(31) Prioritätsaktenzeichen:

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

EP 16214

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ²:

C07C 9/04, 1/00; C10J 3/20, 3/56

A1 (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 80/00443

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum: 20. März 1980 (20.03.80)

P 28 37 906.8

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE79/00091

(22) Internationales Anmeldedatum:
21 August 1979 (21.08.79)

.

(32) Prioritätsdatum: 31 August 1978 (31.08.78)

(33) Prioritätsland:

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): GHT, GESELLSCHAFT FÜR HOCHTEMPERATUR-REAKTOR-TECHNIK MBH [DE/DE]; Friedrich-Ebert Strasse, D-5060 Bergisch Gladbach 1 (DE).

(72) Erfinder; und
 (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): FISCHER, Reimer [DE/DE]; Lückerather Weg 71, D-5060 Bergisch Gladbach 2 (DE). JÄGER, Walter [DE/DE]; Schul-

weg 33, D-5250 Engelskirchen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AT (europäisches Patent), CH (europäisches Patent), DE (europäisches Patent), FR (europäisches Patent), GB (europäisches Patent), JP, LU (europäisches Patent), NL (europäisches Patent), SE (europäisches Patent), US.

Veröffentlicht

Mit dem internationalen Recherchenbericht

(54) Title: COAL GASIFICATION PLANT COMPRISING A HYDROGENATION AND VAPOUR GASIFIER

The gasification plant of coal into methane comprises a hydrogenation gasifier (3), a vapour gasifier (4) of a conversion (9) and fractionation (12) device. The coal is first introduced into the hydrogenation gasifier and then into the vapour gasifier in which the complete gasification takes place. The gas produced is then supplied continuously to the hydrogenation gasifier: to obtain a better gasification, the high partial pressure in the gas current will be adjusted so that the hydrogen provided from the operation may be returned to the hydrogenation gasifier. A number of different possibilities are proposed for a combination of such a plant with a nuclear reactor (13) which, with a view to saving coal, will provide the heat necessary for carrying out the process for example by supplying the vapour necessary for the gasification of the vapour.

(57) Zusammenfassung

Eine Anlage zur Vergasung von Kohle zu Methan mit einem hydrierenden Vergaser (3), einem Wasserdampfvergaser (4), einer Konvertierung (9) und einer Gaszerlegung (12). Die zu vergasende Kohle fließt zunächst in den hydrierenden Vergaser und danach in den Wasserdampfvergaser, wo eine vollständige Vergasung stattfindet. Das Produktgas des letzteren wird in bekannter Weise in den hydrierenden Vergaser geleitet, doch wird der zur Erzielung eines besseren Vergasungsgrades erforderliche höhere Wasserstoffpartialdruck im Anströmgas dadurch hergestellt, daß der in der Gaszerlegung abgeschiedene Wasserstoff in den hydrierenden Vergaser zurückgeleitet wird. Es werden verschiedene Möglichkeite zur Kombination einer solchen Anlage mit einem Kernreaktor (13) vorgeschlagen, der zum Zweck der Kohleersparnis die zur Aufrechterhaltung des Prozesses erforderliche Wärme zuführt, z.B. indem er den für die Wasserdampfvergasung erforderlichen Dampf liefert.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Code, die zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

€.		
-		
-		
•		
Togo Vereinigte Staaten von Amerika		
•		

_ | _

5

Anlage zur Kohlevergasung mit hydrierendem und Wasserdampfvergaser

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Anlage zur 10 Erzeugung von Methan mit den im Oberbegriff des 1. Anspruchs genannten Merkmalen.

Mehrstufige Kohlevergasungsverfahren sind bekannt, z. B. aus L. J. Anastasia, W. G. Blair: "Clean Fuels from

15 Coal", Symposium II Paper, IGT Chicago 1975, S. 171 - 193 (sog. Hygas-Verfahren) und aus

R. F. Detman: "Stand des OCR/AGA Kohlevergasungsprogrammes" in Gas Wärme International 23 (1974)

S. 301 - 303 (sog. Bigas-Verfahren). Die Kohle wird

in einer ersten Stufe hydrierend vergast, wobei die durch den exothermen Prozeß der Methanisierung freigesetzte Wärme genutzt wird und der dazu erforderliche Wasserstoff in einer zweiten Stufe durch Wasserdampfvergasung erzeugt wird; ein endothermer Vorgang, der

durch Verbrennung eines Teils des eingebrachten Kohlenstoffs in Gang gehalten wird.

