



## WSTĘPNA OCENA MOŻLIWOŚCI WYKORZYSTANIA WĘGLA BRUNATNEGO ZE ZŁOŻA GUBIN W PROCESIE ZGAZOWANIA

### PRELIMINARY ASSESSMENT OF THE USEFULNESS OF THE LIGNITE FROM GUBIN DEPOSIT IN THE GASIFICATION PROCESS

BARBARA BIELOWICZ<sup>1</sup>

**Abstrakt.** W artykule zaprezentowano możliwość użytkowania węgla brunatnego ze złoża Gubin w głównych typach gazogeneratorów: ze złożem stałym lub przesuwnym (*moving bed*), ze złożem fluidalnym (*fluidised bed*) i dyspersyjnych (przepływowe, strumieniowe) (*entrained flow*). Zbadano istotne w procesie zgazowania parametry węgla, takie jak: całkowita wilgotność, popielność, całkowita zawartość siarki, zawartość węgla i temperatura topnienia popiołu. Wyniki porównano z wymaganiami dla poszczególnych technologii zgazowania. Badany węgiel nie spełnia kryterium maksymalnej wilgotności, w związku z tym aby mógł być użytkowany w zgazowaniu, konieczne jest jego podsuszenie. Węgiel ze złoża Gubin spełnia kryterium maksymalnej popielności i minimalnej temperatury topnienia określone dla zgazowania ze złożem fluidalnym. Z przeprowadzonej wstępnej analizy jakości węgla brunatnego ze złoża Gubin wynika, że może być on wykorzystywany do zgazowania naziemnym w gazogeneratorze fluidalnym.

**Słowa kluczowe:** zgazowanie węgla brunatnego, jakość technologiczna węgla, złożo Gubin.

**Abstract.** The paper presents the possibility of using lignite from the Gubin deposit in the major types of gasification, including moving bed, fluidised bed and dispersion (*entrained flow*). Important parameters in the coal gasification process, such as total moisture, ash content, total sulfur content, carbon content and ash melting point, were studied. The results were compared with the requirements for each gasification technology. The coal does not meet the criterion of the maximum moisture content and – in order to be used in the gasification process – its drying is necessary. Lignite from the Gubin deposit meets the criteria of the maximum ash content and minimum melting temperature, specified for the fluidized bed gasification. A preliminary analysis of the quality of coal from the Gubin deposit suggests that it can be used in a ground-based gasification process using fluidized bed.

**Key words:** lignite gasification, coal quality, Gubin deposit.

## WSTĘP

Zgazowanie w naziemnych reaktorach jest kluczową technologią do produkcji energii z węgla, przy jednoczesnym ograniczaniu szkodliwego oddziaływania na środowisko naturalne. Wszechstronność i elastyczność form zgazowania umożliwia wytwarzanie w tym procesie szerokiej gamy pro-

duktów, do których należy zaliczyć głównie paliwa płynne, chemikalia, paliwa gazowe, a także wiele innych (Dreszer, Więclaw-Solny, 2007; Richter, 2001; Hycnar, 2007).

W porównaniu z konwencjonalnym spalaniem, jest to technologia mająca pozytywny wpływ na środowisko ze

<sup>1</sup> Akademia Górniczo-Hutnicza im S. Staszica w Krakowie, Wydział Górnictwa i Geoinżynierii, al. Mickiewicza 30, 30-059 Kraków; e-mail: bielowicz\_barbara@tlen.pl

względu na możliwość przechwytywania CO<sub>2</sub> podczas procesu zgazowania. Usunięcie CO<sub>2</sub> pozwala otrzymać gaz, który w wyniku spalania emituje o wiele mniej szkodliwych substancji niż przy spalaniu węgla w sposób tradycyjny. W procesie tym aż 99% siarki i innych szkodliwych substancji może być usunięte i przetworzone do celów gospodarczych (Coal Utilization..., 2006). Dlatego najnowsze „czyste” technologie węglowe w głównej mierze opierają się na różnych formach zgazowania. Obecnie na świecie działa około 200 instalacji zgazowania węgla, 17 jest w budowie, a 50 jest planowane (U.S. Department of Energy, 2010).

Węgiel brunatny jest głównym surowcem wykorzystywanym w procesie zgazowania. Według prognoz amerykań-

skich, także w najbliższych latach zachowa on dominującą pozycję (*op. cit.*).

