



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

⑬

⑪ Veröffentlichungsnummer:

0 108 198
A2

⑫

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

⑰ Anmeldenummer: 83107640.1

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

⑱ Anmeldetag: 03.08.83

⑳ Priorität: 08.10.82 DE 3237334

㉓ Veröffentlichungstag der Anmeldung:
16.05.84 Patentblatt 84/20

㉔ Benannte Vertragsstaaten:
BE FR GB IT NL

㉗ Anmelder: **M.A.N. MASCHINENFABRIK**
AUGSBURG-NÜRNBERG Aktiengesellschaft
Bahnhofstrasse 66
D-4200 Oberhausen 11(DE)

㉘ Erfinder: **Knop, Klaus, Dr.-Ing.**
Eckesdyck 11
D-4170 Geldern-Hartefeld(DE)

㉙ 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 mit nachgeschalteter Gasaufbereitung zur Wiederverwendung eines Teilstromes im Reaktor, bei dem ein Teil der Abwärme des Reaktors nach der Gasaufbereitung dem Kreislaufgas wieder zugeführt wird, wobei der Wärmeaustausch zwischen dem aus dem Reaktor austretenden, heißen Synthesegas und dem in den Reaktor eintretenden, kalten Kreislaufgas regenerativ erfolgt.

Zur Veröffentlichung vorgesehene Abbildung: Figur 1.

COMPLETE DOCUMENT



./...

EP 0 108 198 A2

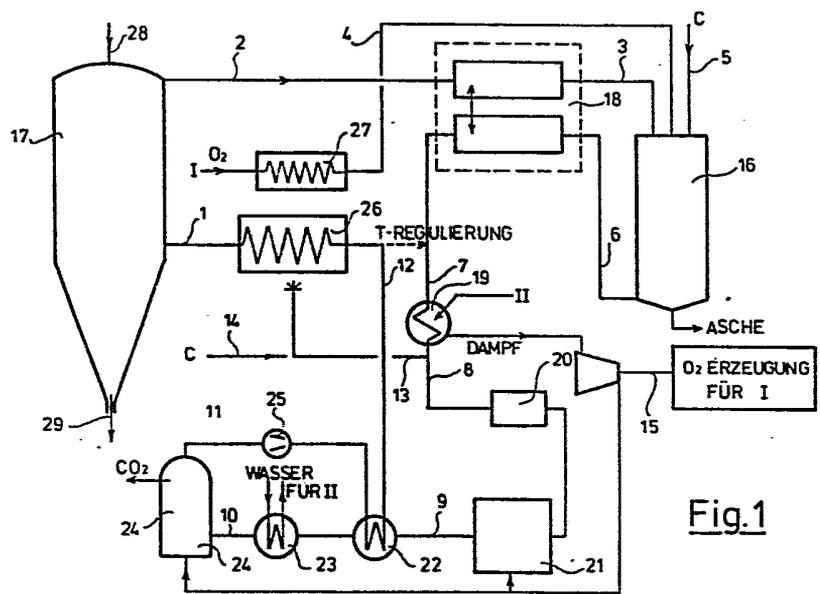


Fig.1

1 Verfahren zum Betreiben eines Reaktors zur Erzeugung
von Synthesegas und Vorrichtung zur Durchführung des
Verfahrens

5

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Betreiben
eines Reaktors zur Erzeugung von Synthesegas mit nach-
geschalteter Gasaufbereitung zur Wiederverwendung
eines Teilstromes im Reaktor, bei dem ein Teil der
10 Abwärme des Reaktors nach der Gasaufbereitung dem
Kreislaufgas wieder zugeführt wird nach Patentanmel-
dung P32 23 702.2-41.

15

Zur Erhöhung der Wirtschaftlichkeit wird bei dem Ver-
fahren gemäß Patentanmeldung P32 23 702.2-41 das
Kreislaufgas vor Wiedereintritt in den Synthesegas-
Reaktor durch die Abgaswärme des Reaktors aufgeheizt.
Der Wärmeaustausch zwischen heißem Synthesegas und
kaltem Kreislaufgas erfolgt dabei über Abhitzewärme-
20 tauscher.

