



(19)

(11) Veröffentlichungsnummer:

**0 182 992**  
**A2**

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 85111795.2

(51) Int. Cl.<sup>4</sup>: **C 10 J 3/54**  
**C 21 B 13/00**

(22) Anmeldetag: 18.09.85

(30) Priorität: 27.10.84 DE 3439487

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
04.06.86 Patentblatt 86/23

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
BE DE FR GB IT NL

(71) Anmelder: M.A.N. MASCHINENFABRIK  
AUGSBURG-NÜRNBERG Aktiengesellschaft  
Bahnhofstrasse 66  
D-4200 Oberhausen(DE)

(72) Erfinder: Heinrich, Peter, Dr.-Ing.  
Reinerstrasse 36  
D-4200 Oberhausen 11(DE)

(72) Erfinder: Knop, Klaus, Dr.-Ing.  
Eckesdyck 11  
D-4170 Geldern(DE)

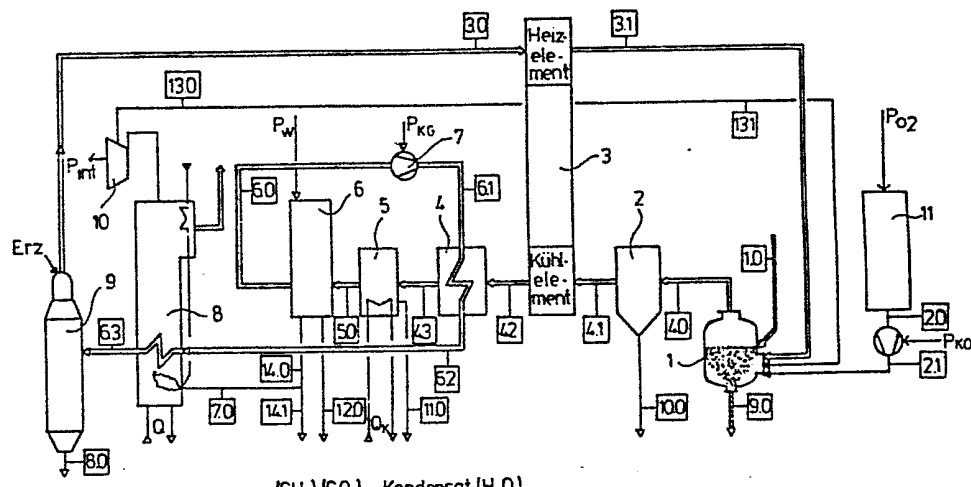
(72) Erfinder: Rube, Friedbert, Dr.-rer. nat.  
Fritz Meyer-Weg 39  
D-8000 München 81(DE)

(54) **Energiegünstiges Verfahren zur Erzeugung von Synthesegas mit einem hohen Methangehalt.**

(57) Verfahren zur Erzeugung von Synthesegas, bei dem das in einem Reaktor (1) durch Vergasung von C-haltigem Brennmaterial gewonnene Synthesegas in einem Regenerator (3) abgekühlt und einer Gasaufbereitung (6) unterzogen wird, und ein Teil des Gases als Kreislaufgas dem Reaktor (1) wieder zusammen mit Brennstoff zugeführt wird, wobei das Gas vor dem Wiedereintritt in den Reaktor von dem Regenerator (3) aufgeheizt wird, und bei dem bei der Gasaufbereitung das Synthesegas in einem 4-Pol-Wärmeaustauscher (4) und einem Kondensator (5) weiter abgekühlt wird, einer Gaswäsche (6) zur Entfernung des Hauptanteils von Methan und Kohlendioxid unterzogen wird und nach erneutem Durchtritt durch den 4-Pol-Wärmeaustauscher (4) aufgeheizt wird. Eine weitere Erhitzung folgt in einem Gaserhitzer (8), wonach das Gas einem Erzreduktionsreaktor (9) zugeführt und nach Austritt aus dem Erzreduktionsreaktor (9) und nach erneutem Aufheizen in dem Regenerator (3) dem Vergasungsreaktor (1) wieder zugeführt wird. Der Methananteil des in dem Reaktor (1) erzeugten Synthesegases kann selektiv in der Gaswäsche (6) entfernt und zur Erzeugung chemischer Produkte verwendet werden.