Reaktory do zgazowania węgla można podzielić na trzy grupy (King, 1981; Collot, 2006; Higman, van der Burgt, 2008): reaktory ze złożem stałym lub przesuwным (*moving bed*), reaktory ze złożem fluidalnym (*fluidised bed*) i reaktory dyspersyjne (przepływowe, strumieniowe) (*entrained flow*).

Głównym celem pracy było zbadanie możliwości użytkowania węgla brunatnego ze złoża Gubin w różnych typach gazogeneratorów z uwzględnieniem istotnych w procesie zgazowania parametrów węgla brunatnego.

## METODYKA BADAŃ

W pracy wykorzystano dane z 85 próbek węgla brunatnego pobranych z 10 otworów wiertniczych zlokalizowanych w złożu Gubin.

Złoże węgla brunatnego Gubin jest położone w północnej części monokliny przedsudeckiej i południowo-zachodniej części niecki szczecińskiej. Wchodzi ono w skład kompleksu złóż gubińskich: Gubin–Zasieki–Brody i Lubsko i zalicza się je do stratyfikowanych złóż kratonicznych. Jest to złożo wielopokładowe, w którego skład wchodzi dwie produktywnie wiązki pokładów węgla: II-łużycka i IV-dąbrowska. Lokalnie występuje tu także III-ścinawska grupa pokładów. Wiązka pokładów II-łużycka jest wykształcona w postaci prostego lub złożonego z 2–3 ławic pokładu o miąższości od 0,3 do 10,8 m i całkowitej miąższości od 4,0 do 17,4 m (Kasiński i in., 2008; Wagner i in., 2009).

Wiązka IV-dąbrowska w złożu Gubin jest wykształcona także w postaci prostego pokładu, który tylko lokalnie ulega rozszczepieniu. Miąższość tego pokładu wynosi od 20,5 do 21,2 m (*op. cit.*).

Próbki węgla pobierano z 1,5–3,0-metrowych odcinków rdzeni metodą bruzdową. Analizowano zawartość wilgoci całkowitej, popielność, zawartość siarki całkowitej, zawartość pierwiastka C w węglu, temperaturę topliwości popiołu oraz skład petrograficzny. Zmienny interwał opróbowania był uzależniony od występowania i grubości przerostów mineralnych: zgodnie z obecnie stosowanymi kryteriami dokumentacyjnymi, nie pobierano próbek geologicznych z przerostów o grubości większej lub równej 1,5 m.

Wszystkie analizy chemiczne i technologiczne zostały wykonane według aktualnych Polskich Norm.

## CZYNNIKI ISTOTNE W PROCESIE ZGAZOWANIA A JAKOŚĆ WĘGLA BRUNATNEGO ZE ZŁOŻA GUBIN

Na proces zgazowania węgla ma wpływ wiele czynników. Do podstawowych, oprócz parametrów samej instalacji zgazowującej, należą właściwości technologiczne, petrograficzne i chemiczne surowca poddawanego zgazowaniu. Na wybór zastosowanej technologii ma wpływ w głównej mierze jakość węgla, określona takim parametrami jak: maksymalna popielność, maksymalna wilgotność paliwa, temperatura topnienia popiołu, stopień uwęglenia oraz reaktywność (*tab. 1*). Ze względu na stopień uwęglenia i reaktywność paliwa można stwierdzić, że węgiel brunatny może być użytkowany we wszystkich typach reaktorów. Ograniczeniem w bezpośrednim zastosowaniu węgla brunatnego ze złoża Gubin może być maksymalna wilgotność, która średnio wynosi 52% (*tab. 2*), a powinna być niższa od 35 lub 5% w zależności od typu gazogeneratora. Całkowita wilgotność węgla jest istotna z tego względu, że jej zbyt duża wartość wpływa na zmniejszenie wartości opałowej

wytworzonego gazu wskutek utraty energii na ogrzanie i odparowanie nadmiaru wody. Do instalacji ze złożem stałym wystarczy podsuszyć paliwo do zawartości 35%, a w przypadku zgazowania ze złożem fluidalnym i dyspersyjnym konieczne jest praktycznie całkowite wysuszenie węgla.

