

## L'OXYDATION FLUIDISEE DU CHARBON

par G. I. JENKINS

(Coal Research Establishment, N.C.B.)

Le National Coal Board est déjà producteur à grande échelle de combustible solide sans fumée par ses fours à coke et par la fabrication du « Phurnacite » (1). On est en train de doubler la capacité de l'usine de « Phurnacite » du sud du Pays de Galles. Ceci rendra annuellement disponibles, 300.000 tonnes de plus d'un combustible sans fumée qui est d'une qualité exceptionnellement élevée, pour les chaudières domestiques et les poêles fermés. Ce combustible est fabriqué par agglomération d'un mélange de brai et de charbon et carbonisation des agglomérés obtenus. Une extension supplémentaire de la production de « Phurnacite » peut se révéler difficile, car l'approvisionnement en charbon convenable est limité. Le charbon que l'on préfère pour ce procédé est un charbon non agglutinant à environ 12 % de matières volatiles. Il est essentiel que le charbon utilisé soit non agglutinant et non gonflant; sinon les agglomérés se déforment et collent les uns aux autres dans le four de carbonisation. Ce critérium exclut l'emploi de charbons à teneur en matières volatiles légèrement plus élevée, car, bien qu'ils conviennent par ailleurs, ils ont un indice d'agglutination trop élevé. En vue d'étendre la gamme des charbons utilisables, il est nécessaire de détruire les propriétés agglutinantes avant de soumettre les charbons à l'agglomération et à la carbonisation dans le four.

Il est bien connu qu'une oxydation douce réduit les propriétés agglutinantes et gonflantes d'un charbon. Le charbon qui est utilisé pour le processus d'agglomération est constitué de particules de faibles dimensions. Par suite, puisque le processus d'oxydation consiste à élever la température d'un solide finement divisé et à le mettre en contact avec un gaz contenant de l'oxygène, on pensa que la fluidisation serait la méthode idéale pour effectuer la réaction. Des expériences préalables faites en utilisant un réacteur de 4 pouces (102 mm) de diamètre montrèrent que tel était le cas. Par l'addition de petites quantités d'oxygène au charbon, il fut possible d'obtenir un produit qui, avec du brai comme liant, donnait des agglomérés, non collants et non gonflants lorsqu'on les carbonisait dans des conditions types. Le taux d'oxydation requis varie avec les caractéristiques du charbon original. En général, le degré d'oxydation requis put être obtenu par l'emploi de températures comprises entre 250° C et 450° C et de durées de séjour de charbon comprises entre 20 et 3 minutes.

On obtint, par le fonctionnement de la petite

unité fluidisée, suffisamment d'indications pour permettre de dessiner et de construire une installation pilote plus grande. La méthode qui convient le mieux pour élever la température du charbon est d'utiliser du gaz chaud pour la fluidisation, mais cette méthode posait un problème : en raison de la petitesse des dimensions des particules de charbon, la quantité de gaz qui pouvait être introduite dans le réacteur était limitée à une quantité correspondant à une vitesse linéaire d'environ 1 pied (30 cm) par seconde. Des vitesses supérieures à ce chiffre conduisaient à une charge excessive du système de dépoussiérage.

Il en résulte que, pour un débit d'alimentation en charbon d'une tonne par heure, dans un réacteur de 2 pieds (61 cm) de diamètre, la température du gaz fluidisant devrait être supérieure à 2.000° C, pour permettre au charbon d'atteindre 400° C. Des températures aussi élevées causeraient des difficultés évidentes. Si, pour les mêmes conditions, le diamètre du réacteur était porté à 4 pieds (122 cm), on pourrait alors employer une température de gaz de 1.000° C. Cependant comme la durée de contact pour l'oxydation est de l'ordre de quelques minutes, le rapport diamètre/hauteur serait alors très grand. Ceci conduirait à des difficultés pour la répartition du gaz en vue du maintien d'une bonne fluidisation. Ces considérations

