化爐進行一維穩態模式分析，並與實驗數據比較。其中 Wen 與 Chaung [27]主要以固-氣兩相之質量守恆及能量平衡來討論，對於動量變化則未加以探討。Govin 與 Shah [28]則提供了經過簡化後之動能模式，使分析較趨於完善，但對於熱解之動態分析，仍不夠詳盡。其分析結果顯示，影響氣化之參數 O_2/C 須介於 $0.8\sim 0.9(kg\ kg^{-1})$ ， H_2O/C 則須介於 $0.3\sim 0.6(kg\ kg^{-1})$ ，方能得到較理想之氣化效果，同時亦可使煤炭轉換率達到 $98\%\sim 99\%$ 。Sprouse [29]亦曾針對噴流床式氣化爐中粉煤在惰性氣體中之轉換過程，進行一維穩態模式分析。由煤粒內部之物種及能量方程式與氣體之守恆方程式，求得反應器中各位置之氣相組成及溫度。在化學反應方面，則以兩個化學方程式來探討甲烷形成之反應，而氣相之反應速率假設為無限快。Nicholas 等人[30]，針對實驗用之小尺度挾帶床式氣化爐，在 $1.07\ MPa$ 壓力下進行煤炭氣化實驗。煤炭-氧氣-水的進給質量比為 $1.00:0.91:0.27$ ，可得到 $79\pm 3\%$ 的煤炭轉換率。經由觀察，煤炭中之氫原子及氧原子轉換遠比碳原子迅速，去揮發化作用則發生於接近入口處。其快速反應是致使煤炭轉換率增加之原因。最後在出口處產生之 CO 濃度達 44% ， H_2 濃度達

20%。其實驗結果與數值模擬結果比較，已可得到不錯之可靠性。Neogi 等人[31]針對實驗用之流體化床氣化爐作了實驗及理論分析。考慮化學反應及固-氣相之質傳熱傳在等溫系統中的氣化過程，以簡化過之化學反應機構表示，氣相部分考慮 CO_2 , H_2O 與 CO , H_2O 之轉換反應。由於使用之煤粒平均粒徑約為 0.297cm，故其假設熱解反應無限快。其分析結果顯示：當氣流溫度升高時，氣體生成物之生成率相對提高。因其反應時加入水蒸氣氣流，產生之含熱值氣體主要以 H_2 為主。

Smoot 等人[32, 33]曾使用模擬程式 PCGC-2 (Pulverized Coal Gasification and Combustion in Two-Dimension) 來模擬對稱之挾帶床式氣化爐。用四種不同產地之煤炭在接近大氣壓力下進行氣化模擬，預測不同之模式參數及測試變數對氣化所造成之影響，並與實驗結果比較。其中，模式參數包含了完全或部分平衡 (Full/Partial Equilibrium)、煤炭揮發物的化學定量系數 (Stoichiometric Coefficients)、不同成分的反應速率 (Heterogeneous Reaction Rates) 及熱損失因數 (Heat Loss Factor)，皆會對氣化氣含量及煤炭的轉換率造成不同的影響。測試變數包含：改變主要及次要水份的進給率，不同的入口溫度，及氧氣與煤炭的比值。由模擬結果發現：(1) 使用 Partial

Equilibrium 將可得到較高之煤炭轉換率，但對生成燃氣濃度分佈影響不大；(2)揮發物質係數之設定，會影響煤炭轉換率及生成氣之組成，當揮發物多時，煤炭轉換率及 H₂ 濃度會增加，CO 濃度則變化不大；(3)不考慮熱損失因數時，將可得到較高之煤炭轉換率及較高濃度之合成燃氣，當熱損失因數為 0.5 時，生成燃氣之分佈則較接近實驗值；(4)沒有水蒸氣參與氣化過程時，煤炭之轉換率及 CO 的形成將最高；(5)增加水蒸氣進給率，將降低煤炭之轉換率及 CO 與 CO₂ 之比值；(6)較高之 O₂/C，得到較高的煤炭轉換率及較低之 H₂ 生成量。

Kim 等人[34]探討了利用流體化床型附加抽風管 (Draught Tube) 以取得高熱量 (High Calorific Value, High CV) 之生成氣。由於流體化床型式存在著本身因煤破壞而造成相當高之碳損失，以及因旁通管造成部份氣體沒有參與反應之缺失，所以加入抽風管分離兩個反應區 (抽風管區與環區) 解決此一問題。Chen 等人[35]以數值模擬分析粉煤在二階段進料上吹式挾帶床煤炭氣化爐之氣化現象，兩相流假設為三維穩態流，使用 MSPV(Multi Solids Progress Variables)之方法來模擬氣化反應及反應物混合過程。此模式成功的預測揮發物燃燒和不同成份焦炭反應所生成的生成物之組成含量。揮發物紊流之擾動 (Turbulent Fluctuation) 及焦炭-氧的反應會對溫度及氣體的組成所造

成之影響，同時此模式之發展不能忽略紊流/氧化反應間之相互影響。同年，Chen 等人[36]針對相同之氣化爐構型，採用相同之物理及化學模式，模擬分析在不同工作條件下，氣化爐之氣化現象，並提出以下之結論：(1)煤炭去揮發化和煤焦氧化反應對於煤炭轉換率有較大之影響；(2)煤炭之轉換率與去揮發化之速率無關，與 Char-O₂、Char-CO₂、Char-Steam 之動能化學反應速率(Chemical Rate of Kinetics)有關，粉煤粒徑大小之影響則較小；(3)空氣與煤炭比例會影響轉換率及生成氣之熱質，當增加空氣時，煤炭轉換率提高，隨著也增加 CO₂，相對減少 CO 及 H₂ 之濃度。次年，Chen[37]等人利用數值模擬進一步針對氣化爐之外型進行設計及探討。其研究中發現，氣化爐中燃燒區與連接反應區之擴散區喉部面積愈小或燃燒區及反應區之入口渦旋比例較小，則煤灰較不會停留在擴散區之壁面。

在加壓情況下反應之研究方面，Liu 等人[38]針對壓力之大小、反應之動能變化及炭焦之結構對加壓式挾帶床氣化爐所造成之影響進行研究，並與其他文獻進行比較分析。其模擬之結果顯示，常壓與高壓之計算結果與實驗值相當一致，但若直接將常壓之反應動力參數外推(Extrapolate)至高壓情況時，將會高估 15%左右之碳轉換率，顯示高壓環境下之反應動力參數無法直接從常壓之數據直接外推來獲

得。煤炭中若含有較多之揮發性物質，由於快速之熱釋放，將可得到較高之煤炭轉換率。Choi 等人[39]，以數值模擬水煤漿(Coal-Water Slurry)在 KIER (Korea Institute of Energy Research) 挾帶床式氣化爐中的反應特性。以 Random Trajectory Model 描述固相反應，採以 $k-\epsilon$ 模式來描述紊流行為，以 Eddy Break-Up (EBU) Model 描述相同成分及不同成分之間之紊流氣體反應速率。主要為控制 $O_2/C(kg\ kg^{-1})$ 之比值，比較 O_2/C 比為 0.8、0.9 及 1.0($kg\ kg^{-1}$)時之溫度、CO、 H_2O 及 H_2 之成份體積分率分佈，並與實驗比較，其趨勢相當一致，但在反應爐的熱損失方面，仍需加以改善。

Wall 等人[40]指出壓力對於氣化反應之影響，並指出過往文獻大多著重於實驗分析，較少以計算模擬進行探討；在高壓下將生成高孔隙率之煤焦顆粒，煤焦結構對於其燃燒室出口殘留量以及煤渣之生成量扮演著相當重要之角色。一般而言，在高壓下，煤之顆粒將以較快之速率燃燒，並形成較小之煤渣顆粒。提高反應物之壓力將能夠提昇煤焦之燃燒以及氣化反應速率，此現象可由吸附-脫附機制中獲得解釋。而大部份對於挾帶床氣化爐之研究大多在較低之溫度下進行 ($\sim 1,000^\circ C$)，此是因為高溫環境下挾帶床氣化爐之操作困難度與建造成本皆較高，不過高溫操作之挾帶床氣化爐已為商用化主流。最後指

出在高壓情況下，煤渣生成之機制尚未明確，此部份則需要往後更多之研究以了解其細部現象。

除上述簡化之數學模式及自行發展之計算程式外，亦有一部份研究是採用泛用型計算流體力學程式進行煤炭氣化氣及之模擬，例如 Skodras 等人[41]以商用軟體 FLUENT 4 模擬泡沫式熔融煤渣 (Foaming Molten Slag) 氣化反應器之效能，並採用自訂函數描述其氣化現象，同時求解氣化現象之流場及熱傳等方程式。其模擬與實驗比對之結果相當一致，顯示出其所提出之分析模式，對於熔融煤渣氣化反應器之操作中，乃是一相當實用之分析工具。Zhong 等人[42]採用三維 Eulerian 多相模式，封閉式(Closure Law)顆粒流(Granular Flow)之反應動能模式(Kinetic Theory)，以分析挾帶床之氣-固流場行為；並探討非理想顆粒之撞擊現象之限制對於氣化效能之影響；結果顯示此限制對於氣化之影響相當大，與實驗比較，此限制係數為 0.93 時，方能模擬出其分析之反應器之特性。模擬結果顯示，從徑向之顆粒分佈可知，氣體阻力以及顆粒撞擊是主導顆粒移動軌跡之主要因素。

Silaen 等人[43]以 FLUENT 6.1 模擬兩段式(Tow-Stage)煤炭氣化爐，反應模式採用 Eddy-Dissipation 模式來描述爐內之反應行為，並

發現水煤漿進料模式比煤粉進料模式有更佳之產氫效能，但相對的煤粉進料模式卻比水煤漿進料模式有更佳之產 CO 效能。而空氣注入式 (Air-Blown) 操作會獲得較差之煤炭轉換效率與較低之產氣熱值。壁面冷卻效果對產氣影響較不重要。最後指出兩段式設計具有能夠調整不同區域之進料比例之優點，因此具有達到預期所需要之產氣效能之潛力，但其氣化之結果並無與實驗結果做比對。Wang 等人 [44] 以 FLUENT 6.1 模擬兩段式水煤漿進料之煤炭氣化爐，反應模式採用 Eddy-Dissipation 模式來描述爐內之反應行為，在其進料模式測試中發現在頂部噴水時會產生較多之氫氣，但同時二氧化碳也會上升，因此建議在進料區域噴水，因為在進料區域的炭較多，且溫度較高，此環境下較適合進行氣化反應產生氫氣，故較不會產生二氧化碳。另外並發現採用一支燃料注射器會比採用三支燃料注射器的氣化效能來得好。但其計算結果與實驗比對，產氣成份與出口溫度與實驗值差距甚大。

Sialen 等人[45]針對兩段式煤炭氣化爐，嘗試以不同燃料注入角度之測試中發現，當燃料注射器皆擺在同一水平面時會有最佳之產氣效能，而整體而言，燃料轉換效能受反應器內流場形態影響之變化幅度約 17%。

早期之軟體只能以較簡略之方式模擬氣化之程序，發展至約 2007 年為止，軟體在氣化方面之模擬才較成熟，例如 Syred 等人[46]指出商用軟體 FLUENT 6.0 已被證實能夠以 Lagrangian 軌跡法分析複雜流場中之燃燒顆粒行為。其對於入口處之固態燃料之燃燒能夠藉由適當調整以獲得初始之流場之空氣動力行為，但若顆粒會流經整個反應器時，此軟體則無法處理。尤其是氣旋式燃燒器(Cyclone Combustors)以及藉由離心力增強之顆粒氣化反應器等情況，此軟體只能藉由改變顆粒之尺寸分佈之方式，即採用破碎(Fragmentation)方式來處理顆粒之氣化或燃燒行為。此篇研究探討將破碎模式納入 FLUENT 分析模式中步驟，並應用至各種不同之反應系統。其結果顯示，採用其納入之破碎模式能夠在許多計算上有困難之處得到改進，但對於真實破碎條件仍需要建立較佳之反射行為以分析不同形態之實驗系統。最後並指出，其提出之單步破碎模式(Single Step Fragmentation)需要更進一步之擴展，尤其在具有許多微小顆粒之反應器中更需要多步之破碎模式，方能準確的模擬其特性。

Perkins 等人 [47] 針對煤礦直接氣化 (Underground Coal Gasification Cavity) 以商用軟體 FLUENT 6.1 建立二維軸對稱之 CFD

分析模式，以模擬氣化過程中之熱傳、質傳與化學反應等現象。其模擬結果顯示，當採用底部噴入氧化劑時，煤渣上方流場之流動主要受浮力所主導，這是因為燃燒所產生之溫度梯度所致。當氧化劑從氣穴上方注入時，大部份產生之氣化劑將會進行氧化，並提高溫度而降低熱值。模擬之結果與實際地下氣穴氣化所觀察之結果相符合。Gräbner 等人[48]以商用軟體 FLUENT 6.2 針對新型加壓式流體化床氣化爐，稱為 Power High-Temperature Winkler gasifier (PHTW)，建立起分析模式。其氣化模式乃是採用 Steam/Oxygen 以及褐煤(Lignite)為燃料，容量預定為 4,800 噸/天(約 1,000MW 發電量)，且操作在 33bar 之情況下。以其提出之數值模式探討流場形態，紊流行為，產氣組成，溫度以及熱幅射等現象。並與文獻中類似之流體化床系統相比較得到相符之結果。並指出，為了預測固體之行為、因熱解使得顆粒濃度、顆粒大小改變及表面反應等現象，顆粒的軌跡乃是採用 Eulerian-Lagrangian 模式來描述。當改變總顆粒之質流率時，會發現以反應器高度為函數之壓力降存在。

Wang 等人[49]針對兩段式煤炭氣化爐，嘗試以不同開口大小之煤渣接頭(Slag Tap)分析產氣與排渣之情況，並發現開口較大之設計可以使煤渣流動順利，但缺點為熱損增加、並且會降低氣化效能，以及降

低產生之混合氣之熱值，且未反應之揮發物將會增加。Wang 等人[50]針對挾帶床式氣化爐，在採用不同燃料噴注器情況下，探討其熱傳現象及損壞之情況，並發現錐型燃料噴注器比較容易燒壞。但操作時間過久，兩種燃料噴注器都會損壞，此是因為原先設計用以保護燃料噴注器之防火磚在高溫環境下終將失效，致使燃料噴注器直接暴露在沒有任何保護之反應室中之故。Wang 等人[51]針對挾帶床式氣化爐搭配頂部噴水之機制探討不同水滴噴注情況之冷卻效果，並發現採用小顆粒之水滴時將使冷卻區段縮短，而採用較大顆粒之水滴的話，水滴將會跟氣流撞擊，撞擊後會散往上/下游區域，並讓冷卻流能有效滲透至上游區。而往上 45 度注冷卻水或以 10 度偏斜角度噴注冷卻水會降低氣流衝擊之程度，並縮短有效冷卻區段長度，進而降低下游氣流之溫度。而以 10 度偏斜角度噴注冷卻水時能夠有效的在最短的距離內達到冷卻的目的。Wang 等人[52]針對挾帶床氣化爐搭配不同紊流模式與去揮發化模型探討不同模式之計算結果，並發現紊流模式對結果之影響很顯著。在測試的 5 種紊流模式當中，標準的 k- ϵ 模式跟 RSM(Reynolds Stress Models)模式會有一致的結果。而在測試的 4 種去揮發化模式中，單步(Single Step)與化學滲出(Chemical Percolation)模式會得到適中且一致之去揮發化速率。而改變粒徑大小時之測試中發現，當粒徑變大導致粒子之慣性增加時，噴注之煤粒會與氣流撞擊

