

Rafał KOBYLECKI*, Robert ZARZYCKI*, Marcin KRATOFIL**, Damian PAWŁOWSKI**,
Mariola ŚCISŁOWSKA**, Zbigniew BIS***

Analiza możliwości redukcji emisji tlenku azotu podczas spalania węgla w gazie o składzie oczekiwany dla spalin recykulowanych w procesie oxy-spalania

STRESZCZENIE. W artykule przedstawiono wyniki badań dotyczących emisji tlenku azotu z procesu spalania węgla kamiennego w gazie o składzie zbliżonym do recykulowanych spalin (suchych oraz zawierających parę wodną) przewidywanych dla procesu oxy-spalania. Badania laboratoryjne przeprowadzono dla stałych stężeń składników spalin wynoszących: 10% O₂, 10% CO₂, 100ppm NO oraz 0% lub 15% pary wodnej. Analiza wyników wykazała istotne różnice pomiędzy prowadzeniem procesu w gazie suchym oraz zawierającym parę wodną. W przypadku spalin suchych zaobserwowano wyraźne dwie fazy procesu emisji NO, związane z jego intensywną produkcją podczas spalania części lotnych oraz redukcją na powierzchni odgazowanej pozostałości koksowej. Wykazano, że w trakcie procesu dla spalin suchych nastąpiło zmniejszenie ogólnej emisji NO na wylocie z układu. Z kolei, w przypadku obecności pary wodnej w spalinach, całkowita emisja NO podczas spalania poszczególnych próbek węgla kamiennych wzrosła w stosunku do poziomu bazowego. W wyniku przeprowadzonych oznaczeń zawartości azotu w popiołach stwierdzono zawartość pierwiastka N na poziomie <0,01%, co potwierdziło, że azot zawarty w węglu przechodził praktycznie w całości do fazy gazowej. Przeprowadzona dodatkowo analiza przebiegów czasowych zmian stężeń O₂ i CO₂ wykazała jednak pozytywny wpływ obecności pary wodnej na szybkość oraz intensywność procesu utleniania węgla.

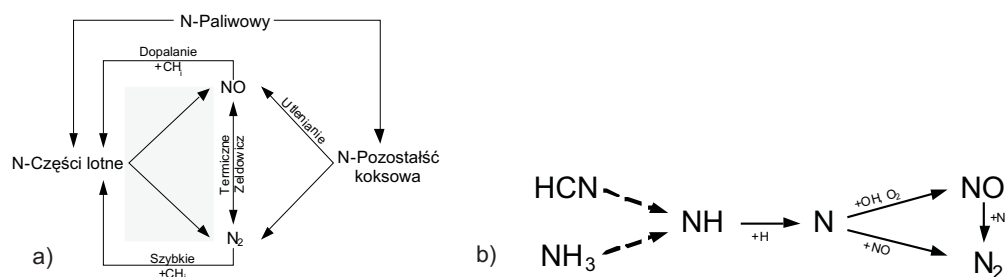
SŁOWA KLUCZOWE: NO, oxy-spalanie, palenisko cyklonowe

* Dr inż., ** Mgr inż., *** Prof. dr hab. inż. – Politechnika Częstochowska, Wydział Inżynierii Środowiska i Biotechnologii, Katedra Inżynierii Energii, Częstochowa; e-mail: rafalk@is.pcz.czest.pl, zarzycki@is.pcz.czest.pl, mkratofil@is.pcz.czest.pl, d.pawlowski@is.pcz.czest.pl, m.scislowska@is.pcz.czest.pl, zbis@is.pcz.czest.pl

Wprowadzenie

Coraz ostrzejsze normy środowiskowe dotyczące emisji zanieczyszczeń oraz gazów cieplarnianych wymuszają rozwój w zakresie innowacyjnych technologii spalania węgla – podstawowego paliwa polskiej energetyki (Grudziński 2013). Jedną z perspektywicznych technologii w tym zakresie jest technologia spalania w atmosferach wzbogaconych w tlen (tzw. oxy spalanie), w której zakłada się wyeliminowanie z utleniacza azotu pochodzącego z powietrza atmosferycznego, wskutek czego strumień powstałych gazów odlotowych stanowi tylko około 20% objętości strumienia spalin z klasycznego spalania w powietrzu. Zaletą oxy spalania jest także otrzymywanie spalin o wysokiej koncentracji CO_2 – spaliny te po wstępnym oczyszczeniu z SO_2 , NO_x , pyłów i Hg (Wichliński i in. 2012) mogą być następnie bezpośrednio poddawane procesom ukierunkowanym na wychwytywanie, sprężanie i składowanie dwutlenku węgla (Göttlicher i Pruscek 1997; Wawrzyńczak i Nowak 2009; Panowski i Zarzycki 2013; Więclaw-Solny i in. 2013).

