



Metodyka badań składu ziarnowego próbek węgla do procesu zgazowania

Damian KRAWCZYKOWSKI¹⁾

¹⁾ Dr inż.; AGH Akademia Górniczo-Hutnicza, Kraków, Mickiewicza 30, Poland; email: dkrawcz@agh.edu.pl

Streszczenie

Artykuł dotyczy problemu wyboru właściwej metody pomiaru uziarnienia paliw węglowych przeznaczonych do naziemnego zgazowania w różnych typach reaktorów. Dokonano przeglądu technik pomiarowych wraz z określeniem uwarunkowań do ich stosowania. Uziarnienie węgla przeznaczonych do zgazowania badano w klasach ziarnowych dostosowanych do odpowiednich technologii zgazowania. Wyniki analiz granulometrycznych poddano aproksymacji i ocenie statystycznej. Wykazano możliwości aplikacyjne dla dwóch standardowych metod: analizy sitowej – dla grubo uziarnionych węgla zgazowywanych w reaktorze ze złożem stałym, przesuwnym lub fluidalnym oraz dyfrakcji laserowej – dla drobno uziarnionych węgla zgazowywanych w technologiach z reaktorem strumieniowym.

Słowa kluczowe: analiza uziarnienia, dyfrakcja laserowa, analiza sitowa, zgazowanie węgla

Wstęp

Obecnie stosowane na skalę przemysłową metody naziemnego zgazowania węgla można podzielić na cztery grupy:

- zgazowanie w złożu stałym lub przesuwym,
- zgazowanie w złożu fluidalnym (fluidised bed),
- zgazowanie w reaktorach strumieniowych,
- zgazowanie w reaktorze z ciekłą kąpielą.

Każda z tych metod wymaga indywidualnego przygotowania węgla pod względem uziarnienia. Struktura ziarnowa węgla musi bowiem zapewniać odpowiednią porowatość i dostępność powierzchni złoża by zapewnić łatwy jego kontakt z czynnikiem zgazującym. W literaturze znane są technologie wykorzystujące powyższe metody, co do których określony jest właściwy zakres uziarnienia paliwa węglowego [8, 9, 10, 13]. W tabeli 1 zestawiono stosowane wielkości ziaren złoża w poszczególnych technologiach i metodach zgazowania.

Metody określania składów ziarnowych

Istnieje wiele metod pomiaru wielkości ziaren. Generalnie można je podzielić na metody bezpośrednie – wykorzystujące np. wielkość sitową ziarna, średnicę Martina lub Fereta, oraz metody pośrednie wykorzystujące zjawiska fizyczne i pewne techniki przeliczeniowe – np. pomiar lepkości mętów, dyfrakcja światła w zawiesinie, fotoelektryczne przeszukiwanie przestrzeni, segregacja ziaren w polu odśrodkowym, itp. [1, 5, 6]. Do najczęściej spotykanych metod analiz składu ziarnowego materiałów należą: analiza sitowa, analiza oparta na pomiarze wymiarów cząstek za pomocą dyfrakcji światła laserowego oraz analiza mikroskopowa. Znane są również metody wykorzystujące:

- pomiar lepkości mętów,
- sedymentację ziaren w zawiesinie,
- fotoelektryczne przeszukiwanie przestrzeni,
- pochłanianie ultradźwięków,
- segregację ziaren w polu odśrodkowym,
- pomiar naprężeń w przecie pod wpływem uderzających weń ziaren,
- bezpośredni pomiar ziaren maksymalnych,
- uproszczoną analizę sitową.

Wybór metody pomiarowej do określenia składu ziarnowego materiału uziarnionego zależy od różnych właściwości reprezentującej go próbki, głównie jednak od zakresu wielkości ziaren znajdujących się w badanej próbce. Zakres ten, w inżynierii mineralnej, obejmuje ziarna o wielkości od kilku mikrometrów do kilkudziesięciu a nawet kilkuset milimetrów [11, 12].

Pomiary najczęściej jednak dotyczą wybranych przedziałów wielkości z tego szerokiego zakresu, przy czym najtrudniej zrealizować pomiar wielkości i określenie składu ziarnowego ziaren najmniejszych (mikrometrowych) oraz ziaren największych o rozmiarach rzędu kilkuset milimetrów, w tym drugim przypadku z uwagi na trudności zapewnienia odpowiednio dużej, reprezentatywnej próbki.

