

19



Bureau voor de
Industriële Eigendom
Nederland

11 1009745

12 C OCTROOI²⁰

21 Aanvraag om octrooi: 1009745

51 Int.Cl.⁷
C10J3/12

22 Ingediend: 27.07.1998

41 Ingeschreven:
28.01.2000

47 Dagtekening:
28.01.2000

45 Uitgegeven:
03.04.2000 I.E. 2000/04

73 Octrooihouder(s):
Stichting Energieonderzoek Centrum Nederland
te Petten.

72 Uitvinder(s):
Katrien Hemmes te Alkmaar
Hubert Veringa te Zwaag

74 Gemachtigde:
Dr. R. Jorritsma c.s. te 2517 KZ Den Haag.

54 Werkwijze en inrichting voor het vormen van synthesesegas uit biomassa en reststoffen.

57 De uitvinding betreft een werkwijze en inrichting voor het vormen van synthesesegas uit biomassa. In een pyrolysezone wordt de biomassa omgezet in een vast verkolingsproduct (char) en in gasvormige pyrolyseproducten. De gasvormige pyrolyseproducten worden in een branderzone verbrand en leveren de warmte voor het endotherme pyrolyseproces en voor een endotherm vergassingsproces voor het vormen van synthesesegas. De verkolingsproducten worden toegevoerd aan de vergassingszone om met bijvoorbeeld stoom te worden omgezet in H₂ en CO. Doordat de gasvormige pyrolyseproducten en de afgassen uit de verbrandingszone gescheiden zijn van de vergassingszone wordt een hoog calorisch productgas verkregen dat nagenoeg vrij is van stikstof. Doordat de vaste verkolingsproducten uit het pyrolyseproces naar de vergasser worden toegevoerd, wordt daaruit een zeer zuiver productgas verkregen dat vrij is van verontreinigingen die gebruikelijkerwijs optreden bij omzetting van de gasvormige pyrolyseproducten in synthesesegas. De inrichting volgens de onderhavige uitvinding kan daarom worden bedreven zonder toepassing van complexe reinigingsinstallaties.

NL C 1009745

De inhoud van dit octrooi wijkt af van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en). De oorspronkelijk ingediende stukken kunnen bij het Bureau voor de Industriële Eigendom worden ingezien.

Werkwijze en inrichting voor het vormen van synthesegas uit biomassa en reststoffen.

De uitvinding heeft betrekking op een werkwijze en een inrichting voor het vormen van synthesegas uit niet fossiel koolstofhoudend biologisch materiaal (biomassa), welke inrichting omvat:

- een pyrolysezone met een eerste toevoer voor het koolstofhoudend materiaal, met een tweede toevoer voor een inert warmtetransportmateriaal, voor het nagenoeg in afwezigheid van zuurstof vormen van gasvormige pyrolyseproducten en van een vast verkolingsproduct (char), en met een afvoer voor het warmtetransportmateriaal en het verkolingsproduct,
- een verbrandingszone voor het verhitten van het warmtetransportmateriaal met een eerste toevoer voor een oxidatiemiddel en met een tweede toevoer voor het warmtetransportmateriaal, en
- een vergassingszone met een eerste toevoer voor een vergassingsmiddel, met een tweede toevoer die is verbonden met de pyrolysezone voor toevoer van het warmtetransportmateriaal en het in de pyrolysezone gevormde verkolingsproduct, met een eerste afvoer voor in de vergassingszone gevormd productgas en met een tweede afvoer voor het warmtetransportmateriaal, alsmede met een eerste afvoer voor in de verbrandingszone gevormde verbrandingsgassen en met een tweede afvoer voor het warmtetransportmateriaal, en
- een tussen de tweede afvoer van de vergassingszone en de tweede toevoer van de pyrolysezone gelegen retourbaan voor toevoer van het warmtetransportmateriaal van de vergassingszone aan de pyrolysezone.

Momenteel is aardolie de belangrijkste grondstof voor de productie van organische chemicaliën en transportbrandstoffen. Daarnaast wordt aardgas ingezet voor de productie van vloeibare secundaire energiedragers. Tengevolge van de verwachte schaarste aan de voorraden aardolie en aardgas in de toekomst wordt gezocht naar alternatieve grondstoffen die koolstof en waterstof bevatten voor de productie van vloeibare secundaire energiedragers. Hierbij wordt veelal gebruik gemaakt van biomassa, waarbij een bijkomend voordeel is dat netto geen CO₂ wordt geproduceerd. Bij de conversie van biomassa naar vloeibare energiedragers dienen de koolwaterstofstructuren, met name clusters van cyclische koolwaterstoffen, gedeeltelijk te worden afgebroken. De conversieroutes die beschikbaar zijn voor de conversie van biomassa naar synthesegas, of wel de "upstream processen" zijn vergassen, (hydro)pyrolyse, directe liquefactie en biologische processen. Het ideale productgas als grondstof voor de productie van vloeibare

energiedragers, of wel "downstream processen" is hoog calorisch (zonder stikstof) zodat een relatief kleine volumestroom benodigd is in een compacte "downstream" installatie en is schoon zonder teerachtige materialen.

In het in de V.S. ontwikkelde Battelle-proces wordt biomassa vergast tot een relatief hoog calorisch productgas dat geschikt is om te worden verbrand in een gasturbine. Dit productgas bevat geen stikstof maar nog wel teerachtige restmaterialen. De bovengenoemde processen zijn zonder gasreinigingsinstallatie niet direct geschikt voor de productie van secundaire energiedragers.

Uit US-A-3.853.498 is een inrichting bekend met twee onderling gekoppelde wervelbedreactoren. In de eerste reactor wordt in een gefluidiseerd zandbed fijngemalen biomassa in afwezigheid van zuurstof door pyrolyse omgezet in gasvormige pyrolyseproducten zoals CO, CO₂ en andere gasvormige pyrolyseproducten alsmede in een vast verkolingsproduct (char). Het vaste verkolingsproduct wordt met het zand vanuit de eerste reactor toegevoerd aan een verbrandingszone in de tweede reactor waar het verkolingsproduct wordt verbrand door toevoeging van lucht via een aanjager. Via een retourleiding wordt het in de wervelbed-verbrandingszone opgewarmde warmtetransportmateriaal (zand) teruggeleid naar de pyrolyse reactor om de benodigde energie voor de endotherme pyrolyse reactie te leveren. Gasvormige pyrolyseproducten uit de pyrolyse reactor worden in een watergasshiftreactor, een CO₂-wasser en een methaniseringsreactor omgezet in methaan.

