



CH 676124 A5



SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT
BUNDESAMT FÜR GEISTIGES EIGENTUM

CH 676124 A5

Int. Cl.⁵: **C 10 K** 1/00
C 10 B 47/04

Erfindungspatent für die Schweiz und Liechtenstein

Schweizerisch-liechtensteinischer Patentschutzvertrag vom 22. Dezember 1978

PATENTSCHRIFT A5

① Gesuchsnummer: 5068/87

② Anmeldungsdatum: 12.12.1987

④ Patent erteilt: 14.12.1990

⑤ Patentschrift
veröffentlicht: 14.12.1990

⑦ Inhaber:
SKF Steel Engineering AB, Hofors (SE)

⑧ Erfinder:
Eriksson, Sven, Falun (SE)
Santén, Sven, Hofors (SE)

⑨ Vertreter:
H. W. Barnieske Patentbüro AG, Zürich

⑤ Verfahren zur Herstellung eines zur Energieerzeugung geeigneten Gases.

⑤ Verfahren zur Herstellung eines zur Energieerzeugung geeigneten Gases, bei welchem Kohle im Gegenstrom mit Luft in einem Schachtofen vergast wird, das erzeugte Gas dann mit einem sauerstoffhaltigen Gas in einem derartigen Verhältnis gemischt wird, dass das Volumenverhältnis CO₂/CO im entstandenen Gas 0,1 nicht übersteigt, um die im Gas vorhandenen Teerstoffe zu spalten. Das Gas wird dann in einen Dolomit- oder Kalkschacht eingeleitet, um Schwefelverbindungen und restliche Teerstoffe zu entfernen und irgendwelche mitgerissenen Kohleteilchen zu vergasen, die bis dahin noch nicht vergast wurden.

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines zur Energieerzeugung geeigneten Gases durch Vergasung von Kohle im Gegenstrom mit Luft in einem Schachtofen, um ein Gas mit einer Temperatur von etwa 500°C zu erzeugen, welches neben H₂, CO und N₂ Schwefelverbindungen und Teerstoffe enthält und welches anschliessend Prozessen unterworfen wird, um die Teerstoffe zu entfernen, bevor es durch einen Dolomit- oder Kalkschacht geleitet wird, um die Schwefelverbindungen zu entfernen.

Die Verwendung von Kohle zur Energieerzeugung wird in starkem Masse durch die schwerwiegenden Umweltfaktoren behindert, welche mit der Verbrennung von Kohle verbunden sind. Das Hauptproblem ist die Abgabe von säurebildenden Substanzen wie Schwefel- und Stickstoffoxiden. Es wurden bereits in gewissem Umfange Versuche unternommen, um dieses Problem durch verschiedene Waschschritte zu lösen, doch diese ergeben eine beträchtliche Kostensteigerung und es ist mit der herkömmlichen Technologie äusserst schwierig oder sogar unmöglich, das Ausmass einer Reinigung zu erreichen, welches gefordert werden muss, wenn Kohle als führendes Rohprodukt für die Energie angenommen werden soll.

Diese Probleme lassen sich lösen, indem zunächst die Kohle vergast wird und dann durch Verbrennung des erzeugten Gases Energie erzeugt wird. Es ist relativ einfach, ein hohes Ausmass an Entschwefelung, d.h. von mehr als 95%, in dem reduzierenden Steinkohlengas zu erreichen. Da dann ein gasförmiger Brennstoff verbrannt wird, lässt es sich dann einrichten, das beträchtlich weniger Stickoxid gebildet wird als dies mit festen oder flüssigen Brennstoffen möglich ist. Die Vergasung bietet auch bessere Lösungen für verschiedene andere umweltschädigende Wirkungen der Kohleverbrennung wie beispielsweise die Abgabe von Quecksilber, polyaromatischen Kohlenwasserstoffen, Schwermetallen und Flugasche.

In neuerer Zeit sind beträchtliche Anstrengungen gemacht worden, um die Kohlevergasung zur Energieerzeugung weiter zu entwickeln, doch in allen Fällen haben sich die Kosten als zu hoch erwiesen. Der Hauptgrund dafür liegt in dem sehr hohen Verbrauch an Sauerstoffgas angesichts der hohen Investitionskosten und des relativ hohen Elektrizitätsverbrauchs der mit der Herstellung des Sauerstoffgases einhergeht. Ausserdem wird in den meisten Kohlevergasungsanlagen 10–20% des erzeugten Gases im Vergasungsreaktor verbrannt, um den Hitzeanforderungen für die Vergasung zu genügen und eine günstige Reaktionstemperatur zu erzielen.