Badania nad implementacją oxy spalania prowadzone są od lat zarówno dla technologii kotłów pyłowych, jak i dla fluidalnych (Bis i Czakiert 2006; Nowak 2013). Od niedawna prowadzone są również badania nad zastosowaniem oxy spalania dla palenisk cyklonowych (Zarzycki i in. 2013a; 2013b), dla których w przypadku braku azotu w gazie doprowadzanym do spalania możliwe jest wyeliminowanie podstawowego mankamentu, związanego z wysoką emisją termicznych NO_x , stanowiącego barierę w rozwoju tego typu palenisk w XX wieku – w przypadku oxy spalania emisja tlenków azotu jest bowiem efektem jedynie utleniania azotu zawartego w paliwie. Schemat możliwych dróg powstawania i redukcji tlenków azotu pokazano na rysunku 1.



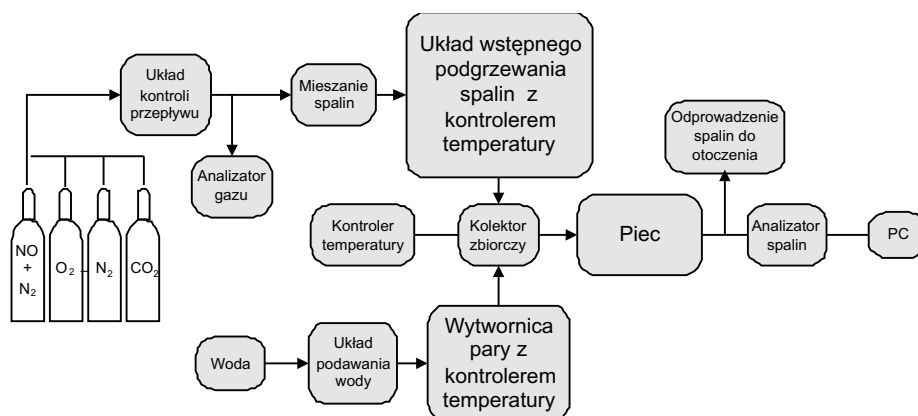
Rys. 1. Ogólny schemat powstawania i redukcji tlenków azotu (a) oraz główne etapy konwersji związków azotu zawartego w częściach lotnych (b) (Norman i in. 2009)

Fig. 1. General schematics of the formation and reduction of nitrogen oxides (a) and main steps of the conversion of nitrogen compounds in fuel volatiles (b) (Norman, et al. 2009)

W niniejszym artykule przedstawiono wyniki badań możliwości utleniania węgla i redukcji tlenku azotu, stanowiącego ponad 90% NO_x , w warunkach przewidywanych dla spalin pochodzących z procesu oxy spalania i recykulowanych do paleniska w celu kontroli temperatury.

1. Stanowisko badawcze i metodyka badań

Badania przeprowadzono na stanowisku z poziomym przepływem gazów, będącym na wyposażeniu Katedry Inżynierii Energii Politechniki Częstochowskiej. Schemat zestawienia poszczególnych elementów układu pokazano na rysunku 2.

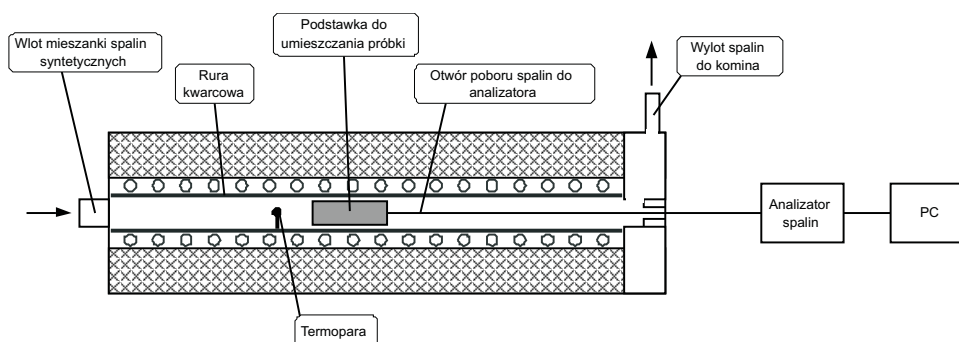


Rys. 2. Schemat układu do badań emisji NO_x dla spalin suchych oraz mokrych

Fig. 2. Sketch of the test setup for the examination of NO_x emission for dry and wet flue gases