Stopień uwęglenia paliwa ma decydującą rolę w procesie zgazowania, gdyż determinuje zawartość tlenu i wodoru, co ma wpływ na wydajność gazogeneratora (Liu, Niksa, 2004). Zawartość węgla pierwiastkowego w badanym węglu brunatnym w stanie suchym i bezpopiołowym C<sup>daf</sup> wynosi średnio 65,5%. Jednak, jak wynika z wielu badań, najważniejszym parametrem w procesie zgazowania wydaje się być reaktywność węgla, która w procesie zgazowania określa prędkość reakcji węgla z czynnikiem zgazowującym i decyduje o sprawności procesu (Smoliński i in., 2006). Nie została jeszcze opracowana uniwersalna metoda oznaczania tego parametru. Według wielu badaczy na parametr ten mają

**Tabela 1****Charakterystyki reaktorów zgazowania (Higman, van der Burgt, 2008, uzupełnione)**

The characteristics of gasifiers (after Higman, van der Burgt, 2008, supplemented)

Typ reaktora	Zgazowanie ze złożem stałym	Zgazowanie ze złożem fluidalnym	Zgazowanie dyspersyjne
Typowe konstrukcje	Lurgi	Winkler, HTW, KBR, CFB, HRL, KRW, U-Gas	KT, Shell, GEE, E-Gas, Siemens, MHI, PWR
Wymogi dla paliwa			
Preferowane paliwo	węgiel brunatny, węgiel kamienny, antracyt, odpady	węgiel brunatny, węgiel kamienny, antracyt, odpady	węgiel brunatny, węgiel kamienny, antracyt, koks naftowy
Rozmiar cząstki	6–50 mm	6–10 mm	<100 $\mu\text{m}$
Maksymalna popielność [%]	<25 (preferowana)	nielimitowana	<25 (preferowana)
Maksymalna wilgoć całkowita [%]	<35	<5	<5
Temperatura topnienia popiołu [°C]	>1200	>1100	<1300
Preferowany stopień uwęglenia	każdy	niski	każdy
Reaktywność	niska	wysoka	wysoka
Charakterystyka procesowa			
Temperatura wylotowa gazu	niska (400–650°C)	Średnia (900–1050°C)	wysoka (1250–1600°C)
Zapotrzebowanie na utleniacz	niskie	średnie	wysokie
Ciśnienie zgazowania [bar]	30	1	<50
Zapotrzebowanie na parę	niskie	średnie	wysokie
Moc jednostkowa [MWth]	10–350	100–700	90–700
Inne cechy	ciekle węglowodory w gazie	niska konwersja węgla	wysoka konwersja węgla

**Table 2****Właściwości chemiczno-technologiczne węgla brunatnego ze złoża Gubin**

Chemical and technological properties of the lignite from Gubin deposit

Zmienna	Średnia	Minimum	Maksimum	Odchylenie standardowe	Współczynnik zmienności
Całkowita wilgotność $W_t^t$ [%]	52,0	36,4	58,1	4,68	8,99
Popielność $A^d$ [%]	19,2	5,3	68,7	13,67	71,369
Całkowita zawartość siarki $S_t^d$ [%]	2,83	0,36	7,60	1,83	64,529
Zawartość węgla $C^{daf}$ [%]	65,5	48,7	71,6	4,9	7,48
Temperatura topnienia popiołu $t_B$ [°C]	1295	1090	>1500	86,96	6,71

wpływ różne właściwości węgla. Zdaniem niektórych z nich jest to głównie skład petrograficzny i rozmiar cząstek (Sli-gar, 1998). Duże znaczenie w procesie zgazowania ma skład petrograficzny węgla, ponieważ różne macerały charakteryzują się różną reaktywnością. Najwyższą reaktywnością cechują się macerały grupy wityrynytu/huminitu, a następnie lip-tynitu. Najmniej reaktywne są macerały z grupy inertynitu, ale ich zgazowanie rozpoczyna się w wyższych temperatu-rach, przez co wydłuża się czas procesu. Jako węgiel brunatny przydatny do zgazowania uznano węgiel, który ma co najmniej 80% zawartości macerałów grupy huminitu w stanie bezmineralnym ( $H^{mmf}$ ) i maksymalnie 20% zawartości macerałów grupy inertynitu w stanie bezmineralnym ( $I^{mmf}$ ) (Bielowicz, 2012). W badanym węglu zawartość macerałów grupy huminitu jest powyżej 90%, a grupy inertynitu nie przekracza 5%.

Popielność węgla ma znaczący wpływ na przebieg zga-zowania, gdyż duża zawartość substancji mineralnej powoduje spadek sprawności instalacji (van Dyk i in., 2001). Do-puszczalna zawartość substancji mineralnej w węglu jest więc uzależniona od technologii zgazowania (tab. 1). Węgiel ze złoża Gubin cechuje się dużą zmiennością popielności w stanie suchym, która waha się od 5,3 do 68,7%, a średnio

wynosi 19,2% (tab. 2). Węgiel o takiej popielności może być wykorzystany w gazogeneratorach ze złożem fluidalnym.