25

Es hat sich gezeigt, daß das Material dieses Wärmeaus-
tauschers dem heißen und korrosiven Synthesegas auf die
Dauer nicht standhält. Zur Materialbelastung trägt auch
der im Synthesegasstrom mitgeführte Flugstaub bei.

30

Es ist Aufgabe der Erfindung, das Verfahren gemäß
Patentanmeldung P 32 23 702.2-41 so zu verändern,
daß diese Nachteile vermieden werden.

35

1 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß
bei dem Verfahren der Wärmeaustausch zwischen dem aus
dem Reaktor austretenden heißen Synthesegas und dem in
den Reaktor eintretenden kalten Kreislaufgas regenera-
5 tiv erfolgt.

Vorteilhaft kann das Verfahren derart durchgeführt
werden, daß das im Regenerator abgekühlte Synthesega-
gas in einem Dampferzeuger weiter abgekühlt wird, von
10 Flugasche befreit, einer Hochtemperatur-Konvertierung
und Gaswäsche unterworfen wird, anschließend aufge-
heizt einem Reduktionsreaktor zur teilweisen Oxidation
zugeführt wird, nach Verlassen des Reduktionsreaktors
durch den Regenerator aufgeheizt und zusammen mit vor-
15 erhitztem Sauerstoff und kohlenstoffhaltigem Brenn-
material dem Reaktor wieder zugeführt wird.

Alternativ zu dieser Verfahrensführung kann aus dem
Kreislauf des Synthesegases nach der Gaswäsche ein
20 Teilstrom ausgeschleust werden, welcher einer Nie-
dertemperatur-Konvertierung und erneuter Gaswäsche
unterworfen wird und als Frischgas bei weiteren Pro-
zessen zur Verfügung steht.

25 Zugunsten einer höheren Wirtschaftlichkeit wird bei
dem Verfahren zumindest ein Teil der im Dampferzeuger
gebildeten Dampfmenge zur Sauerstoffgewinnung für den
Reaktor eingesetzt.

30 Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen des erfindungs-
gemäßen Verfahrens sind in den Unteransprüchen 5 bis 9
angegeben.

35

1 Die Vorrichtung zur Durchführung des erfindungsge-
mäßigen Verfahrens weist vorteilhaft einen Regenerator
zum Wärmeaustausch zwischen rückgeführtem Kreislauf-
gas und aus dem Reaktor austretenden Synthesegas auf.

5

Der Regenerator kann im Gegensatz zu üblichen Metall-
röhren-Wärmeaustauschern mit den hohen Temperaturen
belastet werden, die im Abgasstrom des Synthesegas-
reaktors auftreten. Weiterhin ist er unempfindlich
10 gegenüber den korrosiven Einflüssen und dem Staubge-
halt des Synthesegases.

Im folgenden werden zwei Ausführungsbeispiele der Er-
findung anhand von Schaltschemata näher beschrieben.

15

Es zeigen:

Fig. 1 das Blockdiagramm einer Anlage zur Erzeugung
von Synthesegas zur Verwendung in einem Re-
duktionsreaktor und

20

Fig. 2 das Blockdiagramm der Anlage gemäß Fig. 1
mit zusätzlicher Frischgaserzeugung.

25

Wie Fig. 1 zeigt, wird bei dem erfindungsgemäßen Ver-
fahren das in einem Reaktor 16 erzeugte Synthesegas
nach einer Gasaufbereitung in einen Reduktionsreaktor
17 geleitet und von dort im Kreislauf wieder dem
Reaktor 16 zugeführt.

