

12 **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

21 Anmeldenummer: 83104734.5

51 Int. Cl.³: **C 01 B 3/36**
C 10 J 3/46

22 Anmeldetag: 13.05.83

30 Priorität: 25.06.82 DE 3223702

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
11.01.84 Patentblatt 84/2

84 Benannte Vertragsstaaten:
BE FR GB IT NL

71 Anmelder: **Maschinenfabrik Augsburg-Nürnberg**
Aktiengesellschaft
Bahnhofstrasse 66 Postfach 11 02 40
D-4200 Oberhausen 11(DE)

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

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

54 **Verfahren zum Betreiben eines Reaktors zur Erzeugung von Synthesegas und Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens.**

57 Verfahren zum Betreiben eines Reaktors zur Erzeugung von Synthesegas, wobei ein Teil der Abwärme des erzeugten Gases nach der Gasaufbereitung dem Kreislauf wieder zugeführt wird, indem das von Flugasche befreite, abgekühlte Synthesegas einer Hochtemperatur-Konversierung unterworfen, abgekühlt, verdichtet und nach einer Wäsche nach der erneuten Erhitzung teilweise oxidiert und im Kreislauf wieder verwendet wird.

1

5 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Betreiben eines
Reaktors zur Erzeugung von Synthesegas mit nachgeschal-
teter Gasaufbereitung zur Wiederverwendung eines Teil-
stroms im Reaktor.

10

Es sind bereits verschiedene Verfahren zum Betreiben
von Reaktoren zur Erzeugung von Synthesegas bekannt,
15 wobei das Synthesegas später zur Direktreduktion,
zur Ammoniakherzeugung oder zur Durchführung anderer
chemischer Prozesse genutzt wird.

20 Bei den bekannten Verfahren wird in der Regel Erdgas,
Gas aus Kohlevergasungsanlagen oder Koksgas aufge-
spalten, angereichert oder anders behandelt. Nachteilig
ist bei diesen bekannten Verfahren, von denen es eine
25 große Anzahl gibt, daß sie einen relativ geringen
Wirkungsgrad aufweisen und daß weiterhin eine große
Energiezufuhr in Form der Grundstoffe erfolgen muß.

30

Es ist Aufgabe der Erfindung, eine neuartige Verfahrens-
weise zum Betreiben eines Reaktors zur Erzeugung von
Synthesegas bzw. ein neuartiges Erzeugungsverfahren
35 für Synthesegas und zur Verwendung dieses Gases zu fin-
den, bei welchen ein bestmöglicher Wirkungsgrad erreicht
wird und welche es erlauben, auch von Kohlenstaub als

1

5 Energiegrundstoff auszugehen.

10 Diese Aufgabe wird bei dem eingangs genannten Verfahren
erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß ein Teil der Abwärme
des Reaktorgases nach der Gasaufbereitung dem Kreislauf-
gas wieder zugeführt wird.

15 Vorteilhaft kann alternativ einmal das Verfahren derart
durchgeführt werden, daß das von Flugasche befreite,
abgekühlte Reaktorgas einer Hochtemperatur-Konservierung
unterworfen, abgekühlt, verdichtet und einer Gaswäsche
20 unterzogen wird, wonach das erhitzte Gas teilweise oxi-
diert und erneut erhitzt zusammen mit Verbrennungsluft
und kohlenstoffhaltigem Brennmaterial dem Reaktor wieder
zugeführt wird und zum anderen kann die Durchführung
25 derart erfolgen, daß ein Teilstrom des von Flugasche
befreiten, abgekühlten Reaktorabgases mit Wasserdampf
beladen, konvertiert und nach Verdichten erhitzt
zusammen mit Verbrennungsluft und kohlenstoffhaltigem
30 Brennmaterial dem Reaktor wieder zugeführt wird.

35 Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen des erfindungsge-
mäßigen Verfahrens sind in den Unteransprüchen 4 bis 11
angegeben.

