

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

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
3. Januar 2002 (03.01.2002)

PCT

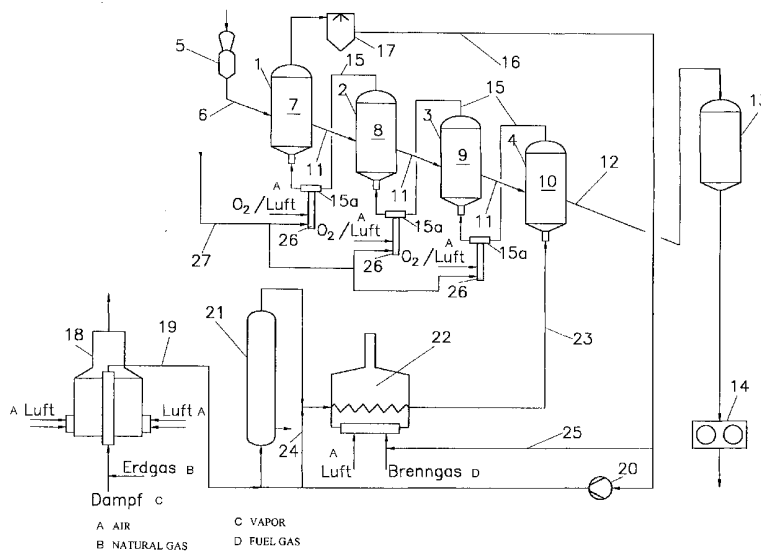
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 02/00944 A1**

- (51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **C21B 13/00**, (72) Erfinder; und  
13/14 (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **KEPPLINGER, Leopold, Werner** [AT/AT]; Lahholdstrasse 7, A-4060 Leonding (AT). **HILLISCH, Wolfgang** [AT/AT]; Timmelweg 1, A-4060 Leonding (AT). **HIEBLER, Martin** [AT/AT]; Schillerstrasse 1, A-8700 Leoben (AT).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/AT01/00208
- (22) Internationales Anmeldedatum:  
27. Juni 2001 (27.06.2001)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch (74) Anwälte: **KOPECKY, Helmut** usw.; Wipplingerstrasse 32/22, A-1010 Wien (AT).
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:  
A 1108/2000 28. Juni 2000 (28.06.2000) AT (81) Bestimmungsstaaten (national): AU, CA, JP, KR, MX, US.
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **VOEST-ALPINE INDUSTRIEANLAGEN-BAU GMBH & CO** [AT/AT]; Turmstrasse 44, A-4020 Linz (AT). (84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR DIRECTLY REDUCING PARTICULATE OXIDE-CONTAINING ORES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND ANLAGE ZUR DIREKTREDUKTION VON TEILCHENFÖRMIGEN OXIDHÄLTIGEN ERZEN



(57) Abstract: The invention relates to a method for directly reducing particulate oxide-containing ores, especially iron-oxide containing material, by way of a fluidized bed method, at a pressure of > 5 bar. According to the inventive method, the ore is heated up in a fluidized bed reactor (1) that is configured as a pre-heating stage (7) using a reducing gas produced from natural gas. Optionally, the ore is also pre-reduced, and is then reduced to sponge iron in at least one fluidized bed reactor (2, 3) that is configured as a reduction stage (8, 9). The reducing gas is guided via a reducing gas pipe (15) in a counter-current to the material to be reduced which is guided from stage to stage from the reduction stage (8, 9) to the pre-heating stage (7). The reducing gas is removed as top gas and is returned to the reduction stage (8, 9) after purification. Heat is supplied to the reduction stage (8, 9) and/or pre-heating stage (7) by combustion of an external fuel gas, especially natural gas, together with oxygen and/or air.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

**Veröffentlicht:**

— mit internationalem Recherchenbericht

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

---

**(57) Zusammenfassung:** Bei einem Verfahren zur Direktreduktion von teilchenförmigen oxidhaltigen Erzen, insbesondere von eisenoxidhaltigem Material, im Wirbelschichtverfahren bei einem Druck >5 bar, wobei das Erz mit Hilfe eines aus Erdgas erzeugten Reduktionsgases in einem als Vorwärmstufe (7) ausgebildeten Wirbelschichtreaktor (1) erhitzt, gegebenenfalls auch vorreduziert wird, anschließend in mindestens einem als Reduktionsstufe (8, 9) ausgebildeten Wirbelschichtreaktor (2, 3) zu Eisenschwamm reduziert wird und das Reduktionsgas über eine Reduktionsgasleitung (15) in Gegenrichtung des von Stufe zu Stufe geleiteten zu reduzierenden Materials von der Reduktionsstufe (8, 9) zur Vorwärmstufe (7) geleitet wird, als Topgas abgezogen und nach Reinigung in die Reduktionsstufe (8, 9) rückgeführt wird, wird dem der Reduktionsstufe (8, 9) und/oder Vorwärmstufe (7) zugeführten Reduktionsgas Wärme zugeführt, und zwar durch Verbrennung eines externen Brenngases, insbesondere Erdgas, zusammen mit Sauerstoff und/oder Luft.

Verfahren und Anlage zur Direktreduktion von teilchenförmigen oxidhaltigen Erzen

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Direktreduktion von teilchenförmigen oxidhaltigen Erzen, insbesondere von eisenoxidhaltigem Material, im Wirbelschichtverfahren bei einem Druck  $> 5$  bar, wobei das Erz mit Hilfe eines aus Erdgas erzeugten Reduktionsgases in einem als Vorwärmstufe ausgebildeten Wirbelschichtreaktor erhitzt, gegebenenfalls auch vorreduziert wird, anschließend in mindestens einem als Reduktionsstufe ausgebildeten Wirbelschichtreaktor zu Eisenschwamm reduziert wird und das Reduktionsgas über eine Reduktionsgasleitung in Gegenrichtung des von Stufe zu Stufe geleiteten zu reduzierenden Materials von der Reduktionsstufe zur Vorwärmstufe geleitet wird, als Topgas abgezogen und nach Reinigung in die Reduktionsstufe rückgeführt wird, sowie eine Anlage zur Durchführung des Verfahrens.

Ein Verfahren dieser Art ist beispielsweise aus der AT-B - 402 937 bekannt. Bei diesem bekannten Verfahren wird eisenoxidhaltiges Material in vier in Serie hintereinander geschalteten Wirbelschicht-Reduktionszonen reduziert. Um in allen Wirbelschicht-Reduktionszonen eine etwa gleich hohe konstante Temperatur einzustellen, wird frisch gebildetes Reduktionsgas zum Teil den der in Reduktionsgas-Strömungsrichtung ersten Wirbelschicht-Reduktionszone folgenden Wirbelschicht-Reduktionszonen zusätzlich zu dem die Wirbelschicht-Reduktionszonen in Serie durchströmenden Reduktionsgas direkt zugeführt, so daß die Wirbelschicht-Reduktionszonen hinsichtlich der Reduktionsgasführung sowohl in Serie als auch parallel geschaltet sind. Das zusätzlich zugeführte, frisch gebildete Reduktionsgas wird den einzelnen Wirbelschicht-Reduktionszonen hierbei vorzugsweise in einer Menge von jeweils 5 bis 15% zugeführt.