產生強大之迴流區，該迴流區能夠延長煤粒在氣化爐內之停駐時間。

至 2009 年，商用軟體在模擬氣化爐之現象已具備相當之能力，例如 Ajilkumar 等人[53]指出若能瞭解煤炭氣化中之熱/質傳現象，將對於評估氣化爐之效能與設計/操作參數等最佳化程序有相當大之助益。該研究並採用商用軟體 FLUENT 6.2 針對空氣注入式之實驗室級氣化反應器建立數值分析模式。在此模式中，連續相(Continuous Phase)之守恆方程式乃是在 Eulerian 架構(Frame)下求解，而顆粒相(Particle Phase)則是在 Lagrangian 架構(Frame)下求解，並以互動式源項(Interactive Source Terms)將兩個不同之相建立耦合關係。顆粒因為紊流之分佈現象(Dispersion)是採用隨機軌跡模式(Stochastic Tracking Model)來描述，並搭配氣相之 k- ϵ 模式來計算。煤炭之氣化程序將包括去揮發化、揮發物之燃燒、煤焦之燃燒及氣化等現象。其結果發現，氣化爐內之整體溫度乃將隨著 Air/Steam 比例之增加而增加，並導致氣化爐內不同反應步驟之加速。同時，氣化效能之相關指數包括碳轉換率，出口氣體熱值及冷煤氣效率可藉由其數值模式進行評估。其預測之結果與文獻中之實驗結果相當一致。

Wang 等人[54]採用四種不同化學反應模式：(1) 包括異相固體反

應與同相氣體反應之有限速率模式(Finite Rate Model)；(2) 即時氣化模式(Instantaneous Gasification Model)-慢速水氣轉化反應(Slow Water Shift Rate)；(3) 即時氣化模式(Instantaneous Gasification Model)-快速水氣轉化反應(Fast Water Shift Rate)-採用 Eddy-Dissipation 模式；(4) 總體化學平衡模式(Chemical Global Equilibrium Model)，進行挾帶床式氣化爐效能分析。並發現採用即時模式時，反應會很快完成，而採用有限速率模式時反應則較慢。另外發現水氣轉化反應對預測產氣組成之準確性影響很大，採用快速水氣轉化反應模式之結果與總體化學平衡模式很接近，而在採用慢速水氣轉化反應模式下，即時氣化反應模式與有限速率模式會達到類似之出口氣體組成跟溫度，但反應器內部氣體/溫度分佈差異甚大。對典型的挾帶床氣化爐而言，在有觸媒情況下，可以使用快速水氣轉化反應模式，而慢速水氣轉化反應應在無觸媒下使用。另外，由於放熱之正向水氣轉化反應傾向於在低溫環境下進行，因此在模擬挾帶床之煤粒氣化時，應採用慢速水氣轉化反應模式。在有限速率模式下，改變煤粒尺寸可發現，較小之煤粒之產氣組成與熱值跟使用即時氣化模式較接近。另外針對水煤漿進料採用兩種模式來模擬：結合煤粒與水滴形成化合粒子、與分開煤粒與水滴兩種模式。理論上後者會較接近真實情況，但模擬結果仍有差異，主要是因為 CFD 模式之不確定性之關係。整體而言，即時氣化模式能

夠提供整體氣化爐效能之評估，包括溫度、熱值與氣化效率，但都不足以捕捉大部份氣化爐區域中之氣化現象，而有限速率模式方能預估之局部氣化現象。

在國內相關研究方面，洪[55]以 CHEMKIN 程式模擬分析 Texaco 挾帶床氣化爐。其模式包含固-氣兩相之守恆方程式，討論二相間之熱質傳過程，並以簡化之化學動力機構討論氣化趨勢及各變數對氣化結果的影響。結論也驗證了 O_2/C [0.8~0.9 ($Kg\ Kg^{-1}$)]及整個水蒸氣碳量比(Steam/C 在 0.2~0.7) ($kg\ kg^{-1}$)為影響氣化之重要參數，且發現使用純氧當氧化劑比使用空氣效果更佳。其建議有：由於未考慮煤炭中含量較少的元素如 S, N, Cl 等，因此無法評估污染物產生的情形。除了操作環境及參數考量外，生成氣的熱值分析也是必要的。為了提高模擬之可信度，減少計算誤差，高壓氣體資訊的建立是必需的。周[16, 56]使用含觸媒之焦炭以探討流體化床之氣化現象。實驗是在一直徑 90 毫米的床體內進行，於不同操作條件下，包括流體化速度，床內溫度，空氣/焦炭比，水蒸氣/焦炭比以及含浸觸媒種類，探討對於生成氣體組成，氣體熱值以及碳轉化率之影響。由實驗結果發現，氫氣與一氧化碳會隨著床內溫度上升而增加；氣化含觸媒焦炭時，碳轉化率與氣體熱值在增加流體化速度與床內溫度時會比不含觸媒焦炭時

為高；當增加空氣/焦炭比，碳轉化率會隨之上升，但氣體熱值會減少；當增加水蒸氣/焦炭比時，氫氣與氣體熱值會上升，但碳轉化率會減少。在其實驗中，就焦炭催化氣化反應來說，使用 10% K_2SO_4 + 1% $Ni(NO_3)_2$ 會有最好之催化效果。吳[57]以簡化成份後之氣化燃氣（CO 與 H_2 ），取代天然氣之燃燒，發現了 CO 含量愈多的氣體，可得到較高的燃燒溫度，但也得到較多的 NO 含量，反之亦然。此結果意味著，天然氣雖有較高的反應熱，但 NO 的生成量亦是不少，而愈少的 CO 含量之氣化燃氣雖然僅能提供較少的燃燒能量，但是卻不會產生較多的 NO 含量，對於能源的利用及環境的保護，有正面的幫助。

國內亦有採用軟體進行氣化爐之模擬，例如楊[58]以 PCGC-3 程式模擬噴流床氣化爐，發現影響煤炭轉換率之重要參數，除 $O_2/Coal(kg\ kg^{-1})$ 與 $H_2O/Coal(kg\ kg^{-1})$ 等參數外，當操作壓力越高時則煤炭轉換率將隨之提高。而當粉煤粒徑越小，其轉換率也相對提高，故操作壓力、粉煤粒徑皆是影響氣化效率之重要參數，該研究並驗證 PCGC-3 程式之可靠性。郭[59]同樣使以 PCGC-3 程式，以三維模式模擬粉煤於上吹式噴流床氣化爐中之燃燒及氣化特性，模擬上吹式噴流床煤炭氣化爐，並與實驗比對以驗證程式之可靠性。接著針對 O_2/C 、 H_2O/C 、粉煤粒徑大小以及氣化爐進給角度進行參數分析。

由其結果發現，當改變粉煤負載率使 O_2/C 比例降低時，則會使 CO_2 、 H_2O 生成量減少， CO 、 H_2 及 CH_4 生成量增加。當改變 O_2 量使 O_2/C 比例降低時，則會使 CO_2 、 CO 及 H_2O 生成量減少， H_2 及 CH_4 生成量增加，同時氣化爐內積碳量也會增加。當 H_2O/C 比例增加時，氣相反應區重組反應趨勢會提高，並產生較多之 H_2 ，使得在出口處 CH_4 生成量減少， H_2 生成量增加。另外增加 H_2O/C 比例、渦旋直徑及縮小粉煤粒徑，皆有助於降低粉煤氣化所需之時間。2011 年，陳等人[60]採用泛用型商用計算流體力學軟體 ANSYS-FLUENT，針對挾帶床粉煤氣化爐建立三維氣化數值模式。並以非預混紊流反應模式之層流火焰模型(Flamelet Model)進行氣化程序之模擬，而與實驗比較可知，採用此模式所計算出之氣化爐出口氣體當中，各成份之比重之趨勢與實驗結果一致，誤差約為 3.15%左右。在參數測試方面，在添加水比例上，在產氫部份會存在一較佳值。而提高進料溫度時，氣化效能和出口溫度皆有些微增加。在混和生質燃料方面，產氫效能比用煤炭結果較佳，出口溫度也較低。且在改變模型進料位置方面，增加二級進氣位置，會使出口溫度降低。

由於煤炭氣化技術之應用，可有效降低燃燒煤炭產生之污染對環境造成衝擊，並可應用於高效率複循環發電系統 IGCC (Integrated

Gasification Combined Cycle)中，以達到 43%以上之發電效率。雖然國外發展氣化複循環系統已經行之有年，規模已達商業運轉，如美國印第安那州 Wabash River 發電廠。但目前國內煤炭氣化技術之應用屬萌芽發展階段，必須建立氣化爐建造之評估能力。

而在其相當複雜之氣化過程當中，其化學動力反應機制是粉煤氣化過程之關鍵，必須要能掌握在氣化爐進料的化學動力反應的細節，才能進一步掌握氣化爐內複雜之燃燒與氣化現象。

本研究團隊(行政院原子能委員會及成大航太所)，從 2009 年之”先進燃料轉換系統模擬整合平台開發研究”，從基礎挾帶床式氣化爐及反應模式建立，最後搭配混合生質燃料之參數，來作初步效能評估。在來到 2010 年，延續及精進此氣化模型，在”應用於挾帶床氣化爐分析之計算流體力學耦合化學反應運算模式發展”之目標下，建立起非預混之紊流反應模式，並在參數分析方面，進行了不同壁溫及添加水量之影響分析。而到了 2011 年，開始針對氣化系統作初步整合及應用，如”整合式氣化程序模擬模型開發研究”，將前兩年之經驗，在做進一步提升，如考慮完整之化學反應動力機制，使整體氣化程序更加趨近實際情況，在應用面上，針對不同煤種，探討其適用性及氣化效能分析。

經由前三年之經驗，使本研究團隊在氣化程序及參數分析上，有一定的掌握度。而今年則參考 2011 年工研院之壓力式挾帶床粉煤氣化爐之數據[61]，採用泛用型商用計算流體力學軟體 ANSYS - FLUENT，建立起氣化反應程序，並比較 Non-Premixed Flamelet Model(之後簡稱 Flamelet)及 Finite-Rate/Eddy-Dissipation Model(之後簡稱 FREDM)兩者紊流反應模式之優劣。

分析模式之燃料將以離散相(Discrete Phase)方式注入，並考量異相間之質量、動量及熱量傳遞關係。後續將選取精確度較佳之紊流反應模式進行氣化爐之氧碳比及不同煤種等參數，進行氣化效能之評估。此模型及化學反應機制，將來可協助國內發展先進氣化技術。

參、研究方法與過程

本研究以泛用型商用軟體 ANSYS – FLUENT，針對壓力式挾帶床式之粉煤氣化爐建立分析模式。氣化爐內主要可分為連續相之氣相流場與分離相之噴霧流場兩類，相關模式說明如下。

一、連續相-守恆方程式

首先在連續相(Continuous Phase)方面，將包含質量、動量、能量以及成份守恆方程式：

質量守恆：

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = S_p \quad (1)$$

其中等式右方之質量源項表示由於粒子熱解所產生之氣相質量。

動量守恆：

$$\frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_i} \mu \left[\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right] - \frac{\partial(\overline{\rho u'_i u'_j})}{\partial x_j} + \bar{S}_{M_k} \quad (2)$$

採用 Boussinesq eddy viscosity hypothesis，式(2)中之 Reynolds stresses

可表示成：

$$-\overline{\rho u'_i u'_j} = -\frac{2}{3} \rho k \delta_{ij} + \mu_t \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (3)$$

而紊流動能黏滯性可以下式評估：

$$\nu_t = C_\mu k^2 / \varepsilon = \frac{\mu_t}{\rho} \quad (4)$$

另外紊流動能 k 與其消散率 ε 之傳輸方程式為：

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i k) = P + \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\mu_t}{\sigma_k} \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_i} \right) - \rho \varepsilon \quad (5)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho \bar{u}_i \varepsilon) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_i} \right) + \frac{\varepsilon}{k} (C_{1\varepsilon} P - C_{2\varepsilon} \varepsilon) \quad (6)$$

式(5)與(6)中之 P 項為：

$$P = \frac{1}{2} \nu_t \left(\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{u}_j}{\partial x_i} \right)^2 \quad (7)$$

而紊流模式中所使用之相關經驗常數如下[62]：

$$\begin{aligned}
C_\mu &= 0.09 \\
C_{1\varepsilon} &= 1.44 \\
C_{2\varepsilon} &= 1.92 \\
\sigma_k &= 1.0 \\
\sigma_\varepsilon &= 1.3
\end{aligned} \tag{8}$$

能量守恆方程式：

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial x_i} (u_i (\rho E + p)) &= \frac{\partial}{\partial x_i} \left(k_{eff} \frac{\partial T}{\partial x_i} - \sum_j h_j (\rho D_{jm} \frac{\partial Y_j}{\partial x_i}) + u_i \tau_{ij} \right) + S_{ph} \\
E &= h - \frac{p}{\rho} + \frac{v^2}{2} \\
k_{eff} &= k + k_t
\end{aligned} \tag{9}$$

其中等式左方表示總能之效應，而等式右方之第一項表示熱傳導， K_{eff} 為有效熱傳導係數，第二項為表示熱對流， h 為熱對流係數，第三項為粘滯效應，其中 τ_{ij} 為熱剪應力(Thermal Shear Stress)，第四項為能量源項，乃是評估連續相與粒子之間之輻射熱傳量以及氣相之化學反應之能量。

成份守恆方程式：

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i Y_i) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D_{im} \frac{\partial Y_i}{\partial x_i} + \frac{\mu_t}{S_{Ct}} \frac{\partial Y_i}{\partial x_i} \right) + S_{pY_i} + R_i \tag{10}$$

其中等式右方之第一項表示成份之擴散現象，而 D 為擴散係數，第

二項為紊流效應，而 μ_t 為紊流黏滯係數且 S_{ct} 為施密特數(Schmidt number)，第三項為質量源項，乃是由於粒子之熱解與氧化反應所產生之相關成份，而第四項為化學反應所產生/消耗掉之成份。

二、分離相-傳輸方程式

動量傳輸方程式

在離散相方面之傳輸方程式中，離散相中之粒子之軌跡乃是藉由將粒子上之各項作用力積分所求得，並以 Lagrangian 參架(Reference Frame)所描述。粒子上之作用力包括其自身之慣性以及氣流阻力等項，並以下式描述：

$$\frac{du_p}{dt} = F_D(u - u_p) + \frac{g(\rho_p - \rho)}{\rho_p} \quad (11)$$

其中

$$\begin{aligned} F_D &= \frac{18\mu}{\rho_p d_p^2} \frac{C_D \text{Re}}{24} \\ \text{Re} &= \frac{\rho d_p |u_p - u|}{\mu} \\ C_D &= a_1 + \frac{a_2}{\text{Re}} + \frac{a_3}{\text{Re}^2} \end{aligned} \quad (12)$$