1

5

10

15

20

25

30

35

Die Vorrichtung zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens ist vorteilhaft derart aufgebaut, daß zwischen Reaktor und Vorrichtungen zur Gasaufbereitung ein Abhitze-Wärmeaustauscher zur Aufheizung des Kreislaufgases nach der Gasaufbereitung angeordnet ist.

Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen dieser Vorrichtung sind in den anderen Unteransprüchen beschrieben.

Im folgenden werden zwei Ausführungsbeispiele der Erfindung anhand von Schaltschemata näher beschrieben.

Es zeigen:

Figur 1 das Blockdiagramm einer Anlage zur Erzeugung von Frisch- oder Synthesegas und

Figur 2 das Blockdiagramm zur Erzeugung von Synthesegas zur Verwendung in einem Reduktions-Reaktor.

Gemäß Figur 1 wird einem Vergasungsreaktor Kohlenstoff in Form von Kohlenstaub zugeführt. Dieser Kohlenstoff kann aber auch in Form von Gas oder Öl zugeführt werden.

Dem Reaktor 9 wird weiterhin Reaktionsgas zugeführt, welches einen Teilstrom des in dem Reaktor erzeugten Gases darstellt. Die Zusammensetzung des Gases ergibt

1

5 sich aus Tabelle I unter Spalte 2.

10 Unten aus dem Reaktor 9 wird bei Verwendung von Kohlen-
staub als Kohlenstoffträger Asche abgezogen und das
erzeugte Gas verläßt den Reaktor mit hoher Temperatur,
15 die ebenso wie die Gaszusammensetzung aus der Tabelle I,
Spalte 5 ersichtlich ist. Das Reaktionsgas tritt dann
in einen Wärmeaustauscher und Flugascheabscheider 11
ein, in welchem es abgekühlt wird. Nach Passieren
eines Zyklons 14 oder eines anderen geeigneten Flug-
asche-Reinabscheiders wird das Reaktionsgas dann über
20 einen Filter 15 einer Konvertierung 17 zugeführt, in
welcher Wasser gemäß Spalte 11, Tabelle I, zugesetzt
wird. Das Reaktionsgas durchläuft dann einen Wärme-
austauscher, welcher mit einem Dampferzeuger 30 gekoppelt
25 ist und in welchem es von 400 auf 150° C heruntergekühlt
wird. Ein Teilstrom des Reaktionsgases wird dann mit
einem Zustand gemäß Spalte 9, Tabelle I, einem Kom-
pressor zugeführt und dann erneut dem Abhitze-Wärme-
30 täuscher 11 zugeführt, in welchem es auf den Zustand
gemäß Spalte 2, Tabelle 1, aufgeheizt wird. Dieses auf-
geheizte Gas wird dann dem Vergasungsreaktor 9 als Ein-
35 gangsmedium wieder zugeführt, so daß für diesen Teilkreis
der Kreislauf geschlossen ist.

1

5 Das nicht dem Reaktor 9 wieder zugeführte Gas wird über einen Quenchturm 19 und einer CO_2 und H_2S -Abscheidung als Frischgas oder Synthesegas mit einem Zustand gemäß Spalte 12, Tabelle I, als erzeugtes Gas gewonnen.

10

Die Flugasche kann nach Ausfällen von Kohlenstoff als Abfall beseitigt werden, wobei der Kohlenstoff wieder dem Reaktor 9 zugeführt werden kann.

15

Gemäß Figur 2 kann das erfindungsgemäße Verfahren direkt zum Betreiben eines Reduktionsreaktors, z. B. für die Direktreduktion von Eisenerz zu Eisenschwamm benutzt werden. Der Gaserzeugungsreaktor wird in diesem Fall in gleicher Weise genutzt, wie dies gemäß Figur 1 beschrieben ist. Dem Reaktor wird einmal über die Zu-

20 leitung 8 Kohlenstoff von Raumtemperatur und zum anderen über die Zuleitung 7 Sauerstoff zugeführt, während über die Leitung 6 das im Kreislauf geführte Reaktionsgas zugeführt wird. Das in dem Gaserzeugungsreaktor erzeugte