Główną część stanowiska badawczego stanowił pokazany na rysunku 3 poziomy piec o mocy 6,8kW, posiadający w części centralnej rurę kwarcową o długości 1 m i średnicy 0,038 m. Możliwości eksploatacyjne pieca pozwalały na osiągnięcie temperatury w zakresie $<1050^\circ\text{C}$. Skład doprowadzanych do wnętrza pieca spalin syntetycznych ustalano przed każdym pomiarem i utrzymywano na zadanym poziomie za pomocą automatycznych kontrolerów przepływu. Aby otrzymać syntetyczne spaliny o wymaganym składzie, poszczególne ich składniki mieszano w mieszalniku zabudowanym w strefie wlotowej. Przygotowana mieszanka spalin syntetycznych o składzie 10% O_2 , 10% CO_2 , NO 100 ppm (dopełnienie do 100% stanowił azot, nośnikiem NO był azot) kierowana była do układu wstępnego podgrzewania spalin, a następnie do kolektora zbiorczego, gdzie w zależności od prowadzonego badania, mieszana była z parą wodną w ilości 15% obj. Tak przygotowany gaz wprowadzany był do pieca o temperaturze 850°C , która odpowiada warunkom występującym w górnej części przedpaleniska cyklonowego, gdzie zakłada się redukcję tlenków azotu.

W przypadku realizacji badań w gazie zawierającym parę wodną wymagana ilość pary produkowana była za pomocą układu grzewczego, zapewniającego wytworzenie strumienia ciepła odpowiedniego dla odparowania i przegrzania zakładanej ilości wody. Układ pozwalał na precyzyjne i ciągłe podawanie zadanego strumienia pary wodnej, a wytworzona i przegrzana do około 250°C para była mieszana w kolektorze zbiorczym z syntetycznymi spalinami, również podgrzany wstępnie do około $250\text{--}270^\circ\text{C}$ w celu uniknięcia kondensacji pary wskutek kontaktu z zimnymi gazami. W strefie wylotowej pieca zabudowany był automatyczny analizator spalin, umożliwiający ciągły pomiar składu wraz z archiwizacją danych.



Rys. 3. Schemat pieca laboratoryjnego z poziomym przepływem gazów

Fig. 3. Schematics of laboratory furnace with horizontal gas flow

W trakcie każdego testu próbkę paliwa o masie początkowej, wynoszącej około 0,4 g, rozkładano równomiernie na porowatej wełnie mineralnej znajdującej się na podstawce, a następnie wprowadzano do rozgrzanego pieca rejestrując zmiany składu spalin w trakcie procesu. Przyjęcie takiej masy wynikało z rozmiaru podstawki, na której umieszczana była próbka, oraz uzyskania grubości warstwy zapewniającej całkowite spalanie próbki w trakcie realizacji pomiaru. Podczas badań rejestrowano zmiany stężenia O_2 , CO_2 , CO , SO_2 , NO , NO_2 i NO_x . Po zakończeniu każdego eksperymentu wyjmowano pozostałość znajdującą się na wełnie mineralnej i umieszczano ją w ekzykatorze aż do ostygnięcia. Następnie dokonywano ponownego ważenia oraz oznaczenia zawartości azotu w stałej pozostałości poprocesowej, wykorzystując w tym celu analizator Leco CHNS Truspec.

Do badań wybrano dwa rodzaje węgla kamiennego o granulacji $<100 \mu m$. Parametry wykorzystanego paliwa przedstawiono w tabeli 1 i 2.

