

See discussions, stats, and author profiles for this publication at: <https://www.researchgate.net/publication/350587811>

Influence of the combination of sonication and microwave irradiation on coal sulfur forms reduction

Conference Paper · February 2021

CITATIONS

0

READS

21

3 authors, including:



[Alireza Farazmand](#)

Islamic Azad University Tehran Science and Research Branch

1 PUBLICATION 0 CITATIONS

[SEE PROFILE](#)



[Sh. Mesroghli](#)

Islamic Azad University Tehran Science and Research Branch

23 PUBLICATIONS 745 CITATIONS

[SEE PROFILE](#)

Some of the authors of this publication are also working on these related projects:



Scientific coordinator of the first mineral processing conference in Iran. [View project](#)



نهمین کنفرانس مهندسی معدن ایران

و

ششمین کنگره بین المللی معدن و صنایع معدنی

۱۳۹۹ اسفندماه



انجمن مهندسی معدن ایران
Iranian Society of Mining
Engineering (IRSM)

تأثیر تلفیق پرتو دهی مایکروویو و مافوق صوت بر کاهش گونه های گوگرد زغال سنگ

علیرضا فرازمند^۱، شاهین مصراوغلی^{۲*} و بهرام رضایی^۳

۱. کارشناسی ارشد مهندسی معدن، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات تهران، alireza.farazmand@srbiau.ac.ir

۲. استادیار مهندسی معدن، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات تهران، sh.mesroghli@gmail.com

۳. استاد مهندسی معدن، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، b.rezai@aut.ac.ir

* نویسنده مسئول مکاتبات

کلمات کلیدی

چکیده

پرتو دهی

مایکروویو

مافوق صوت

گوگرد زغال سنگ

گوگردزدایی

زغال سنگ به عنوان یکی از سوخت های فسیلی از اهمیت بالایی در صنایع مختلفی مثل سیمان، فولاد و نیروگاه های برق برخوردار است و ارزش حرارتی آن هم از گذشته مورد توجه بوده است. گوگرد به عنوان یکی از ناخالصی های موجود در زغال سنگ در آلودگی محیط زیست، کاهش کیفیت فولاد و کاهش ارزش حرارتی تأثیر دارد و به همین علت تحقیقات زیادی برای کاهش انواع گوگرد زغال سنگ در جهان صورت گرفته است. با توجه به تحقیقات گذشته هر کدام از روش های پرتو دهی مایکروویو و مافوق صوت به شکل جداگانه برای کاهش گوگرد مورد بررسی قرار گرفته اما اثر هم افزایی تلفیق این دو روش پیش از گوگردزدایی شیمیایی بررسی نشده است. در این پژوهش بررسی تأثیر تلفیق پرتو دهی مایکروویو و مافوق صوت به عنوان یک روش پیش فرآوری بر گوگرد زغال سنگ پرگوگرد طبعی مورد بررسی قرار گرفت. شرایط بهینه گوگرد زدایی شیمیایی براساس مطالعات قبلی به صورت استفاده از عامل انحلال پراکسی استیک اسید در مدت زمان ۹۰ دقیقه و دما ۵۵ درجه سانتی گراد انتخاب گردید. پارامترهایی مثل زمان و توان مایکروویو و زمان و دما مافوق صوت به عنوان متغیرهای ورودی و میزان کاهش گوگرد کلی، پیریتی و آلی به عنوان خروجی مورد مطالعه قرار گرفت. مقدار گوگرد نمونه اولیه ۴/۷۲ درصد بوده که به ترتیب شامل ۲/۵ درصد گوگرد آلی، ۲/۰۶ درصد گوگرد پیریتی و ۰/۱۵ درصد گوگرد سولفات بوده است. طراحی آزمایش ها با نرم افزار Design Expert و با استفاده از روش پاسخ سطح در سه سطح انجام گرفت. نتایج بدست آمده کاهش ۶۷/۶۴ درصد گوگرد کلی، ۹۸/۴۰ درصد گوگرد پیریتی و ۴۷/۵۸ درصد گوگرد آلی را نشان داد. با توجه به مطالعات گذشته و مقایسه نتایج آن ها با مطالعه حاضر، تلفیق پرتو دهی مایکروویو و مافوق صوت باعث تخریب بیشتر ساختار گوگردهای پیریتی و آلی شده و در نتیجه تأثیر مثبتی فزاینده ای در کاهش گوگرد کلی زغال داشته است.



زغال سنگ به عنوان یکی از سوخت های فسیلی در کنار نفت و گاز از اهمیت بالایی برخوردار است و در نتیجه با توجه به کاربردهای آن به عنوان سوخت نیروگاه های حرارتی، زغال کک شو در صنایع فولاد و ... فرآوری و تبدیل آن به یک محصول با کیفیت مطلوب امری اجتناب ناپذیر است. یکی از چالش های مهم در استفاده از زغال سنگ، وجود ناخالصی های مختلفی مثل گوگرد، خاکستر، ترکیبات سلیکاته، کربناته، یون های فلزی سنگین است که علاوه بر کاهش کیفیت زغال سنگ باعث بروز مشکلات مختلف زیست محیطی می گردد. به منظور کاهش و جدایش گوگرد و خاکستر زغال سنگ مطالعات مختلفی صورت گرفته و روش های فیزیکی، شیمیایی و میکروبی مختلفی پیشنهاد شده است [۱]

گوگرد زغال سنگ به طور کلی به شکل گوگرد معدنی و آلی است. روش های مختلفی برای حذف گوگرد آلی، پیریتی و سولفاته از زغال سنگ وجود دارد که میتوان آن را به طور خلاصه در سه دسته فیزیکی (روش های ثقلی)، فیزیکی - شیمیایی (فلوتاسیون)، شیمیایی و بیوشیمیایی دسته بندی کرد. گوگرد پیریتی و سولفاته که در مجموع گوگرد معدنی گفته می شود توسط روش های فیزیکی و فیزیکی - شیمیایی به مقدار قابل توجهی قابل حذف است. اما گوگرد آلی بدلیل درگیری در ماتریکس زغال سنگ تنها به روش های شیمیایی و بیوشیمیایی و همینطور به همراه پیش فرآوری هایی مثل پرتو دهی مایکروویو و مافوق صوت قابل حذف است [۲][۳]. اثر پرتو دهی امواج مایکروویو و در ادامه