30 Gas gelangt über die Leitung 10 in den Abhitzewärmetauscher 11, der das Gas abkühlt und der als Vorabscheider für die Flugasche dient. Nach Durchlaufen

35 des Zyklonabscheiders 14 und des Filters 15 oder anderer geeigneter Vorrichtungsteile zur Entfernung von Feststoffen wird dann ein Teil des Gasstromes abgezweigt

1

5 und dient als Oxydationsmittel in einem Erhitzer 3,
welcher das aus dem eigentlichen Reduktionsreaktor
entströmende Gas auf die notwendige Temperatur von
ca. 1100° C aufheizt. Die Gaszusammensetzung des in
10 den Reaktor einströmenden Gases ergibt sich aus Spalte 6,
Tabelle II.

15

Das nicht in dem Abgaserhitzer 3 verwendete Gas wird
einem Hochtemperatur-Konverter 17 zugeführt, aus welchem
es einem Quenchturm 19 und einem Verdichter 21 zuge-
führt wird. Der Verdichter 21 speist die CO₂/H₂S-Wäsche
20 22 und das Gas gelangt dann über die Leitung 23 wieder
in den Abhitzewärmeaustauscher 11, in welchem es auf
eine Temperatur von ca. 900° C aufgeheizt wird. Die
Gaszusammensetzung ergibt sich dabei gemäß Spalte 24,
25 Tabelle II. Dieses Reaktionsgas wird dann einem Reduk-
tionsreaktor 1 zugeführt, der weiterhin bei 27 mit
Erz beschickt wird und dem bei 26 im Durchlaufverfahren
das reduzierte Produkt entnommen wird. Das Gas verläßt
30 den Reaktor 1 in der Zusammensetzung gemäß Spalte 2,
Tabelle II und wird nach der bereits genannten Auf-
heizung in dem Abgaserhitzer 3 dem Reaktor 9 wieder
zugeführt. Für den Fachmann selbstverständlich kann
35 dabei die hochgradige Abgas-Energie aus dem Abgas-
Erhitzer in einen Sauerstoff-Vorwärmer 4 und einem

1

5 Dampferzeuger 5 genutzt werden. Die Wirkungsweise des
Reaktors 9 wird dabei durch den erhitzten Sauerstoff
verbessert.

10

Ersichtlicherweise sind in den beiden beschriebenen
Kreisläufen keine Kühlungen vorhanden, ohne daß die
gewonnene Energie nicht wieder in den Kreislauf zurück-
15 gespeist würde. Der Wirkungsgrad der beschriebenen
Kreisläufe ist also optimal und durch die Verwendung
von Kohle als Kohlenstoffträger kann das beschriebene
Verfahren besonders günstig unter Bedingungen, einge-
20 setzt werden, unter denen die Verwendung von Öl oder
Erdgas nicht günstig erscheint. Das beschriebene Ver-
fahren ist also in idealer Weise zur Lösung der an-
stehenden Probleme geeignet.

25

30

35

1

5 Liste der Bezugszeichen

- 1 Reaktor zur Reduktion von Erzen
- 2 Abgas aus Reaktor ($T = 400 - 500^{\circ} \text{C}$)
- 10 3 Abgaserhitzer
- 4 Sauerstoffvorerwärmer
- 5 Dampferzeuger (zur Verwendung in CO_2 -Wäsche und Konvertierung)
- 15 6 Erhitztes Abgas ($T = 1000 - 1100^{\circ} \text{C}$)
- 7 Vorerwärmter Sauerstoff ($T = 400^{\circ} \text{C}$)
- 8 Kohlenstoff (Kohlenstaub; 0,5 mm Trockenmahlung)
- 20 9 Vergasungsreaktor
- 10 Gas aus Vergasungsreaktor (Rohgas)
- 11 Abhitzewärmetauscher
- 12 Flugstaub aus Vergasungsreaktor
- 25 13 Gas aus Abhitzekessel
- 14 Zyklonabscheider
- 15 Filter
- 16 Brenngas (
- 30 17 Hochtemperaturkonvertierung
- 18 Gas nach Konvertierung
- 19 Quenchturm und Abscheidetrommel
- 20 geringstes und komprimiertes gas
- 35 21 Kompressor
- 22 CO_2 -Wäsche / H_2S -Wäsche (Kombination z. B. Benfield)

