

## Streszczenie

Obecnie obserwuje się dynamiczny rozwój badań nad nowymi, zaawansowanymi technologiami pozyskania energii. Celem ich wdrożenia jest ograniczenie negatywnego wpływu sektora energetyki na środowisko. Dla technologii wykorzystujących węgiel, jedną z propozycji jest metoda podziemnego zgazowania węgla (PZW).

Rozprawa dotyczy analizy procesu pirolizy w technologii PZW. Piroliza jest jednym z procesów chemicznych zachodzących podczas podziemnego zgazowania węgla. Produkty odgazowania pokładu węgla wchodzi w skład gazu syntezowego oraz stanowią główne źródło zanieczyszczeń w tym procesie. W pracy wytypowano parametry prowadzenia procesu PZW mogące potencjalnie wpływać na skład i wydajność produktów odgazowania pokładu węgla.

Głównym celem pracy był opis matematyczny procesu odgazowania węgla w warunkach *in-situ*. Realizacja tego celu została przeprowadzona z wykorzystaniem eksperymentów laboratoryjnych, obliczeń teoretycznych oraz technik wykorzystujących numeryczną mechanikę płynów (CFD).

Badania eksperymentalne przeprowadzono dla próbek węgla pochodzących z pokładów przeznaczonych do eksploatacji metodą PZW, tj. pokładu 310 z kopalni doświadczalnej „Barbara” i pokładu 501 z kopalni węgla kamiennego „Wieczorek”. Eksperyment pirolizy pobranych próbek węgla przeprowadzono z wykorzystaniem metody termogravimetrycznej połączonej ze spektrometrią w podczerwieni (TG-FTIR). Proces pirolizy realizowano w warunkach inertnych z liniowo narastającą temperaturą, dla trzech szybkości ogrzewania 5, 10 i 15 K/min. W trakcie badania mierzono ubytek masy próbki oraz wydzielanie się tlenu i dwutlenku węgla oraz metanu.

Na podstawie badań laboratoryjnych została oszacowana kinetyka odgazowania badanych próbek węgla. Do opisu matematycznego kinetyki pirolizy węgla w warunkach nieizotermicznych zasugerowano metody izokonwersyjne oparte o równanie Arrheniusa. W oparciu o dwuetapową, pierwszorzędową kinetykę, przeprowadzono symulacje dekompozycji węgla oraz uwalniania się produktów gazowych pirolizy, takich jak:  $H_2$ ,  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $C_2H_6$ ,  $NH_3$ ,  $H_2S$ , smoła i benzen. Kinetykę dekompozycji węgla określono z wykorzystaniem metod Coats'a-Redferna (1964), Mianowskiego-Radko (1995) i Kissingera (1957). Zaproponowane w dysertacji modele zostały zweryfikowane badaniami eksperymentalnymi. Do określenia parametrów kinetycznych wydzielania się gazowych produktów pirolizy zaproponowano procedury, w których wykorzystuje się zależności opracowane przez Ściążko (2010), Mianowskiego-Radko (1995), Kissingera (1957) oraz własne przekształcenia matematyczne. Następnie, na podstawie danych modelowych przeprowadzono bilans masy i energii, oraz określono zapotrzebowanie na ciepło procesu pirolizy analizowanych węgli.

Jednym z podstawowych celów pracy było opracowanie narzędzia do wielowymiarowej symulacji odgazowania pokładu węgla w warunkach PZW. Realizację tego celu osiągnięto poprzez sprzężenie modelu CFD odgazowania pokładu węgla w skali makro, z klasycznym modelem kinetyki opracowanej w skali mikro dla konkretnego surowca. W wyniku przeprowadzonej symulacji uzyskano charakterystyki zmian koncentracji gazowych produktów pirolizy w gazie wylotowym. Symulacja ma charakter dynamiczny i zapewnia przestrzenno-czasową prognozę takich wielkości jak: temperatura, porowatość węgla czy stężenie danej substancji chemicznej w badanym układzie. Wyniki uzyskane z symulacji numerycznej odniesiono do fragmentarycznych danych odgazowania pokładu węgla na etapie wygaszania reaktora zlokalizowanego w kopalni doświadczalnej „Barbara”. Zdaniem autorki, przedstawiony w pracy model CFD wydaje się perspektywiczny pod kątem jego implementacji do opisu procesu odgazowania w warunkach podziemnych.

## Summary

Currently research into new and advanced energy resource technologies is very dynamic. The aim of such research is to limit negative effects of the energy sector on the environment. Technologies based on coal involve a number of solutions including the method of Underground Coal Gasification (UCG).

This doctoral thesis focuses on pyrolysis within the UCG technology. Pyrolysis is one of the chemical processes which occurs during UCG. Products obtained during devolatilization of coal seams are components of syngas and are the main source of pollution in the process. This thesis presents a selection of parameters of UCG technology, which may potentially have an effect on the composition and yield products of the devolatilization of a coal seam.

The main aim of this doctoral thesis was to develop a mathematical description of coal devolatilization under conditions relevant to subsurface processing. This objective was carried out using laboratory experiments, theoretical calculations and techniques based on Computational Fluid Dynamics (CFD).

The experimental research was performed on coal samples from coal seams operated by the UCG method, i.e. 310 seam in the Experimental Barbara Mine and 501 seam in the Wieczorek Mine. The pyrolysis experiment was conducted on acquired coal samples using thermogravimetric analysis coupled to Fourier transform infrared spectroscopy (TG-FTIR). This was performed under inert conditions with linearly increasing temperature for three heating rates: 5, 10, 15 K/min. During thermal decomposition the weight loss of samples was measured, as was the evolution of carbon monoxide, carbon dioxide and methane gases.

Devolatilization kinetics of analyzed coal samples were estimated and calculated on the basis of acquired measurements and results. The mathematical description of the pyrolysis of coal in non-isothermal conditions suggested isoconversion methods related to the Arrhenius equation. The kinetics (developed two-step and first order) was used to simulate the thermal decomposition reaction of coal and the release of pyrolysis products including: H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>S, tar and benzene. The kinetic parameters of the decomposition reaction were evaluated by Coats and Redfern (1964), Mianowski and Radko (1995) and the method of Kissinger (1957). Each of the models was verified with experimental data. Determination of the kinetics parameters of gas evolution during pyrolysis elaborated on the work of Ściążko (2010), Mianowski–Radko (1995), Kissinger (1957) and the mathematical transformations of the author. Next, data models were used to solve mass and energy balance equations, and estimate the demand for heat in pyrolysis processes.

One of the essential aims of this thesis was to develop a tool for multidimensional simulation of coal seam devolatilization in UCG conditions. This purpose was achieved through coupling the CFD model of coal seam devolatilization in the macro scale with

a classic kinetic model developed in the micro scale. The concentrations of the pyrolysis gas species in the exhaust gas of a simulation were obtained for a specific material. The simulation is dynamic and provides a spatio-temporal prediction of parameters such as: temperature, coal porosity and concentration of chemical substances in a tested system. The results of the numerical simulation were compared to fragmented data of coal seam devolatilization at the shutting down stage of the Experimental Barbara Mine reactor. The CFD model presented in this paper is a robust method of describing the devolatilization process in underground coal gasification.