گوگرد زدایی با پروکسی استیک اسید روی نمونه های زغال پرگوگرد با روش احیای حرارتی مورد بررسی قرار گرفته است. نتایج نشان داده که گوگرد کلی، آلی و پیریتی به ترتیب ۶۳ درصد، ۴۹ درصد و ۸۴ درصد کاهش داشته است [۴]. نمونه های زغال طیس با پرتو دهی مایکروویو و لیچینگ اسیدی (پروکسی اسید استیک) مورد گوگرد زدایی قرار گرفت. اثر زمان پرتو دهی و توان آن و همچنین زمان واکنش پروکسی اسید استیک، دما و اندازه ذرات روی کاهش گوگرد مورد بررسی قرار گرفت. کاهش گوگرد پیریتی، آلی و کلی به ترتیب از ۲۶ به ۹۱ درصد، ۲/۶ به ۳۸ /۴ درصد، ۱۷ به ۶۵ درصد رسیده است. پرتو دهی مایکروویو اثر مثبتی روی گوگرد زدایی شیمیایی زغال در فراکسیون های زیر ۳۰۰ میکرون داشته است. [۵]

یک تحقیق تطبیقی بر روی اثر پرتو دهی مافوق صوت و گوگرد زدایی با پروکسی استیک اسید^۱ روی گونه های گوگرد در نمونه های زغال سنگ پرگوگرد طیس با روش احیای حرارتی^۲ در حضور گاز هیدروژن با دبی ثابت ۱۰۰ میلی لیتر در دقیقه و در فشار اتمسفر نیز انجام شد. نتایج نشان داده که گوگرد پیریتی و سولفاته به طور عمده حذف شده و گوگرد آلی به زمان پرتو دهی وابسته بوده و به طور موثری کاهش داشته است [۶]

در مطالعات گذشته که در بالا آورده شده هرکدام از روش های پرتو دهی به تنهایی مورد استفاده قرار گرفته است. تاثیر محدود تر و کاهش کمتر گوگرد زدایی به نسبت روش انجام شده در پژوهش حاضر که از تلفیق پرتو دهی مایکروویو و مافوق صوت برای تخریب ساختارهای گوگرد آلی و پیریتی استفاده شده به خوبی قابل مشاهده است.

در خصوص اهمیت و ضرورت انجام پژوهش حاضر، موارد زیر قابل ذکر است:

- گوگرد پیریتی از طریق روش های فیزیکی و فیزیکی - شیمیایی (فلوتاسیون) قابل حذف است اما گوگرد آلی باید از طریق گوگرد زدایی شیمیایی یا بیوشیمیایی توسط یک عامل لیچینگ مانند: انواع اسیدها یا بازها حذف شود.
- نیاز به استفاده از روش های پیش فرآوری برای کاهش گوگرد مخصوصا گوگرد آلی امری اجتناب ناپذیر است.
- با توجه به تحقیقات گذشته هرکدام از روش های پرتو دهی مایکروویو و مافوق صوت به شکل جداگانه برای کاهش گوگرد مورد بررسی قرار گرفته اما اثر هم افزایی تلفیق این دو روش پیش از گوگرد زدایی شیمیایی بررسی نشده است. [۳، ۷-۸]

۲- مواد و روش ها

به طور کلی روند انجام تحقیق از نمونه برداری و آماده سازی آن آغاز شد و با استفاده از نرم افزار دیزاین اکسپرت نسخه ۷ طراحی آزمایش براساس متغیرهای لازم پرتو دهی ها انجام گرفت. آزمایش ها شامل :

¹ Peroxyacetic acid (PAA)

² Reductive pyrolysis



۲-۱ نمونه برداری

جهت انجام پروژه از معدن شماره یک و مرکزی طبس مربوط به شرکت معدنی زغال سنگ پروده طبس حدود ۴۰ تا ۵۰ کیلوگرم نمونه ی پرگوگرد تهیه شد و در بسته بندی های مناسب جهت جلوگیری از هوازدگی به آزمایشگاه منتقل گردید. بعد از مخلوط کردن^۳ کل نمونه ها به صورت دستی و جدا سازی ۵۰٪ نمونه ها جهت نمونه رزرو و ۵۰٪ باقیمانده با چکش خردایش اولیه شد تا خوراک مناسب با ابعاد ورودی سنگ شکن فکی آزمایشگاهی را تولید نماید. سپس از سنگ شکن فکی جهت خردایش بیشتر و رساندن ابعاد به خوراک مناسب دستگاه پلورایزر (میکرونیزه کردن) استفاده گردید. با استفاده از دستگاه پلورایزر نمونه هایی با ابعاد زیر ۱۰۰ میکرون تولید گردید. و در پک های مختلف بسته بندی و شماره گذاری شد.

از آنجایی که در مطالعه حاضر و براساس مطالعات قبلی ابعاد زیر ۷۵ میکرون زغال سنگ جهت آزمایشات مورد نیاز است، نمونه های میکرونیزه شده جهت دانه بندی ۷۵- میکرون با سرنده ۲۰۰ مش الک شد و نمونه ی تهیه شده ی زیر ۷۵ میکرون جهت انجام آزمایشات پک و بسته بندی شد. جهت بهینه کردن آزمایشات و تحلیل دقیق نتایج از نرم افزار دیزاین اکسپرت^۴ ورژن ۷ استفاده گردید [۹-۱۰,۴] که با استفاده از روش پاسخ سطح (RSM)^۵ و با ۴ فاکتور دما و زمان اولتراسونیک و توان و زمان مایکروویو در سه سطح نرم افزار تعداد ۲۴ آزمایش با ۴ آزمایش میانی در مجموع تعداد ۲۸ آزمایش به ما پیشنهاد داد که پارامترهای موثر در آزمایشات همراه با سطوح در جدول (۱) و جدول (۲) نشان داده شده است.