Einfache und preiswerte Verfahren zur Herstellung von Gas, welches für die Energieerzeugung geeignet ist, sind Kohlevergasungsprozesse, bei denen Luft verwendet wird, und welche ein Minimum an Kohle verbrauchen. Kohle, und zwar hauptsächlich in Klumpenform, wird im Gegenstrom mit einem heissen Luftstrom im Schachtofen vergast. Das erzeugte Gas hat eine Temperatur von annä-

hernd 500°C und enthält infolge der niedrigen Temperatur reichliche Mengen von Teerstoffen und geringe Mengen von unverbrannter Kohle in Teilchenform.

In den schwedischen Patentanmeldungen 8 504 439-4 sowie 8 504 440-2 der Anmelderin wurde bereits vorgeschlagen, in einem durch Kohlevergasung erzeugten Gas vorhandene Kohlenwasserstoffe thermisch zu spalten, indem ein durch einen Plasmagenerator erhitztes Gas zugeführt wurde. Nach teilweiser Aufspaltung wird das Gas durch ein Dolomitfilter der im Wiber-Söderfors-Verfahren verwendeten Art hindurchgeleitet. Eine vollständige Aufspaltung der restlichen Teerstoffe wird während des Transportes durch den Filter erzielt und das Gas wird gleichzeitig entschwefelt.

Die Erfindung hat sich die Aufgabe gestellt, die in den vorgenannten Patentanmeldungen vorgeschlagene Technologie durch weitere Senkung des Elektrizitätsverbrauchs zu verbessern.

Gekennzeichnet ist das erfindungsgemässe Verfahren der eingangs genannten Art in wesentlichen dadurch, dass das den Schachtofen verlassende Gas zusammen mit einem sauerstoffhaltigen Gas in eine Kammer geleitet wird, um die im Gas enthaltenen Teerstoffe zumindest teilweise zu spalten, wobei die Menge an zugesetztem Sauerstoff derart eingestellt wird, dass das Volumenverhältnis CO₂/CO im entstehenden Gas 0,1 nicht übersteigt, dass in der Kammer eine Temperatur von 900–1200°C eingehalten wird und das Gas anschliessend in den Dolomit- oder Kalkschacht eingeleitet wird, um Schwefelverbindungen und restliche Teerstoffe zu entfernen und irgendwelche mitgerissenen Kohleteilchen zu vergasen.

Gemäss einem Durchführungsbeispiel der Erfindung wird der Reaktionskammer zur Erzielung einer für die Aufspaltung günstigen Temperatur Energie zugeführt. Dies kann dadurch erfolgen, dass das sauerstoffhaltige Gas vor dem Eintritt in die Kammer vorgewärmt wird. Vorzugsweise wird die Energie teilweise durch Vorwärmung des sauerstoffhaltigen Gases und teilweise durch Teilverbrennung in der Kammer zugeführt.

Als sauerstoffhaltiges Gas wird vorzugsweise Luft oder mit Sauerstoff angereicherte Luft verwendet.

Das Temperaturintervall ist für eine Aufspaltung ohne Schmelzen wichtig und der Gasquotient ist im Hinblick auf die Entschwefelung und natürlich im Hinblick auf die Energiedichte des erzeugten Gases wichtig.

Weitere Vorzüge und Merkmale der Erfindung ergeben sich aus der nachfolgenden Beschreibung und der in's Einzelne gehenden Erläuterung eines Durchführungsbeispiels.

Bei dem Vergasungsschacht handelt es sich um den Gaserzeuger, wie er insbesondere in England während der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts allgemein in Gebrauch war. Diese Gaserzeuger wurden ausschliesslich mit Stückkohle befeuert und lieferten ein Brenngas mit extrem hohem Teergehalt. In dem erfindungsgemässen Verfahren wird der Generator mit heisser Gebläseluft betrieben und die Kohle wird dabei zu einer flüssigen Schlacke geschmol-

zen. Ausserdem ergibt sich die Möglichkeit, dass ein Teil der Kohle die Form von Kohlenstaub hat, wenn das veränderte Wärme Gleichgewicht durch die Gebläsetemperatur kompensiert wird. Die Umwandlung der Kohlenasche in Schlacke ergibt eine hohe Kohlenausbeute, da vernachlässigbare Mengen in der Schlacke zurückbleiben, sodass das Aschevolumen stark verringert wird und die Auslaugraten beträchtlich niedriger sind.