TABELA 1. Zestawienie wyników analizy technicznej badanych paliw (wartości w % wag., stan suchy)

TABLE 1. Summary of proximate analysis of the tested fuels (values in wt%, dry)

Paliwo	Wilgoć całkowita	Wilgoć przemijająca	Wilgoć higroskopijna	Części lotne ^d	Popiół ^d	Pozostałość koksowa ^d
	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]
Węgiel 1	8,0	6,3	1,9	25,7	26,9	47,3
Węgiel 2	17,1	9,2	8,7	27,6	16,8	55,6

TABELA 2. Zestawienie wyników analizy elementarnej badanych paliw (stan suchy)

TABLE 2. Summary of ultimate analysis of the tested fuels (dry)

Paliwo	C ^d	H ^d	N ^d	S ^d	O ^d	HHV ^d	LHV ^d
	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[MJ/kg]	[MJ/kg]
Węgiel 1	64,5	4,3	1,02	0,91	2,3	18,83	17,73
Węgiel 2	60,2	4,1	0,93	1,65	16,3	23,61	22,24

2. Wyniki badań i ich analiza

Na podstawie uzyskanych danych pomiarowych dla spalin suchych oraz zawierających parę wodną (w ilości 15% obj.), jak również dla porównawczego spalania w powietrzu stwierdzono, że emisja NO_2 kształtowała się na poziomie kilku lub kilkunastu ppm i stanowiła maksymalnie 5% udziału tego składnika w NO_x . Fakt, że NO_2 rozpuszczalny jest w wodzie, ułatwia proces jego usuwania ze strumienia powstających gazów odlotowych, który można realizować np. jedno- cześnie z mokrym odsiarczaniem spalin. W związku z tym, że NO_2 nie stwarza trudności związanych z jego usuwaniem, w niniejszej pracy poddano analizie jedynie przebiegi emisji NO , praktycznie nierozpuszczalnego w skrubkach wodnych.

Przebiegi czasowe zmian koncentracji O_2 , CO_2 oraz NO zestawiono na rysunku 4. Na rysunku 4a i 4b przedstawiono przebiegi czasowe dla spalin suchych oraz obu rodzajów badanego paliwa. Linia przerywaną zaznaczono poziom NO w mieszance wprowadzanej do układu. Analizując zmiany wartości CO_2 oraz O_2 można zidentyfikować początek procesu spalania – widoczny jest wyraźny spadek stężenia tlenu w gazie wlotowym oraz wzrost stężenia CO_2 . Bezpośrednio po wprowadzeniu do pieca zimnych próbek paliwa następuje ich gwałtowne nagrzewanie, powodując suszenie i uwalnianie części lotnych. Części lotne ulegają gwałtownemu zapaleniu o czym świadczy wysoki poziom CO_2 i dość niski poziom O_2 . W tym momencie należy oczekiwać, że temperatura w sąsiedztwie próbki wzrasta powyżej założonej temperatury 850°C . W dalszej części procesu widoczne są powolne asymptotyczne zmiany CO_2 i O_2 świadczące, że proces przebiega z mniejszą intensywnością i prawdopodobnie kontrolowany jest przez mechanizm dyfuzyjny. W tym czasie następuje utlenianie pozostałości koksowej, a po upływie około 600 sekund dla obu analizowanych przypadków stężenia CO_2 i O_2 powracają do wartości stężeń początkowych, co świadczy o zakończeniu procesu spalania.

Interesujące są rejestrowane równoległe przebiegi NO . Dla obu paliw po wystąpieniu zapłonu (por. przebiegi dla O_2 i CO_2) widoczny jest gwałtowny wzrost stężenia NO , lecz maksymalne stężenie NO w spalinach występuje z pewnym kilkusekundowym opóźnieniem – na ten fakt zwrócono również uwagę w pracy (Czakiert 2004).

Zaobserwowany wzrost stężenia NO powyżej poziomu tła (linia przerywana) oznaczono na rysunku 4 symbolem “+”. Obszar ten odpowiada procesowi produkcji NO i związany jest prawdopodobnie ze spalaniem części lotnych, powstających w trakcie intensywnego odgazowywania węgla. Dokonując obliczenia całki z tego obszaru (“+”) możliwe jest określenie całkowitej „produkcji” NO podczas tej fazy spalania. Po upływie kolejnych około 100 sekund kończy się spalanie części lotnych i następuje wyraźny spadek emisji NO poniżej zadanego poziomu tła (linia przerywana). Obszar tych niższych wartości NO oznaczono symbolem “-” – świadczy on o występowaniu procesów redukcyjnych, prawdopodobnie przebiegających na powierzchni odgazowanej pozostałości koksowej. Dokonując całkowania tego obszaru (“-”) możliwe jest określenie stopnia redukcji NO w tym okresie. Jak widać na rysunku 4 po upływie około 300 sekund dla obu analizowanych paliw koncentracja NO osiąga poziom bazowy (linia przerywana), lecz obserwowane przebiegi zmian koncentracji CO_2 i O_2 świadczą, że wciąż zachodzi jeszcze proces spalania pozostałości koksowej. Brak redukcji NO w tym czasie jest prawdopodobnie efektem spalania ziaren koksu zlokalizowanych głębiej i pokrytych warstwą popiołu, ograniczającą ki-