Bei Wirbelschicht-Reaktorkaskaden mit Gegenstromführung von eisenoxidhaltigem Material und Reduktionsgas, wie aus der AT-B - 402 937 bekannt, kommt es zu einer schrittweisen Erwärmung des Feststoffs entsprechend der Enthalpieabnahme des Gases. Dies kann unter Umständen dazu führen, daß die Temperatur in den einzelnen Reduktionsstufen zu gering wird, wodurch eine Reaktion des Feststoffs mit dem Gas kinetisch und thermodynamisch behindert wird.

Durch Reduktion des eisenoxidhaltigen Materials verringert sich das Reduktionspotential des im Gegenstrom geführten Reduktionsgases, d.h. sein Oxidationspotential nimmt von Stufe zu Stufe, d.h. entsprechend der Einsatzzeit des Reduktionsgases, zu. Durch Erhöhung der Temperatur des Reduktionsgases können sogenannte Autoreforming-Reaktionen ablaufen, welche den Gehalt an Methan im Reduktionsgas, das eine inerte Gaskomponente darstellt,

absenken und die Menge an reduzierenden Gasbestandteilen ( $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ) erhöhen, wodurch thermodynamische Vorteile bei der Reduktion des Feststoffs erzielt werden können. Weiters kann durch die in-situ-Generierung von  $\text{CO}$  und  $\text{H}_2$  die Menge des sogenannten Make-up-Gases, d.h. frisch zugeführten Reduktionsgases, abgesenkt werden, wodurch die gesamte Gasanlage verkleinert werden kann.

Aus der WO-A - 97/13878 ist ein Verfahren bekannt, bei dem ein Teil des aus einer Endreduktionsstufe in eine Vorreduktionsstufe strömenden Reduktionsgases abgezweigt, gewaschen, von  $\text{CO}_2$  gereinigt sowie aufgeheizt und anschließend in die Endreduktionsstufe rückgeführt wird. Die Erhitzung des der Endreduktionsstufe entnommenen und abgezweigten Reduktionsgases auf Reduktionstemperatur kann hierbei rekuperativ und/oder regenerativ und/oder durch eine Teilverbrennung des entnommenen Teils des Reduktionsgases erfolgen.

In der WO-A - 97/07247 ist ein Verfahren beschrieben, bei dem ein aus einer Reduktionszone zur Direktreduktion eisenoxidhaltigen Materials abgezogenes Exportgas einer  $\text{CO}_2$ -Eliminierung sowie einer Aufheizung unterzogen und einer weiteren Reduktionszone zur Direktreduktion eisenoxidhaltigen Materials zugeführt wird, wobei die Aufheizung zweistufig erfolgen kann, und zwar in einer ersten Stufe durch Wärme des aus der weiteren Reduktionszone austretenden Exportgases, welches z.B. verbrannt wird und Wärme rekuperativ an das der weiteren Reduktionszone zugeführte Reduktionsgas abgibt, und in einer zweiten Stufe durch Teilverbrennung von der weiteren Reduktionszone frisch zugeführtem Reduktionsgas.

Wird das staubbeladene Reduktionsgas direkt mit Sauerstoff verbrannt, wie gemäß der WO-A - 97/13878 und der WO-A - 97/07247, so können lokal sehr hohe Temperaturen auftreten, die nachteilig zu einem Anschmelzen des Staubes führen. Dies ist nicht erwünscht, da das Anschmelzen des Staubes zu Störungen im Direktreduktionsverfahren führt; es kommt zu Agglomerationen und Anbackungen an Wänden der Reduktionsgefäße und Förderleitungen.

Aus der JP 58-34114 A ist ein Verfahren zur Reduktion von feinkörnigem Eisenerz bekannt, bei dem das Reduktionsgas für die Endreduktionsstufe durch Zersetzung und Reformierung von Kohlenwasserstoff mittels des aus der Endreduktionszone abgezogenen oxidierenden Abgases erzeugt wird, wobei das Eisenerz in einer ersten Stufe durch aus dem Kohlenwasserstoff abgeschiedenen Kohlenstoff vorreduziert wird. Zur Bereitstellung der für die Erzeugung des Reduktionsgases benötigten Energie wird das oxidierende Abgas erhitzt, bevor es mit dem Kohlenwasserstoff in Kontakt gebracht wird.

In der US 3,985,547 A ist ein Verfahren zur Eisenerzreduktion in einem Mehrfachwirbelbettreaktor beschrieben, bei dem frisches Reduktionsgas durch unterstöchiometrische Verbrennung von Methan und Sauerstoff in einem dem Reaktor zugeordneten Brenner erzeugt wird, der mit seiner Auslassöffnung zwischen dem untersten und dem darüber gelegenen Wirbelbett angeordnet ist. Das aus dem obersten Wirbelbett austretende verbrauchte Reduktionsgas wird gereinigt, von Wasser und  $\text{CO}_2$  befreit und im erhitzten Zustand dem untersten Wirbelbett als Recycling-Reduktionsgas zugeführt.

Die Erfindung stellt sich die Aufgabe, bei einem Verfahren der eingangs beschriebenen Art das Reduktionsgas beim Strömen von einer Wirbelschicht-Reduktionszone in die dieser nachgeschaltete Wirbelschicht-Reduktionszone so einer Aufheizung zu unterziehen, daß das Reduktionsgas und der Feststoff in einen für die Reduktion kinetisch und thermodynamisch günstigen Temperaturbereich gebracht werden, in welchem Autoreformingreaktionen zur Erhöhung des Reduktandenanteils im Reduktionsgas ablaufen können, wobei jedoch ein durch eine lokale Überhitzung bedingtes Anschmelzen des im Reduktionsgas enthaltenen Staubes und die damit verbundenen Probleme vermieden werden sollen.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß dem der Reduktionsstufe und/oder Vorwärmstufe zugeführten Reduktionsgas Wärme zugeführt wird, und zwar durch Verbrennung eines externen Brenngases, insbesondere Erdgas, zusammen mit Sauerstoff und/oder Luft.

Durch die Verbrennung eines staubfreien Brenngases, wie z.B. Erdgas, mit einem sauerstoffhaltigen Gas vermeidet man die lokal sehr hohen Temperaturen, die entstehen, wenn das staubbeladene Reduktionsgas direkt mit Sauerstoff verbrannt wird.

Durch die Erhöhung der Reduktionsgastemperatur mittels der erfindungsgemäßen Verbrennung eines Brenngases werden Autoreformingreaktionen in der Gasphase thermodynamisch sowie kinetisch bevorzugt, wobei der vorhandene Staub im Reduktionsgas als Katalysator wirken kann. Bei diesen Autoreformingreaktionen kommt es zum Umsetzen von Methan mit  $\text{CO}_2$  bzw.  $\text{H}_2\text{O}$ , wobei  $\text{CO}$  bzw.  $\text{H}_2$  gebildet werden. Durch diese in-situ-Generierung der reduzierenden Bestandteile kann einerseits die Reduktionsgasanalyse und somit auch thermodynamisch die Reduktion feinteilchenförmigen oxidhaltigen Materials verbessert werden und andererseits die Menge des Make-up-Gases, d.h. frisch zugeführten Reduktionsgases, reduziert werden.

Vorzugsweise erfolgt erfindungsgemäß die Verbrennung des Brenngases in einer Brennkammer, wobei die Brennkammer direkt von Reduktionsgas, das von einer Wirbelschicht-Reduktionsstufe in die in Richtung des Gasflusses nachgeschaltete Wirbelschicht-Reduktions- bzw. Vorwärmstufe strömt, geflutet wird. Hierdurch wird der apparative Aufwand so gering wie möglich gehalten.

