(19) DEUTSCHE DEMOKRATISCHE REPUBLIK

# PATENTSCHRIFT

**Ausschliessungspatent**

Erteilt gemaeß § 5 Absatz 1 des Aenderungsgesetzes zum Patentgesetz

ISSN 0433-6461 (11) **202 586**

Int.Cl.³ 3(51) **C 10 J 3/00**

**AMT FUER ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN**

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veroeffentlicht

(21) AP C 10 J/ 2411 003
(31) 99238/81
(22) 25.06.82
(32) 26.06.81
(44) 21.09.83
(33) JP

(71) siehe (73)
(72) TAMAI, YASUKATSU;TAKIZAWA, SABURO;HIGASHIYAMA, KAZUTOSHI;JP;
(73) TOYO ENGINEERING CORPORATION, TOKYO, JP
(74) IPB (INTERNATIONALES PATENTBUERO BERLIN) 61040/11/37/36 1020 BERLIN WALLSTR. 23/24

## (54) VERFAHREN ZUR KATALYTISCHEN KOHLEVERGASUNG

(57) Verfahren zur katalytischen Kohlevergasung, gekennzeichnet durch einmaliges Eintauchen von Kohle in flüssiges Ammoniak, in welchem eine Substanz wie beispielsweise Nickelthiozyanat, Nickelkarbonyl, Eisenkarbonyl und Kaliumnitrat, Kalium und Natrium gelöst ist, ferner durch Trennen der Kohle von dem flüssigen Ammoniak und durch anschließende Vergasung der Kohle.

AP C10G/241 100/3
61 040 11
20.1.83

# Verfahren zur katalytischen Kohlevergasung

## Anwendungsgebiet der Erfindung

Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zur katalytischen Vergasung von Kohle.

## Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Als Katalysatoren zur Verwendung in der Durchführung der katalytischen Kohlevergasung wurden bereits Alkalimetalle, Erdalkalimetalle, Übergangsmetalle und Kohleaschen untersucht und vorgeschlagen. Zur Hinzufügung dieser Katalysatoren zur Kohle im katalytischen Vergasungsverfahren werden Methoden angewendet, wie beispielsweise das Eingeben des Katalysators zusammen mit zerkleinerter Kohle in den Reaktionsofen, oder das Einfüllen von grob zerkleinerter Kohle in den Reaktionsofen nach Eintauchen in eine den Katalysator enthaltenden wäßrigen Lösung. Diese Methoden sind jedoch nachteilig, da der Katalysator nur mit unzureichender Gleichmäßigkeit über die Gesamtheit der Kohleteilchen mit dem Ergebnis verteilt wird, daß ausreichender Kontakt zwischen der Kohle und dem Katalysator nicht erzielt werden und der Katalysator nicht wirksam arbeiten kann. Demzufolge werden für die Verfahren der katalytischen Kohlevergasung solche Verbesserungen der Methoden zum Niederschlagen des Katalysators an die Kohleteilchen als sehr wichtig betrachtet, die eine gleichmäßige und feine Verteilung des Katalysators über die oder in der Gesamtheit der Kohleteilchen erzielen.

Aus der US-PS 4 005 995 ist ein Verfahren zur Vergasung eines kohlenstoffhaltigen Stoffes bekannt, welches die Vorbehandlung des kohlenstoffhaltigen Stoffes bei einer Temperatur innerhalb des Bereiches von Raumtemperatur bis 132 °C mit flüssigem Ammoniak und anschließende Vergasung des derart

behandelten kohlenstoffhaltigen Stoffes bei 400 °C bis 900 °C unter atmosphärischem oder erhähtem Druck in der Gegenwart oder Abwesenheit eines Katalysators beinhaltet.

Ziel der Erfindung

Ziel der Erfindung ist die Bereitstellung eines verbesserten Verfahrens zur katalytischen Vergasung von Kohle.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, durch eine verbesserte Vorbehandlung den Katalysator gleichmäßig auf und in den Kohleteilchen zu verteilen.

Die Erfinder haben die Wirkung der Vorbehandlung von Kohle mit flüssigem Ammoniak aufgrund der Tatsache untersucht, daß flüssiges Ammoniak leicht in das Innere von Kohleteilchen eindringt. Als Ergebnis haben die Erfinder entdeckt, daß ein Katalysator fein und gleichmäßig auf den inneren Oberflächen der Kohleteilchen durch einmaliges Eintauchen derselben in flüssiges Ammoniak mit einem darin gelösten Katalysator abgelagert werden kann. Hierbei werden die Kohleteilchen mit flüssigem Ammoniak und mit dem darin gelösten Katalysator getränkt. Sodann wird das flüssige Ammoniak von den Kohleteilchen entfernt.