1	
5	23 Reduktionsgas (kalt)
	24 Reduktionsgas (heiß)
	25 Flugstaub
10	26 Produkt aus Erzreduktion
	27 Erzaufgabe
	28 Asche aus Vergasungsreaktor
15	
20	
25	
30	
35	

35 30 25 20 15 10 5 1

Tabelle I

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
H ₂ (%)	42.67	42.67			33.71	33.71	42.67	42.67	42.67	42.67		54.14
CO "	29.52	29.52			54.54	54.54	29.52	29.52	29.52	29.52		37.53
CO ₂ "	19.81	19.81			5.89	5.89	19.81	19.81	19.81	19.81		3.0
H ₂ O "	7.74	7.74			5.57	5.57	7.74	7.74	7.74	7.74	100.0	5.0
CH ₄ "	0.18	0.18			0.22	0.22	0.18	0.18	0.18	0.18		0.23
N ₂ "	0.07	0.07			0.05	0.05	0.07	0.07	0.07	0.07		0.06
M (Nm ³)	2000	2000			2556	2556	3127	3127	2000	1127	571	886
T (°C)	180	950	400	20	960	310	400	150	150	150		55
P (6	5.3	6.0	6.0	5.0	4.5	4.0	3.5	3.5	3.5		3.0
C (-	-		300	-	-	-	-	-	-		-
O ₂ (Nm ³)	-	-	150	-	-	-	-	-	-	-		-

0097803

35 30 25 20 15 10 5 1

Noch Tabelle I/:

Theoretische Ausbeute:	2953 Nm ³ Synthesegas / t c	1800	Winkler
	≈ 2067 Nm ³ " / t Kohle	1300	
O ₂ -Bedarf	169 Nm ³ / 1000 Nm ³ Synthesegas	306	
Dampf	- (0.5 t/1000 Nm ³ Syntheseg.)	128	
	für CO ₂ - Wäsche		(ohne Konvertierung
			und CO ₂ - Wäsche)

" 77 "

1
5
10
15
20
25
30
35

Tabelle II

Analysen und Mengen

Ort	2	6	7	8	10	17	18	23	24	16
H ₂ (Vol%)	38.95	38.95	-	-	36.77	36.77	44.55	55.43	56.5	36.77
CO "	20.83	20.83	-	-	44.34	44.34	28.61	35.60	34.85	44.34
CO ₂ "	17.51	17.51	-	-	7.71	7.71	18.34	3.0	3.0	7.71
H ₂ O "	20.49	20.49	-	-	10.32	10.32	7.72	5.08	4.68	10.32
CH ₄ "	1.21	1.21	-	-	0.09	0.09	0.09	0.11	0.10	0.09
N ₂ "	1.01	1.01	0.5	-	0.77	0.77	0.70	0.87	0.87	0.77
C (kg)	-	-	-	300	-	-	-	-	-	-
O ₂ (Nm ³ /h)	-	-	99.5	-	-	-	-	-	-	-
N (Nm ³ /h)	1952	1952	150	-	2554	2345.0	2600.2	1994.3	1994.3	208.97
T (° C)	460	1100	400	20	980	300	400	70	900	
P (bar)	5.0	4.5			4.3					
	413.8	413.8			713.8		655.6	413.8	313.8	58.4

1

5 P a t e n t a n s p r ü c h e :

10

1. Verfahren zum Betreiben eines Reaktors zur Erzeugung von Synthesegas mit nachgeschalteter Gasaufbereitung zur Wiederverwendung eines Teilstroms im Reaktor, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil der Abwärme des Reaktorgases nach der Gasaufbereitung dem Kreislaufgas wieder zugeführt wird.