netykę redukcji NO_x . Analiza przebiegów czasowych przedstawionych na rysunku 4a–b wskazuje, że proces spalania węgla powoduje w początkowej fazie wyraźny wzrost stężenia NO (produkcja), spowodowany spalaniem części lotnych i lokalnym wzrostem temperatury, po którym następuje wyraźny spadek (redukcja) emisji NO w trakcie spalania pozostałości koksowej.

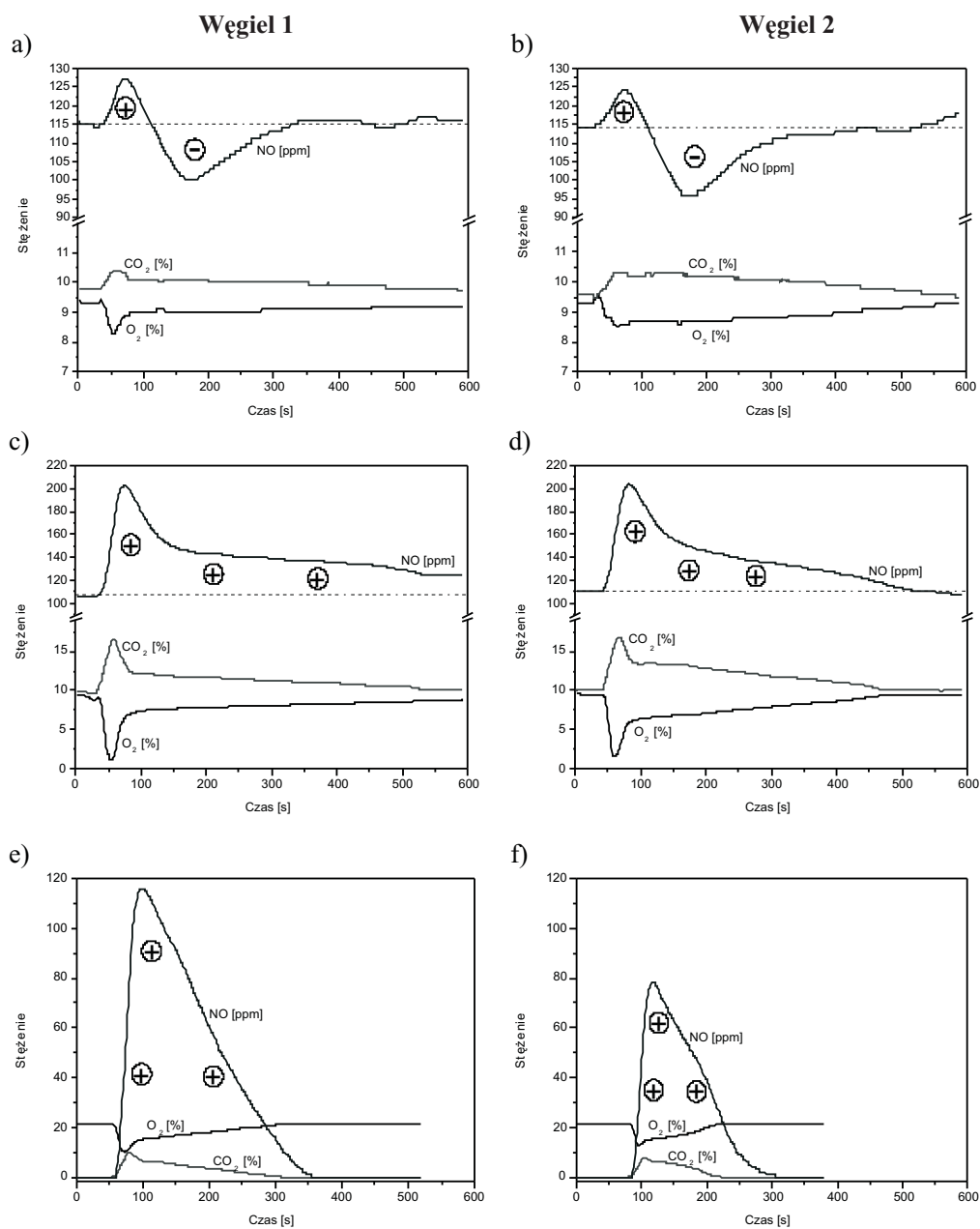
Wyniki przedstawione na rysunku 4c–d dotyczą badań procesu spalania próbek węgla w spalinach wilgotnych. Przebiegi CO_2 i O_2 są podobne i również zaobserwować można wyraźne wystąpienie początku procesu spalania. W przypadku spalin wilgotnych zmiany stężeń CO_2 i O_2 są jednak większe, co świadczy o tym, że zawartość pary wodnej w gazie jest w pewnym stopniu katalizatorem spalania. Można przypuszczać, że obecność pary wodnej przyspiesza proces nagrzewania ziaren paliwa, powodując szybsze wydzielanie części lotnych i ich spalanie w nieco wyższej temperaturze. W przypadku wyższej temperatury spalania części lotnych najprawdopodobniej następuje także nagrzanie pozostałości koksowej do wyższej temperatury i jej szybsze spalanie. Potwierdzeniem tej hipotezy mogą być nieco szybsze niż w przypadku spalin suchych zmiany stężeń CO_2 , O_2 oraz wcześniejsze osiągnięcie poziomu stężenia tych składników jak na wlocie do komory spalania. Analizując przebiegi CO_2 i O_2 można także zidentyfikować dwie fazy spalania, tj. spalanie części lotnych do około 100 sekund, a następnie spalanie pozostałości koksowej (do około 450 sekund – por. rys. 4d).