而式(12)中之各項係數乃是用於圓球式顆粒並且在一定範圍內之 Re

所採用[63]。顆粒之軌跡乃是以瞬時速度來預估，而瞬時速度乃是跟平均速度(Mean Velocity)以及振盪速度(Fluctuation Velocity)有關：

$$u^* = \bar{u} + u' \quad (13)$$

而上式(13)中之振盪速度是以 Stochastic Discrete Random Walk 模式來定義，從採用此模式來描述顆粒與氣流渦旋(Eddy)之間之相互作用現象。而噴入氣化爐中之粒子之初始分佈乃是以 Rossin-Rammler 分佈函數來描述，而粒子直徑與粒子之質量分率之關係式如下：

$$Y_d = \exp(-d_p / \bar{d})^n \quad (14)$$

其中 \bar{d} 為平均粒子直徑，而 n 為分佈參數。

能量傳輸方程式

而粒子之熱傳現象包括對流項，輻射項，去揮發過程以及表面反應等現象，可表示如下：

$$m_p c_p \frac{dT_p}{dt} = h_c A_p (T_\infty - T_p) + \varepsilon_p A_p \sigma (\theta_R^4 - T_p^4) + \frac{dm_p}{dt} h_{fg} - f_h \frac{dm_p}{dt} H_{reac} \quad (15)$$

其中 m_p 與 T_p 表示粒子之質量以及溫度，而 θ_R 為輻射溫度，

$\theta_r = (G/4\sigma)^{1/4}$ ，而 G 為入射輻射量，與輻射強度有關：

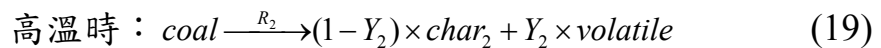
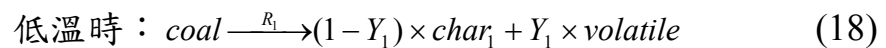
$$G = \int_0^{4\pi} I d\Omega \quad (16)$$

氣化爐內之輻射熱傳乃是採用 P-1 模式來計算[64]。而粒子與氣相流場之間之熱對流係數乃是以 Ranz 以及 Marshall 等人[65]所提出之修正式來評估：

$$N_u = \frac{hd_p}{k} = 2.0 + 0.6 \text{Re}_d^{1/2} \text{Pr}^{1/3} \quad (17)$$

在(15)式當中等號右邊之第三與第四項分別在去揮發化以及煤焦反應的過程中之能量項。

在煤炭粒子之反應方面，煤炭粒子中之揮發物將進行去揮發化之過程，此現象可藉由 Kobayashi[66]和鄭文桐[67, 68]等人提出之雙步反應步驟(The Two Competing Rates Model or Kobayashi Model)模式來描述：



$$\text{反應速率} : \frac{dV_{react}}{dt} = (R_1 Y_1 + R_2 Y_2) coal \quad (20)$$

$$R_1 = A_1 e^{-(E_1/RT_p)} \quad (21)$$

$$R_2 = A_2 e^{-(E_2/RT_p)} \quad (22)$$

R_1 、 R_2 ：競爭速率(Competing Rates)

常數值部份，如(23)式：

$$Y_1 = 0.3$$

$$Y_2 = 1$$

$$E_1 = 1.67E^{08} \quad (\text{J kg K}^{-1}) \quad (23)$$

$$E_2 = 1.046E^{08} \quad (\text{J kg K}^{-1})$$

$$A_1 = 2 \times 10^{05}$$

$$A_2 = 1.3 \times 10^{07}$$

當煤炭粒子內之揮發物質散出之後，煤焦表面將會進行異相(Heterogeneous Reaction)之表面反應(Surface Reaction)，此表面反應則以 Smith 等人所提出之隱式關係式來計算，此模式中，煤粒表面之各種成份之消耗可由下式表示：

$$\bar{R}_{k,r} = A_p \eta_r Y_k R_{k,r} \quad (24)$$

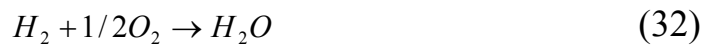
$$R_{k,r} = R_{kin,r} \left(p_n - \frac{R_{k,r}}{D_{0,r}} \right)^{N_r} \quad (25)$$

$$R_{kin,r} = A_r T^{n,r} e^{-(E_r/RT)} \quad (26)$$

而剩下的煤焦是考慮會進行以下三種反應：



當異相之表面反應產生氫氣、一氧化碳與碳氫化合物(其種類將視採用之煤炭而有不同)後，在氣化爐之環境中將進行同相(Homogeneous)之氣相反應，包括重組反應(Reforming)，水氣轉移(Water Gas Shift Reaction)反應與氧化(Oxidation)反應等：



三、煤粒之相關性質

下表 3-1 為噴入氣化爐之煤粒相關性質，所採用之煤種為澳洲煤，而平均粒徑為 70 μ m，其高熱值為 28.16 MJ/kg[61]。

表 3-1. 煤成份之元素分析與工業分析[61]

元素分析	Wt% (As Receive Basis)
C	73.3
H	4.17
O	5.25
N	1.44
S	0.52
工業分析	Wt%
Volatile ^a	31.12
Fixed Carbon	53.56
Moisture	1.87
Ash ^b	13.45

^a: modeled by $C_{16}H_{40}O_4$

^b: modeled by N_2

四、紊流反應模式及操作參數分析

本研究乃是進行氣化模式及參數分析，所執行之項目包括以下三種：

1. Non-premixed flamelet 反應模式建立
2. 比較不同紊流反應模式之結果，如 FREDM 及 Non-premixed equilibrium 模式

3. 不同 O₂/C 之參數
4. 不同煤種之結果比較
5. 整體氣化效能分析

在比較不同紊流反應模式之結果後，選取所適用本研究之模式，再進行操作參數氧碳比和不同煤種之測試，最後對其氣化效能作完整之分析及探討。

依照計畫規劃進度，目前已完成 Non-premixed flamelet 紊流反應模式之建立，以及不同紊流反應模式之比較。

五、FREDM 運算之概念

有限速率模式架構搭配渦流耗散模式，此模式反應速率之預測，是選取化學反應中阿瑞尼斯(化學)及紊流混合率兩者間最小的。此模式適合總體反應(Global Mechanism)或是一、二階機制。

整體反應速率由消散率所主導，而流體可由流場之紊流強度和環境溫度達到適當條件，即可產生化學反應機制，而成份方程式的消耗項處理以及能量方程式和非預混之層流火焰模式有所不同，如下：

$$\text{成份方程式：} \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i Y_i) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D_{im} \frac{\partial Y_i}{\partial x_i} + \frac{\mu_t}{S_{Ct}} \frac{\partial Y_i}{\partial x_i} \right) + S_{pY_i} + R_i \quad (34)$$

R_i ：化學反應和紊流耦合機制下，產生或是消耗掉之成份

而根據 Magnussen and Hikertager[12]兩人之研究下，提供紊流-化學反應相互耦合之模型，化學及紊流交互作用下，生成物產生率(R_i)選較小值決定。

$$R_i = \min(R_{Arrhenius}, R_{Turbulence}) \quad (35)$$

而當反應物均勻混合時，反應 r 中物質 i 的生成/消耗之速率以非線性速率產生。其中阿瑞尼斯速率(Arrhenius Rate)，或稱化學反應速率：

$$R_{Arrhenius} = \Gamma(v_{i,r}'' - v_{i,r}') k_{f,r} \prod_{j=1}^{N_r} [C_{j,r}]^{\eta_{j,r}' + \eta_{j,r}''} \quad (36)$$

Γ ：第三體(Third Body)

$k_{f,r}$ ：反應 r 的正向速率常數，以 Arrhenius 型式表示：

$$k_{f,r} = A_r T^\beta e^{-E_a/RT} \quad (37)$$

而紊流混和速率為：

$$R_{Turbulence} = v'_{i,r} M_{w,i} A \rho \frac{\varepsilon}{k} \min\left(\frac{Y_R}{v'_{R,r} M_{w,R}}\right) \quad (38)$$

$$R_{Turbulence} = v'_{i,r} M_{w,i} A B \rho \frac{\varepsilon}{k} \left(\frac{\sum_P Y_P}{\sum_j v''_{R,r} M_{w,j}}\right) \quad (39)$$

其中：

N_r ：反應 r 的化學物質數目

$C_{j,r}$ ：反應 r 中每種反應物或生成物 j 的摩爾濃度

$v'_{i,r}$ ：反應 r 中反應物 i 的化學計量係數

$v''_{i,r}$ ：反應 r 中生成物 i 的化學計量係數

$\eta'_{j,r}$ ：反應 r 中每種反應物或生成物 j 的正向反應速度指數

$\eta''_{j,r}$ ：反應 r 中每種反應物或生成物 j 的逆向反應速度指數

Y_P ：任何產物 P 之質量分率

Y_R ：特定反應物 R 之質量分率

A ：經驗常數，為 4.0

B ：經驗常數，為 0.5

本研究在反應速率計算中忽略第三體影響，值視為 1(Unity)

六、CHEMKIN 之格式

非預混之層流火焰(Flamelet)紊流反應模式之中，在熱化學機制方面，引入較詳細之 CHEMKIN 熱力學參數值(Thermodynamic Data) [69]來計算。且為符合本研究所需，在資料上做些修正，以符合

CHEMKIN 程式可讀取之格式[70]，最後再配合非預混之層流火焰模式，來產生 PDF Table 做運算。

而在煤炭揮發物部份，則是利用 ANSYS - FLUENT 的煤炭計算器(Coal Calculator)去計算。計算之結果，經過轉譯及變換，使符合 CHEMKIN 程式可讀取之格式。目前之去揮發化物質由 $C_{1.6}H_{4.0}O_{0.36}$ (忽略 N 成分)並將 C、H、O 比例整數化，即修正為 $C_{16}H_{40}O_4$ 。

七、反應動力參數

因 Flamelet 之 CHEMKIN 及 FREDM 紊流反應模式，皆須要化學反應動力參數。且因參考文獻所載明之單位不同，故本研究先將表示單位進行統一及整理。氣相及固(異)相單位如下表 3-2、3-3：

表 3-2. 氣相反應式單位

Volumetric Reaction Parameter	Unit in FLUENT
C (molar concentration)	[kg-mol m ⁻³]
A (pre-exponential factor)	[kg-mol m ⁻³) ^{1-m} s ⁻¹]
Ea (activation energy)	[J kg-mol ⁻¹]
R (gas constant)	[J kg-mol ⁻¹ K ⁻¹]
m= Sum of Stoichiometric Coefficient of Reactant	

表 3-3. 異(固)相反應式單位

Surface Reaction Parameter	Unit in FLUENT
A (pre-exponential factor)	$[(\text{kg m}^{-2})^{1-m} \text{ s}^{-1}]$
Ea (activation energy)	$[\text{J kg}\cdot\text{mol}^{-1}]$
\bar{R} (rate of particle species depletion)	$[\text{kg s}^{-1}]$
m= Sum of Stoichiometric Coefficient of Reactant	

最後，將相關文獻進行整理、換算後，可得到如下表所示之反應參數：

表 3-4. 化學動力參數表

Formula	Pre-Exponential Factor (A_r)	Activation Energy(E_a) (J kmol^{-1})	Reference
(27)	5.12 E-02	1.33 E+07	[53]
(28)	7.82 E-02	1.15 E+08	[53]
(29)	7.32 E-02	1.125 E+08	[53]
(31)	3.98 E+10	1.672 E+08	[71]
(32)	1.8 E+02	1.464 E+08	[72]
(33)	2.78E+02	1.26E+07	[73]

而研究過程，水氣轉換反應參數，是分別採用文獻中兩種反應參數值來做測試且比較，最後採用近年來，氣化文獻常用化學動力參數，為表 3-4 中的(33)式，分別為 A_r 為 2.78E+02、 E_a 為 1.26E+07。

而比較另一快速水氣轉換反應參數值為表 3-5 所示，分別為 A_r 為

2.75E+10、 E_a 為 8.37E+07：

表 3-5. 快速水氣轉換反應參數值

Formula	Pre-Exponential Factor (A_r)	Activation Energy(E_a) ($J\ kmol^{-1}$)	Reference
(34) Forward	2.75 E+10	8.37 E+07	[53]
(34) Backward	2.65 E-02	3.96 E+03	[53]

八、氣化爐-幾何尺寸與入口條件

本研究所參考之工研院實驗文獻，其反應器長 272 公分，內部直徑 15 公分，其幾何形狀如圖 3-1 所示[61]。此氣化爐為壓力式挾帶床之氣化爐。而進料模式採徑向進給，共三個進料口，分別位於氣化爐 60°、180°及 300°處。每一進料口之燃料於中心噴出，外圍環狀進料口則為氧化劑進料口，所進給之燃料，將於氣化爐中心處，即 X-Y 平面形成一渦旋，流場隨著渦旋往上方 Z 之正方向流動。

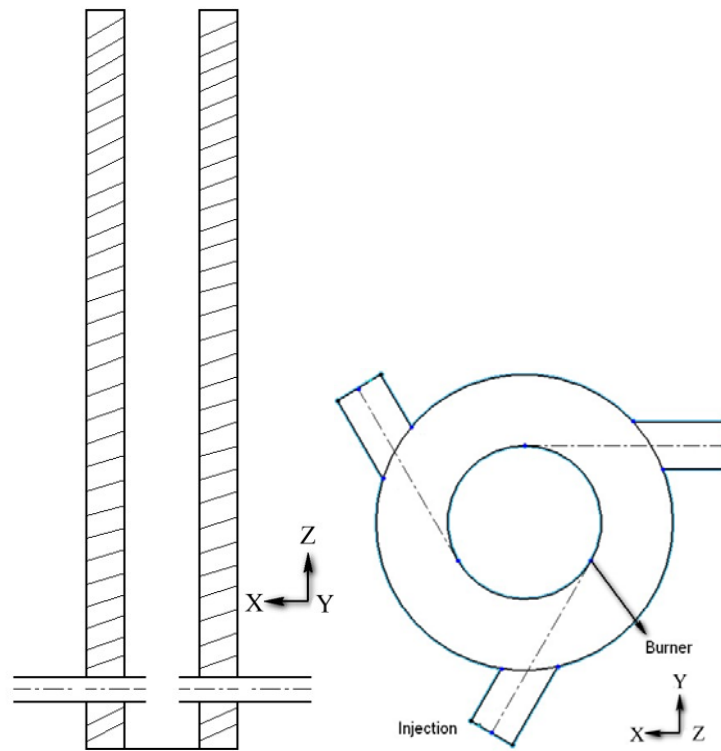


圖 3-1. 實驗之氣化爐及示意圖

參考實驗值，氧碳比定義為， $O_2/Coal$ (kg/kg)(DAF) 為 1.0245，而，
為方便本研究計算，其氧碳比定義，選用氧化劑氧氣之質量和燃料中

含碳之質量間比值，故在入口方面，氧碳比方面為 1.21，煤炭燃料與挾帶氮氣之溫度皆為 294K。氧化劑部份，溫度為 421K。其它如表 3-6 所示。

表 3-6. 氣化爐操作條件

入口條件	O_2/C 為 $1.04(Nm^3 kg^{-1})$ 或 $1.21 (kg/kg)$
進料方式	乾式粉煤(Dry)
煤炭量 ($kg s^{-1}$)	0.009
挾帶氮氣量 ($kg s^{-1}$)	0.00514
氧化劑量 ($kg s^{-1}$)	0.0100436
氧化劑 (質量分率)	$79.47\%O_2$ 、 $3.66\%N_2$ 及 $16.87\%Steam$
出口冷卻水量 ($kg s^{-1}$)	0.0020833
操作壓力 (bar)	8.2

