

Porous Silicon Carbide Candle-Type Filters (IGCC) by Extrusion

Zhuxing Tang, Xia Zao

1.Dept. of materials science and engineering, Shandong University of Technology, Zibo 255049, China;

2.Shandong province engineering & technology research center of ceramic matrix composites, Zibo 255049, China

Abstract: in this paper, the Porous silicon carbide candle-type filters (IGCC) have been prepared by extrusion. The effects of binder type and content on the physic properties of porous silicon carbide candle filter. The result is , the porosity 35%~41%, the strength 60~70Mpa. The results foreshadow that silicon carbide filter fabricated through the control of porosity and strength can be applicable for the PFBC or IGCC system successfully

Key word: extrusion, porous ceramic filter, hot gas silicon, PFBC、IGCC

整体煤气化联合循环发电(IGCC)用多孔陶瓷滤芯的研制

唐竹兴, 赵霞

1.山东理工大学材料科学与工程学院, 淄博 255049;

2.山东省陶瓷基复合材料工程技术研究中心, 淄博 255049

摘 要: 本文研究了挤出成型整体煤气化联合循环发电用碳化硅多孔陶瓷滤芯的制备工艺技术, 及不同添加剂种类和含量对过滤元件物理性能的影响。结果表明: 碳化硅过滤元件的气孔率可达 35%~41%, 强度为 60~70MPa, 可以满足 PFBC、IGCC 和煤炭气化系统装置对过滤器气孔率和强度的要求。

关键词: 挤出成型, 多孔陶瓷过滤器, 热气体, 碳化硅, PFBC, IGCC

1 前言

洁净煤发电技术对煤炭的利用率高, 对环境无污染, 得到广泛关注。所用碳化硅多孔陶瓷滤芯, 适用于先进洁净煤发电技术中作为高温煤气的过滤, 如 PFBC (pressurized fluidized-bed combustion)、IGCC (integrated gasification combined cycle) 和高温煤炭气化装置等。为了降低阻力, 过滤元件采用膜层结构, 通过制备工艺控制, 提高通气性有效降低压降, 提高高温煤气的净化效率。

在高温气体过滤过程中, 多孔陶瓷过滤器处在蒸汽、尘埃、压力及气体腐蚀的环境中, 需要过滤元件具有较高的机械强度、耐高温能力及使用持久性^[10-13]。例如, 在 PFBC 系统中, 温度可达到 800~900℃, 压力为 8~10 个大气压, 处于有害气体, 如, SO₂, CO, NO 和 NO₂ 的环境中。因此, 还要求多孔陶瓷过滤器具有较高的耐热腐蚀能力。

本研究是采用挤出成型技术制备烛状碳化硅多孔陶瓷过滤器, 并对陶瓷过滤器的气孔率、强度进行了表征。

2 实验

将 180μm 的碳化硅粉体与无机粘结剂、有机粘

结剂和水均匀混合, 采用挤出成型技术制备尺寸为 060mm×040mm×1600mm 的碳化硅多孔陶瓷管, 然后采用双向挤压机成型成一端带法兰, 另一端封堵的碳化硅多孔陶瓷过滤元件。通过控制碳化硅粒度大小、泥料的可塑性和无机粘结剂的加入量达到控制多孔陶瓷的收缩率、气孔率和强度的目的。

采用挤出成型技术制备的碳化硅多孔陶瓷过滤元件如图 1 所示。

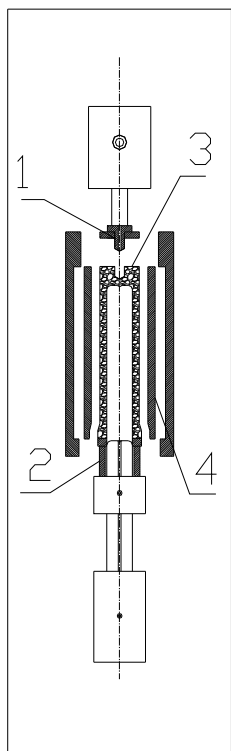
碳化硅多孔陶瓷过滤元件强度采用三点弯曲强度试验测定, 式样尺寸为: 长×宽厚度 2.54cm), 断裂速度为 3mm/min。测定显微结构采用扫描电子显微镜 (SEM, XL-30, Philips, Netherlands) 表征。烧成采用工业用 3M³ 梭式窑。烧成制品如图 2 所示, 性能如表 1 所示。