EP 0 182 992 A2

./...



(CH<sub>4</sub>) (CO<sub>2</sub>) Kondensat (H<sub>2</sub>O)

50 Massenströme  
 P<sub>x</sub>, El. Energie  
 Q, Wärmeströme

1

5

10 Energiegünstiges Verfahren zur Erzeugung von Synthesegas  
mit einem hohen Methangehalt

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Erzeugung von  
Synthesegas, bei dem das in einem Reaktor durch Verga-  
15 sungs von C-haltigem Brennmaterial gewonnene Synthesegas  
in einem Regenerator abgekühlt und einer Gasaufbereitung  
unterzogen wird, und ein Teil des Gases als Kreislaufgas  
dem Reaktor wieder zusammen mit Verbrennungsgas und C-  
haltigen Brennmaterial zugeführt wird, wobei das Gas vor  
20 dem Wiedereintritt in den Reaktor von dem Regenerator  
aufgeheizt wird.

Durch das Patent 32 23 702 der Anmelderin ist ein Ver-  
fahren der genannten Art zur Erzeugung von Synthesegas  
25 bekannt. Dieses Verfahren zeichnet sich durch einen  
niedrigen Energieverbrauch aus, da die Hochtemperatur-  
energie des aus dem Synthesegas austretenden Gases dafür  
verwendet wird, um das Kreislaufgas vor dem Wiederein-  
tritt in den Reaktor aufzuheizen.

30

Unter den im Reaktor herrschenden Vergasungsbedingungen  
wird bei diesem Verfahren ein Rohgas erhalten, bei dem  
der Wasserstoffgehalt relativ niedrig liegt und das so  
gut wie kein Methan enthält. Um den Wasserstoffgehalt  
35 des Gases aufzubessern, ist es weiterhin erforderlich,  
das Gas durch einen Hochtemperatur-Konverter zu schicken.

- 1 Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Erzeugung von Synthesegas mit einem relativ hohen Methangehalt anzugeben, das einen besonders niedrigen Energieverbrauch aufweist und daher besonders wirtschaftlich durchgeführt werden kann. Das Verfahren soll ferner ohne einen Konvertierungsschritt auskommen und ein Synthesegas liefern, das sich insbesondere für die Erzdirektreduktion gut eignet.
- 5
- 10 Diese Aufgabe wird bei einem Verfahren gemäß der Erfindung dadurch gelöst, daß bei der Gasaufbereitung das Synthesegas in einem 4-Pol-Wärmetauscher und einem Kondensator weiter abgekühlt wird, einer Gaswäsche zur Entfernung des Hauptanteils von Methan und Kohlendioxid
- 15 unterzogen wird und nach erneutem Durchtritt durch den 4-Pol-Wärmetauscher aufgeheizt einem Erhitzer zugeführt wird,
- und daß zumindest ein Teil des im Erhitzer zusätzlich gebildeten Prozeßdampfes dem Vergasungsreaktor zugeführt
- 20 wird.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren wird das Rohgas nach Durchlaufen des Regenerators in dem 4-Pol-Wärmetauscher und dem Kondensator soweit abgekühlt, daß es seinen

25 Taupunkt unterschreitet. Die dem Gas entzogene Wärmeenergie wird aber nicht abgeführt, sondern an den Stellen in den Kreislauf wieder eingespeist, an denen die Wärmeenergie benötigt wird. Durch das Verfahren läßt sich auf einfache Weise ein wasserstoffreiches Synthesegas für die Erzdirektreduktion darstellen, wobei als wertvolles Nebenprodukt auch noch Methan anfällt, das als Synthesegas zur Erzeugung chemischer Produkte, z. B. bei der Methanolerzeugung, oder als Brenngas bei anderen Verfahren eingesetzt werden kann.