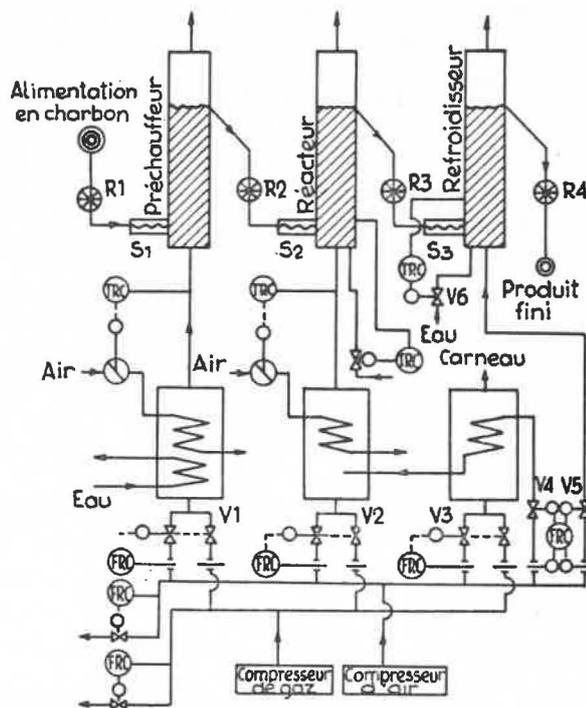


Fig. 1. — Schéma de l'installation pilote.

ne tiennent pas compte du dégagement de chaleur de la réaction d'oxydation. La réaction est, en fait, exothermique (2, 3, 4), mais pour les charbons particuliers à étudier l'importance de la chaleur d'oxydation n'était pas connue. Comme l'installation était une unité pilote, on décida de baser la conception sur une chaleur de réaction nulle.

Afin de ne pas avoir des réacteurs de diamètre excessif, le chauffage fut effectué en deux stades. Le premier récipient fut conçu pour permettre de porter la température du charbon à environ 200° C et le deuxième récipient fut conçu pour compléter le chauffage à des températures comprises dans l'intervalle de 250° C à 450° C. Le diagramme de circulation de l'unité pilote de plus grande dimension est représenté à la figure 1. Le plan de l'installation est basé sur une capacité nominale d'oxydation d'une tonne par heure. Les récipients de préchauffage, de réaction et de refroidissement fonctionnent suivant le principe du lit fluidisé.

Du charbon sec et fin est introduit en continu, en passant par la vanne rotative  $R_1$  formant joint pour le gaz et l'alimenteur à vis d'Archimède  $S_1$ , dans la colonne préchauffeur qui a 2 pieds (61 cm) de diamètre et où sa température est portée à la valeur voulue. Le charbon chauffé s'écoule par un tuyau de sortie latéral pour aller dans le réacteur qui a aussi 2 pieds de diamètre, en passant par la vanne rotative  $R_2$  et l'alimenteur à vis d'Archimède  $S_2$ . Dans le réacteur, le gaz fluidisant est un mélange de gaz de combustion et d'air. Le produit de l'oxydation est refroidi dans le récipient final jusqu'à une température sans danger pour le stockage, par fluidisation par l'air et injection directe d'eau dans le lit. La quantité d'air utilisée dans le récipient refroidisseur est telle que la pression partielle de la vapeur d'eau dans le gaz sortant est en-dessous de la tension de saturation à la température de marche. Cette méthode de refroidissement permet d'abaisser à environ 80° C la température du produit tout en le maintenant pratiquement sec. Le gaz inerte chaud pour le préchauffage est obtenu par la combustion de gaz de ville dans une chambre de combustion horizontale. Le gaz chaud contenant de l'oxygène est obtenu par mélange de gaz inerte, obtenu dans une chambre de combustion analogue, avec de l'air qui est préchauffé dans un réchauffeur indirect. Le rapport correct air/gaz aux brûleurs est réalisé au moyen des vannes jumelées  $V_1$ ,  $V_2$ ,  $V_3$  (fig. 1). Les débits de gaz et d'air sont maintenus par les enregistreurs-régulateurs de débit aux valeurs fixées à l'avance.