Do oceny składu ziarnowego paliwa węglowego wykorzystywanego w procesie naziemnego zgazowania powinno się więc stosować różne metody pomiaru, uwzględniające wymagania dotyczące zakresu uziarnienia paliwa węglowego.

Należy jednak zdawać sobie sprawę, że każda z metod pomiarowych generuje z założenia różną informację o rozkładzie wielkości cząstek. Na wyniki oznaczeń główny wpływ bowiem ma stosowana metoda pomiaru, wykorzystująca różne właściwości

Tab. 1 Uziarnienie węgla do procesu zgazowania

Tab. 1 Particle size distribution of coal prepared to gasification process

METODA	złoże stałe	złoże fluidalne			reaktor strumieniowy				
TECHNOLOGIA	Lurgi/BG	HTW	KRW	U-Gaz	Texaco	Shell	DOW	PREN FLO	VEW
UZIARNIENIE, mm	3-50	6	5	6	0,5	0,1		0,1	0,1

materiałów: np. właściwości geometryczne, gęstość, charakter powierzchni (porowatość) itp. [4]. Problem ujednoczenia wyników analiz składu ziarnowego jest więc jednym z podstawowych zagadnień dla wielu dziedzin techniki, które stosują materiały drobno-uziarnione. Jednym z możliwych sposobów rozwiązania tego problemu jest zastosowanie metod teorii funkcji zmiennych losowych i rozkładów złożonych [3, 16].

Do określenia składu ziarnowego produktów gruboziarnionych np. produktu z kruszarki (+150 mm) można wykorzystać pomiar wahań naprężeń w pręcie będącym czujnikiem urządzenia pomiarowego, powstałych na skutek uderzania w ten pręt ziaren o różnych wielkościach, przy czym im większe ziarno spotyka się z czujnikiem, tym większe wywołuje w nim naprężenie. Elementem mierzącym naprężenia są odpowiednio naklejane na pręcie i zabezpieczone przed zniszczeniem tensometry. Rozkład naprężeń stanowi dane do określenia składu ziarnowego populacji ziaren.

Pomiar składu ziarnowego wykorzystujący proces segregacji ziaren w polu odśrodkowym realizowany jest w spiralnej, poziomo ułożonej rurce o przekroju prostokątnym. Do rurki tej kierowany jest odpowiednio przygotowany strumień zawiesiny o zawartości 20% części stałych i ze stałą szybkością $20 \text{ cm} \cdot \text{sek}^{-1}$. W czasie przepływu mętów przez część spiralną rurki, siła odśrodkowa oddziałująca na ziarna powoduje ich rozklasyfikowanie w przekroju rurki. Ziarna większe przemieszczają się do zewnętrznej ściany spirali, ziarna mniejsze bliżej ściany wewnętrznej. W wyniku tego następuje zmiana gęstości mętów wzdłuż przekroju rurki. Mierząc gęstość wzdłuż przekroju rurki przed jej częścią spiralną (strumień początkowy nierozklasyfikowany) i za częścią spiralną (strumień rozklasyfikowany) w sposób pośredni określa się wielkość ziaren w poszczególnych punktach przekroju poprzecznego strumienia, a następnie skład ziarnowy zawiesiny. Do pomiaru gęstości zastosowano gęstościomierz izotopowy.

Inne mierniki uziarnienia wykorzystują pomiar ziaren maksymalnych w strumieniu przepływającym w przestrzeni pomiędzy zwierającymi się z częstotliwością 120 min^{-1} ramionami szczypiec. Odległość zwarcia szczypiec, odpowiadająca maksymalnemu ziarnu, przetwarzana jest przez system indukcyjno-transformatorowy na sygnał elektryczny proporcjonalny do rozmiaru ziarna. Rozkład wielkości ziaren największych, poz-

wala na wyznaczenie (według odpowiedniej zależności analitycznej) zawartości klasy kontrolowanej. Powyższa zasada działania została wykorzystana w budowie najnowszej generacji granulometrów.