Demgemäß wird durch die Erfindung ein Verfahren zur katalytischen Kohlevergasung geschaffen, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß Kohle in flüssiges Ammoniak eingetaucht wird, in welchem eine in flüssigem Ammoniak lösbare Substanz gelöst ist, die aus der aus einer Metallverbindung und einem Metall bestehenden Gruppe gewählt ist, wobei das Metall ein Übergangsmetall aus der VIII. Gruppe des Periodensystems

der Elemente, ein Alkali- oder ein Erdalkalimetall ist, vorzugsweise Nickelthiozyanat, Nickelkarbonyl, Eisenthiozyanat, Eisenkarbonyl, Kalium, Natrium und Lithium, Kaliumnitrat, Natriumnitrat oder Lithiumnitrat, daß ferner die Kohle von dem flüssigen Ammoniak getrennt und sodann der Vergasung unterzogen wird.

In einem bevorzugten Verfahren der Erfindung erfolgt ein einmaliges Eintauchen der Kohle in flüssiges Ammoniak, in welchem eine oder mehrere der oben erwähnten Substanzen in einer vorgegebenen Konzentration gelöst sind, so daß 1 kg der Kohleteilchen mit 1 bis 100 g des Katalysators, berechnet als Metall in der Substanz, imprägniert wird. Das Eintauchen wird für einen vorbestimmten Zeitraum bei einer Temperatur innerhalb des Bereiches von Raumtemperatur bis 132 °C durchgeführt. Die Kohle wird sodann bei reduziertem Druck von dem flüssigen Ammoniak getrennt. Die derart behandelten Kohleteilchen sind gleichmäßig mit der katalytischen Metallsubstanz imprägniert, d. h., die katalytische Metallsubstanz ist im Inneren der Kohleteilchen sehr gleichförmig abgelagert.

Eine Verbindung eines Alkali- oder Erdalkalimetalls wird üblicherweise bevorzugt, da eine solche im allgemeinen eine größere Beständigkeit aufweist und leichter zu verarbeiten ist als ein reines Metall für sich, insbesondere, wenn es sich um eine Alkalimetallverbindung handelt.

Die Vergasung einer derart behandelten Kohle kann bei einer Temperatur im Bereich von 400 °C bis 900 °C, vorzugsweise von 500 °C bis 900 °C, einem Druck von 1 bis 100 atm und einer Verweilzeit im Bereich von 15 Minuten bis 2 Stunden unter Verwendung eines herkömmlichen Kohlevergasungs-Mittels durchgeführt werden. Diese Vergasung erfolgt mit einer hohen Reaktionsgeschwindigkeit im Vergleich zu Vergasungen gemäß

herkömmlichen Katalysator-Zusetzungsverfahren.

Bezüglich der in der Erfindung verwendeten Katalysator-Substanz besteht so lange keine bestimmte Begrenzung, wie es sich um eine Substanz eines Metalls handelt, welche zur Katalysierung der Kohlevergasung geeignet ist und ausreichende Löslichkeit in flüssigem Ammoniak bei der Eintauchtemperatur zeigt. Typische Beispiele geeigneter Katalysator-Substanzen sind Nickelthiozyanat, Nickelkarbonyl, Eisenkarbonyl, Eisenthiozyanat, Kalium, Natrium, Lithium, Kaliumnitrat, Natriumnitrat und Lithiumnitrat. Die Nickelverbindung beispielsweise, welche in den Kohleteilchen abgelagert ist, wird zu metallischem Nickel reduziert, wenn die Temperatur auf etwa 400 °C bis 500 °C zur Einleitung des Vergasungsvorganges erhöht wird, und arbeitet katalytisch in dem nachfolgenden Vergasungsprozeß.