جدول ۱ پارامترهای موثر و سطوح آن

شماره	پارامتر	سطح پایینی	سطح میانی	سطح بالایی	واحد
۱	زمان مایکروویو	۴	۶	۸	دقیقه
۲	توان مایکروویو	۳۰۰	۶۰۰	۹۰۰	وات
۳	زمان مافوق صوت	۱۰	۲۰	۳۰	دقیقه
۴	دما مافوق صوت	۴۰	۶۰	۸۰	سانتی گراد

۲-۲ شرح آزمایش ها

در این بخش روش انجام آزمایشات مربوط به پرتودهی مایکروویو، مافوق صوت و گوگرد زدایی شیمیایی با ذکر جزئیات بیان شده است.

۲-۲-۱ پرتودهی مایکروویو

جهت پرتودهی مایکروویو از دستگاه مایکروفر سامسونگ^۶ کره ای با فرکانس ۲/۴۵ گیگاهرتز و توان ۹۰۰ وات استفاده شد. نمونه ها به وزن ۱۶ گرم روی شیشه ساعت با ضخامت کمتر از یک سانتی متر پخش شد و پرتودهی با زمان و توان های مشخص شده در طراحی آزمایش انجام گرفت و سپس در دسیکاتور سرد شده و در پک هایی با لیبل مشخص بسته بندی شد.

³ Blending

⁴ Design Expert

⁵ Response Surface Methods

⁶ Samsung Microwave Oven – CE3280EB - Korea



جهت پرتودهی مافوق صوت از حمام اولتراسونیک^۷ WiseClean^۷ کره ای با فرکانس ۴۰ کیلو هرتز و دما متغیر از دمای محیط تا ۸۰ درجه سانتی گراد و زمان متغیر از ۰ تا ۶۰ دقیقه استفاده شد. نمونه های مایکروویو شده به نسبت مشخص با آب مقطر (۱۶ گرم نمونه با ۱۶۰ سی سی آب مقطر) مخلوط شده و در بشر ۲۵۰ سی سی آماده شد تا در حمام اولتراسونیک قرار بگیرد. براساس طراحی آزمایشی که انجام دادیم ۲۸ آزمایش با دما و زمان تعیین شده صورت گرفت و سپس بعد از فیلتر کردن نمونه در اون با دمای ۱۰۰ درجه سانتیگراد خشک شده و پک و بسته بندی شد.

جدول ۲ آزمایش های طراحی شده به صورت روش پاسخ سطح (RSM) با استفاده از نرم افزار DX7

توان مایکروویو (وات)	زمان مایکروویو (دقیقه)	زمان مافوق صوت (دقیقه)	دما مافوق صوت (سانتی گراد)	شماره آزمایش
۶۰۰	۶	۲۰	۶۰	۱
۶۰۰	۶	۲۰	۶۰	۲
۶۰۰	۶	۲۰	۴۰	۳
۹۰۰	۴	۳۰	۴۰	۴
۶۰۰	۴	۲۰	۶۰	۵
۹۰۰	۶	۲۰	۶۰	۶
۶۰۰	۶	۱۰	۶۰	۷
۳۰۰	۴	۳۰	۸۰	۸
۳۰۰	۶	۲۰	۶۰	۹
۹۰۰	۸	۳۰	۸۰	۱۰
۳۰۰	۸	۱۰	۴۰	۱۱
۳۰۰	۸	۳۰	۸۰	۱۲
۹۰۰	۸	۳۰	۴۰	۱۳
۳۰۰	۴	۳۰	۴۰	۱۴
۹۰۰	۴	۳۰	۸۰	۱۵
۶۰۰	۶	۲۰	۸۰	۱۶
۹۰۰	۴	۱۰	۴۰	۱۷
۳۰۰	۸	۱۰	۸۰	۱۸
۳۰۰	۸	۳۰	۴۰	۱۹
۶۰۰	۸	۲۰	۶۰	۲۰
۳۰۰	۴	۱۰	۴۰	۲۱
۹۰۰	۴	۱۰	۸۰	۲۲
۶۰۰	۶	۲۰	۶۰	۲۳
۹۰۰	۸	۱۰	۸۰	۲۴

⁷ Ultrasonic Cleaner Set – WUC-D10H - Korea



۶۰۰	۶	۳۰	۶۰	۲۵
۹۰۰	۸	۱۰	۴۰	۲۶
۶۰۰	۶	۲۰	۶۰	۲۷
۳۰۰	۴	۱۰	۸۰	۲۸

۲-۲-۳ گوگرد زدایی شیمیایی:

بعد از انجام پرتو دهی ها، نمونه های آماده شده جهت انجام لیچینگ شیمیایی استفاده گردید. براساس مطالعات قبلی صورت گرفته [۱۱،۵-۶] بهینه شرایط لیچینگ زغال سنگ پرگوگرد طبس با استفاده از استیک اسید انجام شد. شرایط بهینه: ۸ گرم نمونه با ۲۴۰ سی سی استیک اسید (مرک آلمان) ترکیب شده و روی همزن قرار داده می شود و با دور همزن (rpm) ۳۰۰ همزده می شود تا به دمای ۵۵ درجه سانتی گراد برسد، سپس ۸۰ سی سی آب اکسیژنه جهت اکسایش به مخلوط اضافه می شود و دمای ترکیب روی ۵۵ درجه ثابت نگه داشته می شود. روی بشر با شیشه ساعت پوشانده می شود تا شرایط ایزوله جهت جلوگیری از اتلاف گرما صورت گیرد. زمان انجام لیچینگ ۹۰ دقیقه بود و سپس ترکیب فوق بعد از اتمام لیچینگ فیلتر شده و جهت خشک شدن در اون با دمای ۸۰ تا ۱۰۰ درجه سانتی گراد قرار داده می شود سپس باقیمانده ی حاصل از لیچینگ وزن شد و میزان بازیابی محاسبه گردید. در انتها پک و بسته بندی گردید.