肆、主要發現與結果討論

本研究以商用 CFD 軟體 ANSYS-FLUENT 為分析工具，針對壓力式挾帶床粉煤氣化爐建立 3D 模型及氣化程序分析模式。而本研究從建立氣化反應爐之模型建置連續相分析模式，包含紊流模式、紊流反應模式、揮發物及氣相流場，並搭配煤炭噴注之離散相，如煤炭粒子熱輻射模式、粉煤裂解模式等；最後，將離散相及連續相兩者耦合運算。

其模擬結果在和實驗之出口氣體成份進行比對後，再進行操作參數之分析。首先針對網格部分，做網格獨立測試。其爐內溫度分佈結果如圖 4-1 所示，此比較圖是將整個計算區域的所有網格的數值全部呈現，故在一個軸向座標點上會有該剖面的全部數據。由此比較可發現 101,326(綠色)、122,600(紫色)及 152,111(藍色)三組趨勢幾乎一樣(綠色跟紫色重疊，故看不清楚綠色線)；故為節省計算資源，後續之計算皆採取 101,326 網格來做測試。

而在圖 4-1 中，同一位置上有兩個值以上，是因為反應前端較為劇烈，如入口燃燒區附近(爐高 50 公分處)，使整個面分佈較不均勻

(uniform)，故在同一位置上會存在不同值，而之後整體反應達到平衡後，在同一面上之分佈就趨於均勻，如圖 4-1 中，爐高 200 公分之後。

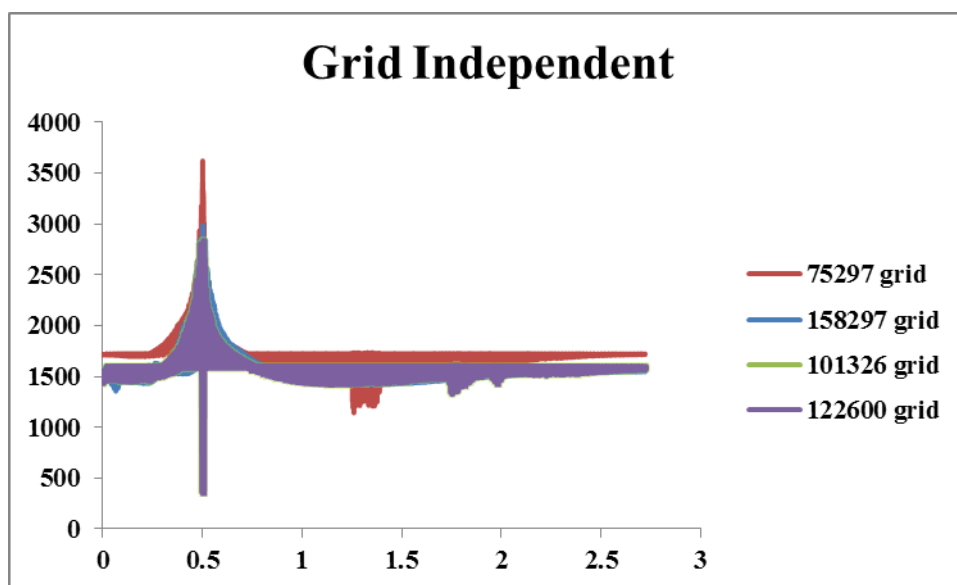


圖 4-1. 網格獨立測試

一、不同紊流反應模式之比較

為選取適合氣化程序之紊流反應模式，本研究選取非預混 (Non-Premixed) 紊流反應模式下之兩種模式，分別為非預混之平衡 (Equilibrium) 及非預混之層流火焰 (Flamelet) 模式；另一種為則是有限速率/渦流消散模式 (FREDM)。其預測之結果如圖 4-2 所示：

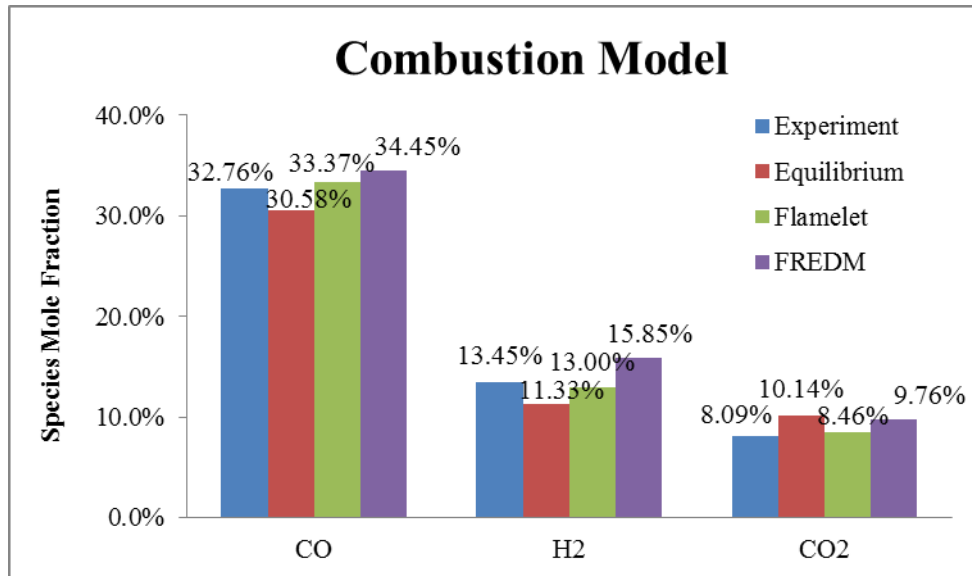


圖 4-2. 不同紊流反應模式之出口成份比較圖

因參考之實驗值僅提供 CO、H₂、CO₂ 的加總值，為便於比較，本研究亦針對此三種組成進行比較與驗證。且由本研究分析結果可知其實驗未列之成份主要為 N₂、水蒸氣及極少量之 CH₄。

由圖 4-2 觀察可發現，上述三種紊流反應模式在出口合成氣體預測上，主要皆以氣化產物 CO 與 H₂ 為主，而燃燒反應之產物，即 CO₂ 之比重則較低。這能表示氣化爐內主要是進行氣化程序之反應，而非燃燒反應，此趨勢即為氣化爐產氣之主要特性。

由結果可看出，在平衡模式和實驗值比較方面，出口產物偏向燃燒反應(CO₂ 較實驗值高)，氣化產物偏少(CO 及 H₂)。而層流火焰方面，在出口產物預測和實驗值最為吻合。最後是 FREDM 部份，在預

測出口氣化產物方面，組成較實驗值高。

而出口溫度如圖 4-3 所示，觀察可得於平衡模式下，燃燒反應會較原實驗結果劇烈，出口溫度在 1701K 左右。層流火焰模式部份，約 1587K。而 FREDM 氣化產物較其它兩者模式高，出口溫度約 1501K。

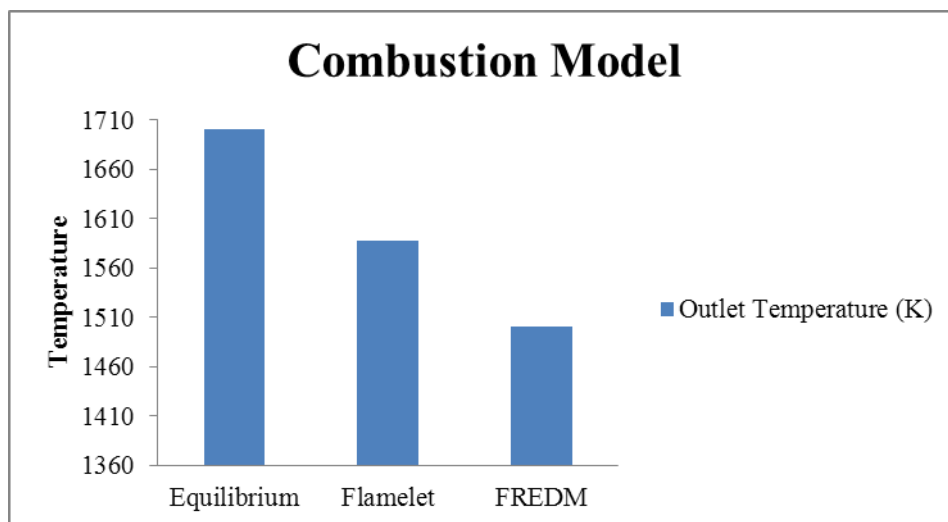
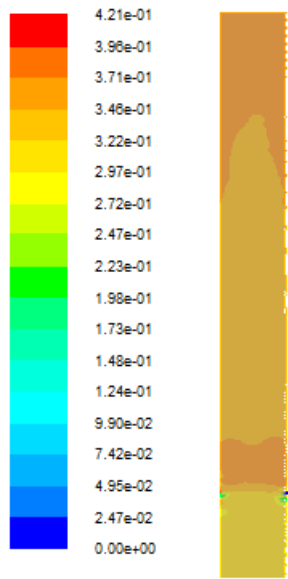


圖 4-3. 不同紊流反應模式之出口溫度(實驗無出口溫度)

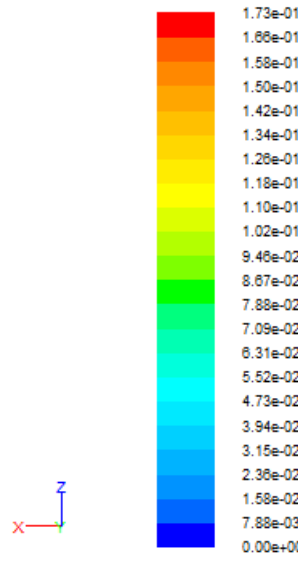
二、不同紊流反應模式之爐內分佈探討

在非預混燃燒之平衡模式計算中，因假設所有反應物一經接觸即反應架構下，故煤炭和氧化劑在進入爐內沒多久即完全反應。由圖 4-4 各成份切面圖可看出，約在爐高 60 公分處就產生氣化反應，且反應速率非常快。在入口區附近，快速產生燃燒及氣化反應，與實際先

燃燒後再氣化之情況有所落差，並無明顯區隔燃燒、氣化等反應區之情況。爐內溫度如圖 4-4(e) 所示，入口區劇烈燃燒後，隨之快速進行吸熱之氣化反應，最後平衡至出口。



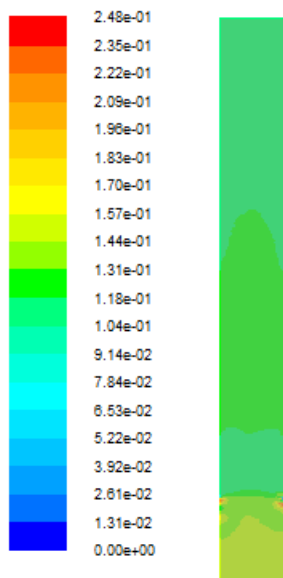
Contours of Mole fraction of co



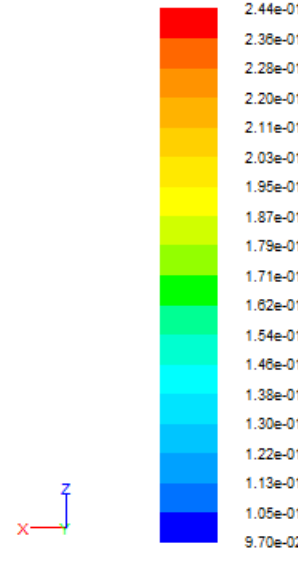
(a) Contours of Mole fraction of h2



(b)



Contours of Mole fraction of co2



(c) Contours of Mole fraction of h2o



(d)

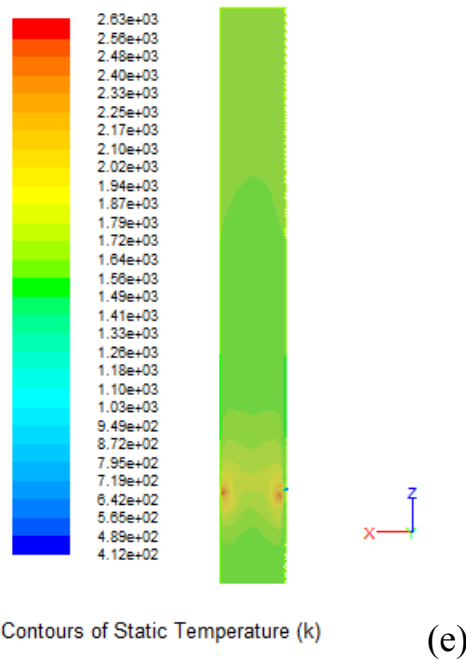
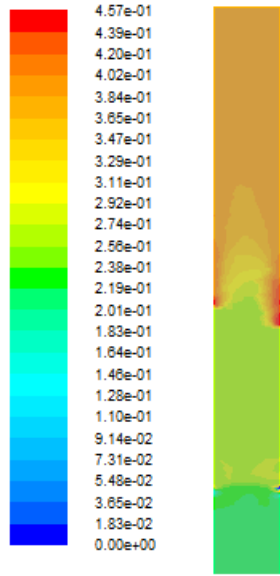
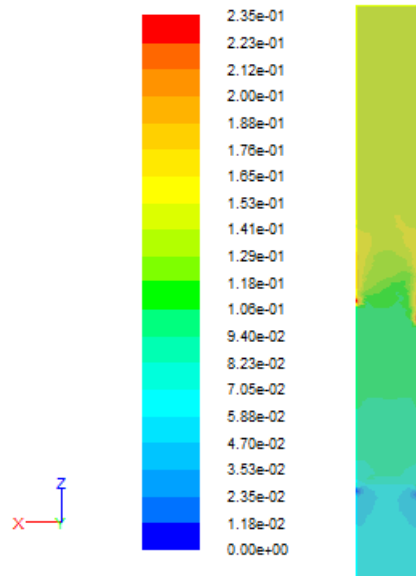