Uit de Japanse octrooiaanvraag nr.56038719 is een wervelbedreactor bekend volgens de aanhef van conclusie 1, voor vergassing van deeltjesvormig materiaal met drie onderling gescheiden ringvormige buitenste zones en, coaxiaal met de buitenste zones, drie door schotten gescheiden binnenste zones. In een eerste pyrolysezone wordt het brandbare koolstofhoudende organische materiaal door pyrolyse omgezet in gasvormige pyrolyseproducten en een verkolingsproduct. In een aansluitende zone wordt een deel van het verkolingsproduct verbrand, waardoor het bedmateriaal wordt verwarmd, vervolgens wordt het bedmateriaal met het overgebleven vaste verkolingsproduct naar een vergassingszone toegevoerd waarin stoom of CO₂ als vergassingsmiddel wordt ingebracht. Het productgas wordt uit de vergassingszone afgevoerd, terwijl het afgekoelde bedmateriaal wordt gerecirculeerd naar de pyrolysezone.

Uit de Europese octrooiaanvraag EP-A-0219163 is een proces bekend voor het kraken van koolwaterstoffen waarbij de verkolingsproducten, afgezet op een vast materiaal, vanuit de pyrolysezone worden toegevoerd aan een vergassingszone voor het onder toevoer van stoom

vormen van waterstofhoudend productgas. De benodigde proceswarmte wordt geleverd door verbranding van althans een deel van het productgas (synthesegas), en wel zodanig dat pyrolyse bij de hoogste procestemperaturen en vergassing bij de laagste procestemperaturen plaatsvindt.

Bovengenoemde systemen hebben als nadeel dat het productgas uit de vergassingszone relatief veel teerachtige materialen omvat en dat relatief complexe gasreinigingsinstallaties noodzakelijk zijn om het productgas te zuiveren, welk productgas niet direct geschikt is als "upstream"-proces voor de productie van vloeibare energiedragers. Verder omvat het productgas bij toepassing van lucht als oxidatiemiddel relatief veel stikstof waardoor de calorische waarde wordt verlaagd. Door verbranding van het productgas voor het leveren van de bij de vergassing benodigde warmte, zijn de bekende processen relatief inefficiënt. In het proces volgens EP-A-0219163 is bovendien door de ongunstige temperatuurverdeling de opbrengst aan zuiver productgas relatief laag.

Het is daarom een doel van de onderhavige uitvinding te voorzien in een relatief eenvoudige inrichting voor het op efficiënte wijze vormen van synthesegas uit biomassa waarbij een schoon en hoog calorisch productgas wordt verkregen.

Hiertoe is de inrichting volgens de onderhavige uitvinding gekenmerkt doordat de pyrolysezone en de verbrandingszone op een zodanige wijze zijn verbonden met de vergassingszone dat althans nagenoeg geen gasvormige producten vanuit de verbrandingszone en de pyrolysezone naar de vergassingszone kunnen treden en waarbij een gasafvoer van de pyrolysezone is verbonden met een derde toevoer naar de verbrandingszone voor het gescheiden van het vaste verkolingsproduct toevoeren van nagenoeg uitsluitend gasvormige pyrolyseproducten aan de verbrandingszone.

De uitvinding is gebaseerd op het inzicht dat de pyrolysezone en de verbrandingszone zodanig gescheiden zijn van de vergassingszone dat geen gasvormige pyrolyseproducten of verbrandingsgassen de vergassingszone kunnen bereiken en dat althans nagenoeg uitsluitend het vaste verkolingsproduct in de vergassingszone wordt omgezet in productgas. Aangezien het vaste verkolingsproduct relatief zuiver is en vrij is van teerachtige en/of cyclische koolwaterstofverbindingen wordt aan de gasafvoer van de vergassingszone een zuiver productgas verkregen dat CO, CO₂, en H₂ omvat. Aangezien geen afgassen uit de verbrandingszone aan de vergassingszone worden toegevoerd bevat het productgas geen stikstof, zodat dit hoog calorisch kan zijn. Het productgas of synthesegas kan direct worden omgezet naar gewenste

koolwaterstofproducten zonder de toepassing van complexe gasreinigings- en luchtafscheidingsinstallaties.

Het warmteoverdracht- of bedmateriaal heeft naast de functie in een normaal wervelbedsysteem als tweeledige functie zowel warmteoverdracht als stoftransport. De in de verbrandingszone geproduceerde warmte wordt aan het bedmateriaal afgegeven en vervolgens door middel van het bedmateriaal tezamen met de verkolingsproducten naar de vergassingszone getransporteerd. In de vergassingszone wordt het bedmateriaal afgekoeld door het endotherme vergassingsproces waarna het afgekoelde bedmateriaal wordt gerecirculeerd naar de pyrolysezone ("cokes producer"). Tezamen met het hete bedmateriaal wordt het in de pyrolysezone gevormde verkolingsproduct van de pyrolysezone naar de vergasser getransporteerd.

De pyrolyse volgens de uitvinding vindt bij relatief lage temperaturen plaats, zoals tussen 300 °C en 500°C. De vergassing vindt plaats bij relatief hoge temperaturen, zoals bijvoorbeeld rond 850 °C. Met de inrichting volgens de onderhavige uitvinding wordt dus een optimale scheiding van productgas en ongewenste componenten zoals teer uit de biomassa en stikstof uit de lucht verkregen. Aangezien het pyrolyseproduct bestaat uit een condenseerbare en niet condenseerbare fractie, en er een overproductie aan warmte in het proces optreedt kan het zinvol zijn om ook het hete pyrolysegas te scheiden en een van de componenten te gebruiken voor verbranding en een andere een alternatieve bestemming te geven.

In een eerste uitvoeringsvorm van een inrichting volgens de uitvinding is de verbrandingszone in een afzonderlijke brander gelegen, waarbij de afvoer van het warmtetransportmiddel en het verkolingsproduct uit de pyrolysezone is verbonden met de vergasser. Deze vergasser krijgt zijn warmte via het bedmateriaal uit de brander overgedragen. Dit afgekoelde bedmateriaal wordt doorgegeven aan de pyrolyse reactor. Eveneens wordt bedmateriaal van de vergasser, ontdaan van zijn verkolingsproduct, teruggevoerd naar de brander. Door toepassing van een afzonderlijke brander, die bijvoorbeeld een riser kan omvatten, kan door verbranding van een deel van het pyrolyseproduct de voor de pyrolyse en voor de vergassing benodigde warmte ruimschoots worden opgewekt en nauwkeurig worden geregeld. De in de brander opgewekte warmte die niet benodigd is voor pyrolyse en het vergassingsproces is beschikbaar als hoogwaardige energiedrager, maar kan ook binnen het proces worden gebruikt voor voorbehandeling van de biomassa en stoomproductie. De warmte kan ook worden toegepast voor het aandrijven van een pneumatisch deeltjestransport van het warmteoverdrachtmateriaal en kan

verder worden toegepast om het systeem onder druk te laten werken (circa 7 bar) en om het productgas te comprimeren naar circa 40 bar. De laatste compressiestap levert een direct naar methanol of andere koolwaterstof om te zetten basismateriaal.