۲-۳ دستورالعمل آنالیز گوگرد کلی، سولفات، پیریتی و آلی

جهت آنالیز میزان گوگرد در زغال سنگ استاندارد های مختلفی مثل ASTM^۸ و ISO^۹ وجود دارد که در این تحقیق از روش ISO 334 جهت تعیین گوگرد کلی، پیریتی و سولفات در زغال سنگ استفاده شده است [۱۲].

۳- تحلیل و بررسی نتایج

۳-۱ مشخصات نمونه اولیه و نمونه گوگرد زدایی شده بدون پرتو دهی: در ابتدا مشخصات نمونه خام اولیه و نمونه گوگرد زدایی شده بدون پرتو دهی آورده می شود و در ادامه نتایج آنالیز آزمایشات طراحی شده توسط نرم افزار DX7 آورده شده و به تحلیل و بررسی آن به کمک نرم افزار پرداخته می شود. مشخصات نمونه اولیه در جدول (۳) آورده شده است.

جدول ۳ مشخصات نمونه اولیه

گوگرد سولفات (%)	گوگرد آلی (%)	گوگرد پیریتی (%)	گوگرد کلی (%)	مواد فرار (%)	خاکستر (%)	رطوبت (%)
۰/۱۵	۲/۵۰	۲/۰۶	۴/۷۲	۲۵/۱۶	۱۰/۶۹	۰/۵۷۵

مشخصات نمونه گوگرد زدایی شده بدون پرتو دهی در جدول (۴) آورده شده است.

جدول ۴ مشخصات نمونه گوگرد زدایی شده بدون پرتو دهی

گوگرد سولفات (%)	گوگرد آلی (%)	گوگرد پیریتی (%)	گوگرد کلی (%)	مواد فرار (%)	خاکستر (%)	رطوبت (%)
۰	۱/۹۹	۰/۸۰	۲/۷۹	۲۴/۴۳	۴/۷۶	۰/۵۶۵

۲-۳ درصد کاهش گوگرد: با توجه به نتایج بدست آمده میزان کاهش انواع گوگرد به صورت درصد به وسیله معادله زیر محاسبه گردید که نتایج آن در جدول (۵) ارائه شده است [۱۳].

^۸ American Society for Testing and Materials

^۹ International Standard Organization



نهمین کنفرانس مهندسی معدن ایران

و

ششمین کنگره بین المللی معدن و صنایع معدنی

۱۳ آبان ماه ۱۳۹۹



انجمن مهندسی معدن ایران
Iranian Society of Mining
Engineering (IRISME)

$$\text{معادله ۱} \quad \text{درصد کاهش گاوگرد} = \frac{\left(\frac{\text{میزان گاوگرد پس از لیچینگ}}{\text{میزان گاوگرد اولیه}} - 1 \right) \times 100}{\text{میزان گاوگرد اولیه}} \times 100$$

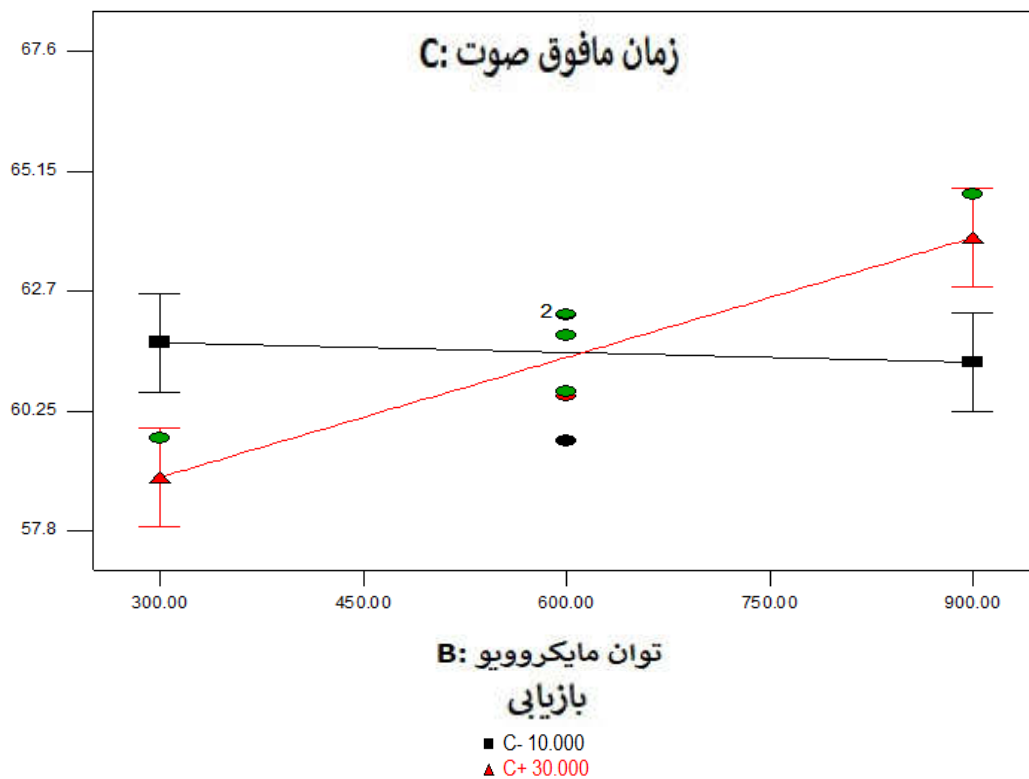
جدول ۵ درصد کاهش انواع گاوگرد در هر آزمایش