圖 4-4. 非預混之平衡模式 (a)CO (b)H₂ (c)CO₂ (d)H₂O (e)溫度圖

而在非預混之層流火焰紊流反應模式方面，以出口成份之切面圖（圖 4-5）可看出，約在爐高 125 公分處，劇烈產生 H₂ 及 CO，推斷為氣化反應產生處，之後各氣體組成達到平衡至出口；且爐內溫度如圖 4-5(e)所示，在 100-130 公分處溫度也較低。整體出口合成氣和實驗值較接近(誤差在 1%以內)。且因火焰之拉伸，近似局部非平衡狀態，故整體反應速率方面也和平衡模式不同；此模式先在入口區產生燃燒反應，到下游時在產生氣化反應，可明顯區隔出燃燒及氣化等反應區。



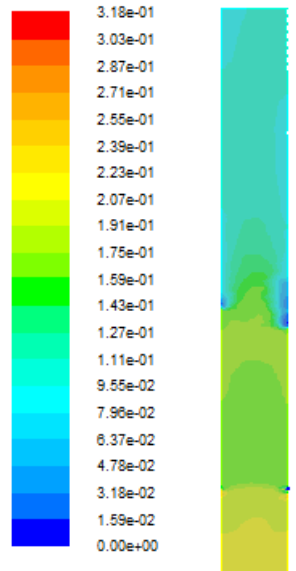
Contours of Mole fraction of co



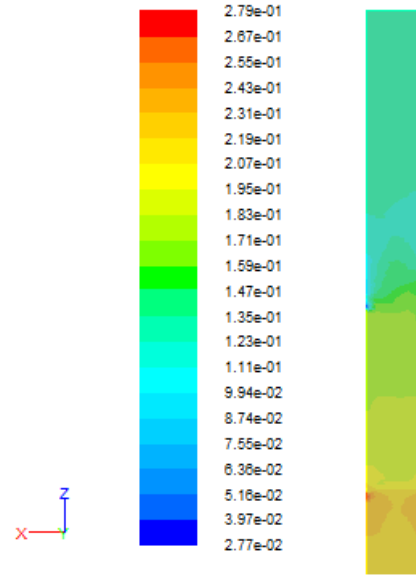
(a) Contours of Mole fraction of h2



(b)



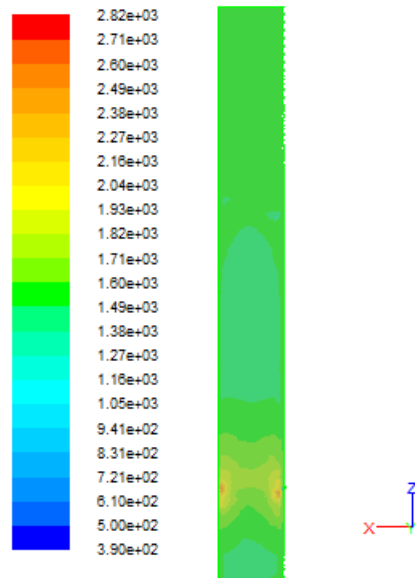
Contours of Mole fraction of co2



(c) Contours of Mole fraction of h2o



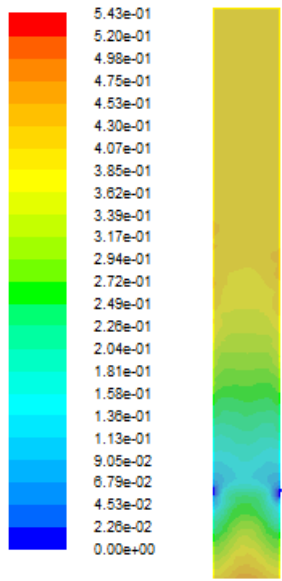
(d)



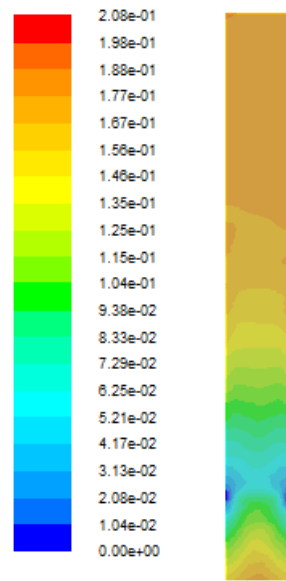
Contours of Static Temperature (k) (e)

圖 4-5. 氣化爐內 (a) CO (b) H₂ (c)CO₂ (d)H₂O (e)溫度圖

在有限速率渦流消散模式方面，從入口區開始先產生 CO₂ 及 H₂O，後續逐步反應產生 CO 及 H₂ 直到約爐高 130 公分處，之後達到平衡至出口，溫度分佈亦同，如圖 4-6。因此模式下，其概念為逐條解析成份傳輸及化學動力方程式，故從圖 4-6 中，可看出，整體反應為逐漸變化，且有明顯反應區之分，如入口燃燒反應、到下游處產生氣化反應，最後達到平衡等。但出口產物預測上，精準度較層流火焰模式略差。



Contours of Mole fraction of co

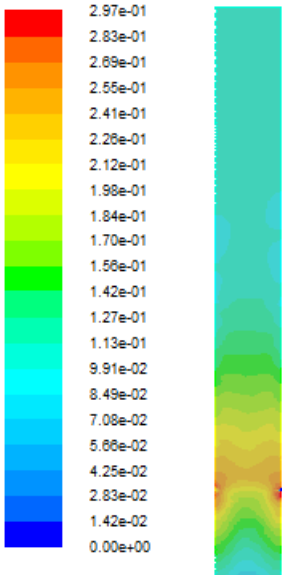


Contours of Mole fraction of h2

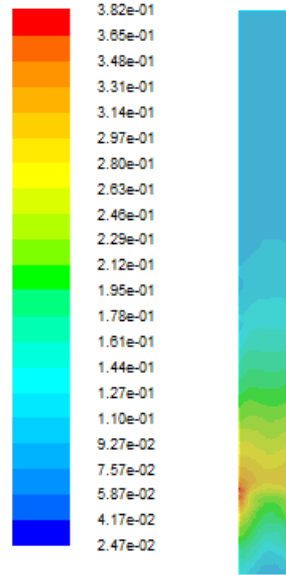


(a)

(b)



Contours of Mole fraction of co2

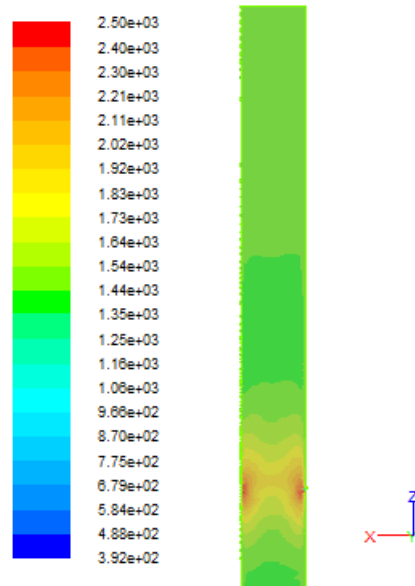


Contours of Mole fraction of h2o



(c)

(d)



Contours of Static Temperature (k) (e)

圖 4-6. 有限速率渦流消散模式 (a)CO (b)H₂ (c)CO₂ (d)H₂O (e)溫度圖

綜觀上述結果比較可發現，雖然 Flamelet 模型預測之結果與實驗值最接近，但 FREDM 模型預測之內部分佈較合理，且出口成份與實驗值之差異尚在可接受範圍中，故此節比較反應模型後，吾人將選定 FREDM 模型，以進行後續之參數分析。

三、不同水氣轉換反應參數值之影響

在有限速率之渦流消散反應模式測試過程中，也針對水氣轉換反應動力值，進行參數敏感性分析及比較。故本研究歸納出近 20 年來，氣化文獻常用之兩種水氣轉換參數值，如表 3-4 之(33)式及 3-5 之(34)式。

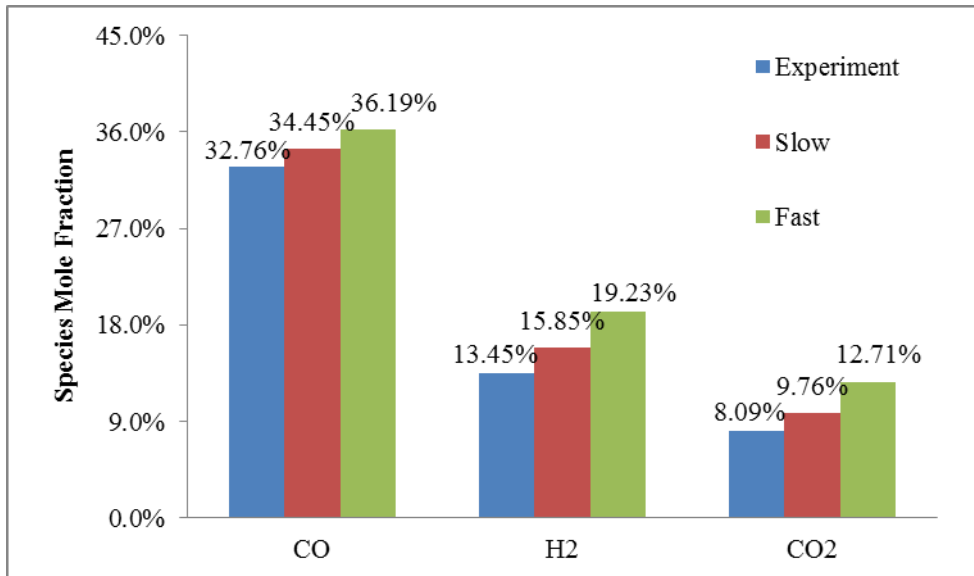


圖 4-7. 不同水氣轉換反應參數值對 FREDM 出口產物預測之改變

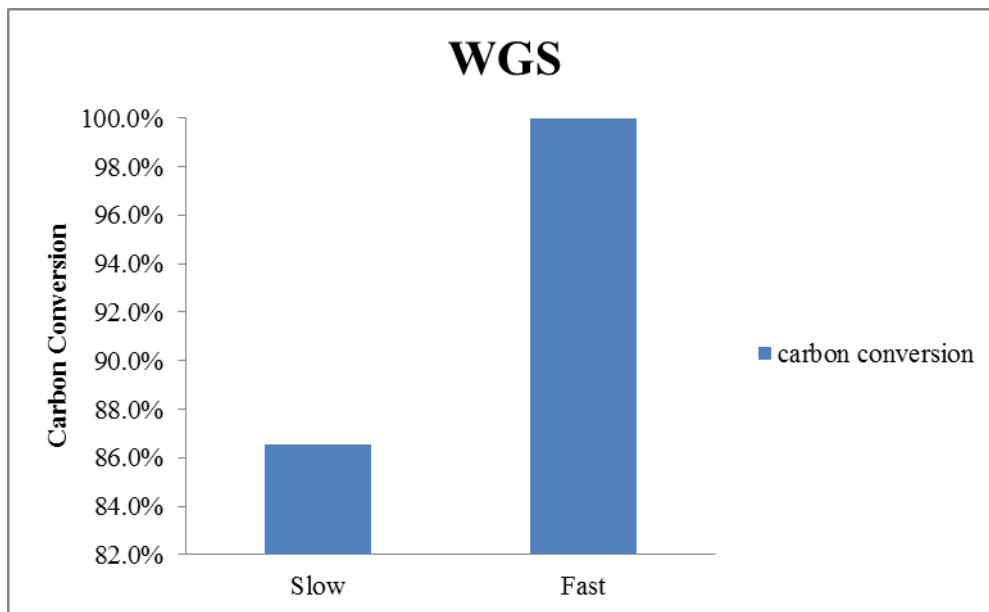


圖 4-8. 不同水氣轉換反應參數值之碳轉換率比較

由圖 4-7 可知，當採用表 3-5 (33) 式之快速(Fast)水氣轉換反應參數時，水蒸氣完全被消耗，使組成偏離實驗值；而採用表 3-4 (33)* 式慢速(Slow)水氣轉換反應參數情況下，整體出口成份組成則較接近實驗值。

採用快速水氣轉換反應參數時，其出口成份中之 CO 也比較高，推論是因快速(Fast)水氣轉換反應參數導致煤焦轉換率過高(文獻值為 90%)，如圖 4-8 所示；而採用慢速(Slow)水氣轉換反應參數時，整體出口成份組成則較接近實驗值。

因在氣化爐內，各氣體藉由燃燒、氣化等反應產生或消耗後，最後是藉著水氣轉換反應來取得平衡，這也表示水氣轉換反應參數值的大小，影響最後出口合成氣組成，故水氣轉換參數值在氣化過程中扮演非常重要角色。經比較後，選取慢速水氣轉換反應參數，以進行後續之操作參數分析。

四、不同 O_2/C 之氣化效能評估

在氣化程序中，氧碳比(O_2/C)是重要氣化參數之一，而本研究氧碳比例為 1.21 (或 $1.04 \text{ Nm}^3 \text{ kg}^{-1}$)，而經實驗證實，殘碳率(單位進料的未反應碳/單位進料的含碳量)必須降為零，才表示此氣化實驗之氧煤比足夠反應所有的碳。

而本澳洲煤經過實驗測出，必須高於 $0.5 \text{ Nm}^3 \text{ kg}^{-1}$ ，才能使整體碳在氣化爐內完全反應[74]，故本研究將滿足此條件下，分別以 0.92 (或

0.79 Nm³ kg⁻¹)、1.12 (或 0.96 Nm³ kg⁻¹)來做測試。

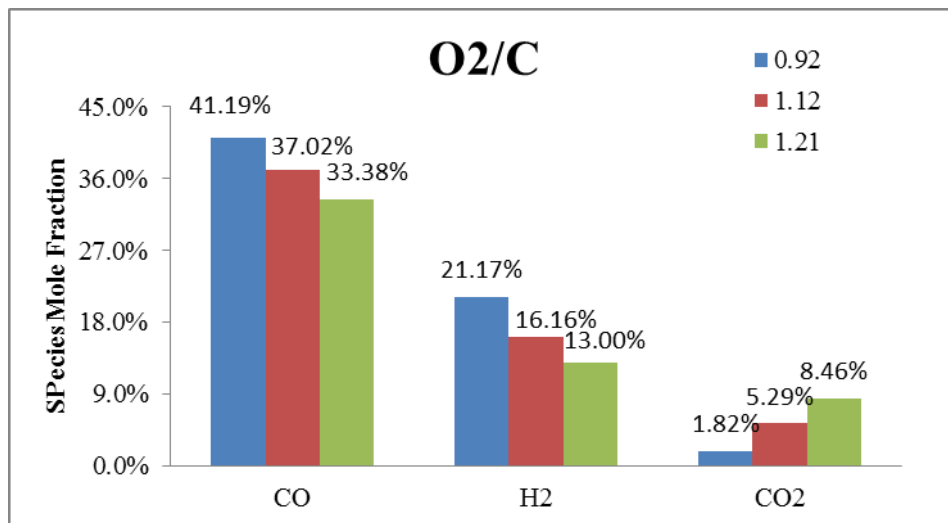


圖 4-9. 不同氧碳比之出口比較圖

由圖 4-9 結果可發現，出口合成氣體隨氧碳比提高，燃燒反應物 (CO₂)隨氧碳比提高而增加，且氣化產物(CO 及 H₂)隨之降低；而出口溫度方面，隨氧碳比提高，出口溫度也隨之提高，如圖 4-10。