28.08.1978 We/Fe



25

30

Wird der hydrierende Vergaser nur mit dem Produktgas des Wasserdampfvergasers beschickt, ist der Vergasungsgrad in ersterem wegen des verhältnismäßig geringen Wasserstoffpartialdruckes in diesem Gas nur gering. Der kohlenstoffreiche Restkoks kann auch in einem nachgeschalteten Wasserdampfvergaser nicht restlos genutzt werden, erst recht nicht wenn, wie bisher vorgeschlagen, die Wasserdampfvergasung nur in einer Stufe erfolgt. Eine Vergasung in einem Festbett macht darüber hinaus auch ein Abkühlen und Brikettieren des Restkokses notwendig, was zu unerwünschten Wärmeverlusten führt.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist eine verbesserte

15 Anlage zur Kohlevergasung, in der der in der Rohkohle
enthaltene Kohlenstoff möglichst vollständig genutzt
wird. Ferner solche Ausgestaltungen der Erfindung, die
die zur Aufrechterhaltung des Prozesses erforderliche
Wärme möglichst unter Verzicht auf Verbrennung der

20 Kohle erzeugen.

Zur Lösung dieser Aufgabe wird eine Anlage mit dem im kennzeichnenden Teil des 1. Anspruchs genannten Merkmal vorgeschlagen. Dadurch, daß dem Produktgas des Wasserdampfvergasers der Wasserstoff aus der Gaszerlegung beigemischt wird, steigt der Wasserstoffpartialdruck im hydrierenden Vergaser so weit an, daß bereits hier ein guter Vergasungsgrad erreicht wird. Die direkte Weiterleitung des heißen Restkokses in den Wasserdampfvergaser erspart Wärmeverluste. Das Problem einer nutzbringenden Verwertung des Restkokses aus dem Wasserdampfvergaser entfällt, da die eingebrachte Kohle bis auf einen mehr oder weniger geringen Aschenrückstand vollständig vergast ist.



WO 80/00443

5

10

15

Die einzelnen chemischen Reaktionen, die im Wasserdampfvergaser vor sich gehen, werden zweckmäßigerweise auf getrennte Wirbelstufen verlegt, wie im 2. Anspruch vorgeschlagen. Die Anzahl der Stufen richtet sich dabei nach der Reaktionsfähigkeit der eingebrachten Rohkohle (für Braunkohle weniger, für Steinkohle dagegen mehr).

Die erforderliche Wärmezufuhr an den Wasserdampfvergaser kann auf die im 3. Anspruch vorgeschlagene konventionelle Art erfolgen.

Es ist aber auch die im 4. Anspruch vorgeschlagene Alternativlösung möglich; im Wasserdampfvergaser sind beispielsweise Heizschlangen angebracht, in denen ein Heizfluid zirkuliert.

Wenn, wie z. B. in Deutschland, die Rohkohle verhältnismäßig kostspielig ist, kann die im 5. Anspruch
genannte Lösung vorteilhaft sein, in der die nötige

Wärme beispielsweise durch einen Hochtemperaturreaktor
bereitgestellt wird, dessen Kühlgas den Wasserdampfvergaser aufheizt; der eingebrachte Kohlenstoff fällt
dann zu einem höheren Anteil in Form des gewünschten
Methans an.

25

30

Wenn das aus dem hydrierenden Vergaser austretende Gasgemisch ohnehin, z. B. zum Zwecke der Reinigung, abgekühlt werden soll, kann es auch entsprechend der im 6. Anspruch vorgeschlagenen Lösung zur Beheizung des Wasserdampfvergasers herangezogen werden. Die im 7. und 8. Anspruch vorgeschlagenen Lösungen sind Alternativen zur Lösung der dann auftretenden Ungleichgewichte in der Material- und/oder Wärmebilanz der Anlage.



Der größte Teil des Wärmeinhalts des dem Wasserdampfvergaser zuzuführenden Dampfes wird von der Verdampfungswärme des Wassers gebildet. Bei Berücksichtigung
der oben zum 5. Anspruch gemachten Annahmen ist es
dann vorteilhaft, die Dampferzeugung ebenfalls nuklear
zu betreiben, wozu sich z. B. auch ein Leichtwasserreaktor eignet.