شماره آزمایش	درصد کاهش گاوگرد کلی (%)	درصد کاهش گاوگرد پیریتی (%)	درصد کاهش گاوگرد آلی (%)	درصد کاهش گاوگرد سولفات‌ها (%)
۱	۶۲/۲۲	۹۶/۲۱	۳۲/۰۱	۱۰۰
۲	۶۱/۸۰	۹۴/۵۸	۳۲/۵۶	۱۰۰
۳	۶۲/۴۸	۸۸/۴۹	۳۸/۸۷	۱۰۰
۴	۶۵/۷۵	۸۹/۸۴	۴۳/۹۱	۱۰۰
۵	۶۲/۲۷	۹۶/۲۶	۳۲/۰۷	۱۰۰
۶	۶۴/۶۸	۸۵/۲۵	۴۵/۶۸	۱۰۰
۷	۵۹/۶۱	۹۲/۲۱	۳۰/۳۹	۱۰۰
۸	۵۸/۷۲	۹۶/۳۰	۲۵/۳۳	۱۰۰
۹	۵۹/۷۱	۸۸/۵۸	۳۳/۵۶	۱۰۰
۱۰	۶۶/۳۶	۹۳/۱۵	۴۲/۳۴	۱۰۰
۱۱	۶۳/۸۲	۸۶/۲۴	۴۳/۲۴	۱۰۰
۱۲	۶۵/۷۵	۹۶/۷۸	۳۸/۱۹	۱۰۰
۱۳	۶۷/۵۴	۹۳/۰۴	۴۴/۶۶	۱۰۰
۱۴	۵۹/۰۴	۹۲/۷۰	۲۸/۹۰	۱۰۰
۱۵	۶۲/۰۱	۹۲/۰۲	۳۵/۰۷	۱۰۰
۱۶	۶۰/۰۰	۹۲/۶۷	۳۰/۷۳	۱۰۰
۱۷	۶۶/۶۴	۸۷/۴۴	۴۷/۵۸	۱۰۰
۱۸	۶۲/۰۴	۸۹/۸۳	۳۶/۹۳	۱۰۰
۱۹	۵۹/۹۴	۹۳/۴۴	۲۹/۹۹	۱۰۰
۲۰	۶۵/۷۴	۹۸/۴۰	۳۶/۸۴	۱۰۰
۲۱	۶۴/۱۵	۹۰/۶۶	۴۰/۲۲	۱۰۰
۲۲	۵۸/۹۶	۹۰/۰۹	۳۰/۹۰	۱۰۰
۲۳	۶۰/۶۵	۹۳/۹۲	۳۰/۹۳	۱۰۰
۲۴	۶۱/۷۹	۹۱/۳۳	۳۵/۲۱	۱۰۰
۲۵	۶۰/۵۵	۹۳/۸۹	۳۰/۷۷	۱۰۰
۲۶	۶۴/۶۲	۹۰/۰۷	۴۱/۵۹	۱۰۰
۲۷	۶۲/۲۲	۹۲/۱۷	۳۵/۳۴	۱۰۰
۲۸	۶۴/۸۹	۹۵/۵۷	۳۷/۵۷	۱۰۰

تأثیر اندرکنش توان میکروویو و زمان مافوق صوت

در شکل ۱ تأثیر اندرکنش توان میکروویو و زمان مافوق صوت مشاهده می گردد. در بیشترین زمان پرتو دهی مافوق صوت (منحنی قرمز رنگ مثلثی) با افزایش توان میکروویو میزان کاهش گوگرد کلی افزایش می یابد. اما در کمترین زمان پرتو دهی مافوق صوت (منحنی سیاه رنگ مستطیلی) با افزایش توان میکروویو تغییر چندانی در کاهش گوگرد رخ نداده است.

اندرکنش



شکل ۱ تأثیر اندرکنش توان میکروویو و زمان مافوق صوت بر کاهش گوگرد کلی
(زمان میکروویو = ۶ دقیقه، دما مافوق صوت = ۶۰ درجه سانتی گراد)

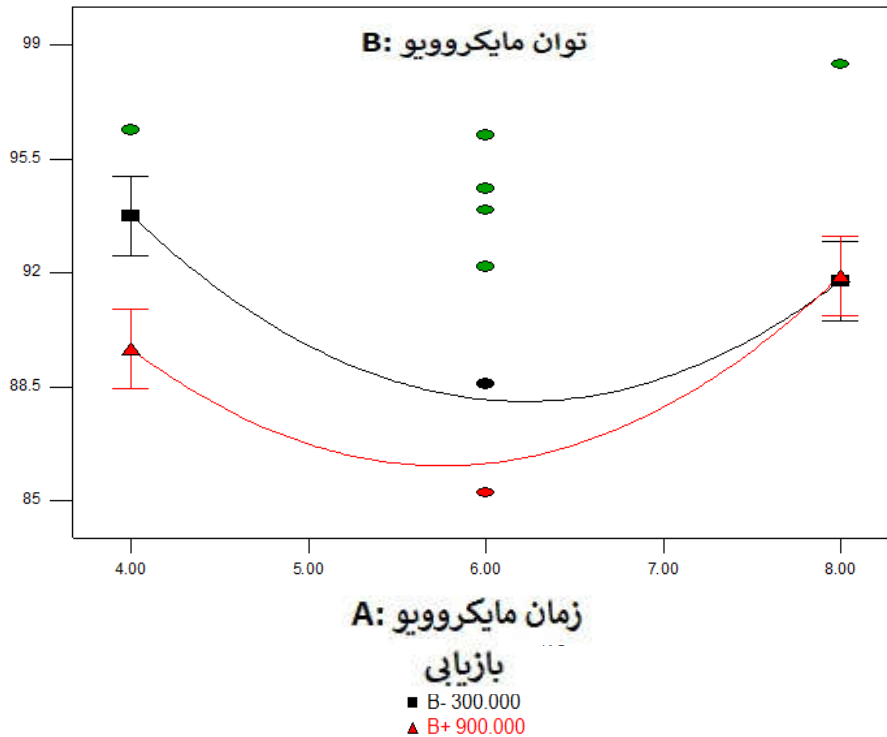
همانطور که مشاهده می گردد در حالت اول (توان ۳۰۰ وات) اختلاف ۳ درصدی بین کمینه و بیشینه زمان مافوق مشاهده می گردد در حالیکه با افزایش توان میکروویو و رسیدن به حالت دوم (توان ۹۰۰ وات) این اختلاف حدوداً ۳ درصدی به شکل عکس دیده می شود یعنی در بیشینه زمان مافوق تأثیر مثبت اندرکنش افزایش توان میکروویو را بر کاهش گوگرد کلی شاهد هستیم. با توجه به اینکه زمان مافوق صوت از ۱۰ دقیقه به ۳۰ دقیقه افزایش یافته است. فرآیند اکسیداسیون پیشرفته (AOP^{۱۰}) رخ می دهد [۱۴][۱۵]. بنابراین اکسیداسیون گوگردی بیشتری در زغال سنگ رخ داده است. می توان چنین نتیجه گیری کرد که گونه های ساده ی گوگردی بیشتری تولید شده که با عامل گوگردزایی به راحتی کاهش پیدا کرده است.