Gemäß einer weiteren bevorzugten Ausführungsform erfolgt die Verbrennung des Brenngases in einer von der Reduktionsgasleitung separaten Brennkammer. Das hierbei gebildete Verbrennungsgas wird erst anschließend in die Reduktionsgasleitung strömen gelassen. Hierdurch werden möglicherweise auftretende Flammenfronten bei der Verbrennung nivelliert, bevor sie mit dem staubbeladenen Reduktionsgas in Kontakt gelangen.

Vorteilhaft wird das Verbrennungsgas mit dem Reduktionsgas in einer Mischkammer gemischt. Hierdurch erreicht man eine bessere Vermischung des Reduktionsgases mit dem Verbrennungsgas.

Durch Zuführung eines weiteren Stoffes, wie Erdgas oder anderer Kohlenwasserstoffe, in die Mischkammer läßt sich vorteilhaft in Abhängigkeit von der Art des Stoffes der Oxidationsgrad des Reduktionsgases verändern sowie eine Produktion von reduzierenden Gasbestandteilen initiieren, wodurch die Reduktionsgaszusammensetzung beeinflusst werden kann.

Gemäß einer anderen Ausführungsform wird das Brenngas in einem Brenner innerhalb eines für die Direktreduktion der oxidhaltigen Erze vorgesehenen Wirbelschicht-Reaktors verbrannt. Die Verbrennung kann je nach Anordnung des Brenners entweder unterhalb des Wirbelbetts, in Höhe des Wirbelbetts oder oberhalb des Wirbelbetts erfolgen. Auch ist es denkbar, daß alle Brenner in den Wirbelschicht-Reaktoren angeordnet sind.

Diese Ausführungsform hat zum Vorteil, daß dem Reduktionsgas die Wärme äußerst gezielt und besonders effizient zugeführt werden kann. Wird der Brenner in Höhe des Wirbelbettes oder oberhalb des Wirbelbettes angeordnet, wird gegenüber der Anordnung unterhalb des Wirbelbettes die thermische Belastung des Verteilerbodens verringert und das Fouling von Feststoff an bzw. in den Düsen und Öffnungen des Verteilerbodens verhindert.

Eine Anlage zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens, mit mindestens zwei in Serie hintereinandergeschalteten Wirbelschichtreaktoren zur Direktreduktion von teilchenförmigen oxidhaltigen Erzen, insbesondere eisenoxidhaltigem Material, mittels eines

aus Erdgas erzeugten CO- und H<sub>2</sub>-haltigen Reduktionsgases, mit einer Reduktionsgas-Zuleitung zu dem in Fließrichtung des oxidhaltigen Materials gesehenen letzten Wirbelschichtreaktor, einer Topgas-Ableitung aus dem in Fließrichtung des eisenoxidhaltigen Materials gesehenen ersten Wirbelschichtreaktor, welche leitungsmäßig mit der Reduktionsgas-Zuleitung in Verbindung steht, und mit einer zur Führung des Reduktionsgases von einem Wirbelschichtreaktor in den diesem vorgeschalteten Wirbelschicht-Reaktor vorgesehenen Reduktionsgasleitung ist dadurch gekennzeichnet, daß die Anlage leitungsmäßig mit mindestens einem Brenner zur Verbrennung eines externen Brenngases, insbesondere Erdgas, mit Sauerstoff und/oder Luft verbunden ist.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform weist der Brenner eine Brennkammer auf, die direkt in der Reduktionsgasleitung vorgesehen ist und vorzugsweise als eine im Durchmesser erweiterte Stelle der Reduktionsgasleitung ausgebildet ist.

Gemäß einer weiteren bevorzugten Ausführungsform weist der Brenner eine Brennkammer auf, die leitungsmäßig mit der Reduktionsgasleitung verbunden ist.

Zweckmäßig ist an der Einmündung der von der Brennkammer in die Reduktionsgasleitung führenden Leitung eine Mischkammer vorgesehen.

Vorteilhaft ist der Brenner in einem der Wirbelschichtreaktoren angeordnet. Dabei ist er entweder unterhalb des Wirbelbetts, in Höhe des Wirbelbetts oder oberhalb des Wirbelbetts angeordnet.

Die Erfindung ist nachfolgend anhand mehrerer in der Zeichnung dargestellter Ausführungsbeispiele näher erläutert, wobei die Fig. 1 bis 3 jeweils eine vorteilhafte Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens im Blockschema und die Fig. 4 bis 6 ein vergrößertes Detail einer bevorzugten Ausführungsform veranschaulichen.

Die in Fig. 1 dargestellte Anlage weist vier in Serie hintereinandergeschaltete Wirbelschichtreaktoren 1 bis 4 auf, wobei teilchenförmiges oxidhaltiges Erz, wie eisenoxidhaltiges Erz, über ein Aufgabesystem 5 und eine Erzzuleitung 6 dem ersten Wirbelschichtreaktor 1, in dem in einer Vorwärmstufe 7 eine Vorerwärmung des Feinerzes und eventuell eine Vorreduktion stattfinden, zugeleitet und anschließend von Wirbelschichtreaktor 1 zu Wirbelschichtreaktor 2, 3 und 4 über Förderleitungen 11 geleitet wird. In den Wirbelschichtreaktoren 2 und 3 erfolgt in zwei Vorreduktionsstufen 8 und 9 eine

Vorreduktion und im Wirbelschichtreaktor 4 in einer Endreduktionsstufe 10 eine Endreduktion des Feinerzes.

Das fertig reduzierte Material wird über eine Förderleitung 12 einem Sammelbehälter 13 zugeführt, von wo es in eine Brikettiereinrichtung 14 gelangt, in der es heiß- oder kaltbrikettiert wird. Erforderlichenfalls wird das reduzierte Material vor Reoxidation während des Transports, der Lagerung und der Brikettierung durch ein nicht dargestelltes Inertgas-System geschützt.

Vor Einleitung des Feinerzes über das Aufgabesystem 5 in den ersten Wirbelschichtreaktor 1 wird es einer Erzvorbereitung, wie einer Trocknung und einem Sieben, unterzogen, die nicht näher dargestellt ist.

Reduktionsgas wird im Gegenstrom zum Erzdurchfluß von Wirbelschichtreaktor 4 zu Wirbelschichtreaktor 3 bis 1 über Verbindungsleitungen 15 geführt und als Topgas über eine Topgas-Ableitung 16 aus dem in Gasströmungsrichtung letzten Wirbelschichtreaktor 1 abgeleitet und in einem Naßwäscher 17 gekühlt und gewaschen, wobei bei der Durchführung des Wirbelschichtverfahrens ein Druck von  $> 5$  bar aufrechterhalten wird.

Die Herstellung des Reduktionsgases erfolgt durch Reformieren von gegebenenfalls vorher entschwefeltem Erdgas, Luft und Wasserdampf in einem Dampfreformer 18. Das gebildete reformierte Gas besteht im wesentlichen aus  $H_2$ , CO,  $CH_4$ ,  $H_2O$  und  $CO_2$ .

