

CHARAKTER PETROGRAFICZNY WĘGLA BRUNATNEGO ZE ZŁOŻA TURÓW PRZEZNACZONEGO DO ZGAZOWANIA OTWOROWEGO W INSTALACJI DOŚWIADCZALNEJ *EX SITU*

THE PETROGRAPHIC STRUCTURE OF THE LIGNITE SEAM FROM THE TURÓW DEPOSIT SUBJECTED TO GASIFICATION PROCESS IN THE *EX SITU* PILOT PLANT

Barbara Bielowicz - Wydział Geologii, Geofizyki i Ochrony Środowiska,
AGH Akademia Górniczo-Hutnicza w Krakowie

Za pomocą badań petrograficznych scharakteryzowano budowę pokładu węgla brunatnego ze złoża Turów poddanego procesowi zgazowania w doświadczalnej instalacji ex situ w Kopalni Doświadczalnej „Barbara” w Mikołowie. Reaktor powierzchniowy ex situ pozwala na symulowane warunków podziemnego zgazowania węgla. Pokład poddany zgazowaniu to głównie węgiel ksylo-detritowy oraz węgiel bitumiczny. Analiza chemiczno-technologiczna wykazała, że pokład ma dobre własności technologiczne. Ogólnie profilowany pokład wykazuje dużą przydatność do produkcji gazu syntezowego, co potwierdzają wyniki uzyskane w trakcie próby zgazowania w reaktorze ex situ.

Słowa kluczowe: podziemne zgazowanie węgla, węgiel brunatny, petrografia węgla, litotyp

Petrographic studies were carried out to characterize the structure of the lignite seam from the Turów deposit, which was subjected to gasification process in the ex situ pilot plant in the „Barbara” experimental lignite mine in Mikołów. The surface (ex situ) reactor allows simulating the conditions of underground coal gasification. The gasified seam is composed mainly of xylodetritic coal and sapropelic coal. The chemical and technological analysis has shown that the discussed seam has good technological properties. Generally, the profiled seam shows high suitability for the production of synthesis gas, which is confirmed by the results obtained during the experimental gasification in the ex situ reactor.

Keywords: bituminous coal, USCB, bulk density, homogeneity, multiple range test

Wprowadzenie

Pomimo faktu, że badania własności technologicznych węgla brunatnego mają w Polsce swoją długą historię, potrzeba chwili wymaga nowego spojrzenia na zagadnienie jakości węgla, przede wszystkim pod kątem jego przydatności w procesach zgazowania. Zgazowanie węgla prowadzone jest w celu uzyskania gazu syntezowego, wykorzystywanego do spalania jako substytut gazu ziemnego lub do syntezy paliw ciekłych metodą Fischera-Tropscha. Zgazowanie może być prowadzone w gazogeneratorach naziemnych jak i pokład można zgazować podziemnie *in-situ* (Underground Coal Gasification – UCG). Na proces zgazowania węgla ma wpływ wiele czynników. Do podstawowych, oprócz parametrów samej instalacji zgazowującej, należą właściwości technologiczne, petrograficzne i chemiczne surowca poddawanego zgazowaniu. Pojęcie UCG zostało opracowane w Wielkiej Brytanii w 1868 roku przez William Siemensa, który po raz pierwszy zaproponował podziemne zgazowanie odpadów i węgla w kopalni. Rosyjski

chemik Dmitrij Mendelejew w ciągu najbliższych kilkudziesięciu lat dalej rozwijał ideę Siemensa. Pierwsze prace doświadczalne nad UCG rozpoczęły się w 1912. Od tego czasu wyrosła liczba kluczowych badań, które zostały przeprowadzone w wielu częściach świata i które prowadzą do rozwoju nowoczesnych technologii UCG. Przez pewien czas nie było zainteresowań i badań nad UCG ze względu na odkrycie taniego gazu ziemnego. Teraz jednak, gdy zapotrzebowanie na energię, która cechuje się niższą emisją zanieczyszczeń, bezpieczeństwem dostaw i w kontekście wyczerpujących się rezerw ropy naftowej i gazu ziemnego, UCG ponownie stało się przedmiotem zainteresowania i badań.