Zwei beispielhafte Ausführungsformen der Erfindung sind 10 in der Zeichnung dargestellt, wobei beide Figuren in großen Teilen miteinander identische Schaltbilder der Anlage zeigen, die daher auch zusammen beschrieben werden.

Die Rohkohle wird zunächst in einer vorbereitenden Stufe 1 behandelt, z.B. getrocknet, und dann einem hydrierenden Vergaser 3 zugeleitet, der mit einem Wasserdampfvergaser 4 eine bauliche Einheit 2 bildet. Das durch die Reaktion eines Teils des in der Kohle enthaltenen Kohlenstoffs mit dem (wie weiter unten näher beschrieben) zugeführten Wasserstoff

$$C + 2 H_2 = CH_4$$

gebildete Methan wird zusammen mit anderen Gasen in einem ersten Wärmetauscher 5 abgekühlt und dann auf der Primärseite eines Regenerativwärmetauschers 6 in eine Waschvorrichtung 7 geleitet, in der das Gas von Feststoffpartikeln, Teer usw. befreit wird, die schließlich über einen Abscheider 8 entfernt werden. Das Gas fließt dann über die Sekundärseite des Regenerativwärmetauschers 6 und unter Zusatz des anderweitig in der Anlage abgeschiedenen Kohlenmonoxyds in einen Konverter 9, in dem dieses größtenteils entsprechend der Reaktion





WO 80/00443 PCT/DE79/00091

- 5 -

umgewandelt wird. Nach erneuter Abkühlung in einem weiteren Wärmetauscher 10 und Entfernung von Kohlendioxyd und Schwefelwasserstoff in einer Reinigungsstufe 11 wird das Gas schließlich in einer weiteren Stufe, z. B. einer Tieftemperaturzerlegung 12 in seine Bestandteile Methan (das die Anlage als sog. SNG verläßt, um einem Verbraucher zugeführt zu werden), Stickstoff (der in die Atmosphäre entweicht), Kohlenmonoxyd (das zum Konverter 9 zurückgeführt wird) und schließlich Wasserstoff zerlegt, der wiederum in den hydrierenden Vergaser 3 zurückgeleitet wird und dort den Wasserstoffpartialdruck im Anströmgas soweit erhöht, daß bereits eine weitgehende Vergasung der Kohle (ca. 50 - 60 %)eintritt. Das restliche Anströmgas stammt aus dem Wasserdampfvergaser 4, in den der Restkoks aus dem hydrierenden Vergaser unmittelbar und ohne abzukühlen geleitet wird. Der Wasserdampf kann konventionell erzeugt sein oder aber auch (in Fig. 1 nur strichpunktiert angedeutet) aus einem Kernreaktor 13 stammen. In den verschiedenen (hier drei) hintereinandergeschalteten Stufen des Wasserdampfvergasers läuft zunächst (in Strömungsrichtung des Dampfes und des zugefügten Sauerstoffs gesehen) die stark exotherme Reaktion

25

30

10

15

20

$$C + O_2 = CO_2$$

ab, bei der ein Teil des Kohlenstoffs verbrannt wird und die die nötige Wärme für die endotherme Reaktion

$$C + H_2O = CO + H_2$$

liefert, in der der restliche Kohlenstoff umgesetzt wird, so daß über einen Austrag 15 nur noch Asche zu entfernen ist.



10

15

In der in Fig. 2 dargestellten Ausführungsform liefert der Kernreaktor 13 nicht nur den Dampf für die Wasserdampfvergasung, sondern auch ein heißes Fluid (z. B. das als Kühlmittel verwendete Helium), das in Rohrschlangen 16 zirkuliert und so die einzelnen Wirbelschichtbetten des Wasserdampfvergasers 4 beheizt. Auf eine Zufuhr von Sauerstoff kann dann verzichtet werden. Die Rohrschlangen 16 können alternativ hierzu (strichpunktiert dargestellt) auch mit heißem Produktgas aus dem hydrierenden Vergaser 3 beheizt werden. Allerdings muß dann entweder erneut, wenn auch in geringerem Ausmaß Sauerstoff zugeführt werden, um wie oben durch Verbrennung eines Teils des Kohlenstoffs die erforderliche Wärme zu erzeugen, oder die Vergasung läuft bei niedrigeren Temperaturen ab und erzeugt weniger Wasserstoff. Ein Teil des erzeugten Methans muß dann in einem Spaltofen 17 unter Wärme- und Dampfzufuhr entsprechend der Reaktion

$$CH_4 + H_2O = 3 H_2 + CO$$

gespalten werden und das so erzeugte Gasgemisch dem hydrierenden Vergaser zugeführt werden.