¹⁰ AOP: Advanced Oxidation Process

تأثیر اندرکنش زمان و توان مایکروویو

در شکل ۲ تأثیر اندرکنش زمان و توان مایکروویو مشاهده می گردد. در بیشترین توان پرتو دهی مایکروویو (منحنی قرمز رنگ مثلثی) با افزایش زمان مایکروویو میزان کاهش گوگرد پیریتی اندکی افزایش می یابد. اما در کمترین توان پرتو دهی مایکروویو (منحنی سیاه رنگ مستطیلی) با افزایش زمان مایکروویو کاهش اندکی در میزان کاهش گوگرد پیریتی رخ داده است.

اندرکنش



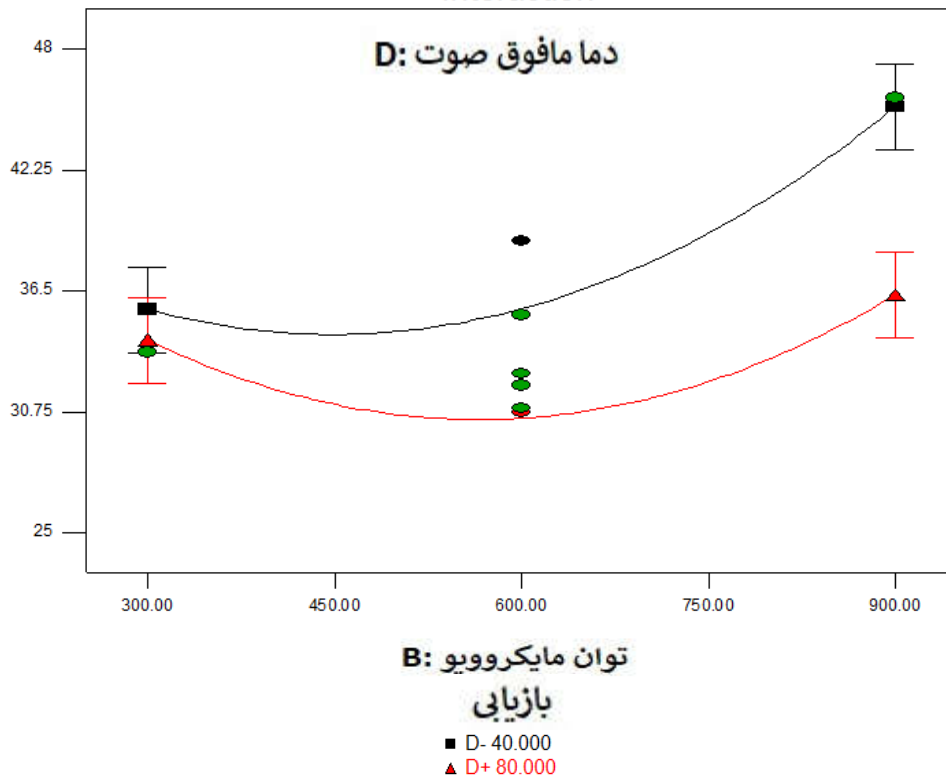
شکل ۲ تأثیر اندرکنش زمان و توان مایکروویو بر کاهش گوگرد پیریتی
(زمان مافوق صوت = ۲۰ دقیقه، دما مافوق صوت = ۶۰ درجه سانتی گراد)

در حالت اولیه (زمان ۴ دقیقه) تأثیر مثبت توان ۳۰۰ وات به روشنی دیده می شود و اختلاف ۵ درصدی بین کمینه و بیشینه توان مایکروویو در این حالت دیده میشود. در حالیکه رفته رفته با افزایش زمان مایکروویو این اختلاف به حداقل رسیده است. در اندرکنش بین زمان و توان مایکروویو این نکته حائز اهمیت است که افزایش توان پرتو دهی مایکروویو تأثیر چندانی در کاهش گوگرد پیریتی نشان نداده، از سوی دیگر اندرکنش بین زمان و توان در توان های پایین نقش تأثیر گذارتری در کاهش گوگرد پیریتی داشته است.

تأثیر اندرکنش توان مایکروویو و دما مافوق صوت

در شکل ۳ تأثیر اندرکنش توان مایکروویو و دما مافوق صوت مشاهده می گردد. در بیشترین دما پرتو دهی مافوق صوت (منحنی قرمز رنگ مثلثی) با افزایش توان مایکروویو میزان کاهش گوگرد آلی به میزان خیلی کمی افزایش داشته است. اما در کمترین دما پرتو دهی مافوق صوت (منحنی سیاه رنگ مستطیلی) با افزایش توان مایکروویو افزایش چشمگیری در کاهش گوگرد آلی دیده می شود.