推論為氧碳比提高，亦即氧氣量增加，使燃燒反應增加，而氣化反應減少所造成此現象。

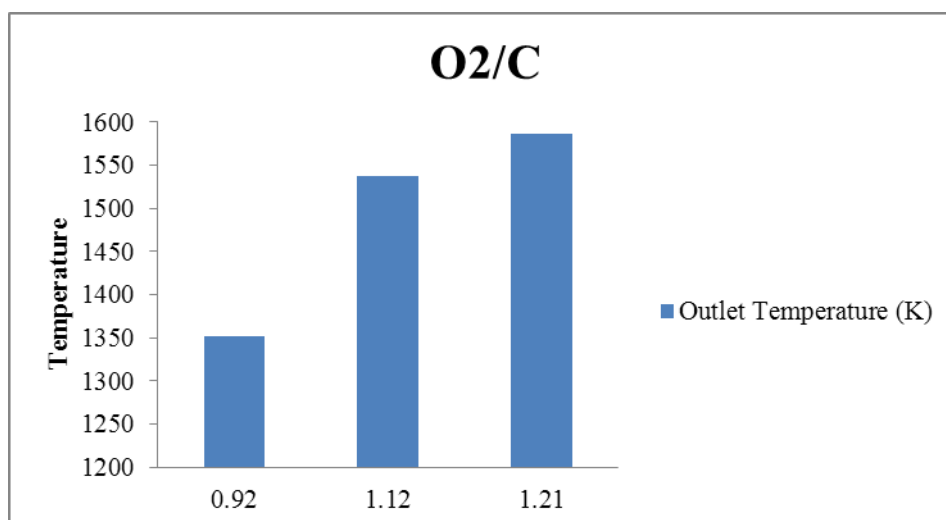


圖 4-10. 不同 O₂/C 之出口溫度

五、不同煤種之氣化效能評估

本研究使用的煤種為澳洲煤種(Coal A)[61]，而測試的煤種是來自印尼煤種(Coal B)[61]，其煤種的成份分析如表 4-1 所示，其含水量成份較澳洲煤種高、含碳量則較低、高熱值也較低。

表 4-1. 澳洲煤(Coal A)與印尼煤(Coal B)之組成比較

Ultimate analysis		
	Coal A(wt%)	Coal B(wt%)
C	73.3	60.5
H	4.17	4.04
O	5.25	15.81
N	1.44	0.86
S	0.52	0.15
Proximate analysis		
Volatile	31.12	41.52
Fixed C	53.56	39.84
Moisture	1.87	16.48
Ash	13.45	2.16
HHV(MJ/kg)	28.158	23.514

在此測試中，固定兩種煤的質量流率，並就出口結果進行比較。其出口成份如圖 4-11 所示，Coal B 氣化後之 CO 較低，而 H₂ 則較高，推論為含水分較多的煤種其水氣轉換反應較多。而整體 CGE(Cold Gas Efficiency)和 CC(Carbon Conversion)如圖 4-12 和圖 4-13 所示，CGE 部分 Coal B 較 Coal A 略低 0.6%左右，CC 部份，Coal B 較 Coal A 略低 0.5%。因此，雖然以固定質量流率的方式進行比較，會導致氧碳比與含水量的差異，但基本上熱值較低之 Coal B 之氣化效能略差，尚屬合理。

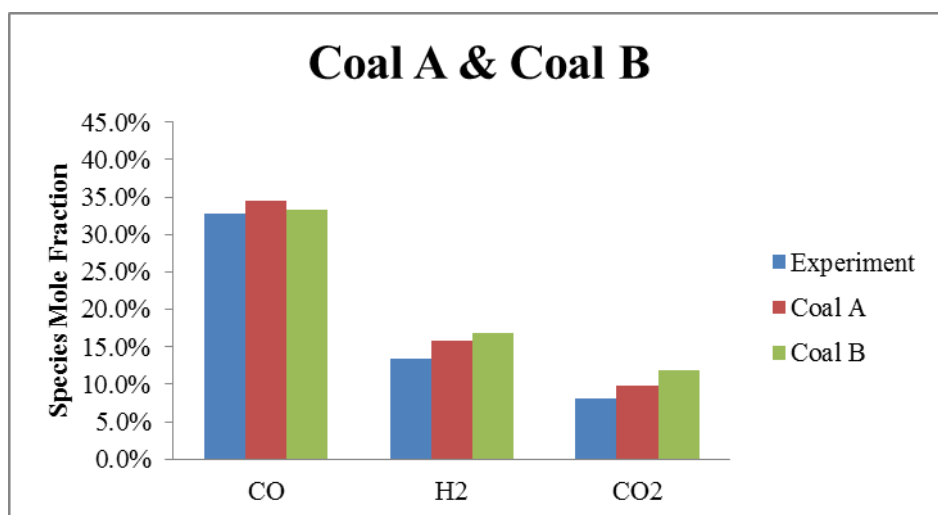


圖 4-11. 不同煤種之出口成份比較

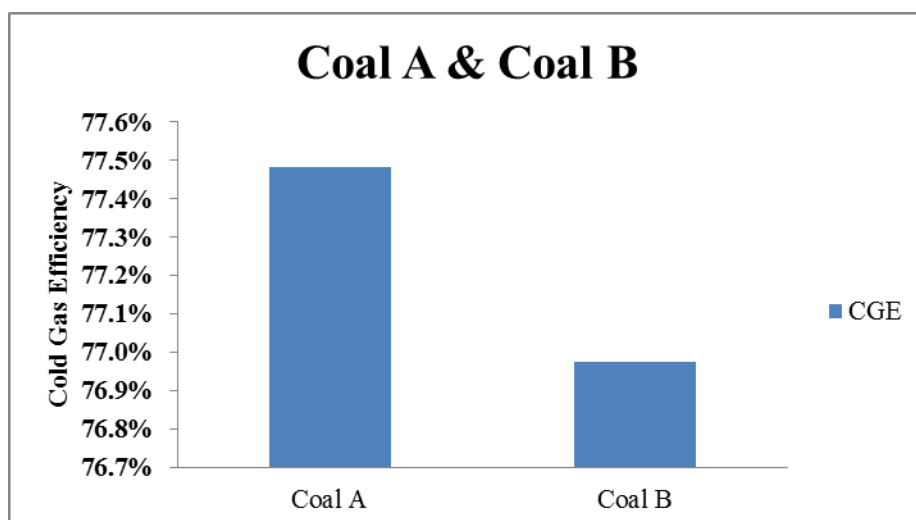


圖 4-12. 不同煤種之 CGE 比較

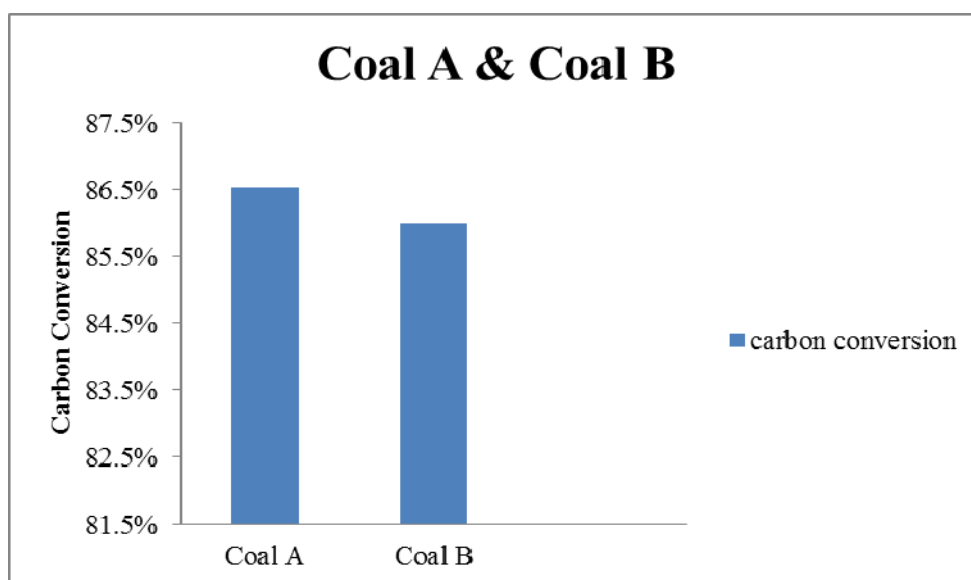


圖 4-13. 不同煤種之碳轉換率比較

六、不同操作壓力之氣化效能評估

本氣化反應爐實驗之操作壓力為 8.2bar，在以下研究中，為探討操作壓力對整體氣化效能之影響，且配合實驗氣化爐在操作壓力有 20bar 設計之限制，並考慮實際反應爐操作時之安全性，故分別再以 4.67bar 及 6.34bar 條件下做測試及比較。

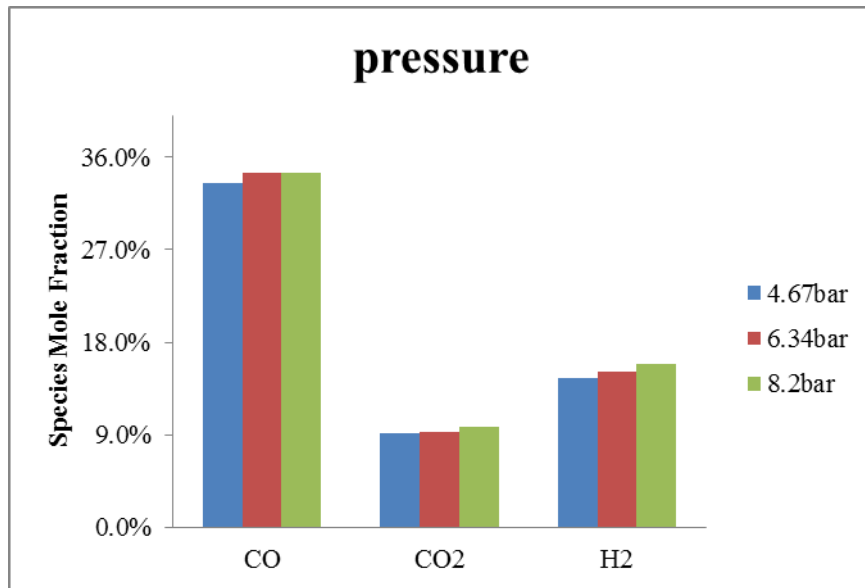


圖 4-14. 不同操作壓力之出口成份比較

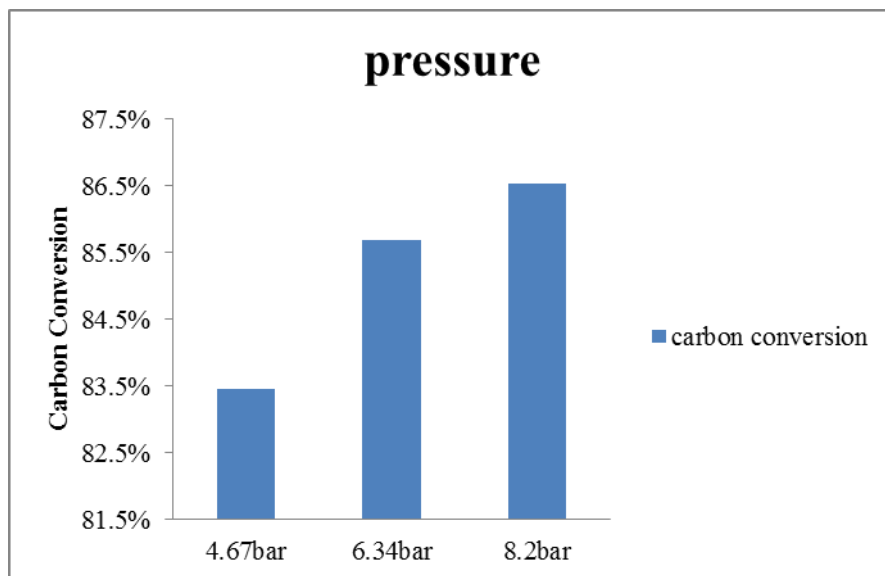


圖 4-15 不同操作壓力之煤碳轉換率比較

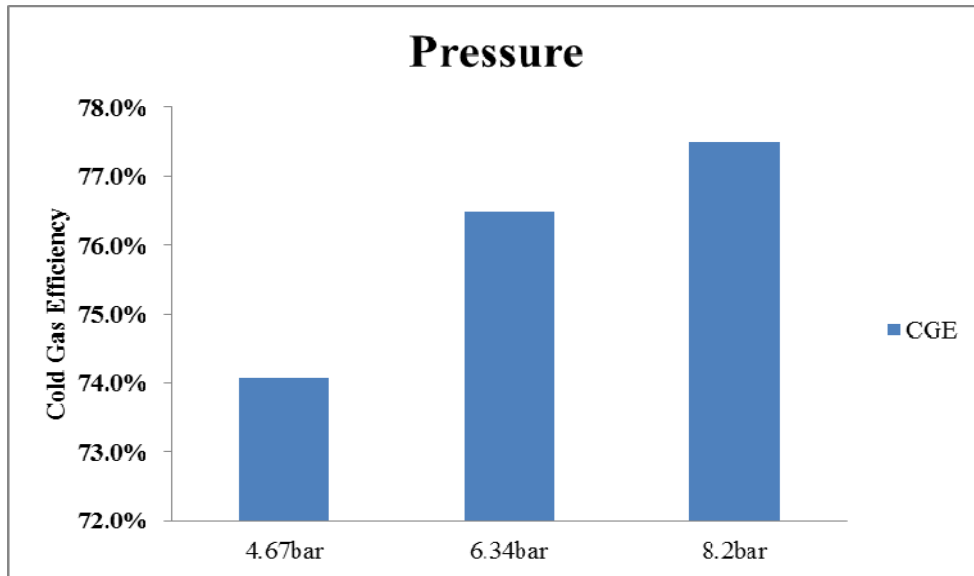


圖 4-16. 不同操作壓力之 CGE 比較

其出口成份如圖 4-14 所示，從出口結果來看，壓力增加時，氣化產物(CO、H₂)隨之提高，而燃燒產物(CO₂)降低。一般氣化經驗之結論指出，提高操作反應壓力，會提高焦煤氣化反應速率。而這部份可從碳轉換率得到驗證，如圖 4-15 所示，其隨操作壓力提高，碳轉換率亦隨之提高。另外，整體碳轉化率偏低之原因，推測為參考之實驗資料為中小功率之挾帶床氣化爐，其尺寸特性限制所造成。

由圖 4-16 可知，其 CGE(Cold Gas Efficiency)部分，隨著操作壓力提升而增加，推論氣化效能會隨壓力提升而增加之原因，乃是由於異相反應在高壓下反應較也較快，如圖 4-17(a)-(c)。由圖 4-18 可知，其出口溫度也會隨著壓力升高而提升。