Dieses reformierte Gas wird über eine Gasförderleitung 19, die mit der Topgas-Ableitung 16 zusammenmündet, gemeinsam mit dem mittels eines Verdichters 20 verdichteten Topgas einer  $CO_2$ -Eliminierungsanlage 21 und nachfolgend einem Gaserhitzer 22 zugeleitet und von diesem über eine Reduktionsgas-Zuleitung 23 dem in Fließrichtung des Feinerzes letztangeordneten Wirbelschichtreaktor 4 zugeführt. Die  $CO_2$ -Eliminierungsanlage 21 kann zum Beispiel als Druckwechsel-Adsorptionsanlage oder als chemischer oder physikalischer  $CO_2$ -Naßwäscher ausgebildet sein. Gegebenenfalls können Topgas und Reduktionsgas oder ein Teil derselben auch ohne  $CO_2$ -Eliminierung dem Gaserhitzer 22 über eine Leitung 24 zugeführt werden. Ein Teil des Topgases kann auch als Brenngas dem Gaserhitzer 22 über eine Zweigleitung 25 zugeführt werden.

Zur Zuführung von Wärme an das in die Vorreduktionsstufen 8 und 9 und/oder in die Vorwärmstufe 7 strömende Reduktionsgas sind an den Verbindungsleitungen 15, die an diesen Stellen Verdickungen 15a aufweisen, welche als vom Reduktionsgas durchströmte

Brennkammern wirken, Brenner 26 angeordnet. Den Brennern 26 wird parallel über eine Zuführleitung 27 externes Brenngas, wie Erdgas, sowie Luft und/oder Sauerstoff, der auch in Form eines anderen sauerstoffhaltigen Gases als Luft zuführbar ist, zugeführt. Im Reduktionsgas kommt es durch die Erhöhung der Gastemperatur zu Autoreforming-Prozessen und zur Erzeugung von weiteren reduzierenden Bestandteilen, wodurch das Reduktionspotential des Reduktionsgases vorteilhaft zunimmt und zusätzlich "sticking" in den Wirbelschichtreaktoren verhindert wird.

Gemäß Fig. 2 sind Brenner 26, in die wiederum parallel externes Brenngas und Sauerstoff und/oder Luft münden, an von den Verbindungsleitungen 15 separierten, jedoch mit ihnen leitungsmäßig in Verbindung stehenden Brennkammern 28 angeordnet, so daß bei der Verbrennung möglicherweise auftretende Flammenfronten bereits in den Brennkammern 28 vergleichmäßig werden, ehe das Verbrennungsgas mit dem in den Verbindungsleitungen 15 strömenden, gegebenenfalls staubbeladenen Reduktionsgas in Kontakt gelangt.

Das in Fig. 3 dargestellte Ausführungsbeispiel unterscheidet sich von dem in Fig. 2 veranschaulichten durch in den Verbindungsleitungen 15 angeordnete Mischkammern 29, in denen das in den Brennkammern 28 erzeugte heiße Verbrennungsgas mit dem Reduktionsgas vermischt wird. Aufgrund der längeren Verweildauer des Reduktionsgases in den Mischkammern 29 kann der Vermischungsvorgang vollständiger und schneller ablaufen.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung erfolgt die Verbrennung des verwendeten externen Brenngases, beispielsweise Erdgas, zusammen mit Sauerstoff und/oder Luft mittels eines einem Wirbelschichtreaktor zugeordneten Brenners. Der in Fig. 4 schematisch dargestellte Wirbelschichtreaktor 30 zeigt einen in drei Zonen gegliederten Innenraum 31, zu dem unten eine Gaszuführungsleitung 32 hin- und am oberen Ende eine Abgasleitung 33 wegführt. Die unterste Zone 34 ist von der mittleren Zone 35 durch den Verteilerboden 37 getrennt, der das durch den Innenraum 31 des Wirbelschichtreaktors 30 von unten nach oben strömende Reduktionsgas über den ganzen Querschnitt des Wirbelschichtreaktors 30 gleichmäßig verteilt und dadurch ein einheitliches Wirbelbett aus Feinerzteilchen erzeugt. Die Grenze zwischen der vom Wirbelbett gebildeten mittleren Zone 35 und der obersten einen Freiraum bildenden Zone 36, dem sogenannten Freeboard, ist weniger scharf als bei den beiden unteren Zonen. Im Freeboard findet eine Beruhigung des Gasraums statt, wodurch verhindert wird, daß Erzteilchen aus dem Wirbelschichtreaktor 30 ausgetragen werden. In der untersten Zone 34 unterhalb des Verteilerbodens 37 ist ein Brenner 38 angeordnet, zu dem eine nicht dargestellte Sauerstoff- und/oder Luftleitung sowie eine Brenngasleitung führen. Die heißen Verbrennungsgase führen dem in den

Wirbelschichtreaktor 30 strömenden Reduktionsgas Wärme zu bzw. führen zu Autoreforming-Reaktionen.

Bei der in Fig. 5 dargestellten Ausführungsform ist der Brenner 38 in der mittleren Zone 35, im Wirbelbett, angeordnet. Diese Ausführungsform ist dann vorteilhaft, wenn das Reduktionsgas besonders staubbeladen ist, da hierbei keine Gefahr besteht, daß der Verteilerboden 37 durch anschmelzenden Staub verlegt wird.

Fig. 6 zeigt eine bevorzugte Ausführungsform, bei welcher der Brenner 38 im Freeboard 36 angeordnet ist. Hierbei erfolgt die Wärmeübertragung mittels Strahlung und/oder Konvektion durch aus dem Wirbelbett ausgetragene Partikel, die dann wieder in das Wirbelbett eingetragen werden, z.B. durch Gravitation oder mittels eines Zyklons.

Die Erfindung beschränkt sich nicht auf die in der Zeichnung dargestellten Ausführungsbeispiele, sondern kann in verschiedener Hinsicht modifiziert werden. Beispielsweise ist es möglich, die Anzahl der Wirbelschichtreaktoren je nach den Erfordernissen zu wählen. Ebenso kann das Reduktionsgas nach verschiedenen bekannten Methoden erzeugt werden.

## Patentansprüche:

1. Verfahren zur Direktreduktion von teilchenförmigen oxidhaltigen Erzen, insbesondere von eisenoxidhaltigem Material, im Wirbelschichtverfahren bei einem Druck  $> 5$  bar, wobei das Erz mit Hilfe eines aus Erdgas erzeugten Reduktionsgases in einem als Vorwärmstufe (7) ausgebildeten Wirbelschichtreaktor (1) erhitzt, gegebenenfalls auch vorreduziert wird, anschließend in mindestens einem als Reduktionsstufe (8,9) ausgebildeten Wirbelschichtreaktor (2,3) zu Eisenschwamm reduziert wird und das Reduktionsgas über eine Reduktionsgasleitung (15) in Gegenrichtung des von Stufe zu Stufe geleiteten zu reduzierenden Materials von der Reduktionsstufe (8,9) zur Vorwärmstufe (7) geleitet wird, als Topgas abgezogen und nach Reinigung in die Reduktionsstufe (8, 9) rückgeführt wird, dadurch gekennzeichnet, daß dem der Reduktionsstufe (8, 9) und/oder Vorwärmstufe (7) zugeführten Reduktionsgas Wärme zugeführt wird, und zwar durch Verbrennung eines externen Brenngases, insbesondere Erdgas, zusammen mit Sauerstoff und/oder Luft.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Brenngas in einer Brennkammer (15a) verbrannt wird, wobei die Brennkammer (15a) direkt von Reduktionsgas, das von einer Wirbelschicht-Reduktionsstufe (8, 9, 10) in die in Richtung des Gasflusses nachgeschaltete Wirbelschicht-Reduktionsstufe (8, 9) bzw. -Vorwärmstufe (7) strömt, geflutet wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Brenngas in einer von der Reduktionsgasleitung (15) separaten Brennkammer (28) verbrannt wird und das hierbei gebildete Verbrennungsgas anschließend in die Reduktionsgasleitung (15) strömen gelassen wird.
4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Verbrennungsgas mit dem Reduktionsgas in einer Mischkammer (29) gemischt wird.
5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Mischkammer (29) zwecks Beeinflussens der Reduktionsgaszusammensetzung noch ein weiterer Stoff, wie Erdgas oder andere Kohlenwasserstoffe, zugeführt wird.
6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Brenngas in einem Brenner (38) innerhalb eines der Direktreduktion des oxidhaltigen Erzes dienenden Wirbelschicht-Reaktors (30), und zwar entweder unterhalb des Wirbelbetts (35), in Höhe des Wirbelbetts (35) oder oberhalb des Wirbelbetts (35), verbrannt wird. (Fig. 4 bis 6)