Od dawna prowadzone były prace nad budową granulometru wykorzystującego uproszczoną analizę sitową do określenia składu ziarnowego. Metoda polega na określaniu kolejno mas tego samego zbiornika pomiarowego: pustego, wypełnionego wodą, wypełnionego mierzoną zawiesiną, wypełnionego zawiesiną zawierającą ziarna większe od znajdującego się wewnątrz zbiornika sita, przez które pierwotna zawiesina wypełniająca zbiornik w poprzednim cyklu pomiarowym została przesiana, z usunięciem na zewnątrz urządzenia produktu podsitowego oraz uzupełnieniem wodą zbiornika.

Przy stałej objętości zbiornika i znajdujących się w nim kolejno ważonych objętości wody lub zawiesiny, na podstawie określonych (jak podano wyżej) wielkości mas oraz znajomości gęstości wody i gęstości części stałych zawartych w zawiesinie, określone są zawartości mierzonych klas ziarnowych. Przy zastosowaniu kilku sit lub ich wymianie w urządzeniu można określić skład ziarnowy próbki.

Badania weryfikujące skład ziarnowy próbek węgla przeznaczonego do zgazowania w różnych technologiach

Analizy granulometryczne, weryfikujące składy ziarnowe próbek węgla w zakresie uziarnienia (0–0,5 mm), w wąskich klasach, wykonano przy użyciu laserowego analizatora cząstek, wyposażonego w laser helowo-neonowy, system optyczny, przepływową celę pomiarową dla zawiesin oraz jednostkę dyspergującą.

Zasada pomiaru polegała na dyfrakcji strumienia światła laserowego na mierzonych cząstkach. Strumień światła laserowego prześwietlając celę pomiarową ulega dyfrakcji na cząstkach proporcjonalnie do ich wielkości. W momencie, gdy światło lasera napotyka na populację ziaren, rozkład objętościowy ich wielkości wyrażony jest intensywnością rozkładu rozproszonego na nich światła. Rozproszenie powstaje na krawędziach rozgraniczających dwa media o różnych współczynnikach załamania światła, które to krawędzie są nowym źródłem fali. Dzięki występującej przy tym zjawisku interferencji powstają dyfraktogramy – naprzemianległe jasne i ciemne, kuliste

Tab. 2 Wyniki laserowych analiz dyfrakcyjnych uziarnienia próbek węgla kamiennego
 Tab. 2 Results of laser diffraction analyzes of hard coal samples particle size distribution

(0–0,2mm)			(0,2–0,315 mm)			(0,315–0,5 mm)			(0–50 mm)	
d, mm	unclassified _d	classified	d, mm	unclassified _d	classified	d, mm	unclassified _d	classified	d, mm	unclassified _d
	φ(d), %	φ(d), %		φ(d), %	φ(d), %		φ(d), %	φ(d), %		φ(d), %
0,01	6,64	2,82	0,01	6,33	4,17	0,2	7,30	4,08	1	6,64
0,02	11,29	5,52	0,16	9,85	6,35	0,25	9,69	5,83	2	11,29
0,04	19,28	10,24	0,20	15,95	11,49	0,3	14,49	9,78	4	19,28
0,06	26,49	15,77	0,25	28,44	23,61	0,35	22,54	16,19	6,3	26,49
0,08	33,44	23,49	0,30	43,36	39,4	0,4	31,84	24,59	8	33,44
0,1	40,10	32,77	0,40	68,26	66,91	0,5	53,25	43,34	10	40,1
0,14	52,37	51,74	0,50	83,02	83,08	0,6	71,19	60,02	13	52,37
0,18	63,23	67,55	0,60	91,47	91,95	0,7	83,55	72,89	16	63,23
0,25	79,37	87,3	0,70	96,77	97,14	0,8	91,46	82,54	22	79,37
0,3	89,22	97,78	0,80	100,00	100,00	1	98,66	91,54	28	89,22
0,35	97,07	100,00				1,2	100,00	100,00	35	97,07
0,38	100,00	100,00							45	99,00

pierścieniu. Zgodnie z zasadą dyfrakcji, małe cząstki załamują światło wiązki laserowej pod większymi kątami, a większe cząstki są źródłem mniejszych kątów odchylenia od osi strumienia światła, natomiast natężenie strumienia światła jest proporcjonalne do zawartości (ilości) poszczególnych cząstek. Powstały obraz dyfrakcyjny identyfikowany jest przez układ światłoczułych detektorów, a otrzymywane sygnały są wykorzystywane do obliczenia rozkładu wielkości ziaren. Stosowana jest do tego celu transformacja Fraunhofera, opisująca zjawisko dyfrakcji światła przechodzącego przez siatkę dyfrakcyjną (badaną próbkę), pozwalająca na ścisłe przeliczenie zależności między stałą siatki dyfrakcyjnej, parametrami geometrycznymi układu pomiarowego, długością fali światła a efektem dyfrakcji rejestrowanym w detektorze.