Wie oben beschrieben, wird die Kohle nur einmal in flüssiges Ammoniak eingetaucht, welches die darin gelöste metallische Katalysatorsubstanz in vorbestimmter Konzentration enthält. Die Teilchengröße (Durchmesser) der Kohleteilchen ist vorzugsweise 1 bis 2 mm, und das Gewichtsverhältnis von Kohle zu flüssigem Ammoniak liegt im Bereich von 1/0,5 bis 1/10, vorzugsweise von 1/1 bis 1/5. Falls Kohleteilchen größeren Durchmessers, wie mehrere mm beispielsweise, verwendet werden, kann sich die katalytische Wirkung verringern. Jedoch besteht keine Notwendigkeit, die Teilchengröße der Kohleteilchen bis hinunter zu einer Siebgröße von 48 bis 100 Tyler Maschen zu reduzieren. Demzufolge besteht eines der unterscheidenden Merkmale der Erfindung darin, daß sogar mit verhältnismäßig grob zerkleinerten Teilchen ausgezeichnete Ergebnisse erzielt werden können. Bei Überschreitung des Gewichtsverhältnisses Kohle/flüssiges Ammoniak von 1/0,5 ist eine ausreichende Durchdringung schwierig zu erzielen. Es

ist nicht erforderlich, das Gewichtsverhältnis von Kohle zu flüssigem Ammoniak unter 1/10 zu verringern, da die Verwendung einer großen Menge flüssigen Ammoniaks lediglich bedeutet, daß mehr flüssiges Ammoniak zurückgewonnen werden muß.

Der Eintauchvorgang des erfindungsgemäßen Verfahrens wird bei einer Temperatur innerhalb des Bereichs von Raumtemperatur bis 132 °C (die kritische Temperatur von flüssigem Ammoniak) durchgeführt, da flüssiges Ammoniak betroffen ist. Eine hohe Eintauchtemperatur ist vorteilhaft für eine wirksame Imprägnierung innerhalb der Kohleteilchen mit der Katalysatorsubstanz. Dieses Ziel kann jedoch auch bei Raumtemperatur erreicht werden, wenn das Eintauchen bei erhöhtem Druck und für einen langen Zeitraum erfolgt. Bei einer gegebenen Behandlungstemperatur besteht eine untere Grenze für den Druck, da das Ammoniak im flüssigen Zustand gehalten werden muß. Demzufolge wird das Eintauchen bei einem über dieser unteren Grenze liegenden Druck durchgeführt.

Das Verhältnis zwischen der Katalysatormenge und der Reaktionsgeschwindigkeit ist wie folgt: Die Vergasungsgeschwindigkeit der Kohle wird in hohem Maß durch die Hinzufügung einer sogar äußerst geringen Menge des Katalysators erhöht, da die Wirksamkeit des erfindungsgemäßen Verfahrens groß ist. Die Zunahme der Reaktionsgeschwindigkeit verringert sich allmählich, wenn die zugefügte Katalysatormenge ein hohes Niveau erreicht.

Vom Standpunkt der Wirtschaftlichkeit im Katalysator-Wiedergewinnungsverfahren wird eine Katalysatormenge von vorzugsweise 1 bis 100 g (als Metall, wie beispielsweise Nickel, berechnet) auf 1 kg Kohle verwendet, d. h. 0,1 % bis 10 %, bezogen auf das Gewicht der behandelten Kohle.

Wie im vorhergehenden beschrieben, wird die Kohle in flüssiges Ammoniak eingetaucht und sodann nach Entfernen des flüssigen Ammoniaks bei reduziertem Druck dem Vergasungsverfahren unterzogen. Jeder Kohlevergasungsprozeß, der zur Erzeugung von Gasen verwendet werden kann, die reich an Wasserstoff, Kohlenmonoxid und/oder Methan sind, kann in der vorliegenden Erfindung Anwendung finden. Das Vergasungsmittel kann je nach gewünschtem Gaserzeugnis ausgewählt werden aus Wasserstoff, Kohlendioxid, Sauerstoff, Luft und ähnlichem sowie auch Dampf. Gemische solcher Gase können verwendet werden. Die Temperatur und der Druck für das Kohlevergasungsverfahren können mit der herkömmlichen Praxis übereinstimmen. Es wird jedoch darauf hingewiesen, daß das Verfahren gemäß der vorliegenden Erfindung im Vergleich zu anderen Verfahren eine besonders hohe Reaktionsgeschwindigkeit erzielt, wenn eine niedrige Vergasungstemperatur, wie beispielsweise eine Temperatur im Bereich von 400 °C bis 900 °C, vorzugsweise 500 °C bis 900 °C, angewendet wird. Solche Temperaturen sind im Verhältnis zu herkömmlichen katalytischen Kohlevergasungstemperaturen äußerst niedrig. Der Katalysator kann bei entsprechender Imprägnierung und Verteilung in der Kohle mit überraschend hoher Wirksamkeit bei einer Temperatur in diesem Bereich arbeiten.