Ein weiterer durch Umwandlung der Kohlenasche in Schlacke erzielter Vorteil besteht darin, dass der Zusatz von Schlackenbildnern ausgenutzt werden kann, um die Zusammensetzung der Schlacke für die Herstellung von Rohprodukten beispielsweise für Zement zu steuern. Ein Nachteil dieser Art eines Vergasungsschachtes besteht darin, dass nicht alle Kohlearten für eine Gegenstromvergasung bei geringem Temperaturanstieg geeignet sind. Dies gilt hauptsächlich für Kohle, welche in flüssige Form beim Erhitzen umgewandelt wird, oder Kohle, welche in kleine Teilchen «explodiert». Teilweise wird dies dadurch ausgeglichen, dass 70% des Rohkohleproduktes in Form von Feinstäuben einspritzbar sind und die vorgenannten Grenzen nicht für diesen Prozentsatz gelten.

Das den Generatorschacht verlassende Gas wird mit Luft vermischt, um der Sauerstoffanforderung zur Aufspaltung der Teerstoffe zu genügen. Vorzugsweise wird die Luft vorgewärmt, um einen zu hohen CO₂-Gehalt im Gas zu vermeiden, da dies zu einem schlechteren Effekt bei der nachfolgenden Entschwefelung führen kann. Ein Teil des Energiebedarfs kann allerdings durch Verbrennung in der Kammer abgedeckt werden. Das Volumenverhältnis CO₂/CO soll im entstandenen Gas 0,1 nicht übersteigen, um eine Angabe der CO₂-Menge zu geben, welche im Gas zugelassen werden kann.

Eine Temperatur von 900 – 1200°C wird in der Kammer eingehalten.

Die Mischung und der Temperaturanstieg erfolgen daher in einem Schritt in einer Mischkammer in direkter Verbindung mit dem Entschwefelungsschacht, in welchem das Gas dann eine ausreichende Zeit lang verbleibt, um eine vollständige Aufspaltung und Entschwefelung zu ermöglichen. Der Schwefelfilter ist ein Filter, wie er im Wiber-Söderfors-Verfahren zur Entschwefelung des Reduktionsgases ausprobiert und getestet wurde. Entsprechend den in diesem Verfahren bei vergleichbaren Gasen durchgeführten Messungen bleibt der Schwefelgehalt in dem abgegebenen Gas stetig bei 20–30 ppm, während das Dolomit vollkommen bis zu einer Tiefe von etwa 6 mm ausgenutzt wird, wenn das Gas im Schacht für etwa 36 Stunden verbleibt. Der Hauptgrund dafür, dass der volle Temperaturanstieg im in den Filter eintretenden Gas nicht durch Teilverbrennung des Gases aufgenommen wird, besteht darin, dass das Gas dann ein höheres Sauerstoffpotential erreichen würde, wodurch die Bedingungen für eine Entschwefelung zerstört würden. Der grosse Vorteil bei einer Entschwefelung, bei der das Entschwefelungsmittel sich in fester Phase befindet statt beispielsweise in Form einer Schlacke, besteht darin, dass die CaO-Aktivität nahe bei 1 bleibt, wodurch sich eine vollständigere Ent-

schwefelung und ein geringerer Verbrauch an Entschwefelungsmittel ergibt.

Neben den Teerstoffen enthält das den Vergasungsschacht verlassende Gas auch schwankende Mengen an feinen Kohleteilchen. Sie werden im Entschwefelungsschacht abgefangen und können, da das Gas leicht oxidierend ist (annähernd 5% CO₂ + H₂O), langsam vergast werden, sodass das Dolomit praktisch kohlefrei ist, wenn es ausgegeben wird. Die Kombination der Umwandlung von Asche in Schlacke und die Aufspaltung in Dolomitfiltern führt daher zu einer fast 100%-igen Kohleausnutzung.