Głównie próby nad UCG były prowadzone w Australii, ale także budowane są instalacje w takich krajach jak Nowa Zelandia, RPA, Chiny, USA, Hiszpania, Indie, Indonezja, Wietnam, Pakistan i Wielka Brytania. Tempo nowych projektów stale rośnie i obejmuje projekty komercyjne, na szeroką skalę zarówno dla węgla kamiennego jak i brunatnego. Kryteria jakie muszą być spełnione, aby złoża węgla mogło zostać zgazowane podziemnie obejmują zarówno kryteria technologiczne jak i

geologiczne. Kryteria te były przedmiotem szeregu zagranicznych [1-4] jak i krajowych prac [5-8]. Jednak należy zaznaczyć, że wyznaczone przez innych badaczy kryteria miejsca budowy instalacji są ściśle związane z dostępnością i lokalizacją złóż, która determinuje budowę geologiczną. Na możliwość stosowania UCG wpływa także charakter węgla, a w szczególności jego stopień uwęglenia i reaktywność, wraz z popielnością, wilgocą, zawartością siarki i metanu.

Należy jednak mieć na uwadze, że węgiel to mieszanina uwęglonej substancji organicznej reprezentowanej przez macerały i substancji mineralnej. Zdaniem Zhuo i in. [9], zasadniczy wpływ na przebieg procesu zgazowania ma skład petrograficzny węgla. Jest to związane z faktem, że różne macerały charakteryzują się różną reaktywnością. Najwyższą reaktywnością cechują się macerały grupy witrinitu/huminitu, a następnie liptynitu. Najmniej reaktywne są macerały z grupy inertynitu, ale ich zgazowanie rozpoczyna się w wyższych temperaturach, przez co wydłuża się czas tego procesu.

W ramach instalacji doświadczalnej *ex situ* do prowadzenia procesu podziemnego zgazowania węgla w warunkach naziemnych w Kopalni Doświadczalnej GIG „Barbara” w Mikołowie została zgazowana próba węgla brunatnego ze złoża Turów. Próba została wykonana w ramach projektu „Opracowanie technologii zagazowania węgla dla wysoko efektywnej produkcji paliw i energii elektrycznej” przez GIG w Katowicach.

Badania prowadzone były z wykorzystaniem instalacji doświadczalnej *ex situ* do prowadzenia procesu UCG w warunkach naziemnych. Instalacja ta, to instalacja bezciśnieniowa o maksymalnej długości złoża 7,0 m. Konstrukcje wykorzystanych urządzeń dają możliwość uzyskania zbliżonych warunków geologicznych otoczenia reaktora podziemnego, zarówno w odniesieniu do pokładu węgla jak i warstw otaczających oraz wyposażone są w niezbędną infrastrukturę techniczną do prowadzenia procesu zgazowania [10].

Przed procesem zgazowania została wykonana szczegółowa charakterystyka mpetrograficzna węgla.

Metodyka badań

Próby węgla brunatnego poddane zgazowaniu zostały pobrane ze złoża Turów na poziomie + 41 m n.p.m. po lewej stronie przenośnika C – 12.4. Złoże Turów jest złożem orogenicznym zapadliskowym położonym w obrębie niecki żytawskiej. Trzeciorzędowa formacja osadowa wypełniająca Nieckę Żytawską składa się ze skał gruboklastycznych, drobnoklastycznych-ilastych i węgla brunatnego [11].

Z pobranych prób wycięto duże bloczki węglowe w kształcie prostopadłościanu o wymiarach boku 80x80 cm możliwie jak najdłuższych. W każdym z tych bloczków na dolnej płaszczyźnie wycięto kanał ogniowy o przekroju 10*10 cm. Pobrano też materiał do badań chemiczno-technologicznych i sprofilowano. Przycięte próby zostały ułożone w reaktorze (rys. 1). Na podstawie profilowania ustalono litotypy węgla dostarczonych prób.

Litologię humusowego węgla brunatnego miękkiego opisało za pomocą schematu zaproponowanego przez Kwiecińską i Wagnera [12]. Wyróżniono węgiel ksylitowy, ksyloedetrytowy, detro-ksylitowy, detrytowy oraz fuzynowy.

Węgiel ksylitowy, detrytowy i fuzynowy to litotypy jednoodrodne, a ksylo-detrytowy, detroksylitowy to litotypy złożone. Węgiel brunatny miękki (lignite) rozróżniamy przeważnie na podstawie brunatnej barwy, dość słabej zwięzłości, a w przypadku występowania ksyliatów - na ich podobieństwie do współczesnego drewna. Trudności mogą sprawić odmiany żżelifikowane (w skrajnym przypadku - węgiel żelitowy) o brunatno-czarnej lub czarnej barwie, połysku smołowym i przełamie nierównym muszlowym.