In een andere uitvoeringsvorm van de inrichting volgens de uitvinding is de brander binnen de pyrolysezone gelegen. Hierbij wordt een gedeeltelijke verbranding van de biomassa in de pyrolysezone verkregen door het regelen van de aan de pyrolysezone toegevoerde hoeveelheid lucht en gasvormige pyrolyseproducten.

In een verdere uitvoering van de inrichting volgens de uitvinding is een tweede brander verbonden met de gasafvoer van de pyrolysezone voor verbranding van een deel van de gasvormige pyrolyseproducten, welke tweede brander thermisch is verbonden met een watertoevoer voor generatie van stoom, welke stoom via een stoomleiding is verbonden met de eerste toevoer van de vergassingszone. Door verbranding van gasvormige pyrolyseproducten kan stoom worden opgewekt die in de vergasser als vergassingsmiddel kan worden toegepast voor het omzetten van koolstof van de vaste verkolingsproducten in de vergasser naar CO en H₂.

Een voordelige en compacte inrichting volgens de onderhavige uitvinding wordt gevormd door een "interconnected fluid bed" (IFB) reactor als alternatief voor reactorsystemen met pneumatisch deeltjestransport. De IFB-reactoren realiseren deeltjestransport, en dus in dit geval massa- en warmteoverdracht, door regeling van de gassnelheden voor fluïdisatie waardoor zeer weinig beschadiging aan de deeltjes van het warmtetransportmateriaal optreedt en materiaalverlies beperkt blijft. Verder zijn de IFB-reactoren relatief klein zodat zij weinig vloeroppervlak innemen. In de IFB-reactor vormt zowel de pyrolysezone als de vergassingszone een tweestapsreactor waarbij het warmtetransportmiddel vanuit de eerste hoge kolom via een gemeenschappelijk vrijboord in de aangrenzende kolom met lagere hoogte kan stromen. Via een opening in de lagere kolom van de pyrolysezone kan het warmtetransportmateriaal en het verkolingsproduct naar de hogere kolom van de vergassingszone treden. Vanuit de lagere kolom van de vergassingszone kan het afgekoelde warmtetransportmateriaal door een nabij de onderzijde gelegen opening weer in de hogere kolom van de pyrolysezone binnentreden. De vier kolommen (of een veelvoud daarvan) zijn onderling via een scheidingswand op warmtegeleidende wijze met elkaar verbonden zodat, indien gewenst, een volledige warmte-integratie plaatsvindt. Door de afwezigheid van mechanisch transport vindt weinig slijtage aan componenten en deeltjes plaats. De compacte geïsoleerde IFB-reactor heeft een minimaal warmteverlies naar de omgeving en is eenvoudig te regelen.

Enkele uitvoeringsvormen van de inrichting volgens de onderhavige uitvinding zullen nader worden toegelicht aan de hand van de bijgevoegde tekening. In de tekening toont:

Fig.1 een schematische weergave van de werkwijze en van het werkingsprincipe van de inrichting volgens de onderhavige uitvinding,

Fig.2 een schematische weergave van een inrichting voor het vormen van synthesesgas volgens de onderhavige uitvinding,

Fig.3 een inrichting volgens de onderhavige uitvinding met een externe brander,

Fig. 4 een geïntegreerde wervelbedreactor-[(IFB)-reactor] werkend volgens het principe zoals getoond in fig.3 of fig.5, en

Fig.5 een tweede uitvoeringsvorm van een inrichting volgens de onderhavige uitvinding met een in de pyrolysezone geïntegreerde brander.

Fig.1 toont een geïntegreerde pyrolysezone en brander, of wel "cokes producer" 1 met een eerste toevoer 2 voor biomassa en met een tweede toevoer 3 voor een bedmateriaal, zoals bijvoorbeeld zand of een katalytisch actief materiaal voor sturing van de productkwaliteit. Met "biomassa" wordt hierin bedoeld een koolstofhoudend materiaal, anders dan fossiele koolstofbronnen, zoals bijvoorbeeld afkomstig van groente-, fruit- en tuinafval, celluloseresten, huishoudelijk afval met daarin kunststoffen, en dergelijke. Via een toevoer 4 wordt een oxidatiemiddel, zoals lucht of zuivere zuurstof, aan de verbrandingszone van de cokes producer 1 toegevoerd. In de verbrandingszone van de cokes producer, waarin bijvoorbeeld een deel van de gasvormige pyrolyseproducten worden verbrand, wordt de temperatuur op 1500°C gebracht, zodat biomassa bij een temperatuur van 300 °C - 500 °C wordt omgezet in vluchtige gassen en teerachtige materialen, alsmede in een vast verkolingsproduct (char). De afgassen uit de verbrandingszone van de cokes producer 1, zoals CO₂, H₂O en niet verbrande gasvormige pyrolyseproducten worden gescheiden van de vaste pyrolyseproducten, ofwel "cokes of char", en via een afvoer 5 uit de cokes producer verwijderd. De vaste pyrolyseproducten worden via een afvoer 6 gezamenlijk met het verwarmde bedmateriaal uit de cokes producer 1 afgevoerd naar een toevoer 9 van een vergasser 7. Aan de vergasser 7 wordt via een toevoer 8 stoom toegevoerd als vergassingsmiddel voor het omzetten van de cokes of char in een schoon (d.w.z. zonder teerachtige materialen), hoog calorisch (d.w.z. zonder stikstof) productgas. De voor de endotherme vergassingsreactie benodigde warmte wordt geleverd door het bedmateriaal, waarvan de temperatuur ter plaatse van de vergasser maximaal 1200°C, bijvoorbeeld ca. 850°C bedraagt. In de vergasser vindt de volgende endotherme

reactie plaats: $C + H_2O \rightarrow CO + H_2$, waarbij het mengsel van CO en H_2 wordt aangeduid als "synthesegas" dat via een afvoer 10 uit de vergasser 7 wordt verwijderd. De benodigde warmte voor de synthesegasproductie in de vergasser wordt geleverd door het bedmateriaal dat na afkoeling via een afvoer 11 uit de vergasser wordt verwijderd bij een temperatuur van maximaal 800°C en naar de cokes producer 1 wordt gerecirculeerd. Het voordeel van het proces volgens fig.1 is dat door vergassing van de vaste pyrolyseproducten of cokes een zeer zuiver productgas wordt verkregen en dat door scheiding van de afgassen uit de cokes producer 1, waaronder de gasvormige pyrolyseproducten en verbrandingsproducten, van de vergassingszone, het productgas hoog calorisch is.