اندرکنش



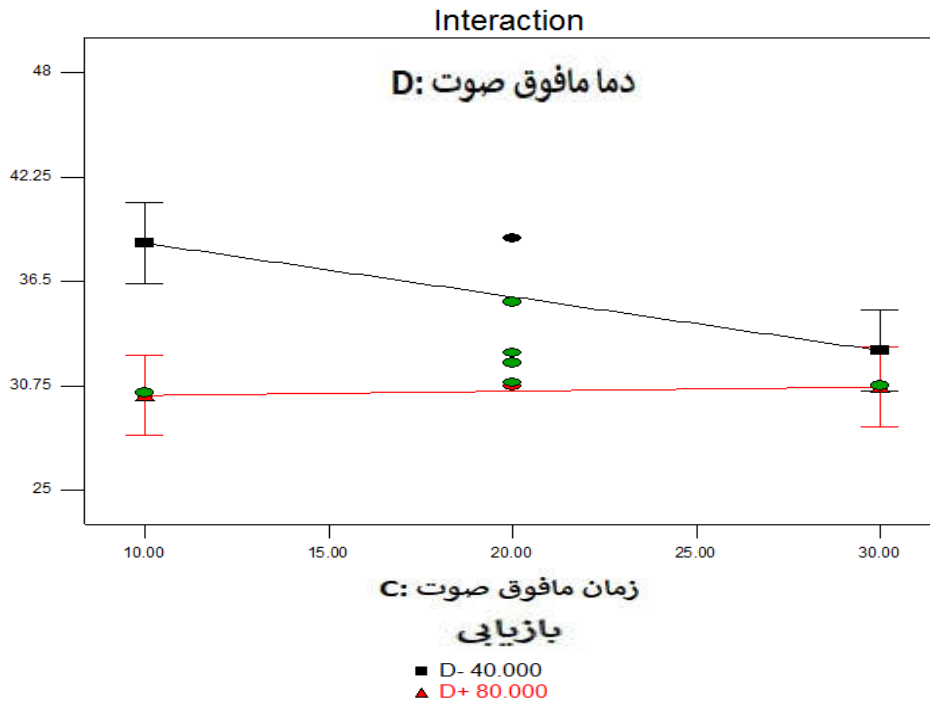
شکل ۳ تأثیر اندرکنش توان مایکروویو و دما مافوق صوت بر کاهش گوگرد آلی
(زمان مایکروویو= ۶ دقیقه، زمان مافوق صوت= ۲۰ دقیقه)

در حالت اول (۳۰۰ وات) اختلاف ناچیز و قابل چشم پوشی بین کمینه و بیشینه دما مافوق صوت دیده می شود که رفته رفته با افزایش توان مایکروویو در حالت دوم (۹۰۰ وات) این اختلاف زیاد شده است. با افزایش توان مایکروویو، گونه های پیچیده تر گوگرد آلی به گونه های ساده تر تبدیل شده است. در ادامه می توان به نقش منفی افزایش دما مافوق صوت در کاهش گوگرد آلی اشاره کرد.

تأثیر اندرکنش زمان مافوق صوت و دما مافوق صوت

در شکل ۴ تأثیر اندرکنش زمان مافوق صوت و دما مافوق صوت مشاهده می گردد. در بیشترین دما پرتو دهی مافوق صوت (منحنی قرمز رنگ مثلثی) با افزایش زمان مافوق صوت میزان کاهش گوگرد آلی تغییری نمی کند اما در کمترین دما پرتو دهی مافوق صوت (منحنی سیاه رنگ مستطیلی) با افزایش زمان مافوق صوت میزان کاهش گوگرد آلی باید و روند نزولی دارد.

اندرکنش



شکل ۴ تاثیر اندرکنش زمان مافوق صوت و دما مافوق صوت بر کاهش گوگرد آلی
(زمان میکروویو = ۶ دقیقه، توان میکروویو = ۶۰۰ وات)

در حالت اول (زمان ۱۰ دقیقه) در مقایسه بین کمینه دما (۴۰ درجه سانتی گراد) و بیشینه دما (۸۰ درجه سانتی گراد) اختلاف زیادی دیده می شود و نقش منفی دمای زیاد مافوق صوت واضح است که می توان گفت در دما ۴۰ درجه سانتی گراد مافوق صوت با افزایش زمان پرتوهای مافوق صوت گونه های ساده آلی تبدیل به گونه های پیچیده تر شده پس در نتیجه ما شاهد روندی نزولی در میزان کاهش گوگرد آلی هستیم. اما از طرفی در دمای ۸۰ درجه سانتی گراد گونه های پیچیده آلی تقریباً دچار تغییری نشده است و در نتیجه تغییری در روند کاهش گوگرد آلی دیده نمی شود.

۴- نتیجه گیری

- با بررسی نتایج بدست آمده معلوم گردید که کاهش ۶۷/۶۴٪ گوگرد کلی، ۹۸/۴۰٪ گوگرد پیریتی و ۴۷/۵۸٪ گوگرد آلی به دست آمده است.
- براساس مطالعات انجام شده در کاهش گوگرد کلی پارامترهای زمان و توان میکروویو تاثیر مثبت داشته که ناشی از تاثیر مستقیم پرتوافکنی میکروویو بر اجزای با ثابت دی الکتریک بالا همچون گوگرد پیریتی بوده است. می توان انتظار داشت که ساختار گوگرد پیریتی در زغال سنگ تخریب شده و امکان کاهش آن توسط عامل گوگردزدایی افزایش یافته است. پارامتر زمان مافوق بی تاثیر بوده و دما مافوق تاثیر منفی داشته است.
- در کاهش گوگرد پیریتی پارامترهای زمان میکروویو تاثیر مثبت داشته و توان میکروویو ابتدا روندی مثبت داشته و سپس تاثیر منفی نشان داده است که می توان گفت با افزایش توان میکروویو از ۳۰۰ وات تا ۶۰۰ وات گوگرد بیشتری در معرض تخریب قرار گرفته است و با ایجاد درز و شکاف ها در زغال سنگ، امکان دسترسی عامل گوگردزدایی را برای انحلال بیشتر گوگرد پیریتی



افزایش داده است. اما از توان ۶۰۰ وات تا ۹۰۰ وات روند نزولی شده است که احتمال وجود لایه ای غیر فعال که در سطح گوگرد تشکیل شده است را افزایش می دهد. پارامتر زمان و دما مافوق تاثیر مثبت داشته است

- در کاهش گوگرد آلی پارامترهای زمان و توان مایکروویو به طور کلی تاثیر مثبت داشته چرا که امکان تبدیل گونه های آلی از نوع پیچیده به ساده (ترکیبات تیوفن به سولفون و سولفوکساید) وجود دارد که این امر با روند افزایشی در کاهش گوگرد آلی قابل توجه است و پارامتر زمان و دما مافوق تاثیر منفی داشته است عکس عمل کرده اند یعنی امکان تبدیل ترکیبات ساده به پیچیده وجود دارد.
- همچنین اندرکنش زمان مایکروویو و توان مایکروویو، زمان مایکروویو و زمان مافوق صوت، زمان مایکروویو و دما مافوق صوت، توان مایکروویو و زمان مافوق صوت، توان مایکروویو و دما مافوق صوت، زمان مافوق صوت و دما مافوق صوت مورد بررسی قرار گرفت.