15

20

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das von Flugasche befreite, abgekühlte Reaktor- gas einer Hochtemperatur-Konversierung unterworfen, abgekühlt, verdichtet und einer Gaswäsche unterzogen wird, wonach das erhitzte Gas teilweise oxidiert und erneut erhitzt zusammen mit Verbrennungsluft und kohlenstoffhaltigem Brennmaterial dem Reaktor wieder zugeführt wird.

25

30

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teilstrom des von Flugasche befreiten, abgekühlten Reaktorabgases mit Wasserdampf beladen, konvertiert und nach Verdichten erhitzt zusammen mit Verbrennungsluft und kohlenstoffhaltigem Brennmaterial dem Reaktor wieder zugeführt wird.

35

1

5 4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet,
daß ein Teilstrom des aufbereiteten Gases abgekühlt
und einer Gaswäsche unterzogen wird und als Frisch-
gas den Kreislauf verläßt.

10

5. Verfahren nach Anspruch 3 oder 4, dadurch gekenn-
zeichnet, daß nicht umgesetzter Kohlenstoff in der
Reaktorasche bzw. in der Flugasche dem Reaktor
15 wieder zugeführt wird.

6. Verfahren nach den Ansprüchen 3 bis 5, dadurch ge-
kennzeichnet, daß die Wärme zur Dampferzeugung
20 dem Kreislaufgas entnommen wird.

7. Verfahren nach Anspruch 1 oder 3, dadurch gekenn-
zeichnet, daß durch die Aufbereitung ein Gas
25 folgender Zusammensetzung hergestellt wird:

Wasserstoff	33 - 48 %
Kohlenmonoxyd	15 - 35 %
30 Kohlendioxyd	15 - 22 %
Wasser	5 - 25 %
Methan	0,1 - 1,5 %
Stickstoff	0,05 - 1,5 %

35

wobei die Summe der Bestandteile 100 % ergibt.

1

5 8. Verfahren nach Anspruch 1 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Abgas des Reaktors folgende Zusammensetzung aufweist:

Wasserstoff	29 - 41 %
10 Kohlenmonoxyd	36 - 60 %
Kohlendioxyd	4,5 - 8,9 %
Wasser	3 - 12 %
Methan	0,05 - 0,4 %
15 Stickstoff	0,03 - 0,9 %

wobei die Summe der Bestandteile 100 % ergibt.

20 9. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die partielle Oxydation des Reaktorabgases in einem Erzreduktionsreaktor (1) erfolgt.

25 10. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil des Kreislaufgases zur Aufheizung des Abgases des Reduktionsreaktors (1) und der Verbrennungsluft verwendet wird.

30

11. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß als Brennmaterial dem Reaktor Kohlenstaub, Schweröl, Erdgas oder beliebige Mischungen dieser Komponenten zugeführt werden.

35

- 1
- 5 12. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach den Ansprüchen 1 bis 11, bestehend aus einer Vorrichtung zur Rückführung des Kreislaufgases (2, 6), einem Reaktor (9) zur Gaserzeugung, einer Vor-
- 10 richtung (8) zur Beimischung von kohlenstoffhaltigem Brennmateri- al, einer Vorrichtung (7) zur Einleitung von Verbrennungsluft zu dem Gemisch aus Kreislaufgas und Brennmateri- al und Vorrichtungen
- 15 zur Gasaufbereitung (1, 14, 15, 17, 19, 22, 30), dadurch gekennzeichnet, daß zwischen Reaktor (9) und Vorrichtungen zur Gasaufbereitung (1, 14,
- 20 15, 17, 19, 22, 30) ein Abhitze-Wärmeaustauscher (11) zur Aufheizung des Kreislaufgases nach der Gasaufbereitung angeordnet ist.
- 25 13. Vorrichtung nach Anspruch 12, gekennzeichnet durch einen Reaktor (9) mit einem zum Reaktoraußenmantel (31) koaxialen Innenrohr (32), in dessen oberes
- 30 Ende Zuführungen (6, 8) ragen und das am unteren Ende einen zum Reaktormantel (31) gerichteten Rand (33) trägt, einem im Abstand zum unteren Ende des Innenrohres (32) angeordneten Boden mit Asche-
- 35 austragsleitung (28) und einer Abgasleitung (34) im oberen Reaktormantelbereich.