Analiza przebiegu zmian NO podczas spalania także potwierdza gwałtowny wzrost emisji w trakcie spalania części lotnych, a maksimum zawartości NO w gazie również występuje kilkanaście sekund później w stosunku do maksimum O_2 i CO_2 . Obecność pary wodnej w spalinach powoduje jednak, że wzrost ten jest wyraźnie wyższy niż w przypadku spalin suchych – prawdopodobnie wskutek wzrostu intensywności wydzielania części lotnych.

Widoczny w kolejnym okresie spadek emisji NO jest jednak – w odróżnieniu od spalania w gazie suchym – wciąż powyżej poziomu bazowego (linia przerywana), co wskazuje na zahamowanie bądź wręcz brak wyraźnej redukcyjnego wpływu ziaren pozostałości koksowej na NO. Prawdopodobnie jest to spowodowane dużą intensywnością spalania części lotnych w początkowym okresie, skutkującym wystąpieniem wysokiej temperatury w otoczeniu ziaren i w konsekwencji mięknięciem i topnieniem ziaren popiołu, ograniczającym powierzchnię kontaktu koksu i gazu i tym samym kinetykę redukcji NO. Uzyskane wyniki (rys. 4c–d) wskazują, że w przypadku obecności pary wodnej w spalinach następuje netto produkcja NO (obszar “+”), a przebieg procesu spalania paliwa oraz tworzenia i redukcji NO jest wyraźnie różny w porównaniu do testów dla spalin suchych (por. rys. 4a–b).

Wyniki uzyskane dla spalania obu węgli w powietrzu (rys. 4e–f) wykazały różnice w wartościach stężenia O_2 oraz CO_2 dla obu paliw. Dodatkowo, widoczny jest wyraźnie krótszy czas spalania w porównaniu do przypadków pokazanych na rysunku 4a–d, wynoszący około 250–300 sekund. Przebieg zmian stężenia NO potwierdza gwałtowny wzrost emisji bezpośrednio po zapaleniu części lotnych. Uzyskane wartości maksymalnych stężeń NO dla analizowanych przebiegów zależą głównie od masy próbki paliwa i całkowitej ilości paliwowego N – odpowiednie wartości całek pod liniami zmian NO odniesione do masy azotu w spalanych paliwach były zbliżone dla obu analizowanych węgli.

Obliczenia średniego względnego stopnia redukcji NO (Δ_{NO}) w trakcie wybranych testów dokonano wykorzystując zależność (1). Wyniki obliczeń średniego względnego stopnia redukcji NO zestawiono w tabeli 3.