Comme on le voit par le diagramme de circulation, l'installation est complètement équipée en instruments de contrôle. Elle est commandée à partir d'un panneau central de commande. L'am-

ple système de contrôle et d'enregistrement automatique permet d'obtenir des données précises. Le contrôle de la température du réacteur présente un intérêt particulier, car on utilise deux contrôleurs de température. Le premier maintient le gaz fluidisant à une température légèrement supérieure à celle requise. Le deuxième maintient la température de réaction désirée, par l'introduction d'eau dans le lit fluidisé. Ce système permet de régler la température entre des limites très serrées et évite les difficultés dues au retard résultant de la grande masse de réfractaire qui existe le long du circuit du gaz depuis la chambre de combustion et dans la base du réacteur. La réaction d'oxydation s'est montrée être exothermique. En conséquence, il était nécessaire d'obtenir une correction rapide de toute élévation éventuelle de la température du réacteur, car sinon, l'élévation de température produisait une augmentation du taux d'oxydation avec un dégagement supplémentaire de chaleur correspondant. L'emploi de l'injection d'eau remédie à cette difficulté.

On a fait fonctionner l'installation pilote d'oxydation pendant de longues périodes et sur un large intervalle de températures et de durées de séjour du charbon. Jusqu'ici, les recherches ont été limitées au charbon ayant une teneur en matières volatiles d'environ 16 %. A l'échelle d'environ 1 t/h, on a établi que ce charbon peut être rendu convenable pour la fabrication d'agglomérés carbonisés. Le procédé est simple à faire fonctionner, peut être soumis au réglage automatique et n'est pas dans la zone critique en ce qui concerne les variables de marche. On a consacré une attention particulière au bilan thermique et aux besoins en oxygène, car ces données sont d'une importance primordiale dans l'établissement du projet d'unités industrielles d'oxydation.

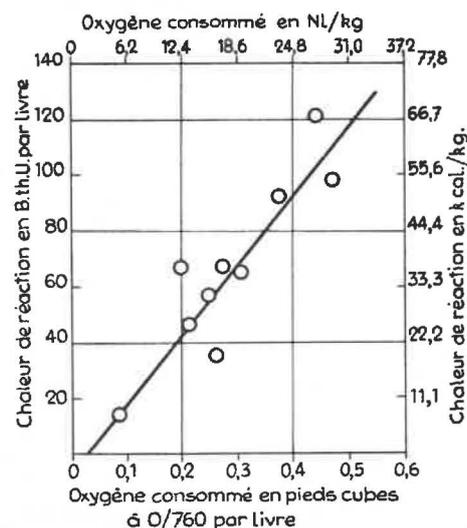


Fig. 2. — Chaleur dégagée par l'oxydation.

Comme on pouvait s'y attendre, la chaleur dégagée pendant la réaction varie avec la quantité d'oxygène consommée. Les indications obtenues pour la chaleur dégagée rapportée à la consommation d'oxygène sont données à la figure 2. Bien que la température et les durées de séjour pour les points individuels variaient largement, il y a une relation à peu près linéaire entre la chaleur exothermique et la consommation d'oxygène. La relation est quantitativement très semblable à celle obtenue précédemment pour des températures d'oxydation plus faibles 2, 3, 4). La consommation d'oxygène nécessaire pour rendre le charbon convenable pour la carbonisation n'est pas une valeur très critique. La valeur optimum pour l'échantillon particulier utilisé est d'environ 25 N. litres par kg de charbon. A ce degré d'oxydation, la chaleur exothermique est de 50 kcal/kg et ceci représente presque la moitié de la chaleur totale nécessaire. Pour ce charbon, il est donc possible de se dispenser du préchauffeur et l'on peut introduire le charbon directement dans le réacteur. On a fait fonctionner l'installation dans ces conditions.

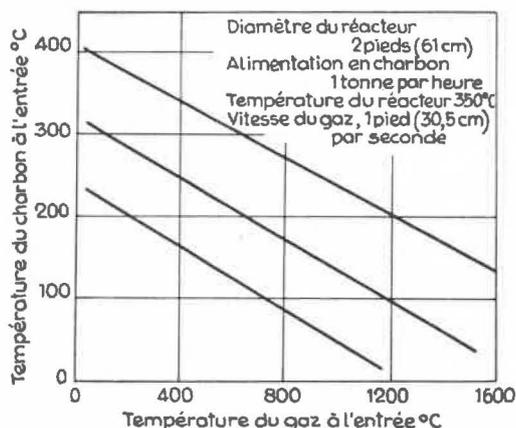


Fig. 5. — Effet de la chaleur d'oxydation sur les températures de préchauffage.