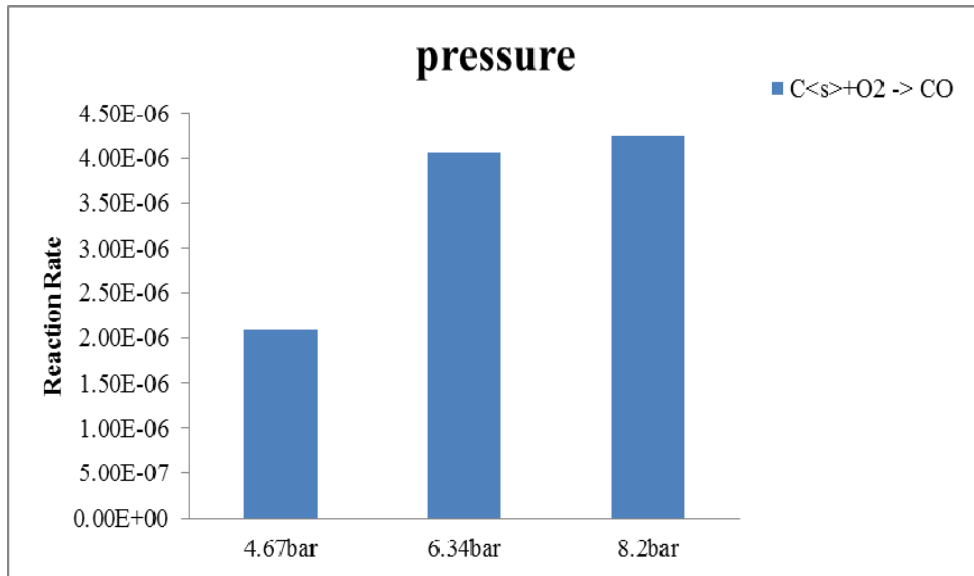


圖 4-17(a). 不同操作壓力之異相反應的反應速率平均值比較

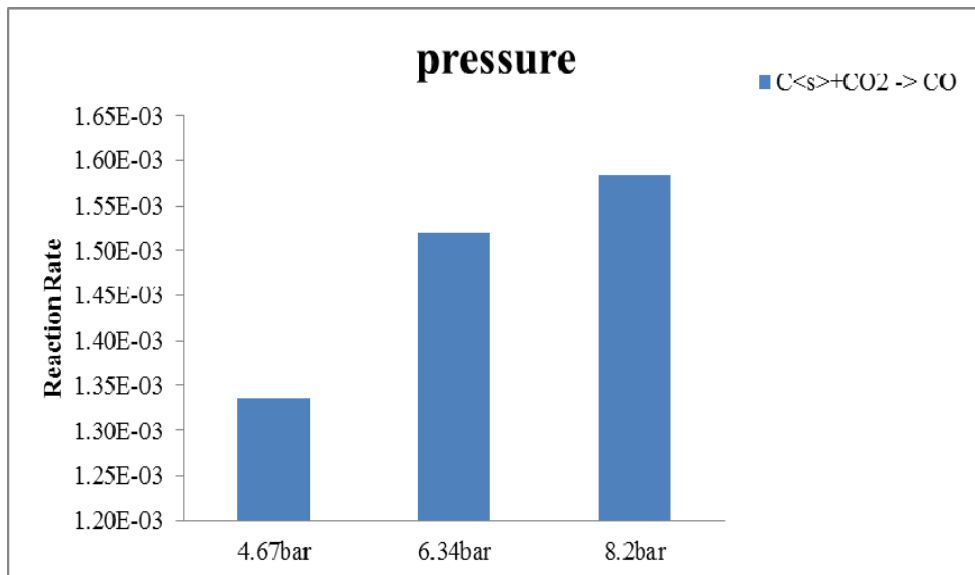


圖 4-17(b). 不同操作壓力之異相反應的反應速率平均值比較

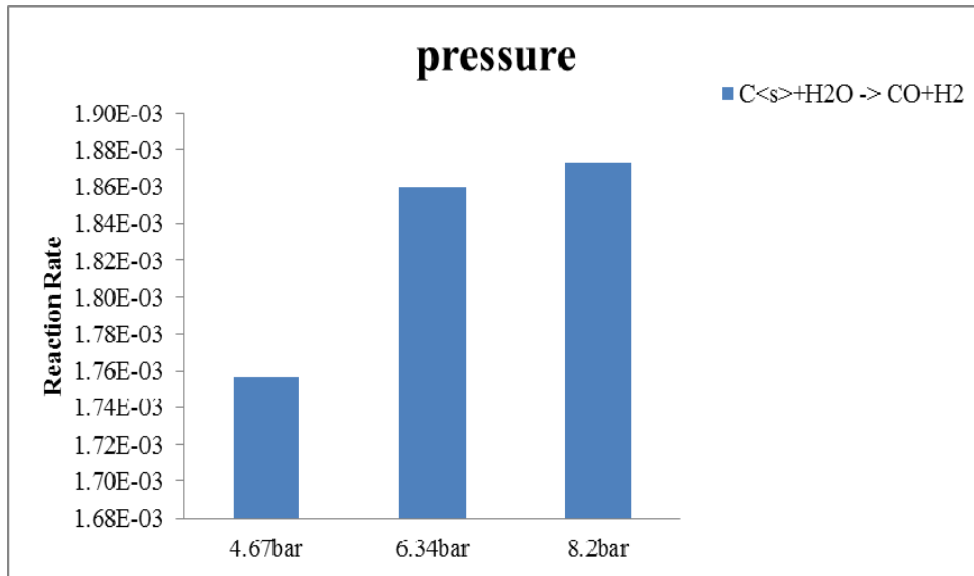


圖 4-17(c). 不同操作壓力之異相反應的反應速率平均值比較

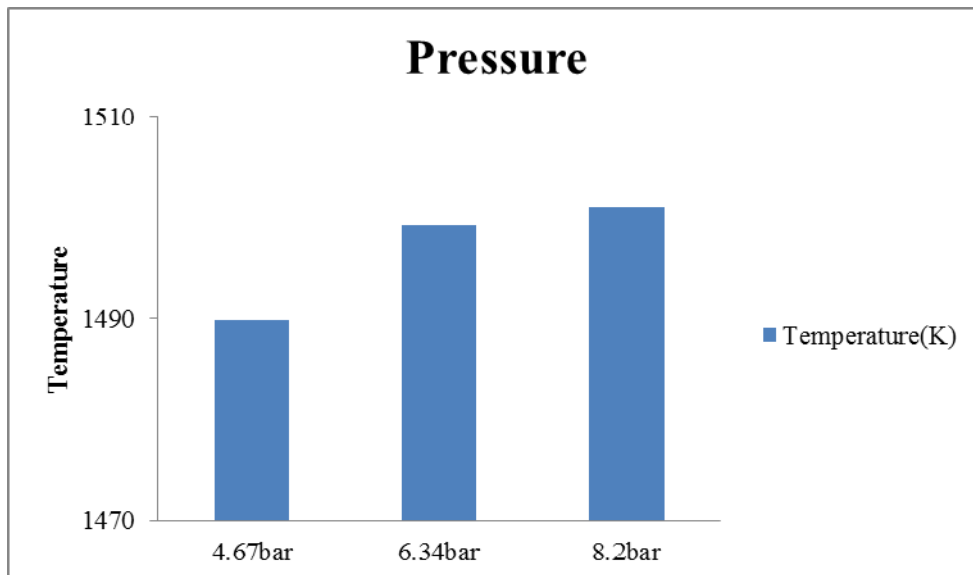


圖 4-18. 不同操作壓力之出口溫度比較

七、不同含水量之氣化效能評估

在含水量測試部分，本研究分別以入口 H₂O 的量的 0.8 倍及 1.2 倍進行測試；其含水量不同的出口成份比較如圖 4-19 所示；當含水量越高，其氣化產物(CO+H₂)的出口莫爾分率隨之降低，燃燒產物

(CO₂)隨之增加。由圖 4-20 可知，隨著含水量越高，其溫度也會越高，推論是由於微量放熱之水氣轉換較多，所以造成溫度略為增加；另外，由圖 4-21 結果顯示，當水量增多，由於水氣轉換反應也會較多，故其出口 H₂ 的流率也隨著含水量越高而增加。

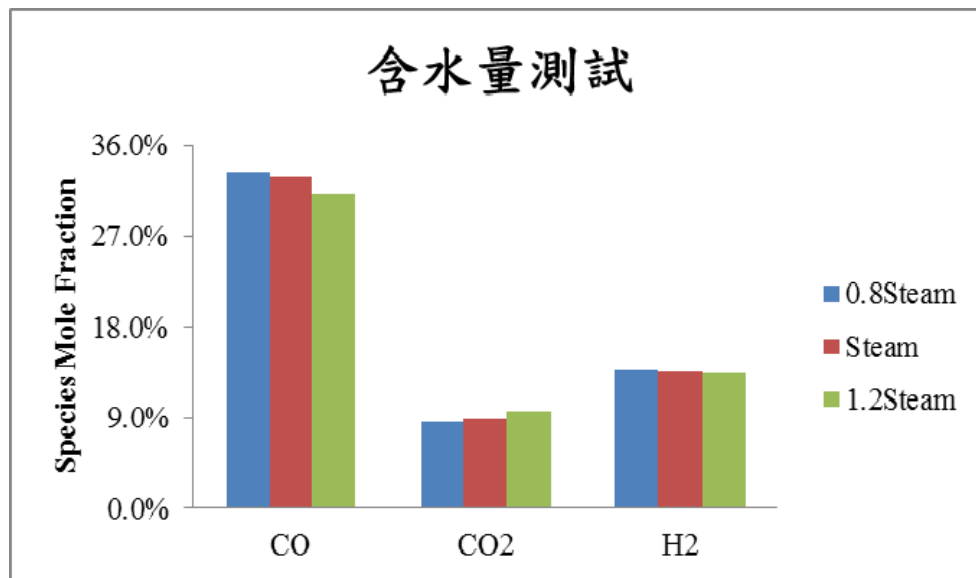


圖 4-19. 不同含水量之出口成份比較

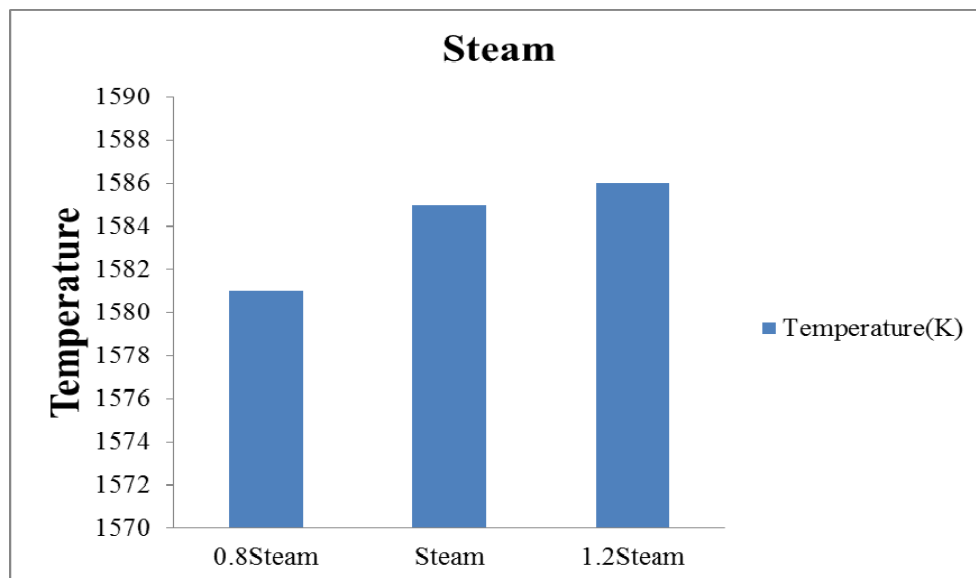


圖 4-20. 不同含水量之出口溫度比較

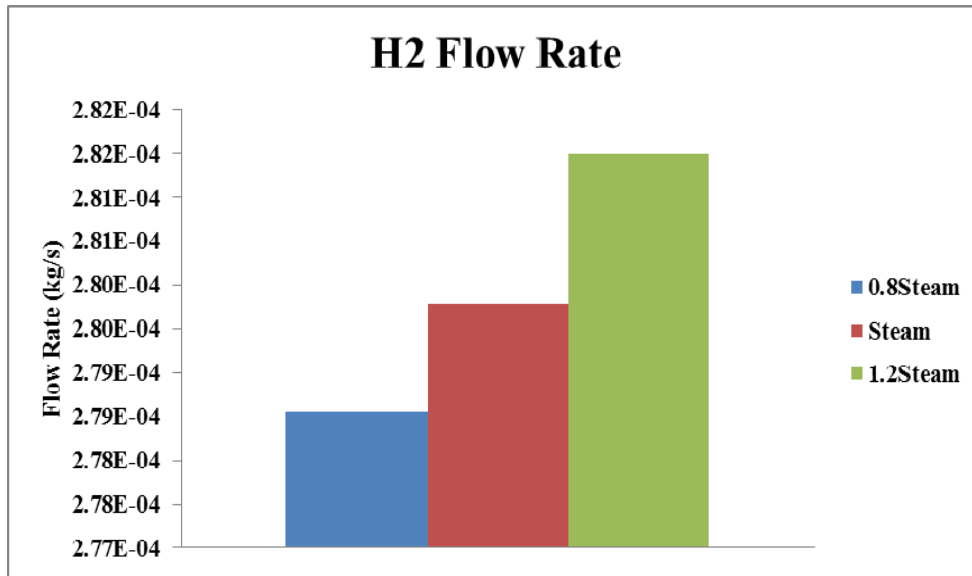


圖 4-21. 不同含水量之 H₂ 出口流率比較

伍、結論

本研究以泛用型商用軟體 ANSYS - FLUENT，針對挾帶床式氣化爐建立分析模式，包含冷流場與紊流模式、流場與粒子之熱輻射模式、煤炭噴注系統以及粉煤裂解模式。本研究已完成之工作項目包括：建立挾帶床式氣化爐幾何模型、導入連續相與離散相耦合模式、與實驗之出口氣體成份進行比對、不同紊流反應模式比對以及不同水氣轉換反應參數影響之探討等。重要結論分述如下：

- 一、非預混之層流火焰模式在出口產物之預測上，較非預混之平衡模式及有限速率渦流消散模式來的精準。
- 二、非預混之平衡模式因不考慮反應動力式之資料，使得反應區皆集中於入口區。而非預混之層流火焰模式部分，考慮火焰之拉伸率，來近似局部非平衡之反應，故有明顯反應區之分別。至於有限速率渦流消散模式，因求解每條成份之反應速率式，來趨近於實際情況，使整體反應逐步變化，也有明顯反應區之分別。
- 三、水氣轉換反應之參數值顯著影響出口合成氣組成。如採用快速水氣轉換反應值，在出口產物預測上較偏離實驗值；而改採用慢速水氣轉換反應值，則出口產物預測上與實驗值較接近。
- 四、在不同氧碳比之氣化效能測試中，出口合成氣體隨氧碳比提高，

燃燒反應物(CO_2)隨氧碳比提高而增加，氣化產物(CO 及 H_2)隨之降低；推論為氧碳比提高，亦即氧氣量增加，使燃燒反應增加，而氣化反應減少所造成此現象。

五、在不同煤種測試中，其含水量較高、含碳量低、高熱值也低的印尼煤(Coal B)，氣化後之 CO 較低，而 H_2 則較高，整體 CGE 則較 Coal A 略低 0.6% 左右，氣化效能略差。

六、在不同操作壓力測試中，當操作壓力提高，氣化產物(CO 、 H_2)隨之提高，而燃燒產物(CO_2)降低。氣化效能和碳轉換率會隨之增加，此是因為異相反應在高壓下反應較快的關係。

七、不同含水量之測試中，當含水量越高，其氣化產物($\text{CO}+\text{H}_2$)的出口莫爾分率隨之降低，燃燒產物(CO_2)隨增加；當水量增多，由於水氣轉換反應也會較多，故其出口 H_2 的流率也隨著含水量越高而增加。

參考文獻

- [1] R. Hinrichs and M. Kleinbach, "Energy: its use and the environment," Brooks Cole, ISBN 0030058686, vol. 2, pp. 13 , 1996.
- [2] R. A. Ristinen and J. J. Kraushaar, "Energy and the environment," ISBN 047172480. Wiley-VCH, vol. 1, pp. 384, 1998.
- [3] L. A. Ruth, "Energy from municipal solid waste: a comparison with coal combustion technology," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 24, pp. 545-564, 1998.
- [4] B. Petroleum, "Statistical review of world energy," (*Web: <http://www.bp.com/statisticalreview>* , 2011.
- [5] E. Heydorn, B. Diamond, R. Lilly, and R. Kornosky, "Commercial-scale demonstration of the liquid phase methanol (LPMEOH™) process," *Final report*, vol. 2, 2003.
- [6] 洪福亮, "煤炭氣化技術之應用," *燃煤新技術研討會*, 台南市, 2001.
- [7] 經濟部能源局, "能源統計手冊," 2008.
- [8] ISAB energy IGCC plant industry projects, (*Web: <http://www.power-technology.com/projects/isab/isab1.html>*, 2011.