Rys. 4. Przebiegi czasowe zmian stężeń O₂, CO₂ i NO w spalinach dla wybranych testów. Paliwo: węgiel 1 i węgiel 2, T = 850°C. (a, b): 10% CO₂, 10% O₂, 100 ppm NO, 0% H₂O, (c, d): 10% CO₂, 10% O₂, 100 ppm NO, 15% H₂O, (e, f): spalanie w powietrzu, 0% H₂O

Fig. 4. Variations of the concentration of O₂, CO₂, and NO in the exhaust gas for some selected tests. Fuel: carbon 1 and carbon 2, T = 850°C. (a, b): 10% CO₂, 10% O₂, 100 ppm NO, 0% H₂O; (c, d): 10% CO₂, 10% O₂, 100 ppm NO, 15% H₂O; (e, f): combustion in air, 0% H₂O

$$\Delta_{NO} = \frac{NO_{sr.pom} - NO_{in}}{NO_{in}} \cdot 100 \quad [\%] \quad (1)$$

gdzie: $NO_{sr.pom}$ – średnia zawartość NO w gazie podczas spalania [ppm],
 NO_{in} – zawartość NO w gazie na wlocie do komory spalania [ppm].

TABELA 3. Zestawienie wartości średnich względnego stopnia redukcji NO

TABLE 3. Summary of relative degrees of NO reduction (average values)

Węgiel	H ₂ O w gazie dolotowym [%]	Względny średni stopień redukcji NO [%]
Węgiel 1	0	-1
Węgiel 2	0	-4
Węgiel 1	15	20
Węgiel 2	15	15

Wyniki badań oznaczania zawartości azotu w próbkach popiołu po spaleniu paliw wykazały śladowe zawartości azotu. W przypadku wszystkich badanych próbek zawartość pierwiastka N nie przekraczała 0,01%, potwierdzając w ten sposób, że podczas spalania azot zawarty w węglu przechodzi w całości do fazy gazowej.

Podsumowanie

Wyniki badań przedstawionych w niniejszym artykule pozwoliły na określenie wpływu zawartości pary wodnej w spalinach na proces tworzenia i redukcji NO, podczas spalania wybranych próbek paliw stałych w warunkach spalin suchych oraz zawierających parę wodną, przewidywanych dla recyrkulacji podczas procesu oxyspalania węgla.

Analiza przebiegów czasowych zmian stężeń wybranych składników spalin wykazała wyraźny wpływ pary wodnej na przebieg procesu utleniania węgla i emisję NO.

Podczas spalania próbek węgla w spalinach suchych zaobserwowano wyraźny etap produkcji NO, związany ze spalaniem części lotnych, oraz etap jego redukcji na powierzchni odgazowanej pozostałości koksowej. Obliczony sumaryczny średni względny stopień redukcji NO dochodził do 4% i zależał od rodzaju paliwa.

W przypadku spalin wilgotnych, wartość emisji NO w czasie badań była wyższa niż dla spalin suchych, zaś obliczone sumaryczne średnie względne stopnie redukcji NO wykazały wzrost emisji o 20% (węgiel 1) oraz 15% (węgiel 2) – prawdopodobnie wskutek ograniczenia redukcyjnych właściwości ziaren pozostałości koksowej.

Wyniki badań zawartości azotu w popiołach pozostałych po procesie spalania wskazywały praktycznie zerową (poniżej 0,01%) zawartość tego pierwiastka w badanych próbkach, co potwierdziło, że podczas spalania azot zawarty w węglu przechodził w całości do fazy gazowej.

Praca naukowa dofinansowana przez Narodowe Centrum Badań i Rozwoju, w ramach Strategicznego Programu Badań Naukowych i Prac Rozwojowych pt. „Zaawansowane technologie pozyskiwania energii” Zadanie Badawcze nr 2 „Opracowanie technologii spalania tlenowego dla kotłów pyłowych i fluidalnych zintegrowanych z wychwytem CO₂”, umowa nr SP/E/2/66420/10.

This scientific work was supported by the National Centre for Research and Development, within the confines of Research and Development Strategic Program “Advanced Technologies for Energy Generation” project no. 2 “Oxy-combustion technology for PC and FBC boilers with CO₂ capture”. Agreement no. SP/E/2/66420/10. The support is gratefully acknowledged.