30

Der Synthesegasreaktor 16 wird mit Kohlenstoff in
Form von Kohlenstaub beschickt. Der Kohlenstoff kann
aber auch in Form von Gas oder Öl zugeführt werden.
In den Reaktor 16 wird weiterhin auf 400 °C aufge-

35

1 heizter Sauerstoff und das aus dem Reduktionsreaktor
17 austretende Gas, das in einem Regenerator 18
auf 1.100 °C (max. 1.200 °C) aufgeheizt wird, einge-
5 leitet. Zur Aufheizung des Regenerators 18 dient
ein Teil der fühlbaren Wärme des aus dem Reaktor 16
austretenden Synthesegases. Ein für das Verfahren ge-
eigneter Regenerator, der einem heißen Gasstrom Wärme
entzieht, speichert und schließlich auf einen anderen
Gasstrom überträgt, ist dem Fachmann aus der Hochofen-
10 Technik und Glasherstellung bekannt und braucht nicht
besonders beschrieben zu werden.

Im Vergasungsreaktor 16 erfolgt die Umsetzung im
Temperaturbereich zwischen 1.300 °C und 1.500 °C. Die
15 bei der Umsetzung anfallende Asche wird unten aus dem
Reaktor abgezogen. Den Reaktor 16 verläßt das Syn-
thesegas mit einer Temperatur zwischen 1.200 °C und
1.300 °C und einer Zusammensetzung, wie sie aus Ta-
belle I, Spalte 6 ersichtlich ist. Nach Durchlaufen
20 des Regenerators 18, aus dem es mit einer mittleren
Temperatur von 750 °C austritt, wird das Synthesegas
in einem Wärmeaustauscher 19, der mit einem Dampfer-
zeuger gekoppelt ist, auf 300 °C abgekühlt. Der er-
zeugte Dampf wird mittels eines turbinenangetriebenen
25 Kompressors zur Gewinnung des im Verfahren angesetzt
Sauerstoffs verwendet. Überschußdampf kann zur Eigen-
bedarfsstromdeckung eingesetzt werden. Der bei der
Sauerstoffgewinnung anfallende Stickstoff wird als
Spülgas im Rahmen der Co_2 -Wäsche des Synthesegases
30 eingesetzt.

35

1 Ein Teil des Synthesegasstromes wird nach Durchlaufen
des Wärmeaustauschers 19 abgezweigt und dient zusam-
men mit zugesetztem Kohlenstaub als Brennmaterial in
5 einem Abgaserhitzer 26. Der Abgaserhitzer 26 heizt
das in den Reduktionsreaktor 17 einströmende Gas auf
eine Temperatur von ca. 920 °C auf.

Das nicht im Abgaserhitzer 26 verwendete Gas wird
nach Durchlaufen eines Filters 20 oder anderer zur
10 Entfernung von Flugasche geeigneter Vorrichtungsteile
einem Hochtemperatur-Konverter 21 zugeführt, mit
welchem das günstigste H_2/CO -Verhältnis eingestellt
werden kann. Die Gaszusammensetzung nach Durchlauf
durch den Konverter 21 ergibt sich aus Spalte 9,
15 Tabelle I.

Das im Hochtemperatur-Konverter 21 aufgeheizte Gas
wird vor Eintritt in eine CO_2/H_2S -Wäsche 24 in Wär-
meaustauschern 22 und 23 abgekühlt. Der Wärmeaus-
20 tauscher 23 dient zur Aufheizung von Kesselspeise-
wasser, das in den Wärmeaustauscher 19 eintritt.
Nach der CO_2/H_2S -Wäsche wird das Gas einem Verdich-
ter 25 zugeführt. Der Verdichter 25 speist den
Wärmeaustauscher 22, von wo das Gas vorgewärmt
25 dem Abgaserhitzer 26 zugeführt wird. Im Abgaser-
hitzer 26 wird das Gas, wie bereits beschrieben,
aufgeheizt und mit einer Zusammensetzung gemäß Spal-
te 1, Tabelle I, dem Reduktionsreaktor 17 zugeführt.
Die Abgasenergie des Abgaserhitzers 26 reicht aus,
30 um zusätzlich noch den Sauerstoff für den Betrieb des
Reaktors (16) in einem Sauerstoff-Vorwärmer 27 auf-
zuheizen.