W brunatnym węglu bitumicznym wydzielono: węgiel półbitumiczny i bitumiczny, o barwie żółtej [13].

Próba węgla umieszczona w reaktorze miał wysokość 70 cm, szerokość 80 cm i długość 6,7 m.



Rys. 1. Ułożenie bloków w reaktorze (fot. M Wiatowski)

Fig. 1. The arrangement of the blocks in the reactor (photo: M Wiatowski)

Wyniki badań

Analiza chemiczno-technologiczna próbki bruzdowej z całego profilu złoża poddanego zgazowaniu została wykonana w Laboratorium GIG. Analiza ta została zamieszczona w tabeli 1.

Tab. 1. Analiza chemiczno-technologiczna próbki bruzdowej
Tab. 1. The chemical-technological analysis of the lignite sample

Stan roboczy					
Zawartość wilgoci całkowitej	W_t^r	%	46,52		
Zawartość popiołu	A^r	%	3,18		
Zawartość siarki całkowitej	S_t^r	%	0,15		
Wartość opałowa	Q_i^r	kJ/kg	12656		
Stan analityczny					
Zawartość wilgoci w próbce analitycznej	W^a	%	10,17		
Zawartość popiołu	A^a	%	5,34		
Zawartość części lotnych	V^a	%	44,9		
Ciepło spalania	Q_s^a	kJ/kg	24192		
Wartość opałowa	Q_i^a	kJ/kg	22920		
Zawartość siarki całkowitej	S_t^a	%	0,26		
Zawartość siarki popiołowej	S_A^a	%	0,24		
Zawartość siarki palnej	S_c^a	%	0,02		
Zawartość pierwiastka węgla	C_t^a	%	60,69		
Zawartość pierwiastka wodoru	H_t^a	%	4,6		
Zawartość pierwiastka azotu	N^a	%	0,57		
Zawartość pierwiastka tlenu	O^a	%	18,61		
Temperatury topliwości popiołu	Temperatura	Atmosfera:		utleniająca	redukująca
	spiekania	t_s ,	°C	1050	1030
	mięknienia	t_A	°C	1260	1170
	topnienia	t_B	°C	1420	1220
	plynięcia	t_C	°C	1450	1340
Stan suchy					
Zawartość popiołu	A^d	%	5,94		
Zawartość siarki całkowitej	S_t^d	%	0,29		
Stan suchy bezpopiołowy					
Zawartość części lotnych	V^{daf}	%	53,14		
Ciepło spalania	Q_c^{daf}	kJ/kg	28633		

Zgazowany węgiel ma dobre właściwości chemiczno-technologiczne. Według klasyfikacji ISO [14] jest to węgiel niskopopielny. Także niska zawartość siarki oraz wysoka wartość opałowa korzystnie wpływają na możliwość wykorzystania go w procesie zgazowania.

Udział poszczególnych litotypów węgla brunatnego w profilowanym pokładzie został umieszczony na wykresie (rys. 2, 3). Próbkę ze złoża umieszczoną w reaktorze, to głównie węgiel ksylo-detrytowy - 36 % (o zawartości ksyliłów od 10 do 50% obj.) i detro-ksyliłowy-10% (wyróżniający się zawartością ksyliłów od ponad 50 do 90% obj.). Inni autorzy w pracach [13-15] także stwierdzili, że główną masę węgla w III pokładzie ścinawskim w złożu Turów stanowią litotypy złożone ksylo-detrytowy lub detro-ksyliłowy z jednoczesnym dość dużym udziałem węgla bitumicznego (do 20%). Litotypy złożone wykazują znaczne zróżnicowanie barwy, od ciemnobrunatnej, poprzez

czerwono-brunatną, brunatną do jasnobrunatnej. Barwa węgla w stanie pełnej wilgoci jest ciemnobrunatna, często z czerwonym odcieniem pochodzącym od zabarwienia detrytus. Przełam jest nierówny i nieregularny. Budowa petrograficzna obydwóch odmian jest podobna. Głównymi ich składnikami są: ksyliły i humusowy detryt. Do składników akcesorycznych w