- 35 Bei einer zweiten Variante des Verfahrens kann das Synthesegas derart geführt werden, daß es nach dem ersten

1 Durchtritt durch den 4-Pol-Wärmeaustauscher den Erhitzer durchläuft.

Bei dem Verfahren ist weiterhin vorgesehen, daß in den  
5 Vergasungsreaktor Sauerstoff als Verbrennungsgas einge-  
geleitet wird. Zusammen mit dem Prozeßdampf, der die  
Reaktionsfähigkeit der im Reaktor eingesetzten Kohle  
steigert, wird durch den Sauerstoff das Vergasungsver-  
halten der Kohle verbessert. Vorteilhaft für die Ener-  
10 giebilanz des Verfahrens ist es, wenn ein Teil der im  
Überschuß anfallenden Prozeßdampfenergie zur Sauerstoff-  
erzeugung für den Reaktor eingesetzt wird.

Im folgenden wird anhand eines Schemas ein Ausführungs-  
15 beispiel des erfindungsgemäßen Verfahrens näher be-  
schrieben. Die einzige Figur der Zeichnung zeigt ein  
Blockdiagramm einer Anlage zur Erzeugung von Synthesegas,  
mit dem ein Erzreduktionsreaktor beschickt wird.

20 Gemäß der Figur wird einem Wirbelbett-Reaktor 1 Kohlen-  
stoff in Form von feinkörnigem, reaktivem Kohlenstaub  
zugeführt. Als Vergasungsmittel für den Kohlenstaub  
werden hochoverhitzter Prozeßdampf, Sauerstoff und Kreis-  
laufgas in den Reaktor 1 geleitet. Die Zusammensetzung  
25 des Kreislaufgases ist aus Tabelle 1, Spalte 3.0 er-  
sichtlich.

In dem Reaktor 1 erfolgt die Vergasung der Kohle bei  
einer Temperatur von  $800^{\circ}$  C und einem Druck von 10 bar.  
30 Die bei der Kohlevergasung anfallende Asche wird unten  
aus dem Reaktor abgezogen. Das Syntheserohgas verläßt  
den Reaktor über Kopf mit einer Zusammensetzung gemäß  
Spalte 4.0, Tabelle 1.

35 Nach Passieren eines Flugasche- oder Staubabscheiders 2  
tritt das Rohgas dann in das Kühlelement eines Regene-  
rators 3 ein, in dem es von  $800^{\circ}$  C auf  $578^{\circ}$  C abgekühlt

1 wird. Geeignete Regeneratoren, die über ein Kühlelement  
einem heißen Gasstrom Wärme entziehen, speichern und  
über ein Heizelement die Speicherwärme auf einen anderen  
Gasstrom übertragen, sind dem Fachmann z. B. aus der  
5 Hochofentechnik und der Glasherstellung bekannt und  
brauchen daher nicht besonders beschrieben zu werden.  
Eine weitere Abkühlung erfährt das Gas in einem 4-Pol-  
Wärmeaustauscher 4 und einem Kondensator 5, in dem das  
Gas bis auf 60<sup>o</sup> C abgekühlt wird. Das im Kondensator 5  
10 anfallende Kondensatwasser wird abgeleitet.

Im Anschluß an den Kondensator 5 wird das Gas einer  
sogenannten PSA-Gaswäsche bei 6 unterzogen, durch die  
der Methan- und Kohlendioxid-Anteil des Synthesegases  
15 selektiv aus dem Gasstrom abgetrennt wird. Bei dieser  
Gaswäsche handelt es sich um ein bekanntes Absorbti-  
onsverfahren, bei dem bestimmte, aus einem Gasstrom abzu-  
trennende Gase an einem Feststoff absorbiert und an-  
schließend durch ein Spülgas, z. B. Stickstoff, nach  
20 Druckentspannung entfernt werden. Das abgetrennte Methan  
und das Kohlendioxid werden aus dem Gaskreislauf ausge-  
schelust und stehen zur anderweitigen Verwendung zur  
Verfügung.

25 Durch die Gaswäsche 6 wird der Wasserstoffgehalt des  
Synthesegases erheblich heraufgesetzt, wie aus Tabelle  
1, Spalte 6.0 ersichtlich ist. Das Synthesegas hat jetzt  
die Gaszusammensetzung, die für die spätere Erzreduktion  
benötigt wird.