35



1 Im Reduktionsreaktor 17, der bei 28 mit Erz be-
schickt wird und dem bei 29 im Durchlaufverfahren
das reduzierte Produkt entnommen wird, erfolgt eine
teilweise Oxidation des Reduktionsgases, das den
5 Reaktor 17 mit einer Zusammensetzung gemäß Spalte 2,
Tabelle I verläßt. Vom Reduktionsreaktor 17 wird das
Gas über die Leitung 2 dem Regenerator 18 zur Auf-
heizung zugeführt und tritt anschließend mit einer
Temperatur von ca. 1.100 °C in den Reaktor 16 ein.

10

Zur Temperaturregulierung des aus dem Regenerator (18)
austretenden heißen Synthesegases kann kaltes Reduk-
tionsgas aus der Leitung 12 in die Leitung 7 ein-
gespeist werden, wie es in Fig. 1 gestrichelt ange-
deutet ist.

15

Gemäß Fig. 2 wird der beim Verfahren erzeugte Über-
schuß an Synthesegas nach der $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{S}$ -Wäsche 24 aus
dem Kreislauf ausgeschleust und durchläuft einen Nie-
dertemperatur-Konverter 30 und eine anschließende
20 CO_2 -Wäsche. In der CO_2 -Wäsche wird, wie schon be-
schrieben, der bei der Sauerstoffgewinnung anfallen-
de Stickstoff als Spülgas eingesetzt. Das aufbereite-
te Gas kann als Frischgas z. B. bei der Ammoniak-Er-
zeugung oder als Heizgas eingesetzt werden.

25

30

35

Analysen und Mengen

TABELLE I

Ort	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
H ₂ (Vol.%)	54,72	36,39	36,39			31,40	31,40	31,40	42,56	42,56	54,72	54,72	54,72	31,40	
Co	36,60	23,28	23,28			48,53	48,53	48,53	28,46	28,46	36,60	36,60	36,60	48,53	
CO ₂	3,00	15,82	15,82			6,31	6,31	6,31	20,26	20,26	3,00	3,00	3,00	6,31	
H ₂ O	5,00	22,96	22,96			13,17	13,17	13,17	8,19	8,19	5,00	5,00	5,00	13,17	
CH ₄	0,00	0,72	0,72			0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
N ₂	0,69	0,82	0,82			0,60	0,60	0,60	0,53	0,53	0,69	0,69	0,69	0,60	
O ₂ (kg)	-	-	-	304	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
C (kg)	-	-	-	-	340	-	-	-	-	-	-	-	-	-	
Σ	390,7	387,8	387,8		340	727,8	727,8	710,2	710,2	710,2	448,7	-	57,9	17,6	
ΣH ₂ (kg)	97,8	98,2	98,2			98,2	98,2	95,8	122,8	122,8				2,4	
ΣO ₂ (kg)				304											
ΣN ₂ (kg)															
T (°C)	920	475	1100	400	20	1270	795	300	400	160		400°			
P (bar)	6	5,5	5,2	5,5	5,5	5,0	4,7								
M (Nm ³)	1841	1815	1815	213	634	2476	2476	2416	2718	2718	2114	1841	273	60	220