Ausführungsbeispiel

Im folgenden wird die Erfindung unter Bezugnahme auf erläuternde Beispiele beschrieben, welche Durchläufe des erfindungsgemäßen Verfahrens und vergleichender Verfahren darstellen. Es zeigen:

Fig. 1 und 3: je die Beziehung zwischen der Vergasungszeit und dem Umwandlungsverhältnis der angekokten Kohle in Versuchen gemäß der vorliegenden

Erfindung bzw. in Kontrollversuchen und

Fig. 2: die Wirksamkeit des erfindungsgemäßen Verfahrens mittels graphischer Darstellung der Beziehung zwischen dem Umwandlungsverhältnis der angekokten Kohle und der Vergasungstemperatur für katalytische Vergasung von Leopold-Kohle.

Die in den Beispielen verwendeten Kohlen sind Shin-Yubari-Kohle, Leopold-Kohle, Taiheiyo-Kohle und Yallourn-Kohle.

Die Ergebnisse der Elementaranalyse und der Kurzanalyse jeder Kohlensorte sind im folgenden aufgelistet:

| Kohle | Ergebnisse der Elementaranalyse (Gew.-%) | | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | C | H | N | S | O |
| Shin-Yubari | 86,9 | 5,6 | 1,9 | 0,3 | 5,3 |
| Leopold | 79,9 | 5,8 | 1,4 | 1,2 | 11,7 |
| Taiheiyo | 76,0 | 6,5 | 1,2 | 0,3 | 16,0 |
| Yallourn | 66,4 | 4,7 | 0,6 | 0,3 | 28,0 |

| Kohle | Ergebnisse der Kurzanalyse (Gew.-%) | | | |
|---|---|---|---|---|
| | Feuchtigkeit | Flüchtige Bestandt. | Fester Kohlenstoff | Asche |
| Shin-Yubari | 1,1 | 38,0 | 55,8 | 5,1 |
| Leopold | 3,3 | 38,7 | 54,7 | 3,3 |
| Taiheiyo | 4,4 | 47,0 | 36,9 | 11,7 |
| Yallourn | 16,5 | 46,0 | 36,7 | 0,8 |

Beispiel 1

Alle verwendeten Kohlen hatten Teilchengrößen (Durchmesser) von 1 bis 2 mm. Nickelthiozyanat ($Ni(SCN)_2$) wurde als Katalysatorsubstanz verwendet und in flüssigem Ammoniak ge-

löst. Das Nickelthiozyanat zeigte eine Löslichkeit von 1,5 g/g in flüssigem Ammoniak bei 21 °C. Vollständige Auflösung wurde bei Eintauchtemperatur bestätigt.

120 g flüssigen Ammoniaks, in welchem 1,2 g $Ni(SCN)_2$ gelöst waren, wurden in einen Autoklaven eingebracht. 30 g Kohle wurden in das flüssige Ammoniak eingetaucht, und die Aufheizung begann unter Rühren mittels Rotation des Autoklaven. Die Temperatur des Gemisches wurde über einen Zeitraum von 10 Minuten auf 120 °C erhöht. Der Druck erreichte in der gleichen Zeit einen Wert von 90 $kg/cm^2$. Temperatur und Druck wurden für 3 Stunden auf diesem Niveau gehalten. Anschließend wurde das Gemisch zum Abziehen des Ammoniaks auf Raumtemperatur abgekühlt.

Aus den derart behandelten Kohleteilchen wurden Teilchen mit einer Teilchengröße von 1 bis 2 mm für die Vergasung ausgewählt. Die in der Kohle abgelagerte Nickelmenge betrug 1,2 Gewichtsprozent für Shin-Yubari-Kohle, Leopold-Kohle und Taiheiyo-Kohle und 1,5 Gewichtsprozent für Yallourn-Kohle.