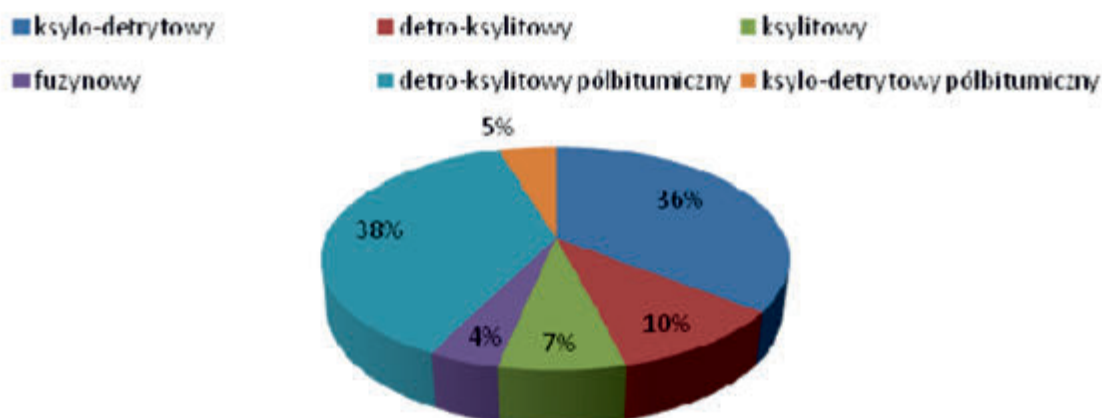
tym litotypie zaliczono fuzyn, rezyn, składniki lipoidalne występujące niekiedy w postaci drobnych soczewek żółtawej barwy oraz składniki mineralne, występujące najczęściej w postaci rozproszonej, takiej jak: kwarc i minerały ilaste. Wyróżnione składniki ułożone są w węglu kierunkowo, najczęściej poziomo, co świadczy o spokojnym środowisku jego sedimentacji (rzek meandrujących).

Ksyliły w węglu ksylo-detrytowym wykazują wysoki stopień przeobrażenia. Są to przeważnie ksyliły kruche i zdolne do przetransformowania, nierzadko przechodzące w tzw. zeloksyliły.

Dodatkowo litotypy te występują także w postaci węgla półbitumicznego. Węgiel detroksyliłowy półbitumiczny to 38% profilu, a ksylo-detrytowy półbitumiczny to 5%. W litotypach mieszanych ksyliły są także zbituminizowane, co objawia się ich jaśniejszą a wręcz żółtą barwą.

Węgiel detrytowy występujący głównie jako składnik

Udział litotypów węgla w profilu zgazowanego pokładu



Rys. 2. Udział litotypów węgla w profilu zgazowanego pokładu

Fig. 2. The share of lignite lithotypes in the gasified seam

litotypów mieszanych występuje w odmianie właściwej, umiarkowanie spoistej i zbitej, zwykle jest mocno przepojony żelem i często zawiera soczewki i skupienia dopłerytu. Zawiera także skąpy i zagęszczony na powierzchniach ulawienia drobny i średni detrytus roślinny. Detrytus ten ma formę okruchów drewna i fragmentów łodyżek i gałązek.

Detryt odmian ksylo-detrytowych wykształcony jest w postaci zwartej masy, uformowanej w warstewki o grubości 1-2 cm naprzemianległych z ksylitami. Warstewki detrytu często wykazują wewnętrzną laminację spowodowaną kierunkowym ułożeniem detrytus.

Bardzo charakterystycznym składnikiem badanego pokładu są przejaśnione warstewki węgla typowo bitumicznego oraz detrytowo-bitumicznego. Ta odmiana węgla występuje jako dobrze widoczne z daleka, kilkucentymetrowej grubości przewarstwienia, wśród węgla detroksylitowych i ksylitowo-detrytowych. Przyjmuje barwę kremowo-żółtą i żółtą. Często zawiera drobny detrytus ksylitowy, zwykle żżelifikowany, choć zdarzają się w nim także pojedyncze szczapy ksylitowe o długościach do kilkunastu centymetrów.

Węgiel bitumiczny wyróżnia się żółtą barwą w różnych odcieniach. Wśród odmian o niskiej zawartości materiału humusowego i mineralnego megaskopowo wyróżniono:

- węgiel o barwie beżowożółtej, subtelnie warstwowany lub lity, twardy o ostrych krawędziach i dość równym przełomie,
- węgiel barwy złocistożółtej, jednorodny, umiarkowanie miękki, wykazujący równy, ziarnisty przełam.