Istotnym parametrem jest temperatura topnienia popiołu, która określa zastosowaną technologię (tab. 1) (van Dyk i in., 2001; Higman, van der Burgt, 2008). Popiół z węgla ze złoża Gubin ma temperaturę topnienia w zakresie od 1090 do powyżej 1500°C. Takie wartości temperatury determi-nują możliwość użytkowania węgla z tego złoża jedynie w gazogeneratorach fluidalnych.

W procesie zgazowania niekorzystna jest też wysoka za-wartość siarki (Hanak, 1993). Na przebieg procesu może mieć wpływ zawartość i forma tego pierwiastka. Jeżeli wy-stępuje on w pirycie, to w czasie reakcji działa jako kataliza-tor, natomiast siarka organiczna spowalnia proces konwersji (Yarżab i in., 1980). Analizowany węgiel zawiera od 0,36 do 7,60% całkowitej siarki przeliczonej na stan suchy (tab. 2). Należy jednak zaznaczyć, że wysoka zawartość siarki w nie-kórych próbkach węgla nie wpływa na możliwość jego za-stosowania w procesie zgazowania, który jest jedną z naj-czystszych technologii wykorzystujących węgiel, poprzez stosowanie filtrów wychwytyjących niebezpieczne sub-stancje i pracę w obiegu zamkniętym (Clarke, 1993; Sloss, Davidson, 2001).

## PODSUMOWANIE

Z przeprowadzonej wstępnej analizy jakości węgla brunatnego ze złoża Gubin wynika, że może być on wykorzy-stywany w zgazowaniu naziemnym. Parametry technologiczne badanego surowca spełniają kryteria użytkowania go w procesie zgazowania ze złożem fluidalnym pod względem dopuszczalnej popielności, maksymalnej temperatury top-nienia popiołu i reaktywności. Wymagane jest jednak w tym przypadku podsuszenie węgla do zawartości wilgoci 5%. Należy zaznaczyć, że jest możliwe dostosowanie projekto-wanej instalacji do paliwa, które ma być w niej użytkowane. Dlatego też niezbędne są dalsze szczegółowe badania tech-nologiczne węgla brunatnego ze złoża Gubin, uwzględnia-jące wymagania techniczne konkretnych gazogeneratorów.

*Pracę wykonano w ramach Zadania Badawczego nr 3 pt. „Opracowanie technologii zgazowania węgla dla wyso-koefektywnej produkcji paliw i energii elektrycznej” – Cz. T. B. 1.5.3 „Weryfikacja kryterialna bazy surowcowej węgla brunatnego dla potrzeb zgazowania naziemnego i podziem-nego z uwzględnieniem gospodarki złożem oraz wytypowa-niem rejonu do projektu technologicznego instalacji piloto-wej” finansowanego przez Narodowe Centrum Badań i Roz-woju w ramach strategicznego programu badań naukowych i prac rozwojowych pt. „Zaawansowane technologie pozy-skiwania energii”.*

## LITERATURA

- BIELOWICZ B., 2012 — A new technological classification of low-rank coal on the basis of Polish deposits. *Fuel*, **96**: 497–510.
- CLARKE L.B., 1993 — The fate of trace elements during coal combustion and gasification: an overview. *Fuel*, **72**: 731–736.
- COAL Utilization Research Council, 2006 — Clean coal fact sheets. <http://www.coal.org>.
- COLLOT A.G., 2006 — Matching gasification technologies to coal properties. *Inter. J. Coal Geol.*, **65**: 191–212.
- DRESZER K., WIĘCŁAW-SOLNY L., 2007 — Produkcja paliw silnikowych z węgla poprzez zgazowanie i syntezę Fischer-Tropscha. *Polityka Energetyczna*, **10**, 2: 187–202.
- HANAK B., 1993 — Zróżnicowanie petrograficzne i chemiczno-technologiczne węgla płomienno-gazowego typu 31 z warstw łazi-skich i libiąskich Górnośląskiego Zagłębia Węglowego i jego znaczenie praktyczne. *Zesz. Nauk. Pol. Śl. S. Górn.*, **212**.
- HIGMAN C., van der BURGT M., 2008 — Gasification. Second edition, Elsevier.
- HYCNAR J.J., 2007 — Aspekty ekologiczne procesu zgazowania paliw. *Polityka Energetyczna*, **10**, 2: 177–187.
- KASIŃSKI J., SATERNUS A., URBĄŃSKI P., 2008 — Łużycko-lubuski masyw złóż węgla brunatnego i jego znaczenie gospodarcze. *Biul. Państw. Inst. Geol.*, **429**: 59–68.
- KING W.H., 1981 — Coal gasification. *Fuel*, **60**: 809–816.