Fig.2 geeft een schematische uitvoeringsvorm van een inrichting volgens de onderhavige uitvinding weer met een pyrolyse reactor 12, een brander 13 en een vergasser 14. De via een toevoer 15 aan de pyrolysezone 12 toegevoerde biomassa wordt omgezet in gasvormige pyrolyseproducten waaronder teerachtige materialen die via een afvoer 16 naar een toevoer 17 van de brander 13 worden geleid. In de brander 13 worden de gasvormige pyrolyseproducten met lucht verbrand. De geproduceerde warmte Q_H wordt naar de vergasser 14 overgedragen, waarin de via toevoeren 19 en 20 ingebrachte stoom en vaste verkolingsproducten worden omgezet in productgas. Een deel van de in de brander 13 gegenereerde warmte Q_H wordt overgedragen aan de pyrolyse reactor 12. De verbrandingsgassen worden via een afvoer 21 uit de brander 13 afgevoerd terwijl het productgas via een afvoer 22 uit de vergasser wordt afgevoerd naar een downstream processtap zoals voor het leveren van vloeibaar product. De pyrolyse reactor 12 en de vergasser 14 kunnen zijn uitgevoerd als op zich bekende circulerende wervelbedden terwijl de brander 13 kan zijn uitgevoerd als een riser. De verbinding van de pyrolyse reactor 12 met de vergasser 14 en de brander 13 kan plaatsvinden via cyclonen.

Fig.3 toont een eerste uitvoeringsvorm van een inrichting volgens de onderhavige uitvinding met een pyrolyse reactor 23, een vergasser 24 en een afzonderlijke brander 25. De pyrolyse reactor 23 omvat een eerste toevoer 26 voor biomassa, een tweede toevoer 27 voor toevoer van bedmateriaal en een derde toevoer 28 waarlangs een deel van de gasvormige pyrolyseproducten naar de pyrolyse reactor 23 worden gerecirculeerd. Recirculatie van de gasvormige pyrolyseproducten wordt toegepast in het geval de pyrolyse reactor van het wervelbedtype is om fluidisatie te verkrijgen. De gasvormige pyrolyseproducten kunnen worden uitgecondenseerd, waarbij desgewenst het gasvormige of het gecondenseerde deel anderszins kan worden aangewend.

Het deel van de pyrolyseproducten dat binnen het proces wordt toegepast, wordt via een toevoer 29 aan de brander 25 toegevoerd. Het bedmateriaal en lucht worden via toevoeren 30 en 31 in de brander 25 gebracht voor verbranding van de gasvormige pyrolyseproducten. De afgassen worden via afvoer 32 uit de brander 25 afgevoerd. Vanuit de brander 25 wordt verwarmd bedmateriaal via toevoer 33 toegevoerd aan de vergasser 24.

In het geval dat de brander 25 wordt gevormd door een riser, is de hete uitlaat van de riser tevens het hoogste punt, zodat transport van deeltjes onder invloed van de zwaartekracht mogelijk is. De koude inlaat is het laagste punt waardoor ook hier weer de deeltjes uit de vergasser naar de riser onder invloed van de zwaartekracht toestromen. Via een toevoer 35 wordt stoom aan de vergasser 24 toegevoerd en via een toevoer 36 treedt bedmateriaal met daarin de vaste verkolingsproducten de vergasser 24 binnen. De productgassen verlaten de vergasser 24 via een productgasafvoer 37 terwijl het afgekoelde bedmateriaal via afvoer 34 naar de brander 25 wordt geleid. Via een afvoer 38 wordt warm bedmateriaal vanuit de brander 25 naar de vergasser 24 geleid en na warmte daar te hebben afgestaan naar de pyrolyse reactor 23. Ook is het mogelijk om deelstromen van de brander direct naar de vergasser en de pyrolyse reactor te leiden, wat regeltechnisch voordeel kan opleveren. Door werveling wordt het bedmateriaal vermengd met de vaste verkolingsproducten in de pyrolyse reactor 23 die via afvoer 39 vanuit de pyrolyse reactor worden overgebracht naar de vergasser 24.

Een overschot aan in het proces gevormde gasvormige pyrolyseproducten kan via een spueleiding 40 worden afgevoerd.

Een alternatieve uitvoeringsvorm is die waarbij de pyrolyse en verbranding zijn geïntegreerd in één systeem. Fig. 4 toont dit met een schematische perspectivische weergave van een IFB-reactor, die de vergassing en pyrolyse integreert. Een IFB-reactor volgens fig.4 omvat de compartimenten 40 en 41 van de pyrolyse reactor, evenals de compartimenten 42 en 43 van de vergasser, die onderling zijn gescheiden, een enkele gemeenschappelijke warmteoverdragende wand. Een gemeenschappelijke scheidingswand 58 scheidt de compartimenten 40, 41 van de compartimenten 42 en 43. Alle compartimenten 40-43 zijn omgeven door een gemeenschappelijke buitenwand 57. Hierdoor is de totale hoogte van alle compartimenten in principe gelijk. De compartimenten 40, 41 staan onderling met elkaar in verbinding via een gemeenschappelijk vrijboord 59. De compartimenten 42 en 43 zijn verbonden via een vrijboord 60. Het compartiment 41 van de pyrolysezone staat in verbinding met het compartiment 42 van de vergassingszone via

een of meerdere openingen in de scheidingswand 58, iets boven de gasverdeelplaat van het fluïde bed. Hetzelfde geldt voor de verbinding tussen het compartiment 43 en het compartiment 40, welke wordt gevormd door een opening 54, 55 in de scheidingswand 58.

De werking van de in fig.4 getoonde reactor kan worden voorgesteld als een systeem van vier communicerende vaten. In gas-gefluïdiseerde vastestofsystemen kunnen tussen twee aangrenzende compartimenten dichtheidsverschillen worden gecreëerd door de compartimenten elk met een andere gassnelheid te fluïdiseren. Door de compartimenten 40 en 42 met een relatief hoge snelheid te fluïdiseren en de compartimenten 41 en 43 met een relatief lage snelheid te fluïdiseren vindt deeltjestransport plaats door het systeem van de vier compartimenten vanuit het compartiment 40, via het vrijboord 59 naar het compartiment 41 en via de aan de onderzijde gelegen opening naar de onderzijde van het compartiment 42. Vanuit het compartiment 42 vindt deeltjestransport plaats via het vrijboord 60 en vanaf de onderzijde van het compartiment 43 via de openingen 54 en 55 terug naar het compartiment 40.

Aan de bovenzijde is de IFB-reactor afgesloten met een kap 60 met een eerste compartiment 61 dat aansluit op compartimenten 40, 41 en dat gescheiden is van een tweede compartiment 62 dat aansluit op de compartimenten 42, 43 van de vergassingszone. De kap 60 is voorzien van een tussenschot 63 dat aansluit op de scheidingswand 58.

In de constructie volgens fig.4 kan de brander om de warmte van de endotherme reacties (pyrolyse en vergassing) te leveren zowel buiten de reactor in een aparte riser zijn gelegen volgens de schematisch uitwerking van fig.3, of kan deze binnen het compartiment 41 van de pyrolysezone zijn opgenomen volgens de schematische weergave van fig. 5.

