

12 **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

21 Anmeldenummer: 81104323.1

51 Int. Cl.<sup>3</sup>: **C 01 B 3/34**

22 Anmeldetag: 04.06.81

30 Priorität: 20.06.80 DE 3023164

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
30.12.81 Patentblatt 81/52

64 Benannte Vertragsstaaten:  
AT BE DE FR GB IT NL SE

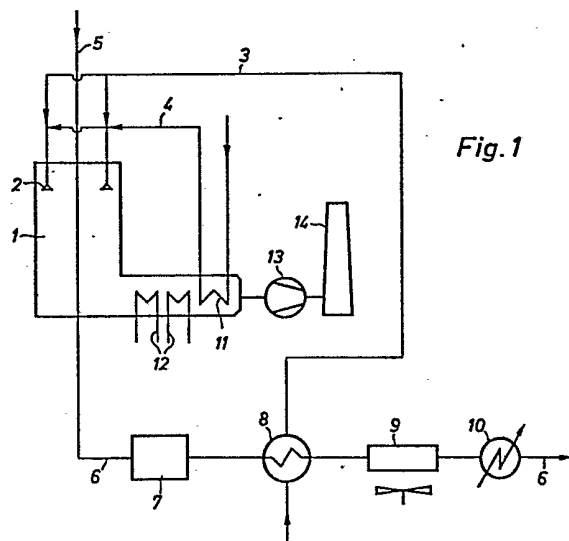
71 Anmelder: **Linde Aktiengesellschaft**  
**Abraham-Lincoln-Strasse 21**  
**D-6200 Wiesbaden(DE)**

72 Erfinder: **Watson, Allan, Dr.**  
**Meraner Strasse 14a**  
**D-8012 Ottobrunn(DE)**

74 Vertreter: **Schaefer, Gerhard, Dr.**  
**Linde Aktiengesellschaft Zentrale Patentabteilung**  
**D-8023 Höllriegelskreuth(DE)**

54 **Verfahren und Vorrichtung zur Erzeugung eines Synthesegases.**

57 Dieses Verfahren dient zur Erzeugung eines Synthesegases durch Spaltung von Kohlenwasserstoffen. Die für die Spaltung benötigte Wärme wird durch Verbrennung eines Heizfluids (3) zusammen mit Verbrennungsluft (4) geliefert. Das Heizfluid (3) wird vor seiner Verbrennung in Wärmetausch mit erzeugtem Synthesegas vorgewärmt. Zusätzlich kann auch die Verbrennungsluft (4) durch Wärmetausch mit Rauchgas aus der Verbrennung vorgewärmt werden.



1

5

10

Verfahren und Vorrichtung zur Erzeugung eines Synthesegases

15 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Erzeugung eines Synthesegases durch Spaltung von Kohlenwasserstoffen, bei dem die für die Spaltung benötigte Wärme durch Verbrennung eines Heizfluids zusammen mit Verbrennungsluft geliefert wird, sowie eine Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens.

20

Ein derartiges Verfahren ist in der deutschen Auslegeschrift 23 46 275 beschrieben worden. Ein Einsatzgasgemisch, beispielsweise gasförmiges Benzin, wird einem Spaltgasofen zugeführt und darin unter Zufuhr von Wärme durch Spaltung  
25 in ein Synthesegas umgewandelt. Die Wärme, die für den endothermen Spaltprozeß benötigt wird, wird durch Verbrennen von Brennstoffen mit erhitzter Verbrennungsluft, sowie durch Übertragung fühlbarer Wärme aus den Rauchgasen der Verbrennung auf die dabei erhitzte Verbrennungsluft geliefert. Des  
30 weiteren wird bei diesem Verfahren mindestens ein Teil der Verbrennungsluft durch Wärmetausch mit den heißen Produktgasen der Kohlenwasserstoffspaltung vorgewärmt.

Mit dem bekannten Verfahren sollte unter anderem der Energieeinsatz möglichst niedrig gehalten werden. Dies wird da-

1 durch erreicht, daß die Vorwärmung der Verbrennungsluft durch Energie geschieht, welche im Verfahren selbst vorhanden ist.