$$d = \frac{1,84 \cdot f \cdot \lambda}{R_0} \quad (1)$$

gdzie:

R_0 – promień pierścieni dyfrakcyjnych,

f – długość ogniskowej obiektywu,

λ – długość fali.

Równanie (1) można zastosować tylko wtedy, gdy analizowane cząstki mają podobną wielkość. W przypadku dwóch różnej wielkości cząstek, dyfraktogramy wpływają na siebie i utrudniają analizę. Potrzebne są dwa powyższe równania określające ich średnice, a dla określenia wzajemnych stosunków objętościowych obydwu klas ziarnowych mierzona jest intensywność światła załamanego w funkcji kąta

załamania. Ilość równań i liczba przypadających na każde równanie elementów jest równa liczbie mierzonych klas ziarnowych. Dają one układ macierzy, których wyznaczenie pozwala określić wielkość cząstek i ich wzajemne stosunki objętościowe. Obliczenia powyższe realizowane są automatycznie przez system obliczeniowy urządzenia pomiarowego.

Wyniki laserowych analiz granulometrycznych wąskich klas ziarnowych pozyskanych z różnych sortymentów handlowych węgla kamiennego (nieklasyfikowany, klasyfikowany), przeznaczonych do badań nad zgazowaniem podano w tabeli 2.

W celu porównania wyników określono i obliczono wartości średnic charakterystycznych (tab. 3) oraz aproksymowano wyniki empiryczne składu ziarnowego dystrybuantą rozkładu normalnego. Wyniki aproksymacji i dopasowania funkcji w postaci parametrów rozkładu σ , m , odchylenia resztkowych S_r , współczynników determinacji R^2 oraz wykresów podano w tabeli 4 i na rysunkach 1÷4.

Przeprowadzone badania sugerują, że wyniki składów ziarnowych wąskich klas ziarnowych uzyskanych metodą laserową, dobrze opisywane są funkcją rozkładu normalnego. Nie różnią się istotnie w sortymentach dla poszczególnych klas ziarnowych.

Potwierdza się również, iż laserowa analiza granulometryczna dostarcza dokładnych informacji o rozkładzie wielkości ziaren w zakresie ziaren drobnych (< 500 μm).

Podsumowanie

Dla metod zgazowania węgla w reaktorach ze złożem stałym, przesuwnym lub fluidalnym można

Tab. 3 Wielkości ziaren charakterystycznych określonych metodą dyfrakcji laserowej w próbkach węgla kamiennego

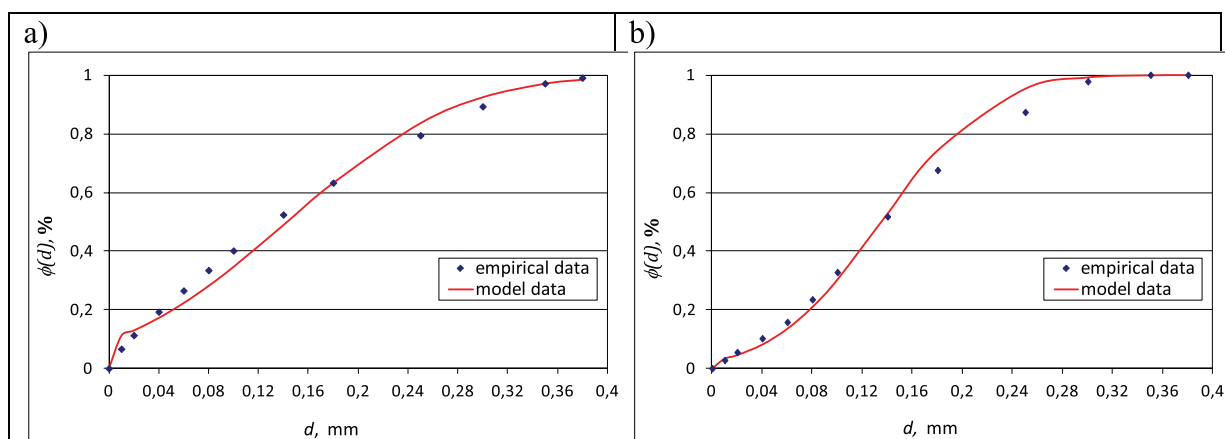
Tab. 3 Sizes of characteristic particles determined by means of laser diffraction method in samples of hard coal