3 结果与讨论

3.1 结合剂含量对制品收缩率的影响

本研究采用的结合剂为粘土、氢氧化铝和氧化铝, 结合剂对制品收缩率的影响主要表现在成型阶段, 其次是烧成阶段。图 3 为制品在轴向方向上的总收缩率与结合剂含量之间的关系。从图 3 可以看

出, 结合剂的增加对泥料的塑性影响较大, 由于粘土的溶胀性显著, 在相同条件下, 其泥料的塑性比另外两种结合剂的高, 导致收缩率比另外两种大。



1.上挤压头 2.下挤压头 3.多孔陶瓷过滤元件 4.双向挤压机外模

图 1 双向挤压机及碳化硅多孔陶瓷生坯

(生坯尺寸 $\varnothing 60\text{mm} \times \varnothing 40\text{mm} \times 1600\text{mm}$)

Fig.1 Porous silicon carbide candle-type filter green body by hot-casting

(Green body size : $\varnothing 60\text{mm} \times \varnothing 40\text{mm} \times 1600\text{mm}$)



图 2 挤出成型碳化硅多孔陶瓷滤芯

Fig. 2 Porous silicon carbide candle-type filter by hot-casting

表 1 碳化硅多孔陶瓷滤芯物理性能

Table 1 Physic propertis of Porous silicon carbide candle-type filter

抗强度 (Mpa.)	气孔率 (%)	平均孔径 (μm)	收缩率 (%)
66.2 ± 5.2	35.3 ± 2	45	4.35
(支撑体)			

在烧成阶段, 由于粘土的熔点比另外两种结合剂的熔点都低, 从图 4 可以看出以粘土作为结合剂时的制品其收缩率变化较大。

当结合剂为氢氧化铝时, 在相同条件下, 其泥料的塑性、坯体收缩小比粘土的低。在烧成阶段, 由于氢氧化铝在 $450 \sim 800^\circ\text{C}$ 产生热分解, 产生较大的收缩, 因此, 当加入量小于 10% 时其总收缩略大于粘土。

当结合剂为氧化铝时, 在相同条件下, 其泥料的塑性、坯体收缩和烧成收缩比粘土、和氢氧化铝的都低。这是因为氧化铝耐高温较高, 加入量较小时, 与烧成过程中碳化硅氧化形成二氧化硅结合形成莫来石, 使收缩率略有增大, 随着加入量的增加, 烧结程度降低, 从而收缩率降低。

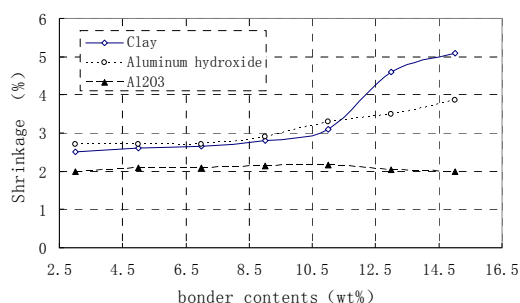


图 3 结合剂含量与制品收缩率的关系

(烧成温度为 $1370^\circ\text{C} \times 3\text{h}$; 固体含量为 40vol%)

Fig.3 the relationship between the binder content and the Shrinkage of Porous silicon carbide candle-type filter

(sintered at $1370^\circ\text{C} \times 3\text{h}$; solid content: 40vol%)