Die Vergasung wurde unter Verwendung von 10 bis 20 mg der Kohleprobe und Dampf als das Vergasungsmittel bei atmosphärischem Druck mittels einer Thermowaage durchgeführt, die zur raschen Temperaturerhöhung mit einer Geschwindigkeit von 500 °C/Minute geeignet ist. Die Vergasung erfolgte sodann bei 650 °C oder alternativ bei 750 °C für 2 Stunden. Die Umwandlung der angekokten Kohle (char, charcoal) wurde errechnet durch Division des Gewichtes der angekokten Kohle, die vergast wurde, durch das Ausgangsgewicht der angekokten Kohle und das Ergebnis in Prozent ausgedrückt, d. h. Umwandlung der angekokten

$$\text{Kohle (\%)} = \frac{\text{Ausgangsgewicht der angekokten Kohle - Gewicht der angekokten Kohlerückstände nach der Vergasung}}{\text{Ausgangsgewicht der angekokten Kohle}} \times 100$$

Das Ausgangsgewicht der angekokten Kohle wurde derart errechnet, daß von dem Gewicht der ursprünglichen Kohleprobe die Gewichtsabnahme subtrahiert wurde, welche die ursprüngliche Kohleprobe während der ersten Entgasungsstufe erfuhr. Diese erste Entgasungsstufe wurde etwa 1 Minuten nach Beginn der Temperaturerhöhung beendet. Die Gewichtsabnahme der ursprünglichen Kohleprobe, die während der erwähnten ersten Entgasungsstufe erfolgte, repräsentiert im wesentlichen den Gehalt an Wasser und an leichtflüchtigen Bestandteilen der ursprünglichen Kohle. Weiterhin wurde die Umwandlung der angekokten Kohle auf der Basis von Aschefreiheit berechnet, d. h., die Gewichte der ursprünglichen Kohleprobe, der angekokten Ausgangskohle und der festen Rückstände der angekokten Kohle nach der Vergasung wurden auf dieser Basis von Aschefreiheit errechnet.

Die Beziehungen zwischen den Vergasungszeiten und der Umwandlung der angekokten Kohle sind in Fig. 1 dargestellt. Hier zeigen 4 Kurven mit ausgezogenen Linien die Ergebnisse der Reaktionen bei Verwendung der vier Kohlesorten gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren. Die Kurven mit den gestrichelten Linien und mit den strichpunktierten Linien zeigen die Ergebnisse, die bei Verwendung der vier Kohlesorten gemäß anderen Verfahren (im folgenden beschriebene Kontrollbeispiele) erzielt wurden.

Die Kurven mit gestrichelten Linien stellen die unter folgenden Bedingungen erzielten Ergebnisse dar: Die Kohle wurde in eine Nickelammoniumthiozyanat $(Ni(NH_3)_4)(SCN)_2$ enthaltende wäßrige Lösung von Ammoniak eingemischt, in welcher die Kohle so fein verteilt wurde, daß die Nickelverbindung

an der Kohle in dem Verhältnis von 0,8 Gewichtsprozent, berechnet als Nickelmetall, für Shin-Yubari-Kohle, 14 Gewichtsprozent, berechnet als Nickelmetall, für Leopold- und Taiheiyo-Kohle sowie 1,8 Gewichtsprozent, berechnet als Nickelmetall, für Yallourn-Kohle abgelagert wurde. Die derart behandelten Kohlen wurden unter den gleichen Bedingungen wie oben vergast.

Die strichpunktierten Linien zeigen die Ergebnisse, die unter Bedingungen erzielt wurden, bei welchen die Kohle dem gleichen Vergasungsverfahren, jedoch ohne das soeben beschriebene Eintauchen in Nickelammoniumthiozyanat, unterworfen wurde. Dies bedeutet, daß die Vergasung ohne Nickel erfolgte.

Wie aus Fig. 1 zu ersehen ist, zeigt jede erfindungsgemäß behandelte Kohle eine außergewöhnlich hohe Reaktionsgeschwindigkeit sowie eine außergewöhnlich hohe Umwandlung der angekokten Kohle unter Niedrigtemperatur-Reaktionsbedingungen, wie beispielsweise Reaktionstemperaturen von 650 °C und 750 °C, obwohl einige Unterschiede in den Wirkungen festgestellt wurden.