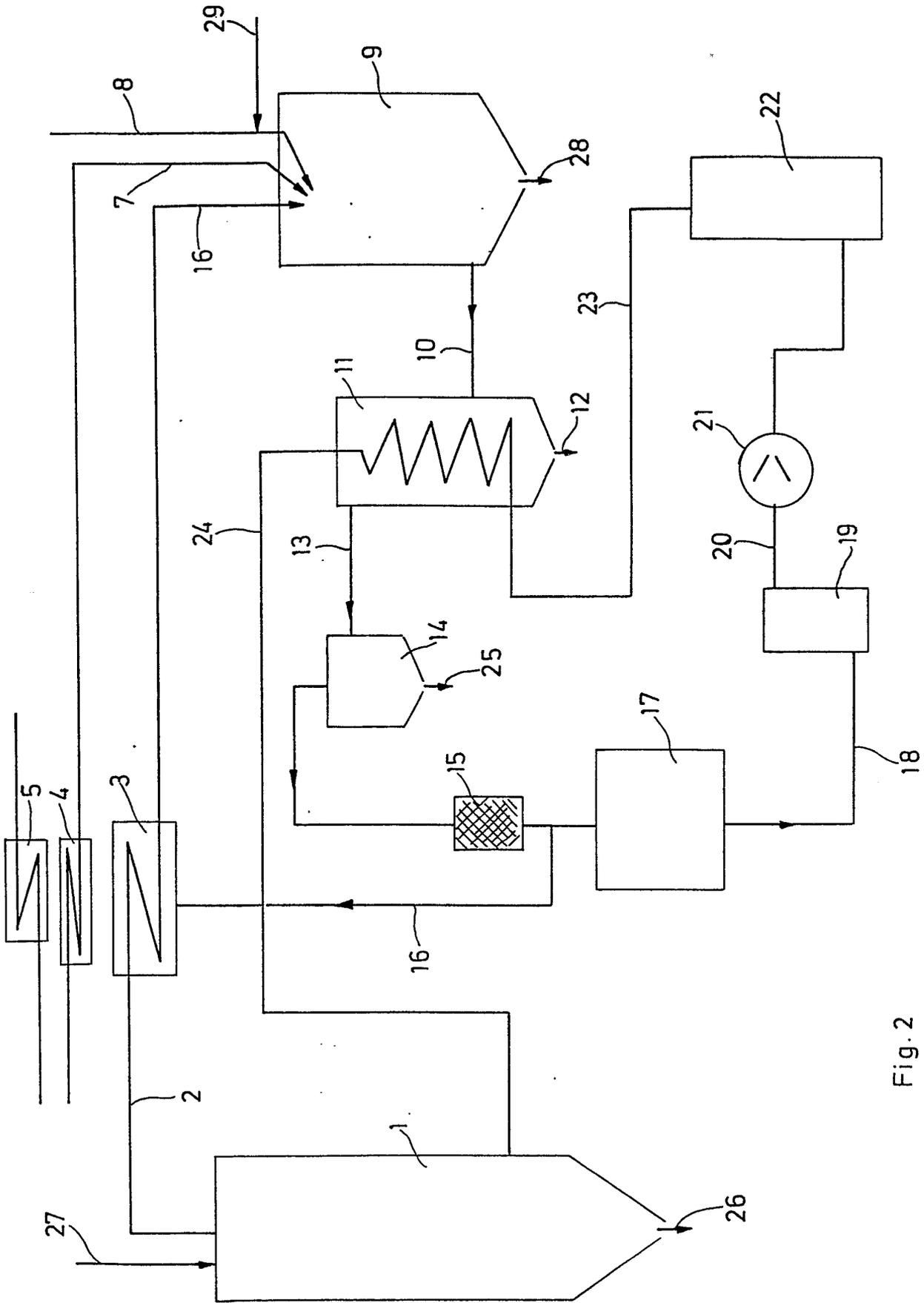


Fig. 2