Obie odmiany są lekkie, co odróżnia je od węgla zailonego, natomiast formy przejściowe w kierunku węgla humusowego (węgiel półbitumiczny), wyróżniają się przeważnie zabarwieniem, które jest brunatnożółte, a także większą wilgotnością w porównaniu z węglem humusowym. Materiał ten występuje w postaci detrytus oraz okruchów o średnicach do kilku centymetrów (fuzyn), a nawet kilkunastu (ksylity). Ksylity reprezentowane są głównie przez ksylity kruche i rozsypliwie.

W sąsiedztwie węgla bitumicznego występują markodurie, wskazujące na sedymentację w torfowisku wysokim, które są efektem zarastania starorzeczy [13,16].

W opisywanym profilu nie wyróżniono warstwy z węglem detrytowym, jednak węgiel ten został zaobserwowany w innych bryłach umieszczonych w gazogeneratorze.

Węgiel ksylitowy tworzy w badanym złożu cienkie warstwy (ok. 5 cm) i jego udział stanowi ok. 7% profilu.

Ksylity w pokładzie są średnio- i silnie żżelifikowane, co w istotny sposób zmienia jego jakość i stanowi podstawę do wyróżnienia odrębnych litotypów [17]. Stąd wyróżniono ksylit hemimorficzny o słabo zachowanej strukturze, kruchy i rozsypliw oraz węgiel ksylitowo-żelitowy zwięzły i rozszczepialny. Ksylity są barwy brunatnej, ciemno-brunatnej i czarnej. Ponadto, niektóre poziomy węgla ksylitowego podlegały częściowo procesowi fuzynizacji. Ułożenie kłód i szczap ksylitowych jest horyzontalne.

Ciekawa z geologicznego punktu widzenia jest warstwa z gniazdami węgla fuzynowego (4%), który tworzy ciągle nagromadzenie. Węgiel fuzynowy nie tworzy większej masy pokładowej, ale stanowi bardzo charakterystyczne poziomy fuzynowe. W badanym profilu stwierdzono jeden wyraźny poziom w środkowej części dolnego pokładu. Ponadto fuzyn występuje jako składnik akcesoryczny węgla detrytowego w formie drobnych kawałków.

W profilu nie występują wyraźne warstwy ilaste z substancją mineralną.