statistical parameters	Laser diffraction analysis						sieve analysis
	(0-0,2mm)		(0,2-0,315mm)		(0,315-0,5 mm)		(0-50 mm)
	unclassified	classified	unclassified	classified	unclassified	classified	classified
d₁₀	0,017	0,039	0,161	0,191	0,255	0,302	1,9
d₅₀	0,132	0,136	0,323	0,334	0,485	0,538	12,2
d₈₀	0,253	0,221	0,473	0,475	0,665	0,771	22,4
d₉₉	0,366	0,314	0,762	0,748	1,021	1,131	45,0
moda	0,305	0,299	0,313	0,321	0,488	0,533	11,9
D[4,3] średnia arytm.	0,147	0,144	0,343	0,355	0,496	0,563	28,3

Tab. 4 Wyniki aproksymacji dystrybuant składu ziarnowego badanych klas ziarnowych węgla

Tab. 4 Results of approximation of particle size distribution functions for researched particle size fractions of coal

statistical parameters	Laser diffraction analysis						sieve analysis
	(0-0,2mm)		(0,2-0,315mm)		(0,315-0,5 mm)		(0-50 mm)
	unclassified	classified	unclassified	unclassified	unclassified	classified	unclassified
σ	0,108	0,067	0,150	0,141	0,242	0,212	11,67
m	0,142	0,135	0,344	0,359	0,507	0,589	14,12
s_r	3,24	3,30	2,27	2,53	3,70	1,85	3,68
R^2	98,23	98,11	98,89	98,34	97,40	99,56	97,61



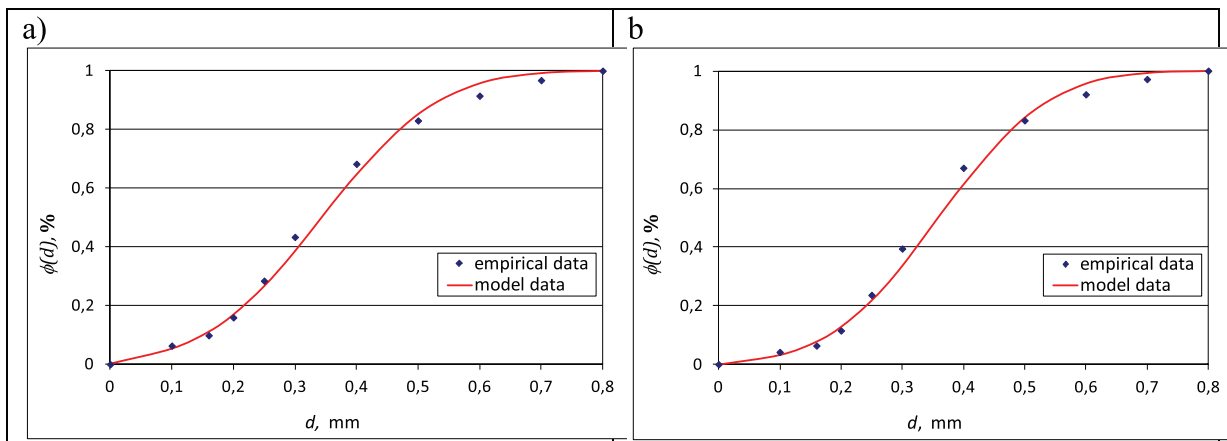
Rys. 1 Wyniki aproksymacji dystrybuantą rozkładu normalnego uziarnienia: a) nieklasyfikowanego i b) klasyfikowanego paliwa w klasie (0-200µm) zmierzonego metodą laserową