30

Im Anschluß an die Gaswäsche 6 wird das Synthesegas  
einem Kompressor 7 zugeführt und durchläuft danach er-  
neut den 4-Pol-Wärmeaustauscher 4, in welchem es auf  
466<sup>o</sup> C aufgeheizt wird. Bevor das Gas dann in einen  
35 Reduktionsreaktor 9 eingeleitet wird, durchläuft der  
Gasstrom einen Erhitzer 8, in dem zusätzlich der bei dem  
Verfahren benötigte Prozeßdampf erzeugt wird und in dem

1 das Synthesegas durch Verbrennen eines Teils des bei der  
Gaswäsche 6 abgetrennten Methans hoch erhitzt wird, daß  
nach Durchlaufen des Erhitzers 8 das Synthesegas mit  
einer Temperatur von  $900^{\circ}$  C in den Reduktionsreaktor 9  
5 eintritt.

In dem Reduktionsreaktor 9, in dem Eisenerz direkt zu  
Eisenschwamm reduziert wird, wird das Synthesegas bei  
der Reduktion teilweise oxidiert und verläßt anschlies-  
10 send den Reaktor 9 mit einer wasserstoffärmeren Zusam-  
mensetzung gemäß Tabelle 1, Spalte 3.0. Dieses sogenann-  
te Gichtgas wird dem Heizelement des Regenerators 3  
zugeführt, durch das es auf  $750^{\circ}$  C aufgeheizt wird und  
anschließend hochehitzt als Kreislaufgas wieder in den  
15 Reaktor 1 eingeleitet wird.

Der im Erhitzer 8 erzeugte hochehitzte Wasserdampf  
treibt eine Dampfturbine 10 an, deren Leistung praktisch  
den gesamten elektrischen Energiebedarf des Verfahrens  
20 deckt. Ein Teil der Turbinenleistung wird dazu verwen-  
det, den bei der Kohle-Vergasung benötigten Sauerstoff  
durch Luftzerlegung bei 11 herzustellen. Der Sauerstoff  
wird anschließend komprimiert und dem Reaktor 1 zuge-  
führt.

25 Der aus der Dampfturbine 10 austretende Dampf wird als  
Prozeßdampf dem Reaktor 1 zugeführt, wobei er zuvor im  
Regenerator 3 auf  $750^{\circ}$  C aufgeheizt wird. Dadurch, daß  
zusätzlich zum Gichtgas auch der Prozeßdampf im Regene-  
30 rator 3 aufgeheizt wird, wird die Energiebilanz des  
Verfahrens weiterhin verbessert. Selbstverständlich  
brauchen der Gichtgas- und Prozeßdampfstrom nicht in  
getrennten Leitungen geführt zu werden, sondern können  
vor dem Eintritt in den Regenerator 3 vereinigt und  
35 gemeinsam in dem Regenerator aufgeheizt werden.

1 Tabelle 1

Verfahrens- größe:	Ein- heit	Kohle	Oxidator			Gichtgas	
			1.0	2.0	2.1	3.0	3.1
5			1.0	2.0	2.1	3.0	3.1
Volumenstrom	Nm <sup>3</sup> /s	-		1.815	1.815	34.05	37,93
Massenstrom gas	kg/s	-		2.585	2.585	20.71	20.38
10	fest	kg/s	6.23	-	-	-	-
Temperatur	°C		20	20	450	402	750
Druck	bar		10	1	10	10	10
Gasanalyse H <sub>2</sub> /CO			-	-	-	5.45	5.87
15	H <sub>2</sub> +CO	Vol%	-	-	-	53,84	53,73
	H <sub>2</sub>	Vol%	-	-	-	45,49	45,91
20	CO		-	-	-	8.35	7.82
	CO <sub>2</sub>		-	-	-	7.30	6.90
25	H <sub>2</sub> O		-	-	-	31,32	31,32
	CH <sub>4</sub>		-	-	-	4,93	5,22
	H <sub>2</sub> S		-	-	-	0,00	
30	N <sub>2</sub>		-	2.0	2.0	2,61	2,83
	O <sub>2</sub>		-	98,0	98,0	-	
Verfahrens- größe:	Ein- heit			Rohgas			Dry- gas
35			4.0	4.1	4.2	4.3	5.0
Volumenstrom	Nm <sup>3</sup> /s		50,25				43,81