1 P a t e n t a n s p r ü c h e:

- 5 1. Verfahren zum Betreiben eines Reaktors zur Erzeugung von Synthesegas mit nachgeschalteter Gasaufbereitung zur Wiederverwendung eines Teilstromes im Reaktor, bei dem ein Teil der Abwärme des Reaktors nach der Gasaufbereitung dem Kreislaufgas wieder zugeführt wird, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmeaustausch zwischen dem
10 aus dem Reaktor (16) austretenden heißen Synthesegas und dem in den Reaktor (16) eintretenden kalten Kreislaufgas regenerativ erfolgt.
- 15 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das im Regenerator (18) abgekühlte Synthesegas in einem Dampferzeuger (19) weiter abgekühlt wird, von Flugasche befreit, einer Hochtemperatur-Konvertierung und einer Gaswäsche unterworfen wird, anschließend aufgeheizt einem
20 Reduktionsreaktor (17) zur teilweisen Oxidation zugeführt wird, nach Verlassen des Reduktionsreaktors (17) durch den Regenerator (18) aufgeheizt und zusammen mit vorerhitztem Sauerstoff und kohlenstoffhaltigem Brennmaterial dem Reaktor
25 (16) wieder zugeführt wird.
- 30 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teilstrom des Synthesegases nach der Gaswäsche einer Niedertemperatur-Konvertierung und erneuter Gaswäsche unterworfen wird und als Frischgas zur Verwendung in weiteren Prozessen den Kreislauf verläßt.

- 1 4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch
gekennzeichnet, daß zumindest ein Teil der im
Dampferzeuger (19) gebildeten Dampfmenge zur
Sauerstoffgewinnung für den Reaktor (16) an-
5 gesetzt wird.
5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch
gekennzeichnet, daß der bei der Sauerstoffer-
zeugung anfallende Stickstoff im Rahmen der
10 CO₂-Wäsche als Spülgas benutzt wird.
6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch
gekennzeichnet, daß ein Teil des Kreislaufgases
zusammen mit Kohlenstaub zur Aufheizung des in
15 den Reduktionsreaktor (17) eintretenden Gasstro-
mes und des Sauerstoffstromes für den Reaktor (16)
verwendet wird.
7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch
20 gekennzeichnet, daß zur Temperaturregulierung in
den aus dem Regenerator (18) austretenden Synthe-
segasstrom kaltes Reduktionsgas eingeleitet wird.

25

30

35

1 8. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß das auf dem Reaktor (16) austretende Synthesegas folgende Zusammensetzung aufweist:

5

Wasserstoff	27	-	36 %
Kohlenmonoxyd	44	-	52 %
Kohlendioxyd	5,6	-	6,9 %
Wasser	11,6	-	14,7 %
10 Methan	0	-	0,1 %
Stickstoff	0,4	-	0,8 %

wobei die Summe der Bestandteile 100 % ergibt.

15 9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 - 8, dadurch gekennzeichnet, daß durch die Aufbereitung des Synthesegases ein Reduktionsgas folgender Zusammensetzung hergestellt wird:

20

Wasserstoff	49	-	60 %
Kohlenmonoxid	33	-	40 %
Kohlendioxyd	2,7	-	3,3 %
Wasser	4,5	-	5,5 %
Methan	0	-	0,1 %
25 Stickstoff	0,6	-	0,8 %

wobei die Summe der Bestandteile 100 % ergibt.

30

35

1 10. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens
nach den Ansprüchen 1 bis 9, bestehend aus
einem Reduktionsreaktor (17), einer Vorrich-
5 tung (2) zur Rückführung des Kreislaufgases
vom Reduktionsreaktor (17) zu einem Synthese-
gasreaktor (16), dem Reaktor (16) zur Synthese-
gaserzeugung, einer Vorrichtung (5) zur Bei-
mischung von kohlenstoffhaltigem Brennmaterial,
einer Vorrichtung (4) zur Einleitung von Sauer-
10 stoff zu dem Gemisch aus Kreislaufgas und Brenn-
material, Vorrichtung (20, 21, 24, 30) zur Gas-
aufbereitung, Gaserhitzer (22, 26, 27) und Dampf-
erzeugung (19, 23) mit angeschlossener Sauerstoff-
gewinnung, gekennzeichnet durch einen Regenerator
15 (18) zum Wärmeaustausch zwischen rückgeführtem
Kreislaufgas und aus dem Reaktor (16) austreten-
den Synthesegas.