Wenngleich jedoch die im Verfahren vorhandene Energie nutz-  
5 bringend wieder eingesetzt werden kann, hat sich in der Praxis gezeigt, daß bei dem vorbekannten Verfahren eine weitreichende Vorwärmung der Verbrennungsluft in Wärmetausch mit dem Synthesegas zur Folge hat, daß durch die kleiner werden-  
10 den Temperaturdifferenzen zwischen der vorgewärmten Verbrennungsluft und dem Rauchgas der Wärmetauscher im Rauchgasstrom sehr groß wird. Entweder müssen daher erhebliche Kosten für die Bereitstellung großer Wärmetauschflächen aufgewendet werden, oder aber es muß auf eine vollständige Nutzung der Ab-  
15 wärme verzichtet werden. In beiden Fällen arbeitet das Verfahren nicht wirtschaftlich.

Der vorliegenden Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren der eingangs genannten Art zu entwickeln, das sich durch geringeren Energieverbrauch auszeichnet.

20

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß das Heizfluid vor seiner Verbrennung in Wärmetausch mit erzeugtem Synthesegas vorgewärmt wird.

25 Während beim vorbekannten Verfahren ein Teil der fühlbaren Wärme des Synthesegases auf Verbrennungsluft übertragen wird, wird im Unterschied hierzu erfindungsgemäß das Heizfluid in Wärmetausch mit dem heißen Synthesegas gebracht.

30 Mit dem Verfahren gemäß der Erfindung ist es möglich, den Energieeinsatz, d.h. die Menge des benötigten Heizfluids, zu reduzieren. Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren wird das Temperaturniveau des Heizfluids angehoben. Mit dieser Verfahrensführung wird der Wärmeinhalt des Synthesegases optimal  
35 ausgenutzt. Darüber hinaus ist es durch die im Heizfluid

1 enthaltene fühlbare Wärme nunmehr möglich, die Menge des be-  
nötigten Heizfluids zu reduzieren. Folglich entsteht weniger  
Rauchgas, so daß die Wärmetauscher im Rauchgasstrom kleiner  
ausgeführt sein können. Auf diese Weise erhöht sich die Wirt-  
5 schaftlichkeit des Spaltverfahrens.

Bei einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen  
Verfahrens wird die Luft auf eine Temperatur zwischen 100°C  
und 250°C, vorzugsweise zwischen 100°C und 150°C, gebracht.  
10

Es erweist sich als zweckmäßig, wenn gemäß einer speziellen  
Ausführungsform des Erfindungsgegenstandes das Heizfluid  
in gasförmigem Zustand vorliegt.

15 Bei einer günstigen Ausführungsform des erfindungsgemäßen  
Verfahren weist das Heizfluid einen Inertanteil von mehr als  
35 % auf.

Die Wirkung der erfindungsgemäßen Vorwärmung des Heizfluids  
20 steigt bei steigendem Inertanteil, da die inerten Bestand-  
teile, die bisher als Ballast anzusehen waren, nunmehr fühl-  
bare Wärme übertragen.

Als besonders vorteilhaft hat es sich herausgestellt, wenn  
25 in Weiterbildung des erfindungsgemäßen Verfahrens als Heiz-  
fluid ein Spülgas aus einer Druckwechseladsorptionsanlage  
zur Reinigung erzeugten Synthesegases verwendet wird.

Das bei der Spaltung entstehende Synthesegas enthält uner-  
30 wünschte Bestandteile. Beispielsweise bei der Wasserstoff-  
erzeugung fallen vor allem Kohlenmonoxid und Kohlendioxid als  
unerwünschte Bestandteile an. Das Kohlenmonoxid wird in der  
Regel durch Konvertierung in Kohlendioxid umgewandelt. Das  
Kohlendioxid sowie noch vorhandene brennbare Verunreini-  
35 gungen werden in Druckwechseladsorbern vom Wasserstoff ab-

1 getrennt. Die Adsorber werden durch ein Spülgas, beispielsweise durch einen Teil des Produktwasserstoffs, regeneriert. Dieses das Kohlendioxid aus den Druckwechseladsorbern enthaltende Spülgas wird mit Vorteil als Heizfluid eingesetzt.  
5 Die Weiterverwendung dieses im Verfahren ohnehin vorhandenen Gasstroms als Heizfluid bringt ebenfalls eine zusätzliche Erhöhung der Wirtschaftlichkeit des erfindungsgemäßen Verfahrens mit sich.

10 Als weitere Ausgestaltung des Erfindungsgedankens wird vorgeschlagen, daß zusätzlich die Verbrennungsluft durch Wärmetausch mit Rauchgas aus der Verbrennung vorgewärmt wird.