1	Verfahrens- größe:	Ein- heit	Rohgas				Dry- gas
			4.0	4.1	4.2	4.3	5.0
5	Massenstrom gas	kg/s	24,33				29,84
	fest	kg/s	0,32	0,0			
	Temperatur	°C	800	800	578	358	60
	Druck	bar	10	9,5	9,2	8,9	8,5
	Gasanalyse H <sub>2</sub> /CO		6,23				6,23
10	H <sub>2</sub> +CO	Vol%	59,21				67,92
	H <sub>2</sub>	Vol%	51,03				58,52
	CO		8,19				9,39
	CO <sub>2</sub>		17,49				20,06
	H <sub>2</sub> O		14,99				2,49
15	CH <sub>4</sub>		6,25				7,17
	H <sub>2</sub> S		0,09				0,10
	N <sub>2</sub>		1,97				2,26
	O <sub>2</sub>		-				-
20	Verfahrens- größe:	Ein- heit	Reduktionsgas				Brenn- gas
			6.0	6.1	6.2	6.3	7.0
	Volumenstrom	Nm <sup>3</sup> /s	34,30				1,746
	Massenstrom gas	kg/s	13,58				1,356
25	fest	kg/s					
	Temperatur	°C	60	86	466	900	60
	Druck	bar	80	100	10	10	10
	Gasanalyse H <sub>2</sub> /CO		6,23				-
	H <sub>2</sub> +CO	Vol%	86,75				-
30	H <sub>2</sub>	Vol%	74,75				-
	CO		12,00				-
	CO <sub>2</sub>		3,18				-
	H <sub>2</sub> O		3,12				-
	CH <sub>4</sub>		4,64				88,66
35	H <sub>2</sub> S		0,00				-
	N <sub>2</sub>		2,31				11,34
	O <sub>2</sub>						-

1	Verfahrensgröße:	Einheit	FE-Schw.	Rest-Koks	Staub	Kond. sat	Tails-gasw.
			8.0	9.0	10.0	11.0	12.0
5	Volumenstrom	Nm <sup>3</sup> /s					7,76
	Massenstrom gas	kg/s					15,20
	fest	kg/s	20,62	0,339	0,324	5,20	
	Temperatur	°C	900	800	60	60	60
	Druck	bar					1,0
10	Gasanalyse	H <sub>2</sub> /CO					-
		H <sub>2</sub> +CO	Vol%				-
		H <sub>2</sub>	Vol%				-
		CO					-
		CO <sub>2</sub>					89,14
15		H <sub>2</sub> O					0,26
		CH <sub>4</sub>					0,59
		H <sub>2</sub> S					-
		N <sub>2</sub>					-
		O <sub>2</sub>					-
20	Verfahrensgröße:	Einheit	Prozeß-Dampf	Überschußgas (Abgetr. CH <sub>4</sub> )			
			13.0	13.1	14.0	14.1	
25	Volumenstrom	Nm <sup>3</sup> /s	6,53		1,764	0,0	
	Massenstrom gas	kg/s	5,24		1,356	0,0	
	fest	kg/s			-		
	Temperatur	°C	350	750	60		
	Druck	bar	10		1,0		
30	Gasanalyse	H <sub>2</sub> /CO					-
		H <sub>2</sub> +CO	Vol%				-
		H <sub>2</sub>	Vol%				-
		CO					-
		CO <sub>2</sub>					-
35		H <sub>2</sub> O		100			-
		CH <sub>4</sub>					88,66
		H <sub>2</sub> S					0

1	Verfahrens- größe:	Ein- heit	Prozeß- Dampf		Überschußgas (Abgetr. CH <sub>4</sub> )	
			13.0	13.1	14.0	14.1
5	N <sub>2</sub>		-		11,34	
	O <sub>2</sub>		-		-	