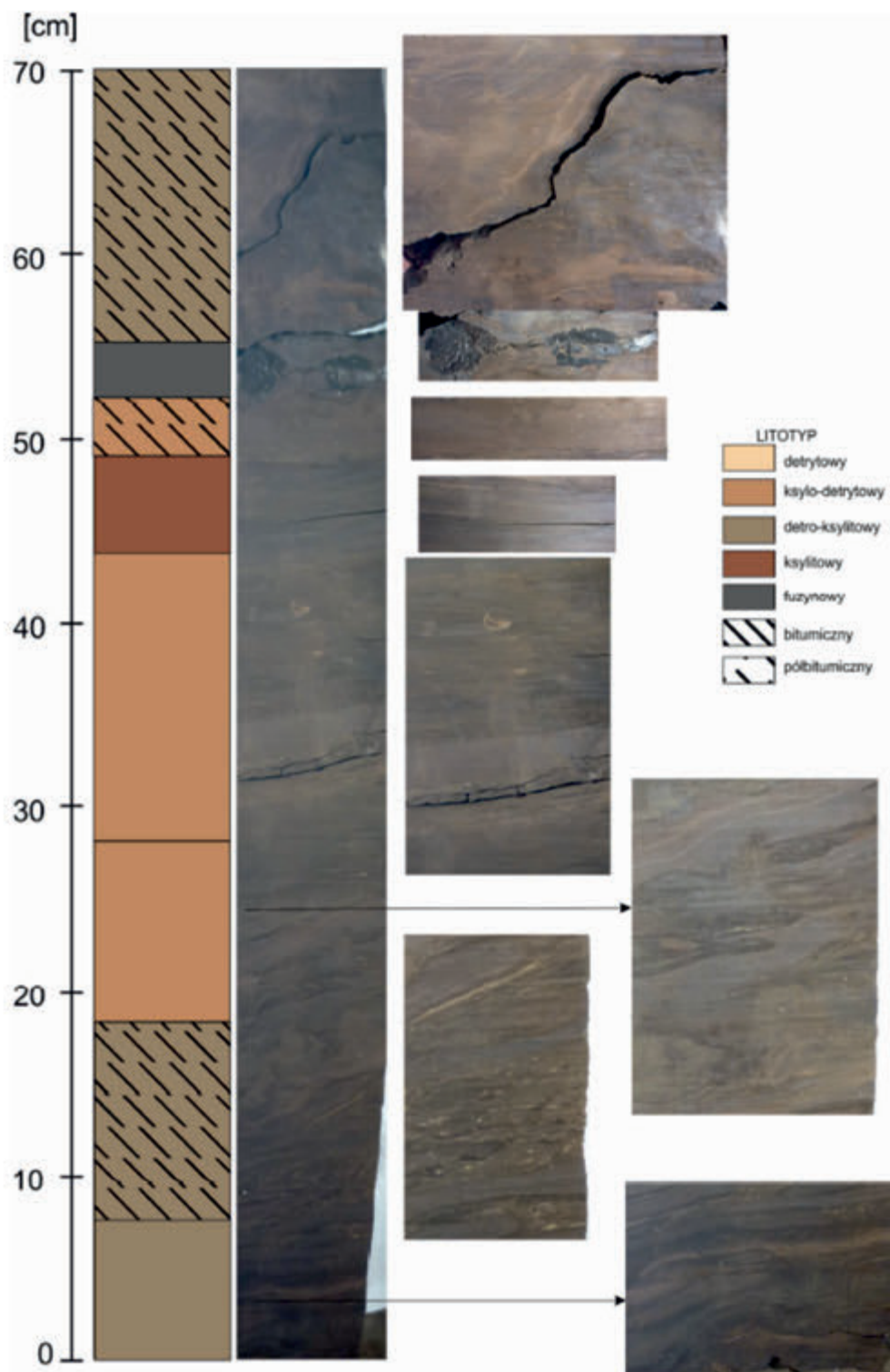
Pokład węgla został zapalony przy użyciu chemicznego ładunku zapalającego. Po wypaleniu ładunku (ok. 3 min) do kanału wprowadzono układ zasilania w czynniki zgazowujące i podano czysty tlen. Symulację procesu UCG prowadzono przez okres 120 godzin, stosując jako czynnik zgazowujący wyłącznie tlen.

Po procesie zgazowania i wystudzeniu reaktora stwierdzono wyraźną zmianę charakteru węgla od kawerny do stropu zgazowanego pokładu. Wyraźne są strefy idące od kawerny to:

- strefa z zpopielonym węglem,
- strefa z koksikiem,
- strefa z wysuszonym i popękanym poprzecznie do uwarstwienia węglem – odgazowanym,
- strefa z podsuszonym węglem.

Podsumowanie i wnioski

Zgazowany w reaktorze węgiel brunatny reprezentowany jest przez węgiel ksylo-detrytowy, a także węgiel bitumiczny lub półbitumiczny. Duża zawartość bituminów podwyższa zawartość wodoru w węglu. Także kaloryczność węgla bitumicznego jest wyższa. Taki skład pozytywnie wpływa na proces zgazowania. W badanej próbie mało jest węgla fuzynowego, który niekorzystnie wpływa na proces zgazowania. Węgiel fuzynowy uznawany jest za składnik niereaktywny i szkodliwy w procesie



Rys. 3. Profil petrograficzny brył węgla umieszczonych w reaktorze
Fig. 3. Petrographic profile of the lignite in the reactor

zgazowania. Ponadto analiza chemiczno-technologiczna wykazała, że pokład ma dobre własności technologiczne. Na uwagę zasługuje niska popielność i wysokie ciepło spalania. Ogólnie profilowany pokład wykazuje dużą przydatność do produkcji gazu syntezowego, co potwierdzają wyniki uzyskane w trakcie próby zgazowania w reaktorze *ex situ*.

Na podstawie badań petrograficznych można stwierdzić,

że węgiel brunatny ulega przemianom termicznym w wyniku procesu zgazowania. Wyraźne są strefy tych przemian, które są ściśle związane z temperaturą panującą w reaktorze. W dalszej kolejności należałoby wykonać szczegółowe badania petrograficzne określające przemiany materii węglowej w zależności od odległości od kanału ogniowego.