20

25

30

35

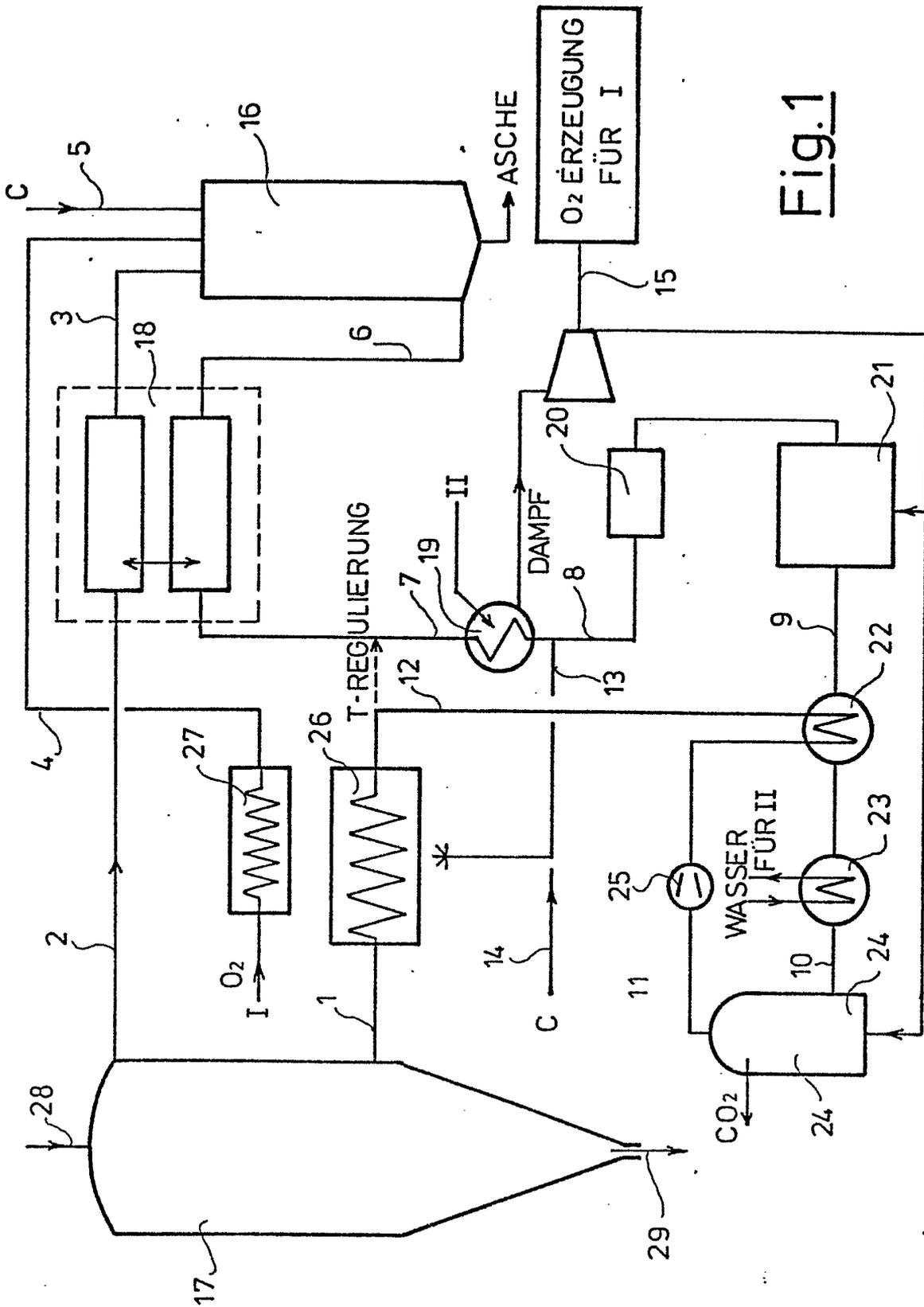


