

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21 Anmeldenummer: 85111795.2

51 Int. Cl.⁴: **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: **Rübe, 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 Brennstoff 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

/...

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 sung von C-haltigem Brennmateriäl 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 Brennmateriäl 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 unterzogen wird und nach erneutem Durchtritt durch den 4-Pol-Wärmetauscher aufgeheizt einem Erhitzer zugeführt wird,
- 15
- und daß zumindest ein Teil des im Erhitzer zusätzlich gebildeten Prozeßdampfes dem Vergasungsreaktor zugeführt wird.
- 20

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren wird das Rohgas nach Durchlaufen des Regenerators in dem 4-Pol-Wärmetauscher und dem Kondensator soweit abgekühlt, daß es seinen 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-
leitet 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 Syntheseg-
as, 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° 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° C auf 578° 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^o 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 Absorbitions-
verfahren, 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^o 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° 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° 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° 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								
Volumenstrom	Nm ³ /s	-	1.815	1.815	34.05			
						37,93		
Massenstrom gas	kg/s	-	2.585	2.585	20.71			
10						20.38		
	fest	kg/s	6.23	-	-	-		
Temperatur	°C		20	20	450	402	750	
Druck	bar		10	1	10	10	10	
Gasanalyse H ₂ /CO			-	-	-	5.45		
15						5.87		
	H ₂ +CO	Vol%	-	-	-	53,84		
						53,73		
	H ₂	Vol%	-	-	-	45,49		
						45,91		
20	CO		-	-	-	8.35		
						7.82		
	CO ₂		-	-	-	7.30		
						6.90		
	H ₂ O		-	-	-	31,32		
25						31,32		
	CH ₄		-	-	-	4,93		
						5,22		
	H ₂ S		-	-	-	0,00		
	N ₂		-	2.0	2.0	2,61		
30						2,83		
	O ₂		-	98,0	98,0	-		
Verfahrens- größe:	Ein- heit		Rohgas			Dry- gas		
35			4.0	4.1	4.2	4.3	5.0	
Volumenstrom	Nm ³ /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 ₂ /CO		6,23				6,23
10	H ₂ +CO	Vol%	59,21				67,92
	H ₂	Vol%	51,03				58,52
	CO		8,19				9,39
	CO ₂		17,49				20,06
	H ₂ O		14,99				2,49
15	CH ₄		6,25				7,17
	H ₂ S		0,09				0,10
	N ₂		1,97				2,26
	O ₂		-				-
20	Verfahrens- größe:	Ein- heit	Reduktionsgas				Brenn- gas
			6.0	6.1	6.2	6.3	7.0
	Volumenstrom	Nm ³ /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 ₂ /CO		6,23				-
	H ₂ +CO	Vol%	86,75				-
30	H ₂	Vol%	74,75				-
	CO		12,00				-
	CO ₂		3,18				-
	H ₂ O		3,12				-
	CH ₄		4,64				88,66
35	H ₂ S		0,00				-
	N ₂		2,31				11,34
	O ₂						-

1	Verfahrens- größe:	Ein- heit	FE- Schw.	Rest- Koks	Staub	Kond. sat	Tails- gasw.
			8.0	9.0	10.0	11.0	12.0
5	Volumenstrom	Nm ³ /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 ₂ /CO						-
	H ₂ +CO	Vol%					-
	H ₂	Vol%					-
	CO						-
	CO ₂						89,14
15	H ₂ O						0,26
	CH ₄						0,59
	H ₂ S						-
	N ₂						-
	O ₂						-
20	Verfahrens- größe:	Ein- heit	Prozeß- Dampf	Überschußgas (Abgetr. CH ₄)			
			13.0	13.1	14.0	14.1	
25	Volumenstrom	Nm ³ /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 ₂ /CO		-		-		
	H ₂ +CO	Vol%	-		-		
	H ₂	Vol%	-		-		
	CO		-		-		
	CO ₂		-		-		
35	H ₂ O		100		-		
	CH ₄		-		88,66		
	H ₂ S		-		0		

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

Vorgegebene Verfahrensdaten

10	Kohleanalyse	Gew.-%	
	C	79,7	
	H ₂	5,1	
15	O ₂	7,7	
	N ₂	1,5	
	S	1,1	
	Asche	4,9	
	Wasser	0,0	
20	Heizwert H _{waf}	MJ/kg	33,06
	H _u real	MJ/kg	31,44
	Energie O ₂ -Erzeugung	kwh/Nm ³	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 ³	-
30	El. Energie f. Gaswä.	kwh/Nm ³	-
	Reduktions-Temperatur	°C	900
	Reduktions-Druck	bar	10
	Reduktionsgrad Fe-Schw.		0,945
	Fe-Gehalt im Erz		0,67