Bei dem Entschwefler im Filter handelt es sich um Rohdolomit, welches im oberen Bereich des Schachtes verbrannt wird. Dies ergibt einen Zusatz von kaum 1% und senkt die Gastemperatur um 50–75°C, sodass das Gas den Filter mit etwa 1000°C verlässt. Das gereinigte Gas durchläuft dann einen Wärmeaustausch mit dem eintretenden Gebläseluftstrom und verlässt die Vergasungsanlage mit etwa 650°C. Die Vergasungsanlage ist auf einen Arbeitsdruck von 0–3 bar Überdruck ausgelegt, je nachdem, zu welchem Zweck das Gas verwendet werden soll.

Das erzeugte Gas hat einen Wärmewert von etwa 4,6 MJ/m³N. Die Flammentemperatur und die Abgasmenge pro Energieeinheit liegen nahe den Werten, wie sie bei normaler Verbrennung von Öl mit Luft erreicht werden. Das Gas ist daher als äusserst geeignet für die Energieerzeugung anzusehen.

Beispiel

Kohle wird in einem Schacht im Gegenstrom mit vorgewärmter Gebläseluft vergast. Eine Analyse der Kohle ergibt nachstehende Zusammensetzung:

C	75,9%
H	4,3%
O	9,4%
N	1,3%
S	0,5%
Asche	8,6%
Feuchtigkeit	4%

Das den Schacht verlassende Gas hat eine Temperatur von 500°C und folgende Zusammensetzung:

C _n H _m	6,5%
CO ₂	1,8%
H ₂ O	1,4%
CO	30,0%
N ₂	60,2%
H ₂ S	0,1%

Stöchiometrisch werden pro 100 kg Kohle 29,3 m³N Luft benötigt, um allen Kohewasserstoff im Gas in CO und H₂ aufzuspalten.

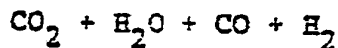
Die Temperatur des den Dolomitschacht nach der Mischkammer verlassenden Gases beträgt etwa 1000°C und es hat folgende Zusammensetzung:

CO ₂	0,3%
H ₂ O	0,1%
H ₂	12,0%
CO	32,0%
N ₂	55,6%

Der Ausgleich zwischen CaO + H₂S und CaS + H₂O beherrscht die Entschwefelung und für den stöchiometrischen Fall erhält man ein Verhältnis H₂O : H₂S von 180, was eine 99%-ige Entschwefelung ergibt.

Bei einem Gasgemisch in der Mischkammer mit einer Zusammensetzung entsprechend dem Quotient

$$\frac{\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}}{\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} + \text{CO} + \text{H}_2} = 0,075$$



werden 64,1 m³N Luft pro 100 kg Kohle benötigt. Das das Dolomitfilter verlassende Gas hat dann eine Temperatur von etwa 1100°C und folgende Zusammensetzung:

CO ₂	1,9%
CO	28,4%
H ₂ O	1,6%
H ₂	9,7%
N	58,4%
H ₂ S	0,009%

In diesem Fall beträgt die Entschwefelung 87,5%.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung eines zur Energieerzeugung geeigneten Gases, bei welchem Kohle im Gegenstrom mit Luft in einem Schachtofen vergast wird und dabei ein Gas mit einer Temperatur von etwa 500°C erhalten wird, welches ausser H₂, CO und N₂ Schwefelverbindungen und Teerstoffe enthält und Prozessen unterworfen wird, um die Teerstoffe zu entfernen, bevor es zur Entfernung der Schwefelverbindungen durch einen Dolomit- oder Kalkschacht geleitet wird, dadurch gekennzeichnet, dass das den Schachtofen verlassende Gas zusammen mit einem sauerstoffhaltigen Gas in eine Kammer geleitet wird, um die im Gas enthaltenen Teerstoffe zumindest teilweise zu spalten, wobei die Menge an zugesetztem Sauerstoff derart einge-

stellt wird, dass das Volumenverhältnis CO₂/CO im entstehenden Gas 0,1 nicht übersteigt, dass in der Kammer eine Temperatur von 900 – 1200°C eingehalten wird und das Gas anschliessend in den Dolomit- oder Kalkschacht eingeleitet wird, um Schwefelverbindungen und restliche Teerstoffe zu entfernen und irgendwelche mitgerissenen Kohleteilchen zu vergasen.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das sauerstoffhaltige Gas vor dem Eintritt in die Kammer vorgewärmt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als sauerstoffhaltiges Gas Luft oder mit Sauerstoff angereicherte Luft verwendet wird.

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass Energie teilweise durch Vorwärmung des sauerstoffhaltigen Gases und teilweise durch Teilverbrennung in der Kammer zugeführt wird.