7. Anlage zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 6, mit mindestens zwei in Serie hintereinandergeschalteten Wirbelschichtreaktoren zur Direktreduktion von teilchenförmigen oxidhaltigen Erzen mittels eines aus Erdgas erzeugten CO- und H<sub>2</sub>-haltigen Reduktionsgases, mit einer Reduktionsgas-Zuleitung (23) zu dem in Fließrichtung des eisenoxidhaltigen Materials gesehenen letzten Wirbelschichtreaktor (10), einer Topgas-Ableitung (16) aus dem in Fließrichtung des oxidhaltigen Materials gesehenen ersten Wirbelschichtreaktor (1), welche leitungsmäßig mit der Reduktionsgas-Zuleitung (23) in Verbindung steht, und mit einer zur Führung des Reduktionsgases von einem Wirbelschichtreaktor in den diesem vorgeschalteten Wirbelschichtreaktor vorgesehenen Reduktionsgasleitung (15), dadurch gekennzeichnet, daß die Anlage leitungsmäßig mit mindestens einem Brenner (26,38) zur Verbrennung eines externen Brenngases, insbesondere Erdgas, zusammen mit Sauerstoff und/oder Luft verbunden ist.
8. Anlage nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Brenner (26) eine Brennkammer (15a) aufweist, die direkt in der Reduktionsgasleitung (15) vorgesehen ist und vorzugsweise als eine im Durchmesser erweiterte Stelle der Reduktionsgasleitung (15) ausgebildet ist. (Fig. 1)
9. Anlage nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Brenner (26) eine Brennkammer (28) aufweist, die leitungsmäßig mit der Reduktionsgasleitung (15) verbunden ist. (Fig. 2)
10. Anlage nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß an der Einmündung der von der Brennkammer (28) in die Reduktionsgasleitung (15) führenden Leitung eine Mischkammer (29) vorgesehen ist. (Fig. 3)
11. Anlage nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Brenner (38) in einem Wirbelschicht-Reaktor (30) angeordnet ist. (Fig. 4 bis 6)
12. Anlage nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Brenner (38) unterhalb des Wirbelbetts (35) angeordnet ist. (Fig. 4)
13. Anlage nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Brenner (38) in Höhe des Wirbelbetts (35) angeordnet ist. (Fig. 5)
14. Anlage nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Brenner (38) oberhalb des Wirbelbetts (35) angeordnet ist. (Fig. 6)