Fig. 2 zeigt den Einfluß der Vergasungstemperatur auf die Umwandlung der angekokten Kohle nach 2 Stunden für Leopold-Kohle, für welche die vorliegende Erfindung, wie in Fig. 1 dargestellt, die höchste Umwandlung der angekokten Kohle in der katalytischen Kohlevergasung erzielte. Die Kurven 1,2 und 3 in Fig. 2 zeigen die Ergebnisse, die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren bzw. dem vorerwähnten Verfahren der Zusetzung wäßriger Ammoniaklösung bzw. einem Verfahren ohne Behandlung erzielt wurden. Die ausgezeichnete Wirksamkeit des erfindungsgemäßen Verfahrens ist, wie aus Fig. 2 ersichtlich, bei jeder Vergasungstemperatur festzustellen.

Beispiel 2

Als Katalysatorsubstanz wurde Kaliumnitrat verwendet, welches eine Löslichkeit von 9,71 g bei 0 °C und 10,4 g bei 25 °C in 100 g flüssigem Ammoniak aufweist. Leopold-Kohle wurde verwendet. 40 g flüssigen Ammoniaks, in welchem 0,5 g $KNO_3$ gelöst waren, wurden in einen Autoklaven eingebracht. 10 g Kohle wurden in das flüssige Ammoniak eingetaucht. Die nachfolgenden Verfahrensschritte wurden in der gleichen wie im Beispiel 1 beschriebenen Art durchgeführt, ausgenommen, daß eine in der Kohle abgelagerte Menge Kalium 2 Gewichtsprozent betrug und der Vergasungsvorgang bei 750 °C für 2 Stunden erfolgte.

Fig. 3 zeigt die Beziehungen zwischen den Vergasungszeiten und der Umwandlung der angekokten Kohle, wobei die Kurve mit der ausgezogenen Linie Ergebnisse des erfindungsgemäßen Verfahrens und die Kurve mit der strichpunktierten Linie Ergebnisse eines Kontrollversuchs darstellt, in welchem Leopold-Kohle keine erfindungsgemäße Behandlung erfuhr, jedoch unter den gleichen Vergasungsbedingungen wie oben verarbeitet wurde.

Gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren verursacht die Behandlung mit flüssigem Ammoniak Risse in den Oberflächen der Kohleteilchen. Der Katalysator dringt entlang den Rissen in die Spalten der Kohleteilchen ein und wird darin niedergeschlagen, so daß er innerhalb jedes Teilchens abgelagert und verhältnismäßig gleichförmig darin verteilt ist.

Als Ergebnis dieser beträchtlichen Durchdringung weist das erfindungsgemäße Verfahren eine hohe Reaktionsgeschwindigkeit und einen außergewöhnlich hohen Wirkungsgrad der Vergasung im Vergleich mit anderen Verfahren auf. Die Wirkungen

variieren in Abhängigkeit von der Beschaffenheit der Kohle, der verwendeten katalytischen Metallsubstanz und den gewählten Vergasungsbedingungen. Trotzdem sind die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren erzielten hervorragenden Resultate beträchtlich im Vergleich zu den Wirkungen anderer Verfahren.

61 040 11
20.1.83

Erfindungsanspruch

1. Verfahren zur katalytischen Vergasung von Kohle, gekennzeichnet durch einmaliges Eintauchen von Kohleteilchen in flüssiges Ammoniak mit einer darin gelösten, aus der aus Metallen und deren Verbindungen bestehenden Gruppe gewählten Substanz, so daß diese Substanz in die Kohleteilchen eindringt, im wesentlichen gleichmäßig im Inneren derselben verteilt wird und dieselben imprägniert; ferner durch Trennen der Kohleteilchen von dem flüssigen Ammoniak und durch anschließende katalytische Vergasung dieser Kohleteilchen zur Erzeugung eines Wasserstoff, Kohlenmonoxid und Methan enthaltenden Gasen, wobei das Metall als Katalysator für die Vergasung wirkt.

2. Verfahren nach Punkt 1, gekennzeichnet dadurch, daß das Metall eines der Metalle aus der aus den Übergangsmetallen der VIII. Gruppe, Alkalimetallen und Erdalkalimetallen bestehenden Gruppe ist.

3. Verfahren nach Punkt 1 oder 2, gekennzeichnet dadurch, daß das Metall eines der Metalle aus der aus Nickel, Eisen und Alkalimetallen bestehenden Gruppe ist.

4. Verfahren nach Punkt 3, gekennzeichnet dadurch, daß die Substanz aus der aus Nickelthiozyanat, Nickelkarbonyl, Eisenthiozyanat und Eisenkarbonyl, Kalium, Natrium, Lithium, Kaliumnitrat, Natriumnitrat und Lithiumnitrat bestehenden Gruppe gewählt ist.