Die Vorwärmung der Verbrennungsluft bringt eine Verbesserung  
15 des Wirkungsgrades, daß die Wärme für die mitgeführten Inertanteile in der Luft nur mehr zum Teil aus der Verbrennung kommen muß, und somit Energie eingespart wird.

Eine zweckmäßige Vorrichtung zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens umfaßt einen Spaltgasofen, der Zuführungen  
20 für ein Heizfluid, Verbrennungsluft und ein Einsatzgas, sowie Abführungen für Rauchgas und Synthesegas aufweist, und ist dadurch gekennzeichnet, daß mindestens ein Wärmetauscher mit Strömungsquerschnitten einerseits für das Heizgas und  
25 andererseits für das Synthesegas vorgesehen ist.

Die Erfindung und weitere Einzelheiten der Erfindung werden anhand eines schematisch dargestellten Ausführungsbeispiels näher erläutert:

30

Hierbei zeigen:

Figur 1 ein Verfahrensschema zur Kohlenwasserstoffspaltung,  
35

1 Figur 2 ein Detail des erfindungsgemäßen Verfahrens, bei dem ein Druckwechseladsorber-Spülgas als Heizgas verwendet wird.

5 In einem Steam Reformer 1 wird eine Spaltung von Kohlenwasserstoffen durchgeführt. Dem Steam Reformer 1 wird über eine Zuführungsleitung 5 ein Einsatz bestehend aus Wasserdampf und einem Gas mit einer Zusammensetzung von beispielsweise

10

H <sub>2</sub>	5	Vol %	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	4	Vol %
N <sub>2</sub>	5	Vol %	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	1	Vol %
CO <sub>2</sub>	1	Vol %	C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	1	Vol %
CH <sub>4</sub>	83	Vol %			

15

zugeführt.

Die im Steam Reformer 1 durchgeführte Spaltung ist ein endothermer Prozeß, d.h. es muß von außen Wärme zugeführt werden. Die benötigte Wärme wird zum Teil durch Verbrennung eines Heizgases mit Verbrennungsluft im Steam Reformer 1 bereitgestellt. Hierfür sind Brenner 2 im Steam Reformer 1 angeordnet, denen ein Gemisch von Heizgas (Leitung 3) und Verbrennungsluft (Leitung 4) zugeführt wird. Das Heizgas hat beispielsweise eine Zusammensetzung von

25

H <sub>2</sub>	37	Vol %	CO <sub>2</sub>	35	Vol %
N <sub>2</sub>	3	Vol %	CH <sub>4</sub>	14	Vol %
CO	11	Vol %			

30

Das bei der Verbrennung entstehende Rauchgas wird über ein Gebläse 13 einem Kamin 14 zugeführt. Zuvor wird das Rauchgas durch Kühler 12, sowie durch einen Wärmetauscher 11 abgekühlt. Im Wärmetauscher 11 wird die eintretende Verbrennungsluft angewärmt, beispielsweise auf 250°C. Die im Rauch-

1 gas enthaltene Abwärme liefert somit einen weiteren Teil der für die Spaltung erforderlichen Wärme.

Das bei der Spaltreaktion entstehende Synthesegas, das in 5 einer Zusammensetzung von

H <sub>2</sub>	79 Vol %	CO <sub>2</sub>	8 Vol %
N <sub>2</sub>	1 Vol %	CH <sub>4</sub>	3 Vol %
CO	15 Vol %		

10

und mit einer Temperatur von 850°C vorliegt, verläßt den Steam Reformer über Leitung 6. Es wird in einem Abhitze- kessel 7 auf etwa 150°C vorgekühlt, und gibt anschließend in einem Wärmetauscher 8 einen Teil seiner flühlbaren Wär- 15 me an Heizgas ab, das bei diesem Wärmetausch auf etwa 120°C vorgewärmt wird.

Die erfindungsgemäße Vorwärmung des Heizgases bewirkt, daß nicht nur die brennbaren Anteile des Heizgases einen Bei- 20 trag zur Erwärmung des Steam Reformers 1 liefern, sondern auch die im Heizgas enthaltenen inerten Anteile, wie z.B. CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>. Diese liefern die ihnen im Wärmetauscher 8 übertra- gene fühlbare Wärme an den Steam Reformer 1. Es wird also im Verfahren ohnehin vorhandene Energie wieder nutzbar ge- 25 macht.

Auf diese Weise können auch Heizgase mit relativ hohem Inert- gasanteil, beispielsweise 50 %, verwendet werden, da die inerten Gasanteile nicht mehr nur Ballaststoffe sind, son- 30 dern selbst an der Wärmeübertragung beteiligt sind.