L'effet de la chaleur exothermique d'oxydation sur les besoins de chaleur est représenté à la figure 3, les conditions de marche étant rapportées à celles employées dans l'installation pilote. Les trois droites on trait à des chaleurs de réaction de zéro, 50 et 100 B.T.U. par livre (0, 27,7 et 55,5 kcal/kg) de charbon, respectivement. On peut abaisser substantiellement la température du gaz entrant, dans le réacteur, ou le taux de préchauffage du charbon, quand la chaleur d'oxydation est dans la région de 50 à 100 B.T.U. par livre (27,7 à 55,5 kcal/kg).

Pour des durées de séjour comprises dans l'intervalle de 20 à 40 min, la consommation d'oxygène est fonction de la température et indépendante du temps, comme le montre la figure 4, où les nombres inscrits représentent les durées de réaction. Ceci confirme les travaux antérieurs effectués

à des températures plus basses 2, 3, 4), suivant lesquels la vitesse d'oxydation décroît rapidement avec l'ampleur de l'oxydation. Ce facteur fait l'objet d'une étude ultérieure détaillée, car il a une répercussion importante sur l'aspect économique du procédé.

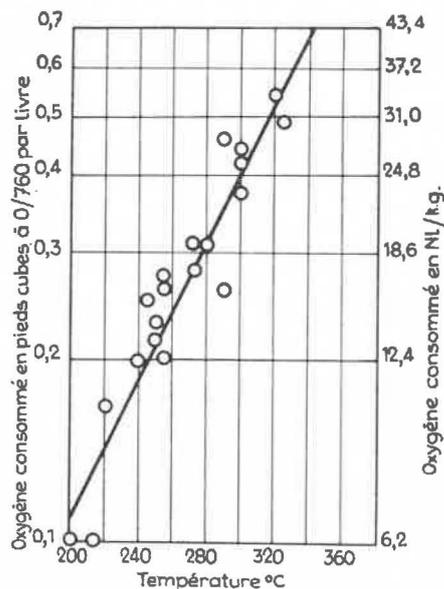


Fig. 4. — Influence de la température d'oxydation.

Comme la vitesse d'oxydation augmente rapidement avec la température, il est désirable, du point de vue de la capacité de traitement de l'installation, d'opérer à une température aussi élevée que possible. La tendance du travail actuel est orientée vers l'emploi de températures supérieures à celles auxquelles on considère normalement que se produit la décomposition thermique. On a trouvé, pour les charbons particuliers étudiés, que la décomposition thermique n'est pas importante aux durées de contact très courtes requises pour l'oxydation aux températures élevées.

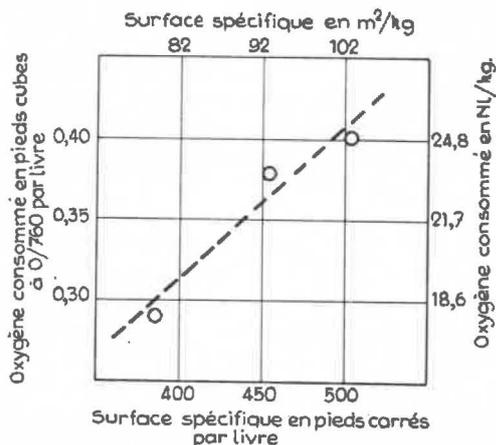


Fig. 5. — Influence de la granulométrie du charbon.

Un autre facteur qui influe sur la vitesse d'oxydation est la dimension des particules du charbon que l'on traite. Un charbon contenant 16 % de matières volatiles a été broyé à trois granulométries différentes et oxydé dans l'installation pilote, toutes les autres conditions du processus, y compris la durée de contact, étant identiques. La consommation d'oxygène par livre de charbon est représentée à la figure 5 en fonction de la surface spécifique du charbon. Bien que l'on n'ait pas suffisamment de données pour établir la corrélation de

façon précise, il est clair qu'une diminution de la dimension des particules permet d'employer des conditions de réaction moins sévères pour un même taux d'oxydation.