5. Verfahren nach wenigstens einem der Punkte 1 bis 4, gekennzeichnet dadurch, daß die Substanz in flüssiges Ammoniak mit einer vorbestimmten Konzentration gelöst wird, so daß 1 kg der Kohleteilchen mit 1 bis 100 g des Metalls

imprägniert wird, und daß der Eintauchvorgang bei einer Temperatur im Bereich von Raumtemperatur bis 132 °C erfolgt.

6. Verfahren nach wenigstens einem der Punkte 1 bis 5, gekennzeichnet dadurch, daß die Kohle bei einer Temperatur im Bereich von 400 °C bis 900 °C, einem Druck im Bereich von 1 bis 100 Atmosphären und einer Verweilzeit im Bereich von 15 Minuten bis 2 Stunden vergast wird.

7. Verfahren nach wenigstens einem der Punkte 1 bis 6, gekennzeichnet dadurch, daß das Gewichtsverhältnis der Kohle zum flüssigen Ammoniak im Bereich von 1/0,5 bis 1/10 ist.

8. Verfahren nach wenigstens einem der Punkte 1 bis 7, gekennzeichnet dadurch, daß die Kohle einen Teilchendurchmesser von etwa 1 bis 2 mm aufweist.

9. Verfahren nach wenigstens einem der Punkte 1 bis 8, gekennzeichnet dadurch, daß ein Vergasungsmittel für den Verfahrensschritt der Vergasung der Kohleteilchen aus der aus Wasserstoff, Kohlendioxid, Sauerstoff, Luft, Dampf und deren Gemische bestehenden Gruppe ausgewählt ist.

10. Verfahren zur katalytischen Kohlevergasung, gekennzeichnet durch einmaliges Eintauchen von Kohleteilchen mit einer durchschnittlichen Teilchengröße von etwa 1 bis 2 mm in flüssiges Ammoniak bei einer Temperatur im Bereich von Raumtemperatur bis 132 °C, wobei das flüssige Ammoniak eine darin gelöste, ammoniaklösliche und aus der aus Metallen und deren Verbindungen bestehenden Gruppe gewählte Substanz enthält und das Gewichtsverhältnis der

Kohle zum flüssigen Ammoniak im Bereich von 1/1 bis 1/5 ist, so daß die Kohle im wesentlichen gleichmäßig mit 1 bis 100 g des Metalls auf 1 kg Kohle imprägniert ist; ferner durch Trennen der Kohleteilchen von dem flüssigen Ammoniak und durch anschließende katalytische Vergasung der Kohle bei einer Temperatur im Bereich von etwa 700 °C bis etwa 800 °C zur Erzeugung eines Wasserstoff, Kohlenmonoxid und Methan enthaltenden Gases, wobei das Metall als Katalysator für die Vergasung wirkt.

11. Verfahren nach Punkt 10, gekennzeichnet dadurch, daß das Metall aus der aus den Übergangsmetallen der VIII. Gruppe, Alkalimetallen und Erdalkalimetallen bestehenden Gruppe gewählt ist.

12. Verfahren nach Punkt 10 oder 11, gekennzeichnet dadurch, daß das Metall aus der aus Nickel, Eisen und Alkalimetallen bestehenden Gruppe gewählt ist.

13. Verfahren nach Punkt 12, gekennzeichnet dadurch, daß die Substanz aus der aus Nickelthiozyanat, Nickelkarbonyl, Eisenthiozyanat und Eisenkarbonyl, Kalium, Natrium, Lithium, Kaliumnitrat, Natriumnitrat und Lithiumnitrat bestehenden Gruppe gewählt ist.