3.2 结合剂含量对制品强度的影响

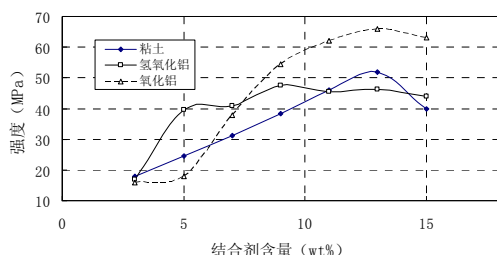


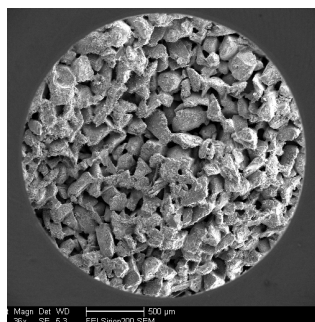
图 4 结合剂含量与制品强度的关系

(烧成温度为 $1370^{\circ}\text{C} \times 3\text{h}$; 固体含量为 40vol%)

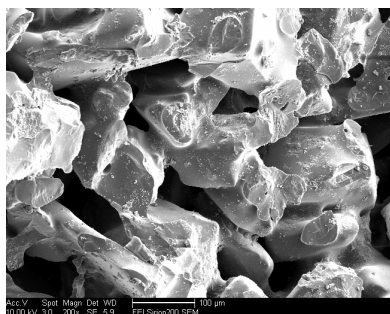
Fig.4 the relationship between the binder content and the Strength of Porous silicon carbide candle-type filter

(sintered at $1370^{\circ}\text{C} \times 3\text{h}$; solid content:40vol%)

如图 4 所示,粘土作为结合剂时,随着加入量的增加,强度不断增加。这是因为在 1370°C 的温度下粘土形成玻璃相,将碳化硅颗粒粘连,粘接强度较高,随着加入量的增加,玻璃相增加,颗粒与颗粒间形成的颈部



(a)



(b)

图 5 碳化硅多孔陶瓷滤芯显微结构

(烧成温度为 $1370^{\circ}\text{C} \times 3\text{h}$; 固体含量为 40vol%)

Fig.5 the microstructure of Porous silicon carbide candle-type filter

(sintered at $1370^{\circ}\text{C} \times 3\text{h}$; solid content:40vol%)

越粗,强度不断增加。如图 5 所示。

当结合剂为氢氧化铝时,随着加入量的增加,强度不断增加。这是因为在 1370°C 的温度下氢氧化铝产生热分解,形成的氧化铝与烧成过程中碳化硅氧化形成二氧化硅结合形成莫来石,将碳化硅颗粒粘连,粘接强度较高。由于氢氧化铝分解形成的氧化铝耐温较高,当加入量较小时,与烧成过程中碳化硅氧化形成二氧化硅结合形成莫来石,使强度增大,当加入量增加时,分解形成的氧化铝与氧化形成的二氧化硅比例失调,使烧结程度降低,从而其强度不断降低。当结合剂为氧化铝时,其现象与氢氧化铝相似。

3.3 结合剂含量对制品气孔率的影响

图 6 为碳化硅多孔陶瓷过滤元件气孔率与结合剂加入量间的关系。当结合剂为粘土时,随着粘土加入量的增加,泥料塑性逐渐升高,碳化硅颗粒在泥料中的悬浮性能逐渐增大,使坯体的气孔率逐渐升高。但粘土加入量达到 11%以上时,在烧成过程中,由于粘土形成玻璃相量增加,部分气孔被玻璃相封堵,形成闭孔,使制品的气孔率下降。

当结合剂为氢氧化铝时,随着氢氧化铝加入量的增加,使制品的气孔率不断升高。这是由于氢氧化铝在烧成阶段产生分解,起到增孔剂的作用。当结合剂为氧化铝时,随着氧化铝加入量的增加,制品的气孔率不断下降。这是由于氧化铝的加入,填充到碳化硅颗粒堆积形成空隙中,加入量越大空隙填充得越密实,造成制品的气孔率不断下降。