Restliche, im Synthesegas noch enthaltene Wärme wird in einem Luftkühler 9 und in einem Wasserkühler 10 abgeführt.

35 Figur 2 zeigt ein Detail aus einem Verfahren gemäß Figur 1,

1 wobei bei dieser Ausführungsform als Heizgas ein Spülgas aus Druckwechseladsorbern 17 verwendet wird.

Im Rohsynthesegas (Leitung 6) enthaltenes Kohlendioxid so-  
5 wie Kohlenmonoxid, Methan und Stickstoff wird in periodisch umschaltbaren Druckwechseladsorbern 17 abgetrennt. Die Druckwechseladsorber 17 werden mit einem Spülgas (Leitung 18) regeneriert, z.B. mit einem Teil des Produktwasserstoffs.

Nach der Desorption des in den Druckwechseladsor-  
10 bern 17 enthaltenen Kohlendioxids ist die Zusammensetzung des im wesentlichen auf Umgebungstemperatur befindlichen Spülgases z.B.

	H <sub>2</sub>	40 Vol %	CO	12 Vol %
	CH <sub>4</sub>	8 Vol %	CO <sub>2</sub>	37 Vol %
15	N <sub>2</sub>	3 Vol %		

Das aus den Druckwechseladsorbern 17 kommende Spülgas (Lei-  
15 tung 15) wird erfindungsgemäß im Wärmetauscher 8 gegen heißes Roh-Synthesegas angewärmt und anschließend als Heizgas dem Steam Reformer 1 zugeführt (Leitung 3). Das gereinigte Synthesegas verläßt die Anlage über Leitung 16.

Diese Ausführungsform hat den großen Vorteil, daß das Spül-  
25 gas, das bei der Regenerierung der Druckwechseladsorber 17 ohnehin anfällt, wegen seines hohen Inertgasanteils besonders viel fühlbare Wärme im Wärmetauscher aufnimmt und an den Steam Reformer 1 überträgt.

30

35



1

5

10

Patentansprüche

1. Verfahren zur Erzeugung eines Synthesegases durch Spaltung von Kohlenwasserstoffen, bei dem die für die Spaltung benötigte Wärme durch Verbrennung eines Heizfluids zusammen mit Verbrennungsluft geliefert wird, dadurch gekennzeichnet, daß das Heizfluid vor seiner Verbrennung in Wärmetausch mit erzeugtem Synthesegas vorgewärmt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Heizfluid bei seiner Vorwärmung auf eine Temperatur zwischen 100°C und 250°C gebracht wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Heizfluid bei seiner Vorwärmung in gasförmigem Zustand vorliegt.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Heizfluid einen Inertanteil von mehr als 35 % aufweist.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß als Heizfluid ein Spülgas aus einer Druckwechseladsorptionsanlage zur Reinigung erzeugten Synthesegases verwendet wird.

1 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich die Verbrennungsluft durch Wärmetausch mit Rauchgas aus der Verbrennung vorgewärmt wird.

5

7. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 6 mit einem Spaltgasofen, der Zuführungen für ein Heizfluid, Verbrennungsluft und ein Einsatzgas, sowie Abführungen für Rauchgas und Synthesegas aufweist, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens ein Wärmetauscher (8) mit Strömungsquerschnitten einerseits für Heizgas und andererseits für Synthesegas vorgesehen ist.