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 ₂	2,74
	O ₂ -Kompressor PKO	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

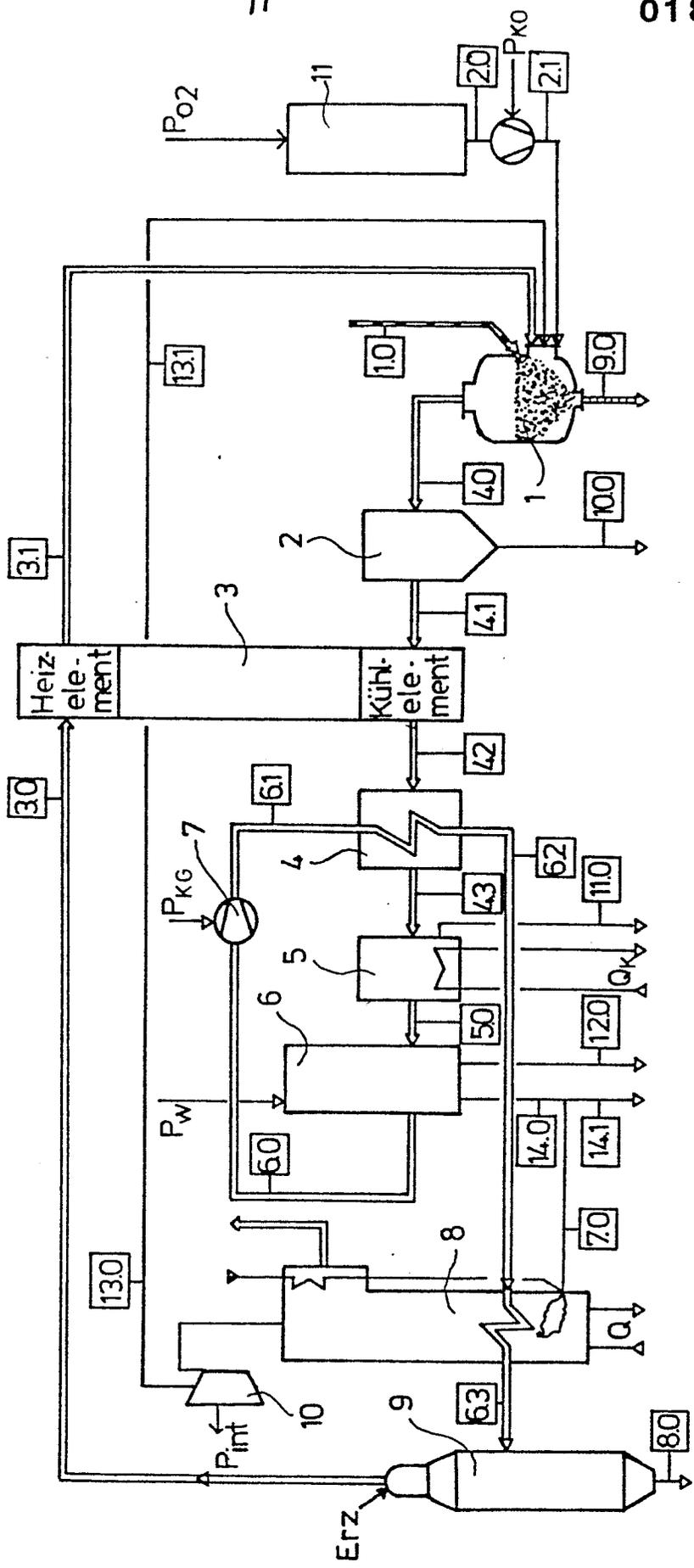
30

35

1 Patentansprüche:

1. Verfahren zur Erzeugung von Synthesegas, bei dem das
in einem Reaktor durch Vergasung von C-haltigem
5 Brennmateriäl 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 Brennmateriäl 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-Wärmeaustauscher (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-Wärmeaustauscher (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 Sauerstoff-
zeugung 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 selek-
tiv entfernt und aus dem Gaskreislauf zur anderweiti-
gen 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 Rege-
nerator (3) aufgeheizt wird.
- 15
- 20
- 25
- 30
- 35



(CH₄) (CO₂) Kondensat (H₂O)

- 50 Massenströme
- P_{xy} El. Energie
- Q_i Wärmeströme