#### BIBLIOGRAPHIE.

1. — Coke and Gas, 1952, p. 5.
2. — WINMILL, Trans. Inst. Min. Engrs., Londres 1914, p. 508.
3. — GRAHAM, *ibid*, 1914-1915, p. 35.
4. — THOMAS, JONES et GRAHAM, Proc. S. Wales Inst. Engrs., 1933, p. 201 et 305.

## ETUDES SUR LA COKEFACTION DES AGGLOMERES EN ALLEMAGNE

par Dr.-Ing. Wilhelm REERINK, M. Inst. F.

(Steinkohlenbergbauverein, Essen).

Bien qu'on ait pratiqué depuis longtemps déjà, en Allemagne, le traitement thermique d'agglomérés de lignite, de houille et de mélange de houille et de minerais par distillation à basse température ou cokéfaction, l'emploi de ces procédés n'a pas pris, jusqu'à présent, en Allemagne Occidentale, un grand développement. Cela tient au fait que la proportion de charbon gras bien cokéfiable dans l'extraction allemande de charbon est sensiblement plus grande que dans d'autres pays. Il ne paraît donc pas opportun de pousser activement la fabrication de coke à partir de charbon à gaz faiblement ou pas agglutinants. Ce furent en premier lieu les industries minières des lignites de l'Allemagne Centrale et de la houille en Haute Silésie qui s'intéressèrent à la question, il y a déjà 20 ans, lorsque des ingénieurs allemands s'occupèrent de la fabrication de « coke moulu » (Formkoks) par cokéfaction d'agglomérés. Plus anciennement, on s'occupa aussi en Allemagne du procédé consistant à agglomérer certains minerais en mélange avec de la houille et à cokéfier ces agglomérés afin de transformer des minerais à granulométrie fine en minerais en morceaux et d'obtenir un mélange intime du minerai et du réductif. Entretemps, en différents endroits, on a aussi étudié comment on pourrait améliorer l'agglomération; en certains cas, on a fait des travaux de perfectionnement de grand style sur la cokéfaction d'agglomérés de charbon maigre.

Je traiterai brièvement des données de l'expérience acquise dont nous disposons, mais je ne parlerai pas des travaux relatifs à la distillation à basse température et à la cokéfaction des agglomérés de lignite, car il a déjà paru à ce sujet suffisamment de publications; en outre, ils ne doivent pas intéresser particulièrement les milieux qui s'occupent de la houille.

Je traiterai d'abord, dans ma conférence, quelques questions relatives à l'agglomération, puis les enseignements de l'expérience dont nous disposons en matière de cokéfaction d'agglomérés de charbon maigre et enfin les essais entrepris sur la cokéfaction d'agglomérés de charbon et de minerais.

#### I. — PROBLEME TECHNIQUE DE L'AGGLOMERATION

Différents travaux sur la cokéfaction d'agglomérés de houille et de mélanges de houille et de minerais ont montré que, pour la qualité de l'aggloméré cokéfié, les questions les plus importantes étaient, à côté des conditions de cokéfaction, la technique d'agglomération employée, la nature du liant utilisé et les paramètres physiques de la matière à agglomérer.

Lorsqu'on emploie du brai de goudron de houille normal à point de ramollissement de 65 à 75° C, comme celui employé normalement chez nous pour l'agglomération de la houille, le résidu de cokéfaction dans l'essai de cokéfaction au creuset four-nit, d'après notre expérience, une mesure tout à fait digne de confiance du comportement du liant au cours de la cokéfaction de l'aggloméré. Plus le résidu de cokéfaction du liant est élevé, meilleure est la valeur de la résistance atteinte au cours de la cokéfaction de l'aggloméré; toutefois il ne faut pas que l'augmentation du résidu de cokéfaction s'accompagne d'une élévation trop forte du point de ramollissement. Il est bien connu qu'il se produit des difficultés dans l'agglomération normale de la houille, lorsque le point de ramollissement du brai dépasse 75° C. Pour pouvoir néanmoins tirer entièrement profit de l'avantage du résidu élevé de cokéfaction dans le cas de matières premières particulièrement difficiles à agglomérer,