15

20

25

30

35

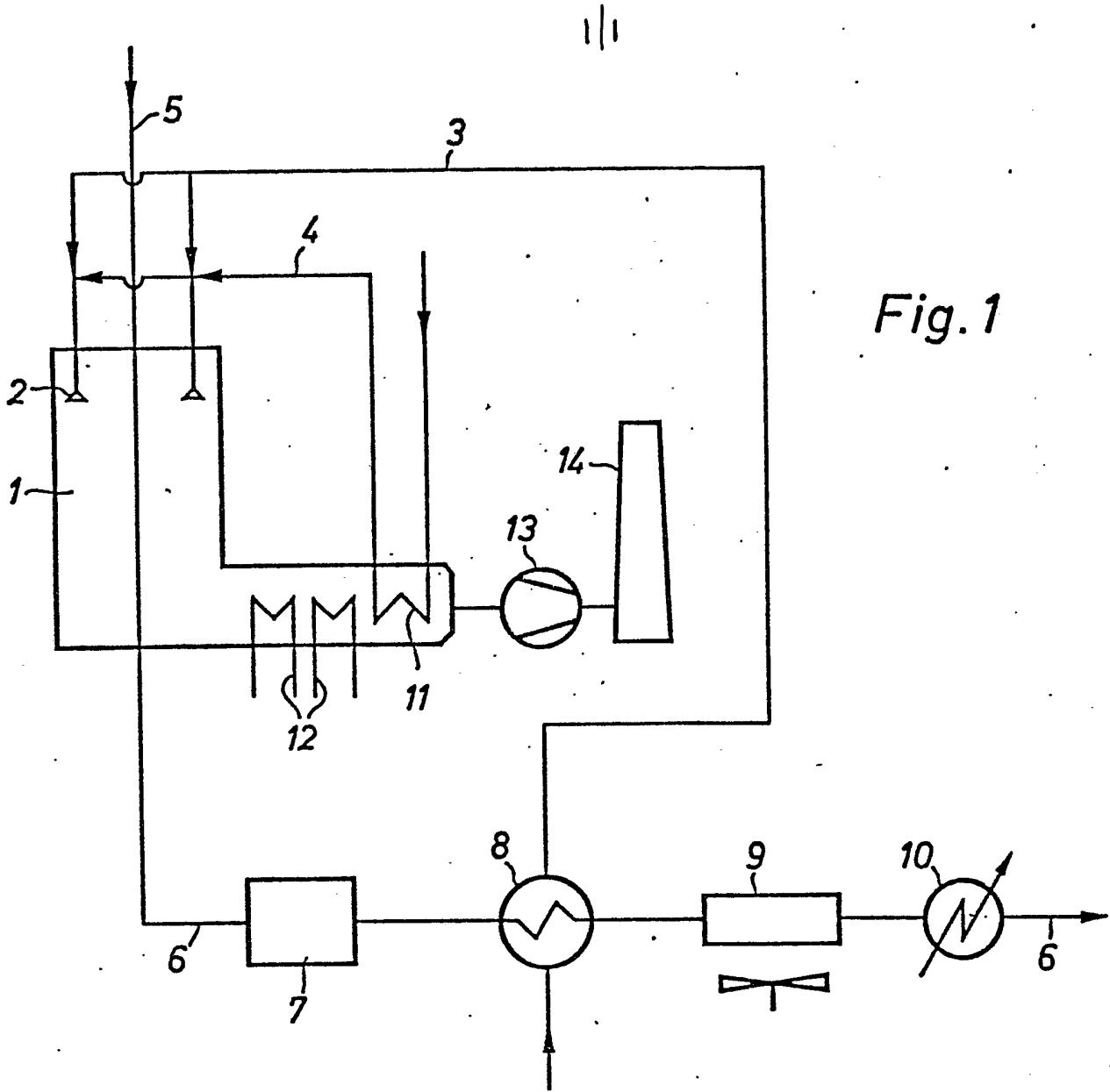


Fig. 1

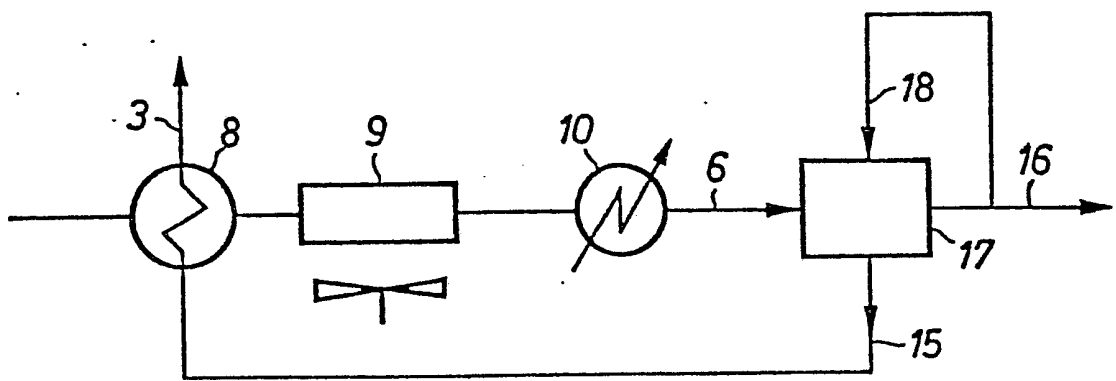


Fig. 2