Doordat de pyrolysezone 41 en de vergassingszone 43 met een relatief lage snelheid worden gefluïdiseerd terwijl de pyrolysezone 40 en de vergassingszone 42 met een relatief hoge snelheid worden gefluïdiseerd, treedt een deeltjestransport door het systeem op in de richting van de eerste pyrolysezone 40 naar de tweede vergassingszone 43. Hierbij hebben de pyrolysezone 41 en de vergassingszone 43 als primaire functie het transporteren van deeltjes maar vormen zij tevens een extra reactortrap in de tweetrapsconversie en vindt in belangrijke mate warmteuitwisseling tussen het bedmateriaal en de vaste pyrolyseproducten plaats. Aangezien de gemiddelde verblijftijd van de deeltjes in de pyrolyse reactor 41 en in de vergasser 43 in het algemeen kort is zijn de afmetingen (d.w.z. het bedoppervlak) relatief klein zodat voor fluïdisatie slechts kleine hoeveelheden gas nodig zijn. Verder kan één van de laag gefluïdiseerde compartimenten 41, 43 worden gebruikt voor de

regeling van het deeltjestransport door de reactor.

Fluïdisatie van de pyrolyse- en/of vergassingsreactor kan worden verhoogd door recirculatie van de pyrolysegassen of het vergassingsproduct. Dit laatste samen met de stoom die toch al moet worden aangevoerd.

Fig.5 toont een interconnected fluid bed-systeem (IFB) met een tweetal pyrolysezones 40, 41 en een tweetal vergassingszones 42, 43. De biomassa wordt via een eerste toevoer 44 in de eerste pyrolysezone 1 gebracht. De gasvormige pyrolyseproducten worden via een afvoer 45 uit de pyrolysezones 40, 41 naar een externe brander 46 geleid en worden deels gecirculeerd naar toevoeren 47 en 48. In de tweede pyrolysezone 41 wordt het gecirculeerde pyrolysegas in een inwendige verbrandingszone 49 verbrand onder toevoeging van lucht via toevoer 50. Warm bedmateriaal en vaste verkolingsproducten treden via een toevoer 51, die nabij de onderzijde van de vergasser 42 is gelegen, de eerste vergasser 42 binnen waar zij gedeeltelijk worden omgezet in productgas. Aan de bovenzijde van de eerste vergassingszone treden de resterende verkolingsproducten de tweede vergassingszone 43 binnen. Het productgas wordt via een afvoer 53 uit de vergassingszones 42 en 43 afgevoerd. Het afgekoelde bedmateriaal wordt via een afvoer 54 teruggeleid naar een toevoer 55 van de eerste pyrolysezone 40. Met de externe brander 46 wordt stoom gegenereerd die via een stoomleiding 56 is verbonden met de eerste en tweede vergassers 42, 43.

CONCLUSIES

1. Inrichting voor het vormen van synthesegas uit niet fossiel koolstofhoudend biologisch materiaal (biomassa) omvattende
 - een pyrolysezone (23; 40, 41) met een eerste toevoer (26; 44) voor het koolstofhoudend materiaal, met een tweede toevoer (27; 55) voor een inert warmtetransportmateriaal, voor het nagenoeg in afwezigheid van zuurstof vormen van gasvormige pyrolyseproducten en van een vast verkolingsproduct (char), en met een afvoer (39; 52) voor het warmtetransportmateriaal en het verkolingsproduct,
 - een verbrandingszone (25; 49) voor het verhitten van het warmtetransportmateriaal met een eerste toevoer (30; 50) voor een oxidatiemiddel en met een tweede toevoer (31; 51) voor het warmtetransportmateriaal, alsmede met een eerste afvoer (32; 45) voor in de verbrandingszone gevormde verbrandingsgassen en met een tweede afvoer (38; 52) van het warmtetransportmateriaal, en
 - een vergassingszone (24; 42, 43) met een eerste toevoer (35; 56) voor een vergassingsmiddel, met een tweede toevoer (36; 51) die is verbonden met de pyrolysezone voor toevoer van het warmtetransportmateriaal en het in de pyrolysezone gevormde verkolingsproduct, met een eerste afvoer (37; 53) voor in de vergassingszone gevormd productgas en met een tweede afvoer (34; 54) voor het warmtetransportmateriaal, en
 - een tussen de tweede afvoer (34; 54) van de vergassingszone en de tweede toevoer (27; 55) van de pyrolysezone gelegen retourbaan voor toevoer van het warmtetransportmateriaal van de vergassingszone (24; 42, 43) aan de pyrolysezone (23; 40, 41), met het kenmerk, dat de pyrolysezone (23; 40, 41) en de verbrandingszone (25; 49) op een zodanige wijze zijn verbonden met de vergassingszone (24; 42, 43) dat althans nagenoeg geen gasvormige producten vanuit de verbrandingszone en de pyrolysezone naar de vergassingszone kunnen treden en waarbij een gasafvoer (28; 45) van de pyrolysezone is verbonden met een derde toevoer (29; 48) naar de verbrandingszone (25; 49) voor het gescheiden van het vaste verkolingsproduct toevoeren van nagenoeg uitsluitend gasvormige pyrolyseproducten aan de verbrandingszone.
2. Inrichting volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de verbrandingszone in een afzonderlijke brander (25) is gelegen, waarbij de afvoer van de pyrolysezone (39) voor de afvoer van het warmtetransportmiddel en het verkolingsproduct via de tweede toevoer (36) en de tweede

afvoer (34) van de vergassingszone (24) is verbonden met de tweede toevoer (31) van de verbrandingszone (25), en waarbij een afvoer (38) van de verbrandingszone (25) via een derde toevoer (33) van de vergassingszone (24) is verbonden met de tweede toevoer (27) van de pyrolysezone.

3. Inrichting volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de verbrandingszone (29) binnen de pyrolysezone (41) is gelegen.

4. Inrichting volgens conclusie 1,2 of 3, met het kenmerk, dat een tweede brander (46) is verbonden met de gasafvoer (45) van de pyrolysezone (40, 41) voor verbranding van een deel van de gasvormige pyrolyseproducten, welke tweede brander (46) thermisch is verbonden met een watertoevoer voor generatie van stoom, welke stoom via een stoomleiding (56) is verbonden met de eerste toevoer van de vergassingszone.