- [9] T. Kivisaari, P. Björnbom, C. Sylwan, B. Jacquinet, D. Jansen, and A. de Groot, "The feasibility of a coal gasifier combined with a high-temperature fuel cell," *Chemical Engineering Journal*, vol. 100, pp. 167-180, 2004.
- [10] 工研院能資所研究報告, "氣化複循環發電技術引進的策略規劃," 1999.
- [11] 台電電力綜合研究所研究報告, "煤炭氣化技術及淨化技術之研究," 1994.
- [12] US DOE, Secretary chu announces \$14 million for six new projects to advance IGCC technology, (*Web: <http://energy.gov/articles/secretary-chu-announces-14-million-six-new-projects-advance-igcc-technology>*), 2012
- [13] 周至成、賴維祥、劉軒誠, "石油焦於固定床式氣化爐之氣化研究," 民航/航太/燃燒學術聯合會議, 高雄市, 2002.
- [14] 陳維新、陳建中、蔡慶達、陳建勳、吳世豐、宋勁賢, "固定床氣化爐中煤炭氣化之探討," 中華民國燃燒學會第十三屆學術研討會, 台北市, 2003.
- [15] L. D. Smoot and D. T. Pratt, "Pulverized-coal combustion and

gasification: theory and applications for continuous flow processes," *Plenum Press*, New York, vol. 1, 1979.

- [16] 周志成, "石油焦氣化技術研究," 國立成功大學航空太空工程研究所碩士論文, 2002.
- [17] L. D. Smoot and P. J. Smith, "Coal Combustion and gasification: Springer, *Plenum Press*, New York, "1985.
- [18] D. R. Tree, D. L. Black, J. R. Rigby, M. Q. McQuay, and B. W. Webb, "Experimental measurements in the BYU controlled profile reactor," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 24, pp. 355-383, 1998.
- [19] 鍾文清, "IGCC 發電方式簡介," 技術與訓練 23 卷, 6 期, pp. 127-133, 1998.
- [20] D. B. Anthony and J. B. Howard, "Coal devolatilization and hydrogasification," *American Institute of Chemical Engineers*, vol. 22, pp. 625-656, 1976.
- [21] P. K. Agarwal, "A single particle model for the evolution and combustion of coal volatiles," *Fuel*, vol. 65, pp. 803-810, 1986.
- [22] Q. Ni and A. Williams, "A simulation study on the performance of an entrained-flow coal gasifier," *Fuel*, vol. 74, pp. 102-110, 1995.

- [23] V. Biba, J. Macek, E. Klose, and I. Malekha, "Mathematical modeling of the gasification of coal under pressure in a stationary bed," *Solid Fuel Chemistry (English Translation of Khimiya Tverdogo Topliva)*, vol. 11, pp. 63-71, 1997.
- [24] P. Ruprecht, W. Schäfer, and P. Wallace, "A computer model of entrained coal gasification," *Fuel*, vol. 67, pp. 739-742, 1988.
- [25] D. Vamvuka , E. Woodburn, and P. Senior, "Modeling of an entrained flow coal gasifier: 1.development of the model and general predictions," *Fuel*, vol. 74, pp. 1452-1460, 1995.
- [26] L. D. Smoot, "Coal gasification," *Encyclopedia of Energy Technology and the Environment*, vol. 4, pp. 769-792, 1995.
- [27] C. Wen and T. Chaung, "Entrainment coal gasification modeling," *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, vol. 18, pp. 684-695, 1979.
- [28] R. Govind and J. Shah, "Modeling and simulation of an entrained flow coal gasifier," *American Institute of Chemical Engineers*, vol. 30, pp. 79-92, 1984.
- [29] K. M. Sprouse, "Modeling pulverized coal conversion in entrained flow," *American Institute of Chemical Engineers*, vol. 26, pp. 964-975, 1980.

- [30] N. R. Soelberg, L. D. Smoot, and P. O. Hedman, "Entrained flow gasification of coal: 1. evaluation of mixing and reaction processes from local measurements," *Fuel*, vol. 64, pp. 776-781, 1985.
- [31] D. Neogi, C. Chang, W. Walawender, and L. Fan, "Study of coal gasification in an experimental fluidized bed reactor," *American Institute of Chemical Engineers*, vol. 32, pp. 17-28, 1986.
- [32] B. Brown, L. Smoot, P. Smith, and P. Hedman, "Measurement and prediction of entrained-flow gasification processes," *American Institute of Chemical Engineers*, vol. 34, pp. 435-446, 1988.
- [33] L. D. Smoot and B. W. Brown, "Controlling mechanisms in gasification of pulverized coal," *Fuel*, vol. 66, pp. 1249-1256, 1987.
- [34] Y. J. Kim, J. M. Lee, and S. D. Kim, "Coal gasification characteristics in an internally circulating fluidized bed with draught tube," *Fuel*, vol. 76, pp. 1067-1073, 1997.
- [35] C. Chen, M. Horio, and T. Kojima, "Numerical simulation of entrained flow coal gasifiers. Part I: modeling of coal gasification in an entrained flow gasifier," *Chemical Engineering Science*, vol. 55, pp. 3861-3874, 2000.
- [36] C. Chen, M. Horio, and T. Kojima, "Numerical simulation of entrained flow coal gasifiers. Part II: effects of operating conditions

- on gasifier performance," *Chemical Engineering Science*, vol. 55, pp. 3875-3883, 2000.
- [37] C. Chen, M. Horio, and T. Kojima, "Use of numerical modeling in the design and scale-up of entrained flow coal gasifiers," *Fuel*, vol. 80, pp. 1513-1523, 2001.
- [38] G. S. Liu, H. Rezaei, J. Lucas, D. Harris, and T. Wall, "Modelling of a pressurised entrained flow coal gasifier: the effect of reaction kinetics and char structure," *Fuel*, vol. 79, pp. 1767-1779, 2000.
- [39] Y. Choi, X. Li, T. Park, J. Kim, and J. Lee, "Numerical study on the coal gasification characteristics in an entrained flow coal gasifier," *Fuel*, vol. 80, pp. 2193-2201, 2001.
- [40] T. F. Wall, G. Liu, H. Wu, D. G. Roberts, K. E. Benfell, S. Gupta, J. A. Lucas, and D. J. Harris, "The effects of pressure on coal reactions during pulverised coal combustion and gasification," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 28, pp. 405-433, 2002.
- [41] G. Skodras, S. Kaldis, G. Sakellariopoulos, D. Sofialidis, and O. Faltsi, "Simulation of a molten bath gasifier by using a CFD code," *Fuel*, vol. 82, pp. 2033-2044, 2003.
- [42] W. Zhong, M. Zhang, B. Jin, and Z. Yuan, "Three-dimensional simulation of gas/solid flow in spout-fluid beds with kinetic theory

- of granular flow," *Chinese Journal of Chemical Engineering*, vol. 14, pp. 611-617, 2006.
- [43] A. Silaen and T. Wang, "Simulation of coal gasification inside a two-stage gasifier," *International Pittsburgh Coal Conference*, Pittsburgh, 2005.
- [44] T. Wang, A. Silaen, H. W. Hsu, and M. C. Lo, "Part-load simulations and experiments of a small coal gasifier," *International Pittsburgh Coal Conference*, Pittsburgh, 2006.
- [45] A. Silaen, T. Wang, and C. Center, "Effects of fuel injection angles on performance of a two-stage coal gasifier," *Twenty-Third International Pittsburgh Coal Conference*, Pittsburgh, 2006.
- [46] N. Syred, K. Kurniawan, T. Griffiths, T. Gralton, and R. Ray, "Development of fragmentation models for solid fuel combustion and gasification as subroutines for inclusion in CFD codes," *Fuel*, vol. 86, pp. 2221-2231, 2007.
- [47] G. Perkins and V. Sahajwalla, "Modelling of heat and mass transport phenomena and chemical reaction in underground coal gasification," *Chemical Engineering Research and Design*, vol. 85, pp. 329-343, 2007.
- [48] M. Gräbner, S. Ogriseck, and B. Meyer, "Numerical simulation of coal gasification at circulating fluidised bed conditions," *Fuel*

Processing Technology, vol. 88, pp. 948-958, 2007.

- [49] T. Wang, , A. Silaen, et al. "Effect of slag tap size on gasification performance and heat losses in a quench-type coal gasifier. " *International Pittsburgh Coal Conference*, Johannesburg, 2007.
- [50] T. Wang, A. Silaen, H.-W. Hsu, and C.-H Shen, "Investigation of heat transfer and gasification of two different fuel injectors in an entrained flow gasifier," *International Pittsburgh Coal Conference*, Pittsburgh, 2008.
- [51] Q. W. Wang, P. Liu, S. Xu, and B. Wang, "A parametric study to design an effective spray cooling deployment in an entrained-flow coal gasifier," 2008.
- [52] T. Wang and A. Silaen, "Effects of turbulence and devolatilization models on gasification simulation," *International Pittsburgh Coal Conference*, Pittsburgh, 2008.
- [53] A. Ajilkumar, T. Sundararajan, and U. Shet, "Numerical modeling of a steam-assisted tubular coal gasifier," *Thermal Sciences*, vol. 48, pp. 308-321, 2009.
- [54] A. Silaen and T. Wang, "Comparison of instantaneous, equilibrium, and finite-rate gasification models in an entrained-flow coal gasifier," *International Pittsburgh Coal Conference*, Pittsburgh, 2009.

- [55] 洪孟逸, "挾帶床煤炭氣化之模擬," 國立中山大學機械工程研究所碩士論文, 1993.
- [56] 周可仲, "含觸媒焦炭在氣固流體化床氣化反應的實驗探討," 大同大學化學工程研究所碩士論文, 2001.
- [57] 吳建彤, "氣化燃氣燃燒流場之數值模擬分析," 國立成功大學航空太空工程研究所碩士論文, 2002.
- [58] 楊家瑋, "粉煤氣化之數值模擬分析," 國立成功大學航空太空工程研究所碩士論文, 2003.
- [59] 郭家豪, "粉煤氣化之三維數值模擬分析," 國立成功大學航空太空工程研究所碩士論文, 2005.
- [60] 陳銘宏、吳泰斌、陳柏壯、邱耀平、江滄柳, "Analyses of an entrained-bed coal gasifier using a CFD model coupled with chemical reaction kinetics " *International Pittsburgh Coal Conference*, Pittsburgh, 2011.
- [61] C.-H. Shen, W.-H. Chen, H.-W. Hsu, J.-Y. Sheu, and T.-H. Hsieh, "Co-gasification performance of coal and petroleum coke blends in a pilot-scale pressurized entrained-flow gasifier," *Energy Research*,

vol. 36, pp. 499-508, 2012.

- [62] B. E. Launder and D. B. Spalding, *Lectures in Mathematical Models of Turbulence*, ISBN: 9780124380509, Academic Press Inc, 1972.
- [63] S. A. Morsi and A. J. Alexander, "An investigation of particle trajectories in two-phase flow systems," *Fluid Mechanics*, vol. 55, pp. 193-208, 1972.
- [64] P. Cheng, "Two-dimensional radiating gas flow by a moment method," *American Institute of Aeronautics and Astronautics*, vol. 2, pp. 1662-1664, 1964.
- [65] W. Ranz, "Evaporation from drops: Part I," *Chemical Engineering Progress (CEP) Magazine*, vol. 48, pp. 141-146, 1952.
- [66] H. Kobayashi, J. B. Howard, and A. F. Sarofim, "Coal devolatilization at high temperatures," *Symposium (International) on Combustion*, vol. 16, pp. 411-425, 1977.
- [67] S. W. Du and W. T. Cheng, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, vol. 33, pp. 327-334, 2006.
- [68] S. W. Du and W. T. Cheng, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, vol. 48, pp. 2069-2076, 2007.
- [69] R. J. Kee, F. M. Rupley, and J. A. Miller, *The Chemkin*

Thermodynamic Data Base, 1994.

- [70] CHEMKIN software, "CHEMKIN software 4.1.1 input manual," pp. 13-100, 2007.
- [71] C. K. Westbrook and F. L. Dryer, "Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames," *Combustion Science and Technology*, vol. 27, pp. 31-43, 1981.
- [72] N. M. Marinov, C. K. Westbrook, and W. J. Pik, "Detailed and global chemical kinetics model for hydrogen," *Transport Phenomena in Combustion*, San Francisco, vol. 1, pp. 118-129, 1996.
- [73] A. Gómez-Barea and B. Leckner, "Modeling of biomass gasification in fluidized bed," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 36, pp. 444-509, 2010.
- [74] 財團法人工業技術研究院, "氣化技術開發與淨煤技術發展計畫(第三年度)," 經濟部能源科技研究發展計畫九十七年度執行報告, pp. 18-80, 2009.財團法人工業技術研究院, "氣化技術開發與淨煤技術發展計畫(第三年度)," 經濟部能源科技研究發展計畫九十七年度執行報告, pp. 18-80, 2009.