Patentansprüche

10

15

- 1. Anlage zur Vergasung von Kohle zu Methan mit einem hydrierenden Vergaser; einem Wasserdampfvergaser, in dem der Restkoks aus dem hydrierenden Vergaser vergast wird; einer Konvertierung zur Umwandlung des im Wasserdampfvergaser erzeugten Kohlenmonoxyds unter Zusatz von Wasserdampf und Kohlendioxyd; und einer Gaszerlegung zum Abscheiden von Methan, Wasserstoff und Kohlenmonoxyd, mit folgendem Merkmal;
- 20 a) dem hydrierenden Vergaser (3) wird Wasserstoff sowohl aus dem Wasserdampfvergaser (4) als auch der Gaszerlegung (12) zugeführt.



10

30

- 2. Anlage nach Anspruch 1, mit folgenden
 M e r k m a l e n :
- a) Hydrierender Vergaser (3) und Wasserdampfvergaser

 (4) sind übereinander angeordnet; der Restkoks aus ersterem fließt unmittelbar in letzteren.
 - b) Der Wasserdampfvergaser (4) weist mehrere hintereinander geschaltete Wirbelbettstufen auf.
- 3. Anlage nach Anspruch 1 oder 2 , mit folgendem
 M e r k m a l :
- a) Der Wasserdampfvergaser (4) wird in an sich
 bekannter Weise durch Verbrennung eines Teils des
 Restkokses mit gesondert zugeführtem Sauerstoff
 beheizt.
- 4. Anlage nach Anspruch 1 oder 2, mit folgendem 20 Merkmal:
 - a) Der Wasserdampfvergaser (4) wird indirekt mittels eines heißen Fluids beheizt.
- 25 5. Anlage nach Anspruch 4, mit folgendem
 Merkmal:
 - a) Das heiße Fluid ist das Kühlfluid eines Kernreaktors (13).
 - 6. Anlage nach Anspruch 4, mit folgendem Merkmal:
- a) Das heiße Gas ist das Produktgas des hydrierenden.

 Vergasers (3).