Literatura

- [1] GRUDZIŃSKI, Z. 2013. Konkurencyjność paliw w wytwarzaniu energii elektrycznej. *Polityka Energetyczna – Energy Policy Journal* t. 16, z. 4, s. 87–105.
- [2] WICHLIŃSKI i in. 2012 – WICHLIŃSKI, M., KOBYLECKI, R. i BIS Z. 2012. Przegląd metod ograniczenia emisji rtęci w elektrowniach podczas spalania paliw stałych. *Polityka Energetyczna – Energy Policy Journal* t. 15, z. 4, 151–160.
- [3] GÖTTLICHER, G. i PRUSCHEK, R. 1997. Comparison of CO₂ removal systems for fossil-fuelled power plant processes. *Energy Conversion and Management* vol. 38, p. 73–78.
- [4] WAWRZYŃCZAK, D. i NOWAK, W. 2009. Application of low parameter PSA process for capture of CO₂ from flue gases emitted during oxygen-enriched combustion. *Chemical and Process Engineering* vol 30, p. 589–602.
- [5] WIĘCŁAW-SOLNY i in. 2013 – WIĘCŁAW-SOLNY, L., TATARCZUK, A., KRÓTKI, A. i STEC, M. 2013. Postęp prac w badaniach technologicznych aminowego usuwania CO₂ ze spalin. *Polityka Energetyczna – Energy Policy Journal* t.16, z. 4, s. 229–241.
- [6] NOWAK, W. 2013. Spalanie tlenowe dla kotłów pyłowych i fluidalnych zintegrowanych z wychwytem CO₂. *Piece Przemysłowe & Kotły* t. 5–6, s. 8–15.
- [7] NORMAN i in. 2009 – NORMAN, F., ANDERSSON, K., LECKNER, B. i JOHNSON, F. 2009. Emission control of nitrogen oxides in the oxy-fuel process. *Progress in Energy and Combustion Science* 35, 385–397.
- [8] PANOWSKI, M. i ZARZYCKI, R. 2013. Analiza procesowa przygotowania wyseparowanego ze spalin dwutlenku węgla do transportu i składowania. *Polityka Energetyczna – Energy Policy Journal* t. 16, z. 4, s. 343–356.
- [9] BIS, Z. i CZAKIERT, T. 2006. Fluidalne spalanie węgla w atmosferze wzbogaconej tlenem. *Polityka Energetyczna – Energy Policy Journal* t. 9, z. spec., s. 329–342.
- [10] ZARZYCKI i in. 2013a – ZARZYCKI, R., KRATOFIL, M., PAWŁOWSKI, D., ŚCISŁOWSKA, M., KOBYLECKI, R. i BIS, Z. 2013. Analiza spalania pyłu węglowego w przedpalenisku cyklonowym. *Polityka Energetyczna – Energy Policy Journal* t. 16, z. 3, s. 313–324.

- [11] ZARZYCKI i in. 2013b – ZARZYCKI, R., KRATOFIL, M., PAWŁOWSKI, D., ŚCISŁOWSKA, M., KOBYLECKI, R. i BIS, Z. 2013b. Analiza wyników obliczeń numerycznych przepływu pyłu węglowego oraz gazu w palenisku cyklonowym. *Polityka Energetyczna – Energy Policy Journal* t. 16, z. 3, s. 325–337.
- [12] CZAKIERT, T. 2004. *Emisje zanieczyszczeń gazowych w procesie spalania węgla brunatnego w cyrkulacyjnej warstwie fluidalnej w atmosferze wzbogaconej tlenem*. Rozprawa doktorska, Politechnika Częstochowska.

Rafał KOBYLECKI, Robert ZARZYCKI, Marcin KRATOFIL, Damian PAWŁOWSKI,
Mariola ŚCISŁOWSKA, Zbigniew BIS

Analysis of the possibilities of nitrogen oxide reduction during coal combustion in gaseous atmospheres of composition similar to recirculated oxycombustion flue gas

Abstract

This paper presents the results of research on NO emission from coal combustion in flue gas of a composition similar to recirculated exhaust flue gas from the oxycombustion process. Laboratory tests were carried out for gas concentrations of 10% O₂, 10% CO₂, 100 ppm NO, and 0%/15% water steam. The remaining flue gas component was nitrogen.

Analysis of the results indicated a significant effect of water steam on the NO reduction process. In the case of dry flue gases, two phases of the NO emission process were determined. Those were associated with NO production during the fuel's devolatilization and the reduction of NO emissions on the surface of a burning char. In the case of dry flue gas, the overall NO emission at the system outlet decreased by 1–4%, while in the case of steam-containing flue gas an increase in the emissions of 15–20% was identified. The analysis of the changes of O₂ and CO₂ concentrations indicated, however, a positive effect of the presence of water vapor on the intensity of the oxidation of carbon. The analysis of nitrogen content in the ash samples confirmed that almost all fuel-N was transformed into a gas phase during combustion.

KEY WORDS: NO, oxycombustion, cyclone furnace