5. Inrichting volgens een van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de inrichting ten minste vier deelreactoren omvat in de vorm van ten minste vier kolommen, waarbij de pyrolyse zone en de vergassingszone ieder een eerste kolom (40,42) met een voorafbepaalde hoogte en een tweede, tegen de eerste kolom (40, 42) gelegen kolom (41, 43) met een lagere hoogte omvatten, welke eerste kolom (40, 42) met een vrije rand (59, 60) boven de lagere kolom (41, 43) uitsteekt, waarbij de eerste toevoer (44) van de pyrolysezone (40, 41) nabij de onderzijde van de eerste kolom (40) van de pyrolysezone is gelegen en waarbij de tweede toevoer (51) van de vergassingszone wordt gevormd door een opening nabij de onderzijde van de eerste, hogere kolom (42) van de vergassingszone, welke opening uitmondt nabij de onderzijde van de tweede, lagere kolom (41) van de pyrolysezone (40, 41), waarbij het warmtetransportmateriaal via de vrije rand (59, 60) van de respectieve eerste, hogere kolom (40, 42) van de pyrolyse- en van de vergassingszone naar de respectieve tweede kolom (41, 43) van de pyrolyse- en de vergassingszone kan treden, waarbij de tweede afvoer (54) van de vergassingszone (42, 43) wordt gevormd door een opening (54, 55) nabij de onderzijde van de tweede kolom (43) van de vergassingszone die uitmondt nabij de onderzijde van de eerste kolom (40) van de pyrolysezone (40, 41), waarbij de kolommen (40, 41) van de pyrolysezone aan de bovenzijde uitmonden in een eerste kap (61) met daarin de gasafvoer, waarbij de kolommen van de vergassingszone (42, 43) uitmonden in een van de eerste kap gescheiden tweede kap (62) met daarin de eerste afvoer voor het productgas, en met nabij de onderzijde van ieder van de kolommen (40, 41, 42, 43) een gastoevoeropening voor toevoer van een fluïdisatiegas voor het fluïdiseren van het warmtetransportmateriaal.

6. Inrichting volgens conclusie 5, met het kenmerk, dat een deel van het gasvormige pyrolyseproduct vanuit de gasafvoer naar de onderzijden van de eerste en tweede kolommen (40, 41) van de pyrolysezone wordt toegevoerd, en waarbij gasvormig vergassingsmiddel wordt toegevoerd aan de onderzijden van de twee kolommen (42, 43) van de vergassingszone.

7. Samenstel van een inrichting volgens een der voorgaande conclusies en een thermisch met de inrichting verbonden compressor voor het comprimeren van het productgas, een generator voor het opwekken van electriciteit, of een condensor voor condensatie van een condenseerbare fractie van het pyrolyseproduct, of combinaties daarvan.

8. Werkwijze voor het vormen van synthesesgas uit niet fossiel koolstofhoudend materiaal omvattende de stappen van:

- toevoer van het koolstofhoudend materiaal naar een pyrolysezone en omzetting van het materiaal in gasvormige pyrolyseproducten en in een vast verkolingsproduct,
- het scheiden van de vaste en van de gasvormige pyrolyseproducten,
- toevoer van de vaste verkolingsproducten aan een vergassingszone,
- verbranding van ten minste een deel van de gasvormige pyrolyseproducten in een verbrandingszone en toevoer van warmte van de verbrandingszone aan de vergassingszone, en
- toevoer van een vergassingsmiddel aan de vergassingszone en omzetting van het vaste verkolingsproduct in CO en H₂.

9. Werkwijze volgens conclusie 8, met het kenmerk, dat de temperatuur in de pyrolysezone niet lager is dan 600°C, bij voorkeur tussen 300°C en 500°C, en dat de temperatuur in de vergassingszone tussen 600°C en 1200°C bedraagt bij voorkeur tussen 700°C en 900°C.