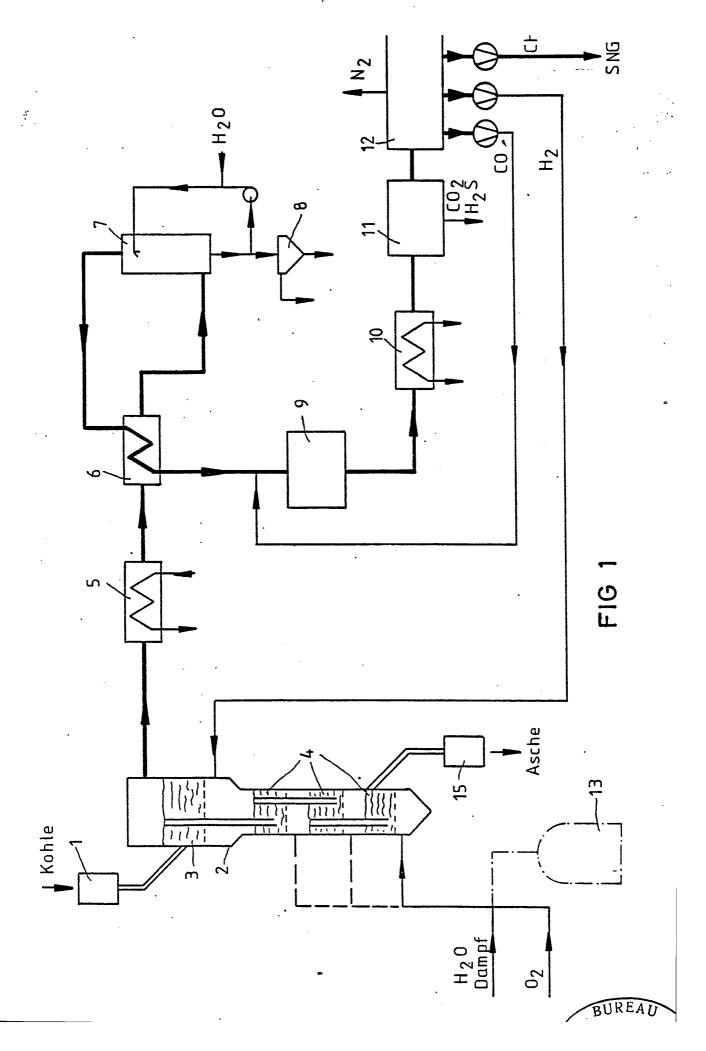


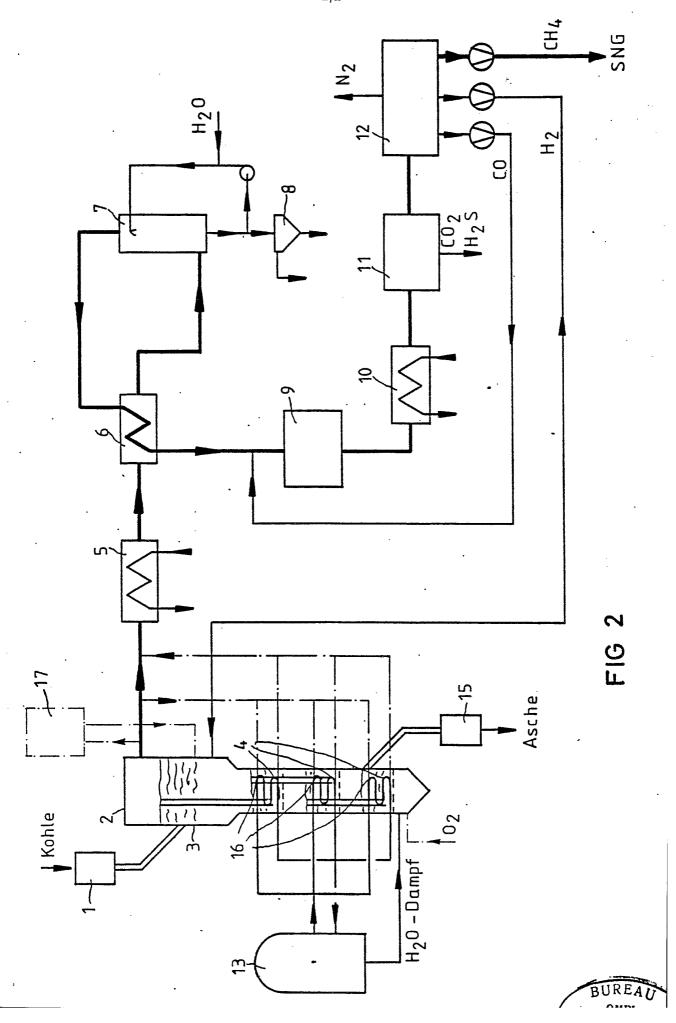
. 20

- 7. Anlage nach Anspruch 6, mit folgendem M e r k m a l :
- a) Die zum Ausgleich der Wärmebilanz bei ausgeglichener Materialbilanz der Anlage erforderliche
 Wärme wird durch Verbrennung eines Teils des
 Restkokses mit gesondert zugeführtem Sauerstoff
 erzeugt.
- 10 8. Anlage nach Anspruch 6, mit folgendem Merkmal:
- a) Der zum Ausgleich der Materialbilanz bei ausgeglichener Wärmebilanz der Anlage erforderliche
 Wasserstoff wird in einem Spaltofen (17) aus
 einem Teil des Methans erzeugt.

 - a) Der dem Wasserdampfvergaser (4) zugeführte Wasserdampf wird mit einem Kernreaktor (13) erzeugt.







INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

			Internationales Aktenzeichen	PCT/DE 79/0009
i. KL	ASSIFIZI	ERUNG DES ANMELDUNGSGEGENST	ANDS (bei mehreren Klassifikationssyn	nbolen sind alle enzugehen)
Nach der l	nternatio	nsien Patentkisssifikation (IPC) oder sow	ohl nach der nationalen Klassifikation a	is such nach der IPC
C (07 C	9/04; C 07 C 1/00; C	10 J 3/20; C 10 J 3	3/56
II. RE	CHERCH	ERTE SACHGEBIETE	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
'lassifikasi	onssystem	Recherchierte	r Mindestprüfstoff ⁴	
I SHITIKAY	onssysten		Klassifikationssymbole	
Int.	.C1.	C 10 J 3/56; C 10	7 C 1/00; C 10 J 3/2 0 J 3/54; C 10 J 3/0	20; 00
		Recherchierte nicht zum Mindestprüfstor	if gehörende Veröffentlichungen, sowei erten Sechgebiete fellen ⁵	t diese
			tren cochooners (8191)	
			•	
		••		
II. ALS	BEDEU	TSAM ANZUSEHENDE VERÖFFENTI	ICHUNGEN ¹⁴	
Art+	Ken	nzeichnung der Veröffentlichung, ¹⁶ mit . Betracht kommenden Teile	Angabe, soweit erforderlich, der in	Betr. Anspruch Nr. 18
		A, 2553506, veröffer		1 / 5 0
·	,	1977, siehe Patentar 6 bis 8, GHT Gesells temperaturreaktor-Te	ısprüche, Seiten schaft für Hoch-	1,4,5,9
A	DF	A, 2403933, veröffer	0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	4
A		1974, siehe Patentans Associates	prüche, Gilbert	1
,		1 050//65 "00		
A	υE,	A, 2704465, veröffer August 1978, siehe E GHT Gesellschaft für reaktor-Technik	1,7	
A	DE,	A, 2609320, veröffer September 1977, sieh Kraftwerk Union		
ĺ				
		angegebenen Veröffentlichungen:15		
Veröff Techni	entlichung k definier	, die den allgemeinen Stand der t	"P" Veröffentlichung, die vor dem	Anmeldedatum, aber
Anmel	veröffen dedatum e	tlichung, die erst am oder nach dem erschienen ist	arrhianen ist	ten Prioritätsdatum
Arten ; Veröffe eine Be bezieht	entiichung Genannten Entlichung Inutzung,	rrschienen ist , die aus anderen als den bei den übrigen Gründen angegeben ist , die sich auf eine mündliche Offenberung eine Ausstellung oder andere Maßnahmen	Anmeldedatum erschienen ist nicht kollidiert, sondern nur zu der Erfindung zugrundellegend ihr zugrundellegenden Theorie "X"Veröffentlichung von besonder	und mit der Anmeldung
BESC	HEINIGU	NG	A A OLOHIGH HILL AND DESCRICE	er beceutung
um des te	itsächliche	n Abschlusses der Internationalen	Absendedatum des internationalen	Bacherchenherinher?
29. November 1979			7. Dezember	
rnational	e Recherc	henbehörde ¹	Unterschrift des bevollmächtigten E	Region 20
	EUHO	PAISCHES PATENTAMT	G.L.M. Kruydenbe	1 11 11 11 1
			Ki dydenbe	-6 // 000

Formblett PCT / ISA / 210 (Blatt 2) (Oktober 1977)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE79/00091

I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER (if several classification symbols apply, indicate all) 3 According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC C 07 C 9/04; C 07 C 1/00; C 10 J 3/20; C 10 J 3/56 II. FIELDS SEARCHED Minimum Documentation Searched 4 Classification System Classification Symbols C 07 C 9/04; C 07 C 1/00; C 10 J 3/20; Int.Cl. C 10 J 3/56; C 10 J 3/54; C 10 J 3/00; Documentation Searched other than Minimum Documentation to the Extent that such Documents are Included in the Fields Searched 5 III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT 14 Category * Citation of Document, 16 with indication, where appropriate, of the relevant passages 17 Relevant to Claim No. 18 DE, A,2553506, published on 2 June 1977, see 1,4,5,9 Claims, pages 6 to 8, GHT Gesellschaft für Hochtemperaturreaktor-Technik Α DE, A,2403933, published on 8 August 1974, see Claims, Gilbert Associates Α DE, A,2704465, published on 10 August 1978, see Claims, GHT Gesellschaft für Hochtemperaturreaktor-Technik Α DE, A,2609320, published on 8 September 1977 see Claims, Kraftwerk Union * Special categories of cited documents: 15 "A" document defining the general state of the art "P" document published prior to the international filing date but on or after the priority date claimed earlier document but published on or after the international filing date "T" later document published on or after the international filing date or priority date and not in conflict with the application, but cited to understand the principle or theory underlying the invention. "L" document cited for special reason other than those referred to in the other categories the invention document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "X" document of particular relevance IV. CERTIFICATION Date of the Actual Completion of the International Search 3 Date of Mailing of this International Search Report 3 29 November 1979 (29.11.79) 7 December 1979 (07.12.79) International Searching Authority 1 Signature of Authorized Officer 20

OFFICE

EUROPEAN PATENT