- LIU G.S., NIKSA S., 2004 — Coal conversion submodels for design applications at elevated pressures. Part II. Char gasification. *Progress in Energy and Combustion Science*, **30**: 679–717.
- RICHTER N., 2001 — Introduction to gasification. Gasification Technologies Public Policy Workshop held in Washington, DC, 1st October 2001.
- SLIGAR J., 1998 — The Hardgrove Grindability Index, ACARP Report I. No. 5, February 1998. <http://www.acarp.com.au/Newsletters/hgi.html>.
- SLOSS L.L., DAVIDSON R.M., 2001 — Partitioning of potentially hazardous trace elements in coal combustion. Proc. 18th Ann. Pittsburg Coal Conference, December 4–7, Pittsburgh: 2195–2212.
- SMOLIŃSKI A., HOWANIEC N., STAŃCZYK K., 2006 — Metody badania reaktywności węgla w procesach spalania i zgazowania. *Pr. Nauk. GIG, Górn. i Środ.*, **4/2006**: 77–92.
- U.S. Department of Energy, 2010. <http://fossil.energy.gov/programs/powersystems/gasification/>.
- van DYK J.C., KEYSER M.J., van ZYL J.W., 2001 — Suitability of feedstocks for the Sasol-Lurgi fixed bed dry bottom gasification process. Gasification Technologies Conference, Gasification Technologies Council, Arlington, VA, USA, Paper 10–8.7: 123–127.
- WAGNER M., MISIAK J., BIELOWICZ B., 2009 — Złoże węgla brunatnego Gubin. Prace statutowe KGZiG, Arch. AGH, Kraków.
- YARZAB R.F., GIVEN P.H., SPACKMAN W., DAVIS A., 1980 — Dependence of coal liquefaction behaviour on coal characteristics. 4. Cluster analysis for characteristics of 104 coals. *Fuel*, **59**: 81–92.

## SUMMARY

The paper presents the possibility of use of lignite from Gubin deposit in the three main gasifier types: moving bed, fluidized bed and entrained flow. The study used data from 85 coal samples from 10 boreholes. The coal gasification process is influenced by many factors. Main factors – in addition to the parameters of the gasifier – include technological, petrographic and chemical properties of the lignite undergoing gasification. The choice of the applied technology is dependent mainly on the quality of coal, determined by such parameters as total moisture, ash content, total sulfur content, carbon content and ash melting point (Table 1).

A limitation in the direct use of brown coal from Gubin deposit is the maximum moisture content, which on average is 52% (Table 2), while it should be less than 35 or 5% depending on the type of gasifier.

Carbon content in the tested samples of brown coal (recalculated to dry and ash-free basis C<sub>daf</sub>) is – on average – about 65,5%. Another important factor in the process of gasification of coal is the petrographic composition of coal, because various macerals are characterized by varying reactivity. The brown coal suitable for gasification of coal should include at least 80% of the macerals from huminite group (mineral matter free basis, H<sub>mmf</sub>) and up to 20% of the

macerals from inertinite group (mineral matter free basis) (Bielowicz, 2012). Within the studied coal, the content of macerals from huminite group is above 90% while the inertinite group does not exceed 5%.

Maximum ash content in coal depends on coal gasification technology (Table 1). Coal from the Gubin deposit is characterized by relatively high variability in ash content on a dry basis, which ranges from 5.3 to 68.7% while the average is 19.2% (Table 2). Such ash content can be used in a fluidized bed gasifiers.

An important parameter is the ash melting point, which determines the technology used (Table 1) (van Dyk *et al.*, 2001; Higman, van der Burgt, 2008). The ash from the coal from the Gubin deposit is characterized by melting temperatures in the range from 1090 to above 1500°C. Such temperatures limit the possibility of use of coal from this deposit only to fluidized bed gasifiers.

An initial analysis of the quality of coal from the Gubin deposit suggests that this coal can be used in gasification plants. Technological parameters of the tested material meets the criteria for its use in the fluidized-bed gasification. However, the drying of coal to a moisture content of 5% is required.