**Hierzu 1 Seite Zeichnungen**

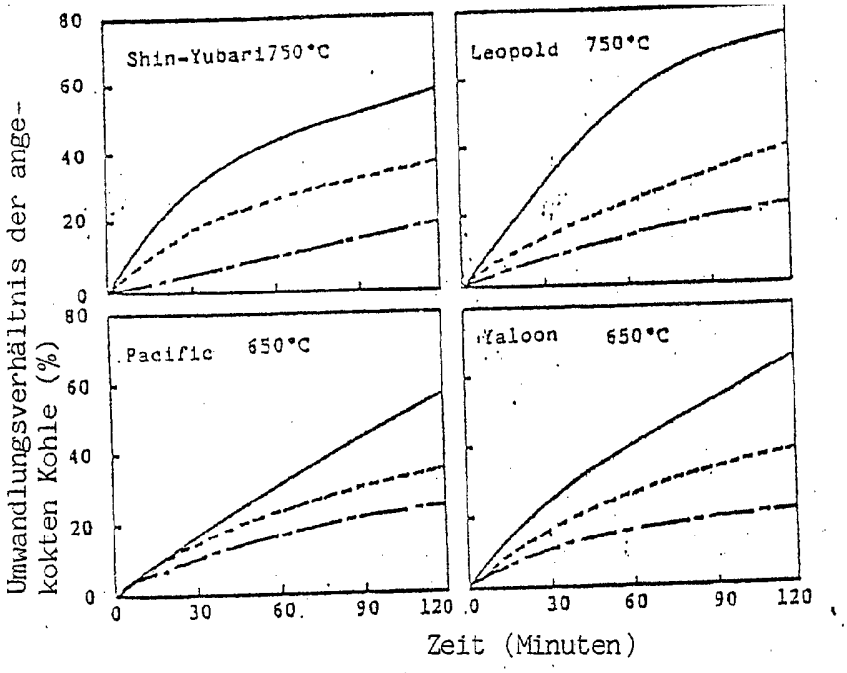



Fig. 1

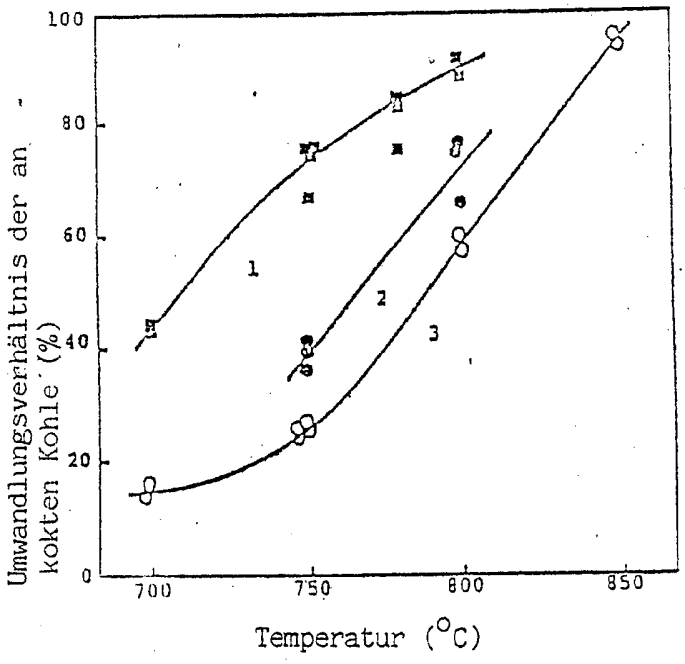
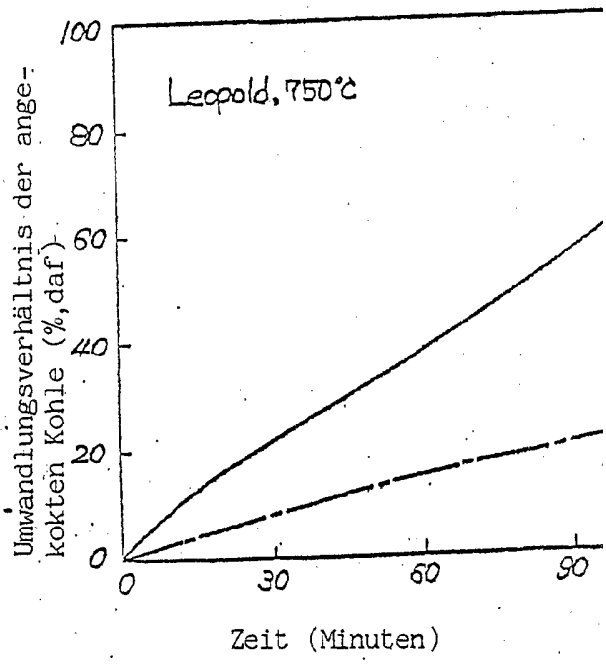



Fig. 2

Fig. 3




25.JUN 1982*018534