Literatura

- [1] Thomson P. N., Mann J. R., *Underground gasification of coal: A National Coal Board reappraisal*, London, National Coal Board, 72 p, 1976
- [2] Oliver R. L., Dana G. F., *Underground coal gasification*. In: D.C. Peters (Rd.) *Geology in Coal Resource Utilization*. Energy Minerals Division, AAPG. TechBooks, Fairfax, 1991
- [3] Armitage, M., Burnard, K., *Underground Coal Gasification in the United Kingdom*, Cleaner Coal Technology Programme Helpline, Building 329, Harwell International Business Centre, Didcot, Oxfordshire OX11 0QJ September 2003
- [4] Shafirovich E., Varma A., *Underground Coal Gasification: A Brief Review of Current Status*. Ind. Eng. Chem. Res, 48, 2009
- [5] Bielowicz B., Kasiński JR, *The possibility of underground gasification of lignite from Polish deposits*, International Journal of Coal Geology, Volume 131, 1 September, 2014
- [6] Hajdo, Klich, Polak, Rózkowski, Grzegorz Galiniak, Wojnicka-Put, Kaznowska- Opala, *Analiza wyników eksperymentalnych dotyczących wymagań technologicznych i środowiskowych podziemnego zgazowania węgla brunatnego oraz opracowanie kryteriów złożowych i technologicznych dla weryfikacji krajowych zasobów węgla Część Tematu Badawczego 1.4.1*, Arch. AGH, 2013
- [7] J. Nowak, J. Kudelko, A. Barańska-Buskik, M. Strzelecki, P. Kobak, *Kryteria wymagań z procesów zachodzących w gazogeneratorze i skalach otaczających*. Aport dla Konsorcjum, KGHM — Cuprum Arch. AGH, 2011
- [8] Nieć M, *Geologiczne bariery i ograniczenia dla podziemnego zgazowania węgla* Biuletyn PIG - nr 448/1, 2012
- [9] Zhuo Y., Messenbock, R., Collot A.-G., Megaritis A., Paterson N., Dugwell D. R., Kandiyoti R., *Conversion of coal particles in pyrolysis and gasification – comparison of conversions in a pilot-scale gasifier and benchscale test equipment*, Fuel 79, 793–802, 2000
- [10] Kapusta, K., Wiatowski, M., Stańczyk, K., *Symulacja procesu podziemnego zgazowania węgla w eksperymentach ex situ*, Przegląd Górniczy T. 70, nr 11, 60–69, 2014
- [11] Kasiński J.R., *Propozycja podziału litostratygraficznego osadów trzeciorzędowej asocjacji brunatnowęglowej w polskiej części Górnośląskiego Zagłębia Węgla Brunatnego*. W: „23. Symp.: Geologia formacji węglonośnych Polski” (red. I. Lipiński): 69-79, Wyd. AGH, Kraków, 2000
- [12] Kwiecińska B., Wagner M., *Typizacja cech jakościowych węgla brunatnego z krajowych złóż według kryteriów petrograficznych i chemiczno-technologicznych do celów dokumentacji geologicznej złóż oraz obsługi kopalń*. Wyd. Centrum PPGSMiE PAN, Kraków, 1997
- [13] Wagner M., *Brunatny węgiel bitumiczny ze złóż Turów i Belchatów w świetle badań petrograficzno-chemicznych i sedymentologicznych*. Pr.Geol. Komis. Nauk Geol. PAN nr 143, Kraków, 1996
- [14] Ciuk E., Doktor M., Kołcon I., Matl K., Rybicki S., Słomka T., Wagner M., *Litologia utworów trzeciorzędu w polskiej części niecki żytańskiej i ich własności fizyko-mechaniczne*. Prace Geologiczne, 137, 103pp, 1992
- [15] Kasińska J., Piwocki M., Swadowska E., Ziemińska-Tworzydło M., *Charakterystyka węgla brunatnego z miocenu Niżu Polskiego na podstawie wybranych profili*. Biuletyn PIG Tom 439 Nr 1 r. str. 99-154, 2010
- [16] Schneider, W. *Palaeohistological studies on Miocene brown coals of Central Europe*. International Journal of Coal Geology. 28, 2-4, 229-248; Amsterdam, 1995
- [17] Wagner M., Żerda T., John A., *Żelifikacja węgla ksylicowego w świetle badań petrograficznych i fizyko-chemicznych*. Kwart. Geol., 27, 1: 87-103, 1983



Ślęzański Miś z sermentynitu antygorytowego

fot. Wawrzyniec Korona