Fig. 1 Results of approximation by normal distribution function of particle size distribution of classified and non-classified fuel in fraction (0-200µm) measured by laser method

stosować podstawową metodę określania składu ziarnowego przy użyciu analizy sitowej, natomiast w technologiach z reaktorami strumieniowymi ocenę składu ziarnowego paliwa węglowego należałoby wykonywać metodami pośrednimi np. laserową. Takie też metody zastosowano we wstępnych badaniach weryfikujących składy ziarnowe próbek węgla do procesu zgazowa-

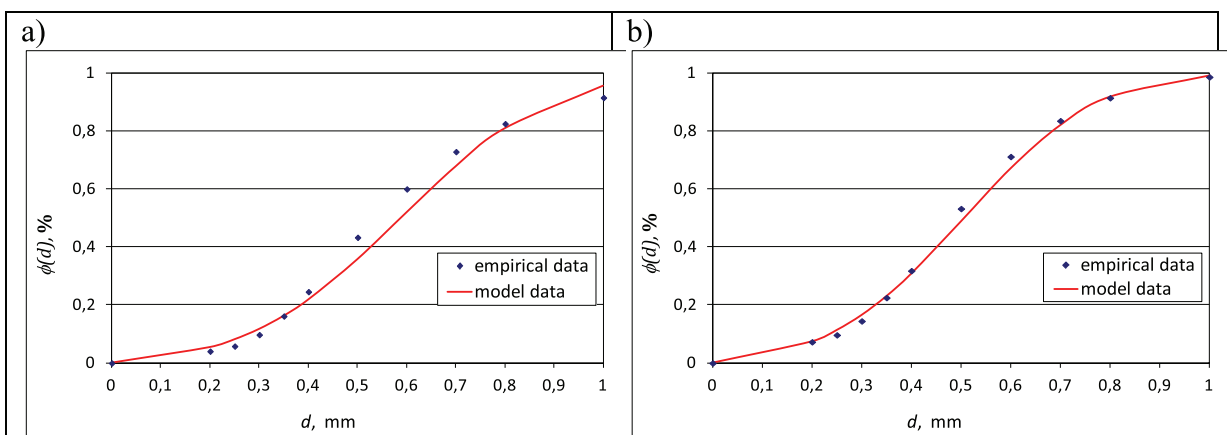
nia wykonanych w Katedrze Inżynierii Środowiska i Przeróbki Surowców w AGH.

Parametry dopasowania danych empirycznych do modelu funkcji opisującej rozkład uziarnienia badanych próbek węgla wskazują na właściwy wybór do tego celu dystrybuanty rozkładu normalnego.



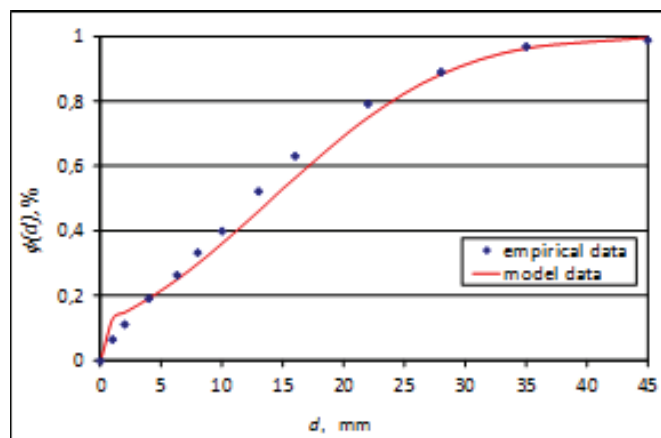
Rys. 2 Wyniki aproksymacji dystrybuantą rozkładu normalnego uziarnienia: a) nieklasyfikowanego i b) klasyfikowanego paliwa w klasie (200–3150 μm) zmierzonego metodą laserową

Fig. 2 Results of approximation by normal distribution function of particle size distribution of classified and non-classified fuel in fraction (200–315 μm) measured by laser method



Rys. 3 Wyniki aproksymacji dystrybuantą rozkładu normalnego uziarnienia: a) nieklasyfikowanego i b) klasyfikowanego paliwa w klasie (315–500 μm) zmierzonego metodą laserową

Fig. 3 Results of approximation by normal distribution function of particle size distribution of classified and non-classified fuel in fraction (315–500 μm) measured by laser method