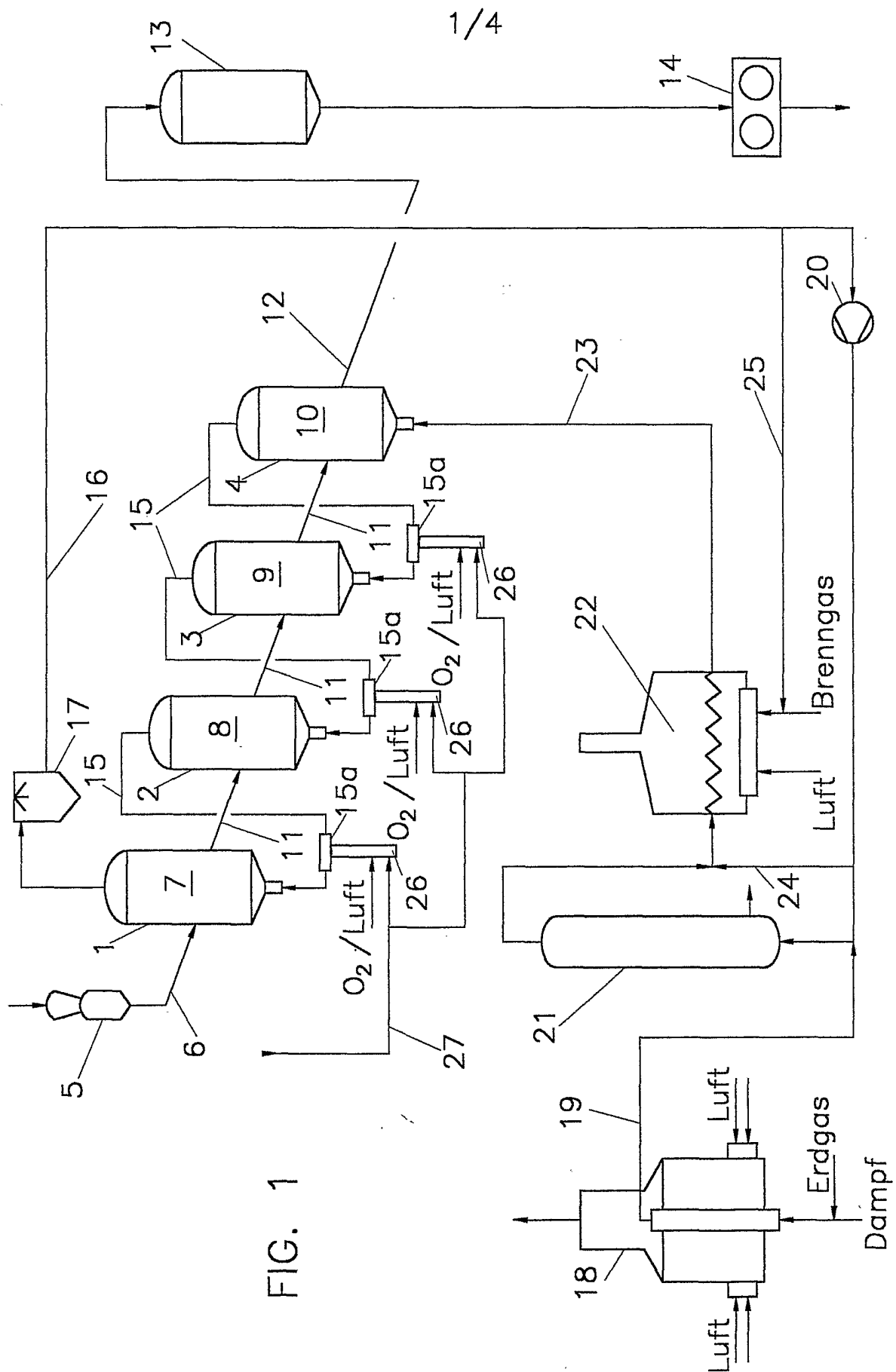
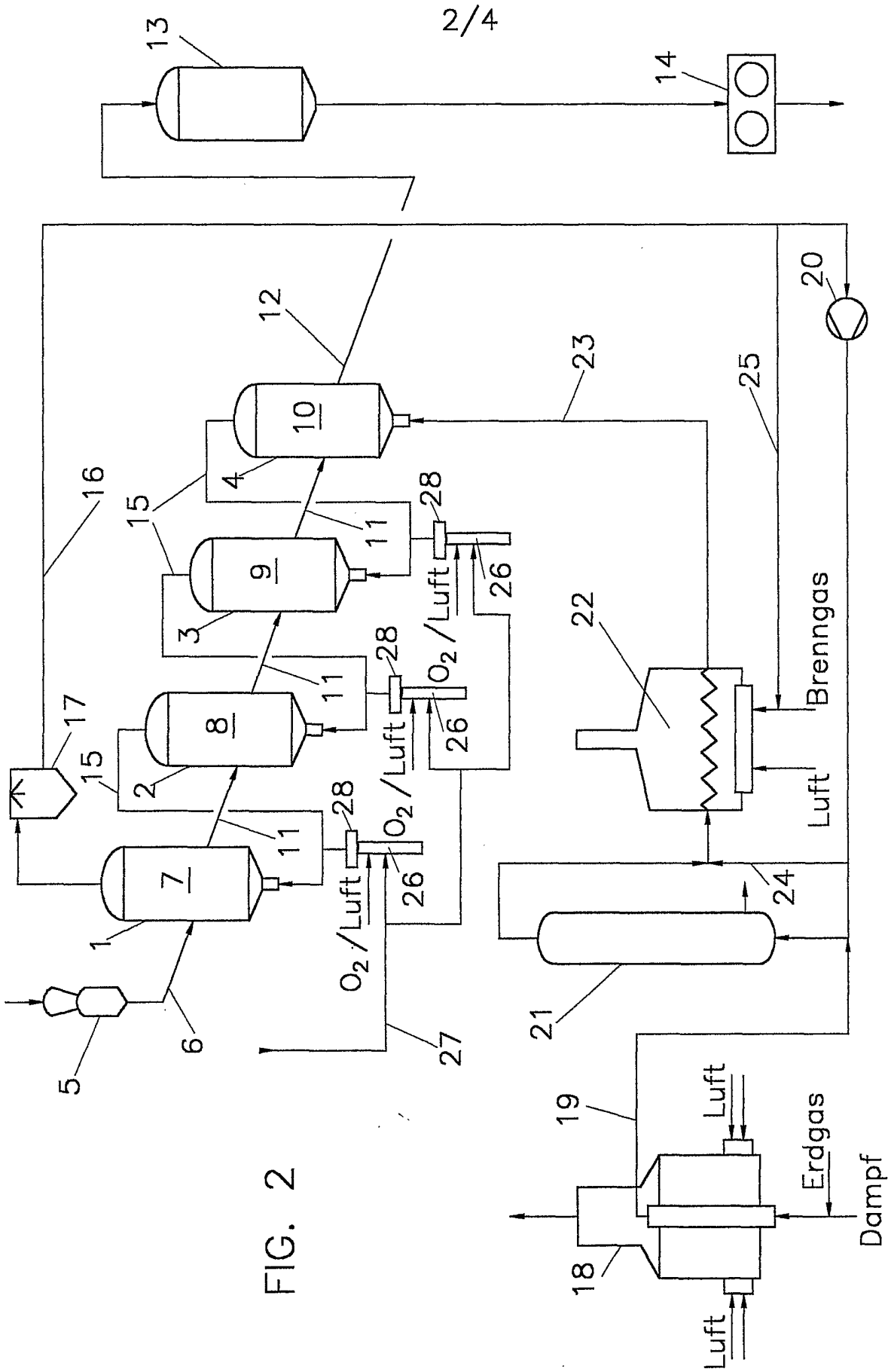
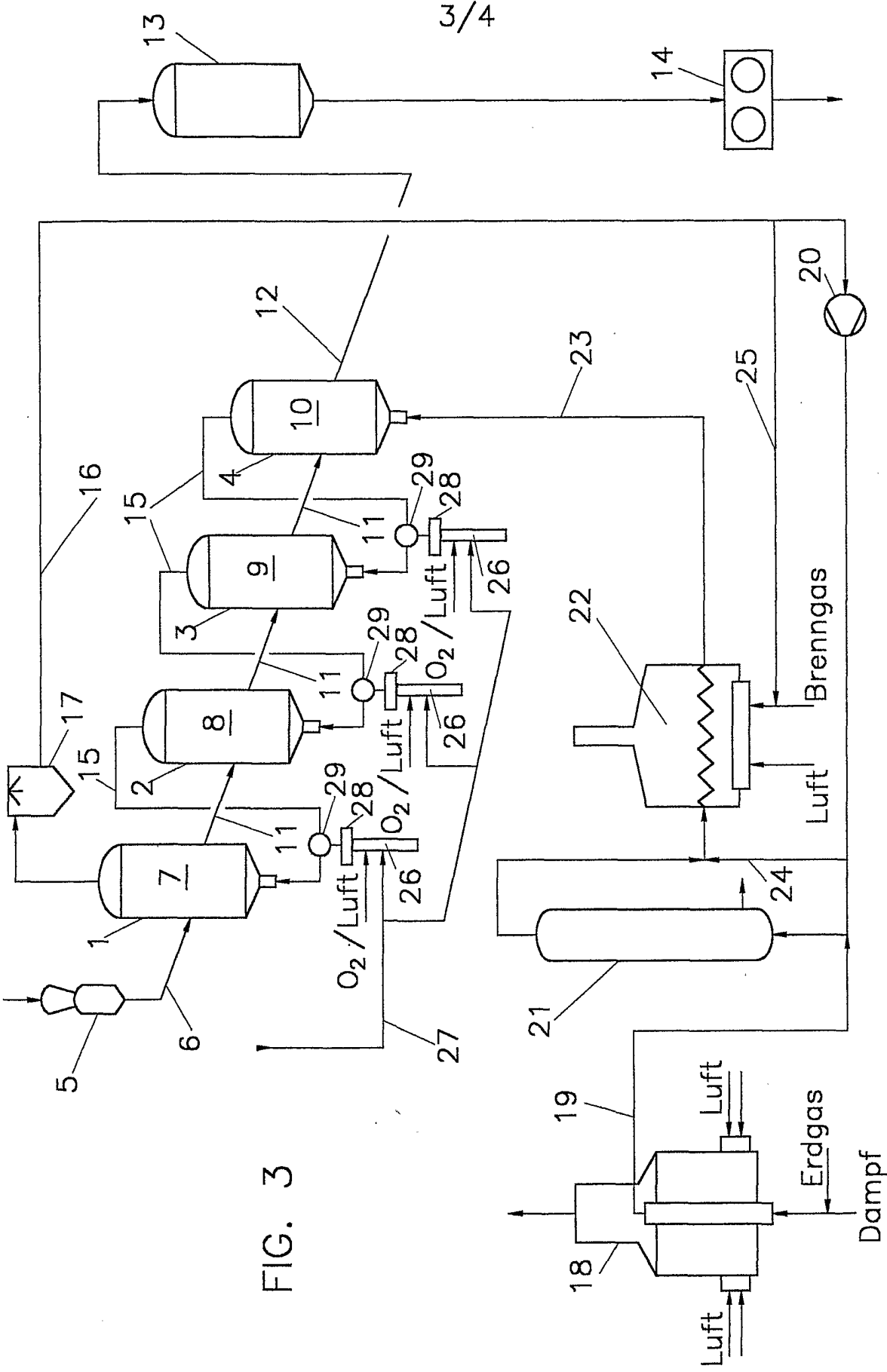
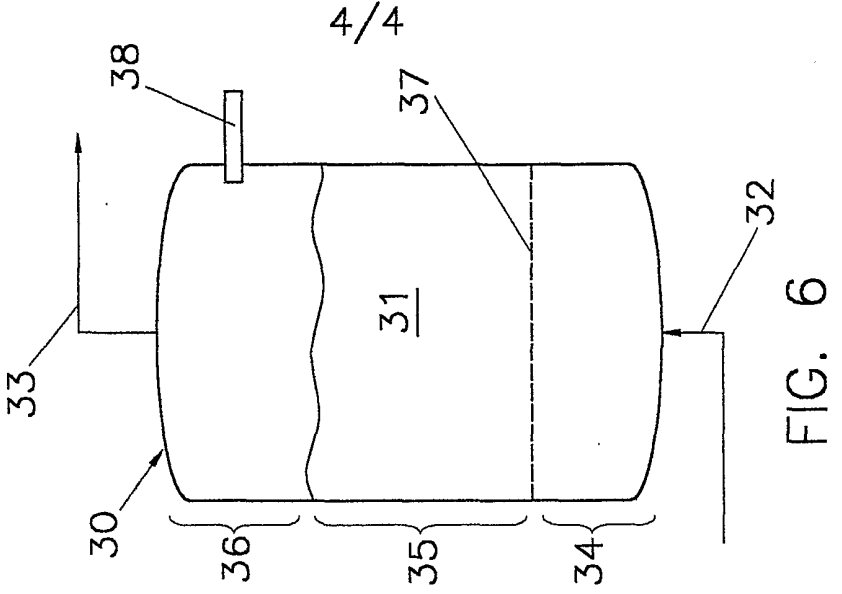
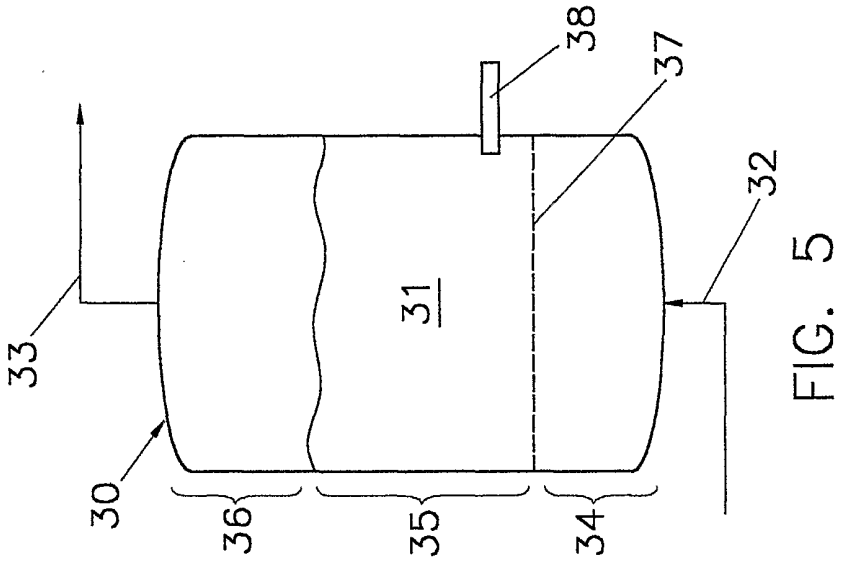
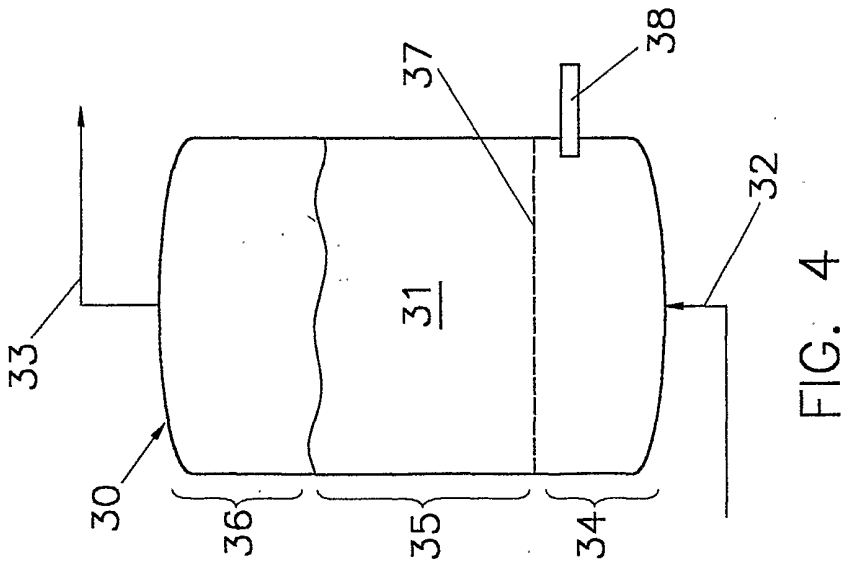