fig-1

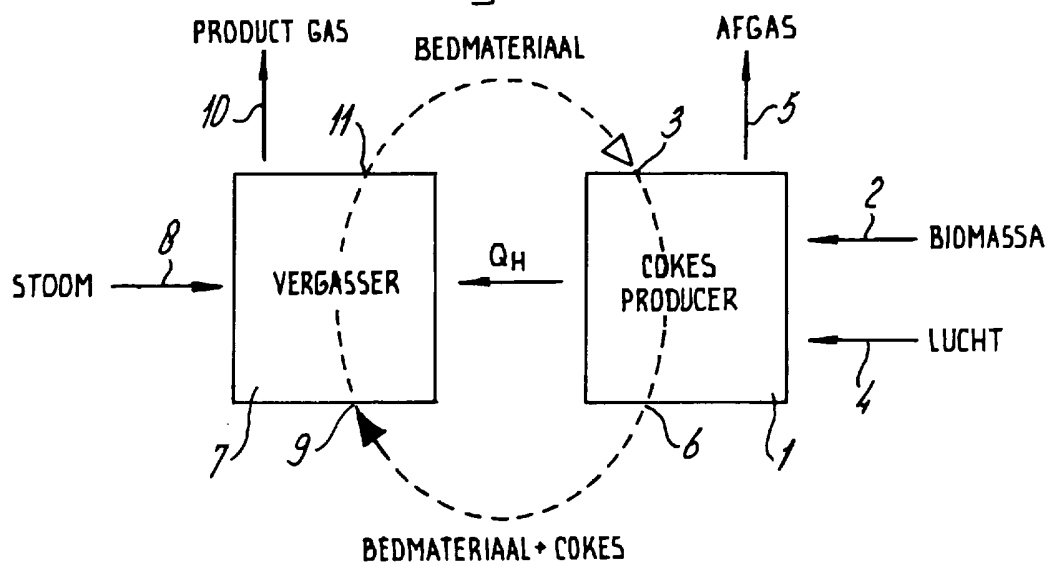


fig-2

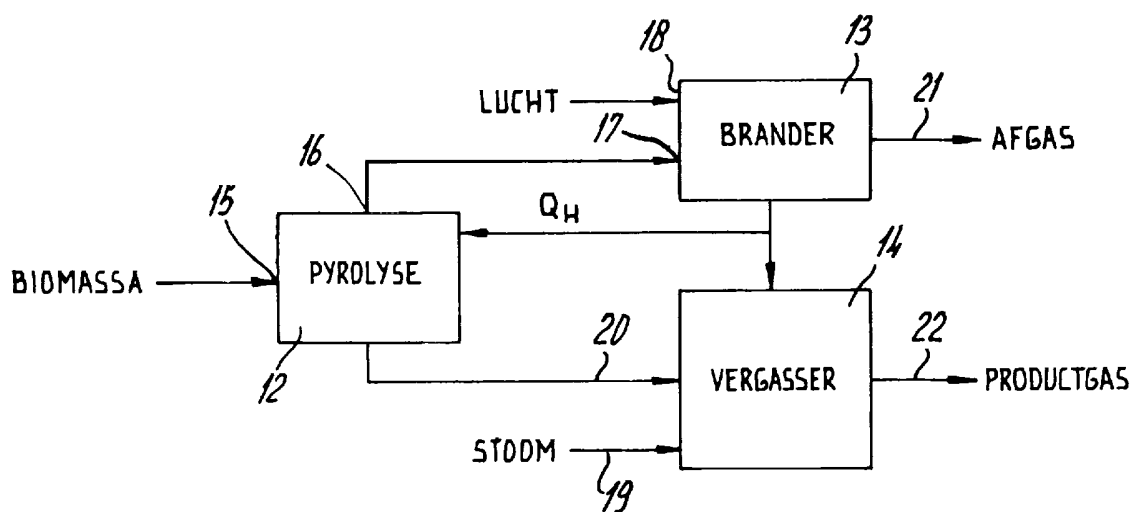


fig-3

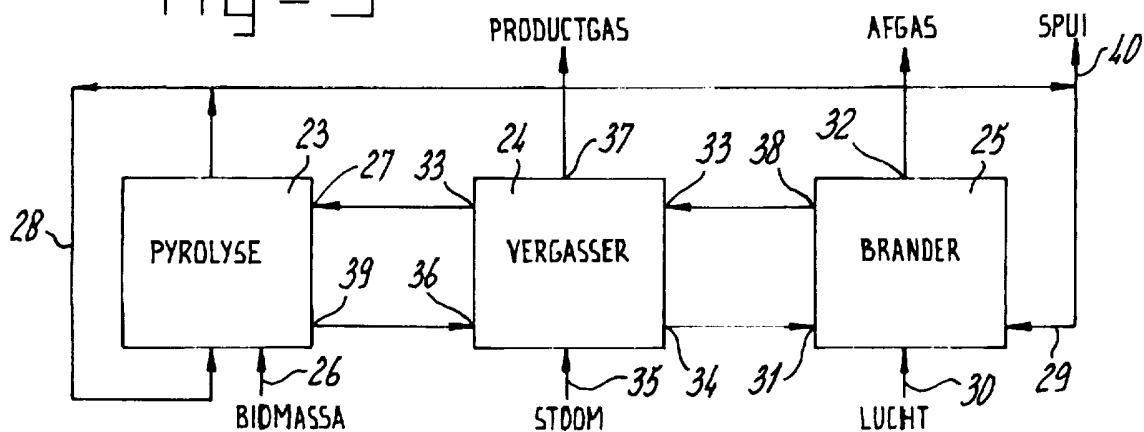


fig - 4

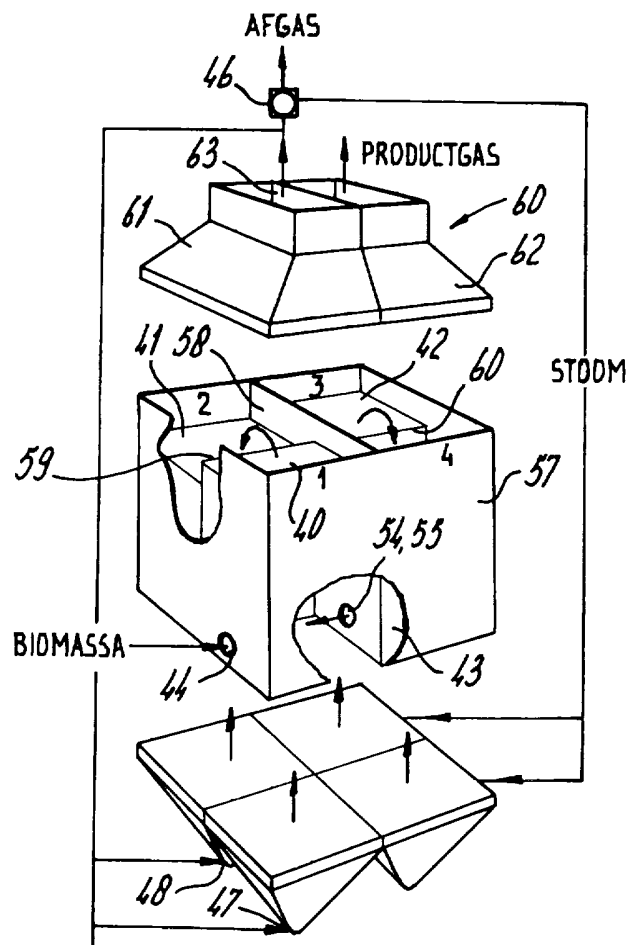
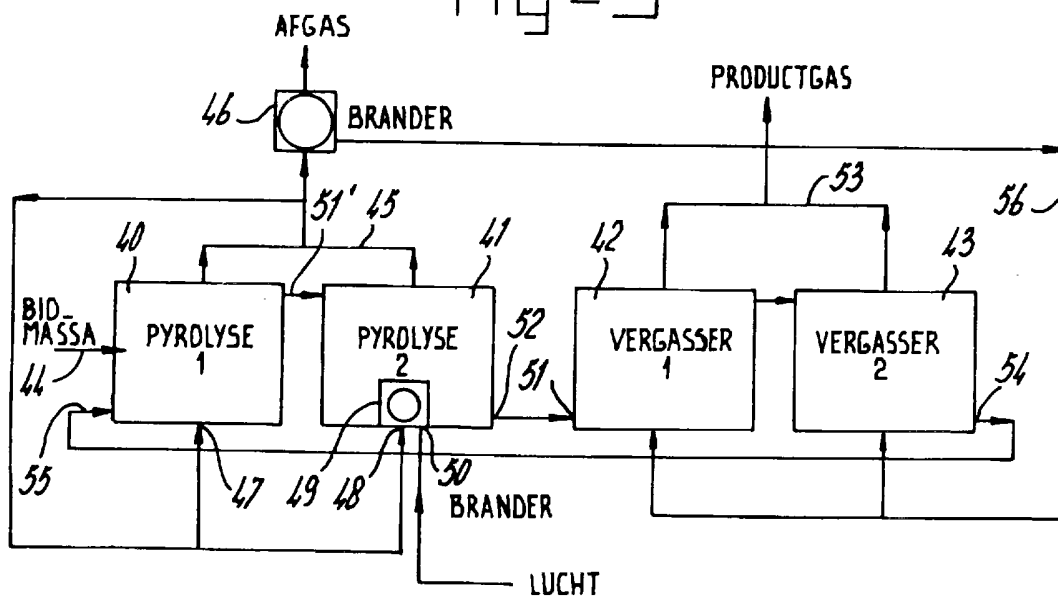


fig - 5



SAMENWERKINGSVERDRAG (PCT)
RAPPORT BETREFFENDE
NIEUWHEIDSONDERZOEK VAN INTERNATIONAAL TYPE

IDENTIFIKATIE VAN DE NATIONALE AANVRAGE	Kenmerk van de aanvrager of van de gemachtigde NO 41992 EE
Nederlandse aanvraag nr. 1009745	Indieningsdatum 27 juli 1998
	Ingeroepen voorrangsdatum
Aanvrager (Naam) STICHTING ENERGIEONDERZOEK CENTRUM NEDERLAND	
Datum van het verzoek voor een onderzoek van internationaal type	Door de Instantie voor Internationaal Onderzoek (ISA) aan het verzoek voor een onderzoek van internationaal type toegekend nr. SN 31650 NL
I. CLASSIFICATIE VAN HET ONDERWERP (bij toepassing van verschillende classificaties, alle classificatiesymbolen opgeven)	
Volgens de Internationale classificatie (IPC) Int. Cl. ⁶ : C 10 J 3/12, C 10 J 3/66, C 10 J 3/58, C 10 J 3/54, C 10 J 3/56	
II. ONDERZOCHE GEBIEDEN VAN DE TECHNIEK	
Onderzochte minimum documentatie	
Classificatiesysteem	Classificatiesymbolen
Int. Cl. ⁶	C 10 J
Onderzochte andere documentatie dan de minimum documentatie voor zover dergelijke documenten in de onderzochte gebieden zijn opgenomen	
III. ☐ GEEN ONDERZOEK MOGELIJK VOOR BEPAALDE CONCLUSIES (opmerkingen op aanvullingsblad)	
IV. ☐ GEBREK AAN EENHEID VAN UITVINDING (opmerkingen op aanvullingsblad)	