Vorgegebene Verfahrensdaten

10	Kohleanalyse	Gew.-%	
	C	79,7	
	H <sub>2</sub>	5,1	
15	O <sub>2</sub>	7,7	
	N <sub>2</sub>	1,5	
	S	1,1	
	Asche	4,9	
	Wasser	0,0	
20	Heizwert H <sub>u</sub> waf	MJ/kg	33,06
	H <sub>u</sub> real	MJ/kg	31,44
	Energie O <sub>2</sub> -Erzeugung	kwh/Nm <sup>3</sup>	0,42
	Unverbranntes	4,2	
	Vergasungs-Temperatur	°C	800
25	Vergasungsdruck	bar	10
	Topgas-Temperatur	°C	750
	Gaswäsche-Temperatur	°C	60
	Gaswäsche-Druck	bar	8
	Prozeßdampf f. Gaswä.	kg/Nm <sup>3</sup>	-
30	El. Energie f. Gaswä.	kwh/Nm <sup>3</sup>	-
	Reduktions-Temperatur	°C	900
	Reduktions-Druck	bar	10
	Reduktionsgrad Fe-Schw.		0,945
	Fe-Gehalt im Erz		0,67

35

1	Energieumsatz im Vergaser	MW +n
	Kohle	201,8
	Topgas	322,3
5	Oxidator	1,1
	Prozeßdampf	19,8
	Gesamtzufuhr	545,0
	Rohgas	515,5
	Verluste	29,5
10	Gesamtabfuhr	545,0
	Korrektur f. Pr.-Dampf	5,0
	 Elektrischer Energieverbrauch	MW e
15	Luftzerlegung PO <sub>2</sub>	2,74
	O <sub>2</sub> -Kompressor PKO <sub>2</sub>	0,96
	Gaskompressor PKG	1,50
	Gaswäsche PW	-
20	Sonstiges	0,30
	Gesamtverbrauch	5,50
	Intern abgedeckt	5,50
	Extern abgedeckt	-
25	Primärenergieverbrauch	206,8 MW

30

35

1 Patentansprüche:

1. Verfahren zur Erzeugung von Synthesegas, bei dem das  
in einem Reaktor durch Vergasung von C-haltigem  
5 Brennmateriale gewonnene Synthesegas in einem Regene-  
rator abgekühlt und einer Gasaufbereitung unterzogen  
wird, und ein Teil des Gases als Kreislaufgas dem  
Reaktor wieder zusammen mit Verbrennungsgas und C-  
haltigem Brennmateriale zugeführt wird, wobei das Gas  
10 vor dem Wiedereintritt in den Reaktor von dem Rege-  
nerator aufgeheizt wird,  
dadurch gekennzeichnet, daß  
bei der Gasaufbereitung das Synthesegas in einem 4-  
Pol-Wärmetauscher (4) und einem Kondensator (5)  
15 weiter abgekühlt wird, einer Gaswäsche (6) zur Ent-  
fernung des Hauptanteils von Methan und Kohlendioxid  
unterzogen wird und nach erneutem Durchtritt durch  
den 4-Pol-Wärmetauscher (4) aufgeheizt einem  
Erhitzer (8) zugeführt wird,  
20 und daß zumindest ein Teil des im Erhitzer (8)  
gebildeten Prozeßdampf dem Vergasungsreaktor (1)  
zugeführt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,  
25 daß das Synthesegas nach dem ersten Durchtritt durch  
den 4-Pol-Wärmetauscher (4) den Erhitzer (8)  
durchläuft.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekenn-  
30 zeichnet, daß das Synthesegas im Anschluß an die  
Gasaufbereitung in einem Erzreduktionsreaktor (9)  
partiell oxidiert wird.
4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,  
35 daß in den Vergasungsreaktor (1) Sauerstoff als  
Verbrennungsgas eingeleitet wird.

1

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil der Prozeßdampfenergie zur Sauerstoffherzeugung für den Reaktor (1) eingesetzt wird.

5

6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in der Gaswäsche (6) der Methan-Anteil des in dem Vergasungsreaktor (1) erzeugten Synthesegases selektiv entfernt und aus dem Gaskreislauf zur anderweitigen Verwendung ausgeschleust wird.

10

7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der im Erhitzer (8) gebildete Prozeßdampf vor dem Eintritt in den Vergasungsreaktor (1) durch den Regenerator (3) aufgeheizt wird.

15

20

25

30

35