Rys. 4 Wyniki aproksymacji dystrybuantą rozkładu normalnego uziarnienia paliwa niesortowanego (0–50 mm) zmierzonego metodą analizy sitowej

Fig. 4 Results of approximation by normal distribution function of particle size distribution of classified and non-classified fuel in fraction (0–50mm) measured by laser method

Literatura – References

1. Allen T.: Particle Size Measurement. Chapman & Hall, 1992.
2. Kordek J.: Współczesne podejście do pomiarów granulometrycznych ziaren skrajnie drobnych. Technika i technologia w procesach wzbogacania surowców mineralnych i odpadowych, XXVI Krakowska Konferencja Naukowo-Techniczna Przeróbki Kopalni – Ustroń 1994, Oficyna Wydawnicza Jaxa, Kraków 1994.
3. Tumidajski T., Niedoba T., Peszko B., Gawenda T.: Ogólne zasady ujednolicania wyników analiz składu ziarnowego wykonywanych różnymi metodami – Górnictwo i Geoinżynieria, zeszyt 2/1, Wydawnictwa AGH, pp. 159-167, Kraków 2004.
4. PESZKO B., SZYMAŃSKA-CZAJA M., FOSZCZ D.: The dependence of the size distribution on the granulometric method of analysis. 5th Conference on Environment and mineral processing, Ostrava 2000, s. 837–845.
5. TRYBALSKI K., KĘDZIOR A., KRAWCZYKOWSKI D.: Urządzenia i metody pomiarowe uzziarnienia w polskich zakładach przeróbki rud metali nieżelaznych. UWN-D AGH Górnictwo i Geoinżynieria 2004, z. 2/1 s. 125–146.
6. MĄCZKA W., TRYBALSKI K.: Kontrola procesów technologicznych cz. V, skrypt uczelniany AGH, nr 836, Kraków 1981.
7. Kongas M., Saloheimo K. – On-Stream Particle Size Analysis – 2003.
8. HUANG Y., JIN B., ZHONG Z., XIAO R., ZHO H.: Effect of operating conditions on gas components in the partial coal gasification with air/steam. Korean J. Chem. Eng., 24(4), 2007, s. 698–705.
9. COLLOT A.-G.: Matching gasification technologies to coal properties. International Journal of Coal Geology 65, 2006, 191–212
10. VAN DYK J.C., KEYSER M.J., VAN ZYL J.W.: Suitability of feedstocks for the Sasol–Lurgi fixed bed dry bottom gasification process. Gasification Technologies Conference. Gasification Technologies Council, Arlington, VA, USA. 2001, paper 10–8.
11. Naito M., Hayakawa K., Nakahira K., Mori H., Tsubaki J.: Effect of particle shape on the particle size distribution measured with commercial equipment, Powder Technology 100, 1998, pp. 52–60.
12. Xu R., Andreina Di Guida O.: Comparison of sizing small particles using different technologies, Powder Technology 132, 2003, pp. 145–153.
13. Lapčík V., Lapčíková M., Hanslík A., Jež J., 2014 – Possibilities of Gasification and Pyrolysis Technology in Branch of Energy Recovery from Waste. Journal of the Polish Mineral Engineering Society, No 1(33), p. 149–154
14. T. NIEDOBA, A. SUROWIAK, P. PIĘTA, 2016 – Zastosowanie analizy wariancji do porównania charakterystyk różnego typu węgla kamiennych, Inżynieria Mineralna z. 1(37), Wyd. Polskiego Towarzystwa Przeróbki Kopalni, Kraków, s. 15–22.

Methodology of Investigating Particle Size Distribution of Coal Samples Prepared for Gasification Process

The paper concerns the problem of selection of a proper method of measuring coal fuels particle size distribution prepared for ground gasification in various types of reactors. The review of measuring techniques was done together with determining conditions to their application. The coal particle size distribution destined to gasification process was examined in particle size fractions adapted to appropriate gasification technologies. The results of granulometric analyzes were then approximated and evaluated statistically. The application possibilities were found for two standard methods: sieve analysis – for coarse particles of coal being gasified in solid, moving or fluidized bed reactor and laser diffraction – for fine particles of coal being gasified in technologies based on stream reactor.

Keywords: particle size analysis, laser diffraction, sieve analysis, coal gasification