منابع:

- [۱] ببران، پیمان، "بررسی حذف انواع گوگرد زغال سنگ با استفاده از ترکیب اسیدهای آلی و معدنی (مطالعه موردی زغال سنگ طبس)،" پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات، ۱۳۹۵.
- [2] X. Xu, C. Chen, H. Qi, R. He, C. You, and G. Xiang, "Development of coal combustion pollution control for SO₂ and NO_x in China," *Fuel Process. Technol.*, vol. 62, no. 2-3, pp. 153-160, 2000.
- [۳] رضایی، بهرام، "تکنولوژی زغال شویی"، چاپ دوم. انتشارات دانشگاه صنعتی امیرکبیر، ۱۳۹۴.
- [4] S. Mesroghli *et al.*, "Changes and removal of different sulfur forms after chemical desulfurization by peroxyacetic acid on microwave treated coals," *Fuel*, vol. 154, no. April, pp. 59-70, 2015.
- [5] E. Jorjani, B. Rezai, M. Vossoughi, and M. Osanloo, "Desulfurization of Tabas coal with microwave irradiation/ peroxyacetic acid washing at 25, 55 and 85 °C," *Fuel*, vol. 83, no. 7-8, pp. 943-949, 2004.
- [6] S. Mesroghli, J. Yperman, G. Reggers, E. Jorjani, and R. Carleer, "Impacts of sonication and post-desulfurization on organic sulfur species by reductive pyrolysis," *Fuel*, vol. 183, no. November, pp. 278-291, 2016.
- [۷] رضایی، بهرام، پیش تغلیظ و پرعیارسازی فیزیکی در فرآوری مواد معدنی. چاپ اول. جهاد دانشگاهی واحد صنعتی امیرکبیر، ۱۳۹۴.
- [8] J. Mi, J. Ren, J.-C. Wang, W.-R. Bao, and K.-C. Xie, "Ultrasonic and Microwave Desulfurization of Coal in Tetrachloroethylene," *Energy Sources, Part A Recover. Util. Environ. Eff.*, vol. 29, no. 14, pp. 1261-1268, 2007.
- [9] M. J. Anderson and P. J. Whitcomb, *RSM simplified: optimizing processes using response surface methods for design of experiments*. Productivity press, 2016.
- [10] S. Mesroghli, J. Yperman, E. Jorjani, R. Carleer, and M. Noaparast, "Evaluation of microwave treatment on coal structure and sulfur species by reductive pyrolysis-mass spectrometry method," *Fuel Process. Technol.*, vol. 131, pp. 193-202, 2015.
- [11] S. R. Palmer, E. J. Hippo, and X. A. Dorai, "Selective oxidation pretreatments for the enhanced desulfurization of coal," *Fuel*, vol. 74, no. 2, pp. 193-200, 1995.
- [12] "Iso 334. International Standard," 1992.
- [13] M. Abdollahy, A. Z. Moghaddam, and K. Rami, "Desulfurization of mezino coal using combination of 'flotation' and 'leaching with potassium hydroxide/methanol,'" *Fuel*, vol. 85, no. 7-8, pp. 1117-1124, 2006
- [14] K. S. Suslick, "The chemical effects of ultrasound," *Sci. Am.*, vol. 260, no. 2, pp. 80-87, 1989.
- [15] O. Lindstrom and O. Lamm, "The Chemical Effects Produced by Ultrasonic Waves.," *J. Phys. Chem.*, vol. 55, no. 7, pp. 1139-1146, 1951.

Influence of the combination of sonication and microwave irradiation on coal sulfur forms reduction

Alireza Farazmand¹, Shahin Mesroghli^{2*} and Bahram Rezaei³

1 M.Sc, Department of Mining Engineering, Faculty of Engineering, Science and Research Branch of Islamic Azad University, Tehran, Iran, alireza.farazmand@srbiau.ac.ir

2 Assistant Professor, Department of Mining Engineering, Faculty of Engineering, Science and Research Branch of Islamic Azad University, Tehran, Iran, Sh.mesroghli@gmail.com

3 Professor, Department of Mining and Metallurgical Engineering, Amirkabir University of Technology, Tehran, Iran, B.Rezaei@aut.ac.ir

* Corresponding Author

Abstract

Coal as one of fossil fuels is very important in various industries such as cement, steel and power plants and Its thermal value has been considered for many years. Sulfur, as one of the impurities in coal, has detrimental effect on environmental, quality of steel and thermal value. According to previous research, each of the microwave and ultrasonic irradiation methods has been studied separately to reduce sulfur, but the synergistic effect of combining these two methods before chemical desulfurization has not been investigated. In this study, the effect of combined microwave and ultrasonic irradiation as a pre-processing method on the sulfur content of Tabas coal was considered. Time and power of microwave irradiation, and time and temperature of ultrasonic were considered as independent variables and reduction of total, pyritic and organic sulfur were considered as response or dependent variables. The amount of sulfur in the raw sample was 4.72%, which consisted of 2.5% organic sulfur, 2.06% pyritic sulfur and 0.15% sulfate sulfur. Design experiment was performed with Design Expert software by surface response method at three levels. The results showed a decrease of 67.64% total sulfur, 98.4% sulfur pyrite and 47.58% organic sulfur. According to previous studies and comparing their results with the present study, the combination of microwave and ultrasound radiation has further destroyed the structure of pyrite and organic sulfur and as a result has had an increasingly positive effect on reducing coal sulfur.

Keywords

Irradiation
Microwave
Ultrasonic
Coal Sulfur
Desulfurization