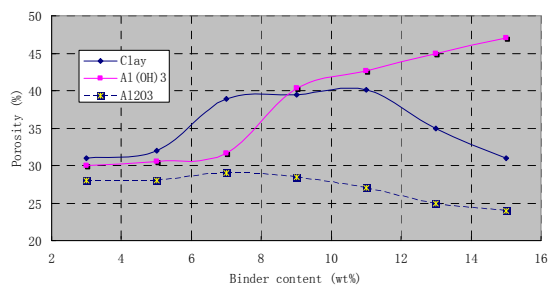


图 6 结合剂加入量与碳化硅多孔陶瓷过滤元件气孔率间的关系

(烧成温度为 $1370^{\circ}\text{C} \times 3\text{h}$; 固体含量为 40vol%)

Fig.6 the relationship between the binder content and the porosity of Porous silicon carbide candle-type filter

(sintered at $1370^{\circ}\text{C} \times 3\text{h}$; solid content:40vol%)

4 结论

采用粘土作为结合剂,碳化硅过滤元件的显气孔率可达到 35~41%,强度达到 60~70MPa,可以

满足 PFBC、IGCC 和煤炭气化系统装置对过滤器气孔率和强度的要求。

References (参考文献)

- [1] TIE Sheng-nian, SHUNZO Shimai, XUAN Jun-gang; MO Peng-jun. Fabrication of High Temperature Porous Ceramic Filter Pipe Carrier for Clean Coal, Materials for Mechanical Engineering 2005, 29 (10): 24-26
- [2] R. A. Newby, T. E. Lippert, M. A. Alvin, G. J. Burck and Z. N. Sanjana, "Status of Westinghouse Hot Gas Filters for Coal and Biomass Power Systems", J. Eng. Gas Turbines Power-T ASME, 19991 (12) : 401-408.
- [3] J. Stringer. and A. J. Leitch, "Ceramic Candle Filter Performance at the Gremethopre (UK) Pressurized Fluidized Bed Combustor", J. Eng. Gas Turbines Power-T ASME, 1992 (114) : 259-276.
- [4] J.H. Choi, S.M. Keum and J.D. Chung, "Operation of Ceramic Candle Filter at High Temperature for PFBC Application", Korean J. Chem. Eng., 1999 (16) : 823-828.
- [5] K.S. Lee, S.K. Woo, I.S. Han, D.W. Seo, S.J. Park and Y.O. Park, "Filtering Characteristics of Porous SiC Filter with High Surface Area", J. Ceram. Soc. Japan, 2002 (110) : 656-661.
- [6] S.K. Woo, K.S. Lee, I.S. Han, D.W. Seo and Y.O. Park, "Role of Porosity in Dust Cleaning of Silicon Carbide Ceramic Filters", J. Ceram. Soc. Japan, 2001 (109) : 742-747.
- [7] T. Lücke and H. Fissan, "The Prediction of Filtration Performance of High Efficiency Gas Filter Elements," Chem. Eng. Sci., 1996 (51): 1199-1208.
- [8] Weiguang Chi*, Dongliang Jiang, Zhengren Huang, Shouhong Tan Sintering behavior of porous SiC ceramics Ceramics International 2004 (30) : 869-874
- [9] H.S. Yu, "Optimization of HEPA Filter Design", Proceedings of Institute of Environmental Sciences, 1993 (37) : 35-43.
- [10] P. Pastila, V. Helanti, A.-P. Nikkila and T. Mantyla, "Environmental Effects on Microstructure and Strength of SiC-based Hot Gas Filters", J. Eur. Ceram. Soc., 2001 (21): 1261-1268.
- [11] D.R. Chen, David Y. H. Pui and Benjamin Y. H. Liu, "Numerical Study and Optimization of Pleated Gas Filters", Proceedings of Institute of Environmental Sciences, 1993 (37) : 414-422.
- [12] A. Urena~, E.E. Mart?nez , P. Rodrigo , L. Gil, "Oxidation treatments for SiC particles used as reinforcement in aluminium matrix composites", Composites Science and Technology , 2004 (64) : 1843-1854
- [13] R. Westerheide, J. Adler, A. Walch, W. Volker, H. Buhl and D. Fister, "High Temperature Gas Cleaning", Volume II, Dittler A., Hemmer G. and Kasper G., (Ed.), Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik der Universität Karlsruhe, Germany, 1990: 255-287.