Fig.1

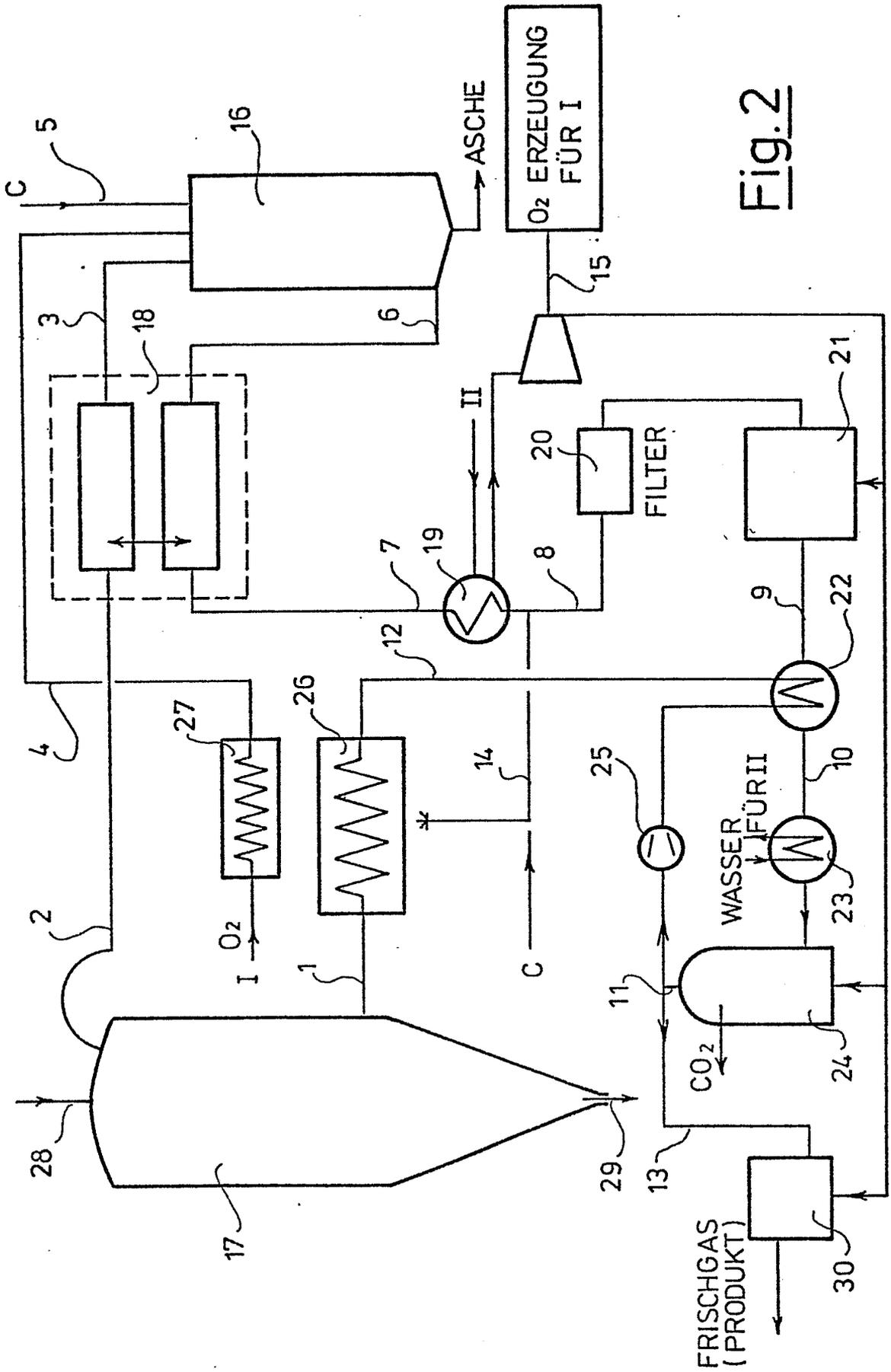


Fig. 2