FIG. 1







International Application No  
PCT/AT 01/00208

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

TPC 7      C21B      B01J      F23C      F27B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal

### C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
|------------|------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|

|   |                                                                                                                                                                                                                          |         |
|---|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------|
| X | US 5 545 251 A (KNOP KLAUS)<br>13 August 1996 (1996-08-13)<br>abstract<br>column 1, line 5 - line 9<br>column 3, line 42 -column 4, line 24<br>column 4, line 57 -column 5, line 41<br>claims 1-5,30-33; figure 1<br>--- | 1,7     |
| A | AT 402 937 B (VOEST ALPINE IND ANLAGEN<br>;BRIFER INT LTD (BB))<br>25 September 1997 (1997-09-25)<br>cited in the application<br>page 4, line 7 - line 64<br>figure<br>---                                               | 1,2,7,8 |
| A | WO 81 02057 A (WILKINSON R ;PYRECON PTY<br>LTD (AU)) 23 July 1981 (1981-07-23)<br>the whole document                                                                                                                     | 6,11    |

— / —

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

**Y** Patent family members are listed in annex.

<sup>a</sup> Special categories of cited documents :

\*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

\*E' earlier document but published on or after the international filing date

\*L document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

\*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

\*T\* later document published 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

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

\*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

\*& document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

19 September 2001

Date of mailing of the international search report

27/09/2001

Name and mailing address of the ISA  
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