**VERSLAG VAN HET NIEUWHEIDSONDERZOEK VAN
INTERNATIONAAL TYPE**

Nummer van het verzoek om een nieuwheidsonderzoek

NL 1009745

A. CLASSIFICATIE VAN HET ONDERWERP

IPC 6 C10J3/12 C10J3/66 C10J3/58 C10J3/54 C10J3/56

Volgens de Internationale Classificatie van octrooien (IPC) of zowel volgens de nationale classificatie als volgens de IPC.

B. ONDERZOCHE GEBIEDEN VAN DE TECHNIEK

Onderzochte minimum documentatie (classificatie gevolgd door classificatiesymbolen)

IPC 6 C10J

Onderzochte andere documentatie dan de minimum documentatie, voor dergelijke documenten, voor zover dergelijke documenten in de onderzochte gebieden zijn opgenomen

Tijdens het internationaal nieuwheidsonderzoek geraadpleegde elektronische gegevensbestanden (naam van de gegevensbestanden en, waar uitvoerbaar, gebruikte trefwoorden)

C. VAN BELANG GEACHTE DOCUMENTEN

Categorie *	Geciteerde documenten, eventueel met aanduiding van speciaal van belang zijnde passages	Van belang voor conclusie nr.
A	US 4 405 339 A (KUNII) 20 September 1983 zie kolom 6, regel 8 - kolom 7, regel 64 ---	1,3,5
A	US 4 002 438 A (FLEMING) 11 Januari 1977 zie kolom 3, regel 16 - kolom 5, regel 34 ---	1
A	US 4 397 656 A (KETKAR) 9 Augustus 1983 zie kolom 2, regel 25 - kolom 3, regel 25 ---	1
X	DE 196 18 213 A (HUGO PETERSEN) 13 November 1997	8
A	zie bladzijde 5-7; conclusies 1-14 ---	1,7
X	WO 80 02563 A (USINES LAMBIOTTE) 27 November 1980 zie bladzijde 3, regel 9 - bladzijde 5, regel 18 --- -/--	8

☒ Verdere documenten worden vermeld in het vervolg van vak C.

☒ Leden van dezelfde octroofamilie zijn vermeld in een bijlage

*** Speciale categorieën van aangehaalde documenten**

"A" document dat de algemene stand van de techniek weergeeft, maar niet beschouwd wordt als zijnde van bijzonder belang

"E" eerder document, maar gepubliceerd op de datum van indiening of daarna

"L" document dat het beroep op een recht van voorrang aan twijfel onderhevig maakt of dat aangehaald wordt om de publikatiedatum van een andere aanhaling vast te stellen of om een andere reden zoals aangegeven

"O" document dat betrekking heeft op een mondelinge uiteenzetting, een gebruik, een tentoonstelling of een ander middel

"P" document gepubliceerd voor de datum van indiening maar na de ingeroepen datum van voorrang

"T" later document, gepubliceerd na de datum van indiening of datum van voorrang en niet in strijd met de aanvraag, maar aangehaald ter verduidelijking van het principe of de theorie die aan de uitvinding ten grondslag ligt

"X" document van bijzonder belang; de uitvinding waarvoor uitsluitende rechten worden aangevraagd kan niet als nieuw worden beschouwd of kan niet worden beschouwd op inventiviteit te berusten

"Y" document van bijzonder belang; de uitvinding waarvoor uitsluitende rechten worden aangevraagd kan niet worden beschouwd als inventief wanneer het document beschouwd wordt in combinatie met één of meerdere soortgelijke documenten, en deze combinatie voor een deskundige voor de hand ligt

"Z" document dat deel uitmaakt van dezelfde octroofamilie

Datum waarop het nieuwheidsonderzoek van internationaal type werd voltooid

15 Maart 1999

Verzenddatum van het rapport van het nieuwheidsonderzoek van internationaal type

Naam en adres van de instantie

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

De bevoegde ambtenaar

Wendling, J-P

**VERSLAG VAN HET NIEUWHEIDSONDERZOEK VAN
INTERNATIONAAL TYPE**

Nummer van het verzoek om een nieuwheidsonderzoek

NL 1009745

C. (Vervolg). VAN BELANG GEACHTE DOCUMENTEN

Categorie *	Geciteerde documenten, eventueel metaanduiding van speciaal van belang zijnde passages	Van belang voor conclusie nr.
A	EP 0 219 163 A (SHELL) 22 April 1987 zie kolom 4, regel 30 – kolom 5, regel 19 ---	1,8
A	US 4 211 606 A (PONOMAREV) 8 Juli 1980 -----	

**VERSLAG VAN HET NIEUWHEIDSONDERZOEK VAN
INTERNATIONAAL TYPE**

Informatie over leden van dezelfde octrooifamilie

Nummer van het verzoek om een nieuwheidsonderzoek
NL 1009745

In het rapport genoemd octrooi geschrift		Datum van publicatie	Overeenkomend(e) geschrift(en)	Datum van publicatie
US 4405339	A	20-09-1983	JP 57153088 A	21-09-1982
			JP 1319583 C	29-05-1986
			JP 57032728 A	22-02-1982
			JP 60045935 B	12-10-1985
			CA 1177249 A	06-11-1984
US 4002438	A	11-01-1977	GEEN	
US 4397656	A	09-08-1983	GEEN	
DE 19618213	A	13-11-1997	GEEN	
WO 8002563	A	27-11-1980	FR 2457319 A	19-12-1980
			AR 223707 A	15-09-1981
			AU 5861980 A	27-11-1980
			BR 8008692 A	14-04-1981
			EP 0029040 A	27-05-1981
			FI 801649 A, B,	23-11-1980
			PT 71258 A	01-06-1980
			SE 8100309 A	20-01-1981
			ZA 8003030 A	27-05-1981
EP 219163	A	22-04-1987	AU 593286 B	08-02-1990
			AU 6356386 A	16-04-1987
			BR 8604881 A	07-07-1987
			CA 1334334 A	14-02-1995
			IN 168743 A	01-06-1991
			JP 2074621 C	25-07-1996
			JP 7098948 B	25-10-1995
			JP 62091594 A	27-04-1987
			NO 173384 C	08-12-1993
US 4211606	A	08-07-1980	GEEN	