Authorized officer \_\_\_\_\_

Ceulemans, J

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/AT 01/00208

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category ° | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                             | Relevant to claim No. |
|------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A          | US 3 160 499 A (GARRETT JR LUTHER W ET AL)<br>8 December 1964 (1964-12-08)<br>the whole document<br>----                                       | 1,2,7,8               |
| P,A        | WO 01 31069 A (MILIONIS KONSTANTIN<br>;ROSSMANN GOTTFRIED (AT); VOEST ALPINE IND<br>ANL) 3 May 2001 (2001-05-03)<br>the whole document<br>---- | 1,7                   |
| E          | DE 100 30 550 A (FEHB GMBH STENDAL)<br>2 August 2001 (2001-08-02)<br>column 4, line 42 -column 5, line 1;<br>figure<br>-----                   | 3,9                   |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/AT 01/00208

| Patent document<br>cited in search report |   | Publication<br>date | Patent family<br>member(s) | Publication<br>date |
|-------------------------------------------|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| US 5545251                                | A | 13-08-1996          | DE 4326562 A1              | 09-02-1995          |
|                                           |   |                     | CN 1109102 A ,B            | 27-09-1995          |
|                                           |   |                     | JP 2964444 B2              | 18-10-1999          |
|                                           |   |                     | JP 7150211 A               | 13-06-1995          |
| AT 402937                                 | B | 25-09-1997          | AT 106692 A                | 15-02-1997          |
|                                           |   |                     | AU 3859493 A               | 25-11-1993          |
|                                           |   |                     | BR 9302014 A               | 30-11-1993          |
|                                           |   |                     | CA 2096805 A1              | 23-11-1993          |
|                                           |   |                     | DE 59309667 D1             | 05-08-1999          |
|                                           |   |                     | EG 20233 A                 | 31-05-1998          |
|                                           |   |                     | EP 0571358 A1              | 24-11-1993          |
|                                           |   |                     | JP 2768888 B2              | 25-06-1998          |
|                                           |   |                     | JP 6081019 A               | 22-03-1994          |
|                                           |   |                     | KR 9608723 B1              | 29-06-1996          |
|                                           |   |                     | RU 2078143 C1              | 27-04-1997          |
|                                           |   |                     | US 5439504 A               | 08-08-1995          |
|                                           |   |                     | ZA 9303453 A               | 15-06-1994          |
| WO 8102057                                | A | 23-07-1981          | WO 8102057 A1              | 23-07-1981          |
|                                           |   |                     | EP 0044316 A1              | 27-01-1982          |
|                                           |   |                     | JP 56501894 T              | 24-12-1981          |
|                                           |   |                     | ZA 8100308 A               | 24-02-1982          |
| US 3160499                                | A | 08-12-1964          | GB 989548 A                | 22-04-1965          |
| WO 0131069                                | A | 03-05-2001          | AT 407879 B                | 25-07-2001          |
|                                           |   |                     | AT 181699 A                | 15-11-2000          |
|                                           |   |                     | AU 1021301 A               | 08-05-2001          |
|                                           |   |                     | WO 0131069 A1              | 03-05-2001          |
| DE 10030550                               | A | 02-08-2001          | DE 10030550 A1             | 02-08-2001          |

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C21B13/00 C21B13/14

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C21B B01J F23C F27B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile                                                                                                                                              | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| X          | US 5 545 251 A (KNOP KLAUS)<br>13. August 1996 (1996-08-13)<br>Zusammenfassung<br>Spalte 1, Zeile 5 - Zeile 9<br>Spalte 3, Zeile 42 - Spalte 4, Zeile 24<br>Spalte 4, Zeile 57 - Spalte 5, Zeile 41<br>Ansprüche 1-5, 30-33; Abbildung 1<br>--- | 1,7                |
| A          | AT 402 937 B (VOEST ALPINE IND ANLAGEN<br>;BRIFER INT LTD (BB))<br>25. September 1997 (1997-09-25)<br>in der Anmeldung erwähnt<br>Seite 4, Zeile 7 - Zeile 64<br>Abbildung<br>---                                                               | 1,2,7,8            |
| A          | WO 81 02057 A (WILKINSON R ;PYRECON PTY<br>LTD (AU)) 23. Juli 1981 (1981-07-23)<br>das ganze Dokument<br>---                                                                                                                                    | 6,11               |
|            | ---<br>-/-                                                                                                                                                                                                                                      |                    |

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

19. September 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

27/09/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Ceulemans, J

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile                                             | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| A          | US 3 160 499 A (GARRETT JR LUTHER W ET AL)<br>8. Dezember 1964 (1964-12-08)<br>das ganze Dokument<br>---                                       | 1,2,7,8            |
| P,A        | WO 01 31069 A (MILIONIS KONSTANTIN<br>;ROSSMANN GOTTFRIED (AT); VOEST ALPINE IND<br>ANL) 3. Mai 2001 (2001-05-03)<br>das ganze Dokument<br>--- | 1,7                |
| E          | DE 100 30 550 A (FEHB GMBH STENDAL)<br>2. August 2001 (2001-08-02)<br>Spalte 4, Zeile 42 -Spalte 5, Zeile 1;<br>Abbildung<br>-----             | 3,9                |

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung

in, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/AT 01/00208

| Im Recherchenbericht<br>angeführtes Patentdokument |   | Datum der<br>Veröffentlichung | Mitglied(er) der<br>Patentfamilie | Datum der<br>Veröffentlichung |
|----------------------------------------------------|---|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| US 5545251                                         | A | 13-08-1996                    | DE 4326562 A1                     | 09-02-1995                    |
|                                                    |   |                               | CN 1109102 A ,B                   | 27-09-1995                    |
|                                                    |   |                               | JP 2964444 B2                     | 18-10-1999                    |
|                                                    |   |                               | JP 7150211 A                      | 13-06-1995                    |
| AT 402937                                          | B | 25-09-1997                    | AT 106692 A                       | 15-02-1997                    |
|                                                    |   |                               | AU 3859493 A                      | 25-11-1993                    |
|                                                    |   |                               | BR 9302014 A                      | 30-11-1993                    |
|                                                    |   |                               | CA 2096805 A1                     | 23-11-1993                    |
|                                                    |   |                               | DE 59309667 D1                    | 05-08-1999                    |
|                                                    |   |                               | EG 20233 A                        | 31-05-1998                    |
|                                                    |   |                               | EP 0571358 A1                     | 24-11-1993                    |
|                                                    |   |                               | JP 2768888 B2                     | 25-06-1998                    |
|                                                    |   |                               | JP 6081019 A                      | 22-03-1994                    |
|                                                    |   |                               | KR 9608723 B1                     | 29-06-1996                    |
|                                                    |   |                               | RU 2078143 C1                     | 27-04-1997                    |
|                                                    |   |                               | US 5439504 A                      | 08-08-1995                    |
|                                                    |   |                               | ZA 9303453 A                      | 15-06-1994                    |
| WO 8102057                                         | A | 23-07-1981                    | WO 8102057 A1                     | 23-07-1981                    |
|                                                    |   |                               | EP 0044316 A1                     | 27-01-1982                    |
|                                                    |   |                               | JP 56501894 T                     | 24-12-1981                    |
|                                                    |   |                               | ZA 8100308 A                      | 24-02-1982                    |
| US 3160499                                         | A | 08-12-1964                    | GB 989548 A                       | 22-04-1965                    |
| WO 0131069                                         | A | 03-05-2001                    | AT 407879 B                       | 25-07-2001                    |
|                                                    |   |                               | AT 181699 A                       | 15-11-2000                    |
|                                                    |   |                               | AU 1021301 A                      | 08-05-2001                    |
|                                                    |   |                               | WO 0131069 A1                     | 03-05-2001                    |
| DE 10030550                                        | A | 02-08-2001                    | DE 10030550 A1                    | 02-08-2001                    |