

РОССИЙСКАЯ ФЕДЕРАЦИЯ

(19) RU (11) **2 675 561** (13) C1ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(51) МПК

C01B 3/34 (2006.01)

(52) СПК

C01B 3/34 (2018.08)

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

Статус: действует (последнее изменение статуса: 27.12.2018)
Пошлина: учтена за 3 год с 01.07.2019 по 30.06.2020(21)(22) Заявка: **2017123236**, 30.06.2017(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
30.06.2017Дата регистрации:
19.12.2018

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: **30.06.2017**(45) Опубликовано: **19.12.2018** Бюл. № **35**(56) Список документов, цитированных в отчете о
поиске: RU 2320531 C2, 27.03.2008. RU
2374173 C1, 27.11.2009. RU 2574464 C1,
10.02.2016. WO 97/22547 A1, 26.06.1997.

Адрес для переписки:

**142432, Московская обл., г. Черноголовка,
пр-кт Академика Семенова, 1, ФГБУН
Институт проблем химической физики
Российской Академии наук (ИПХФ РАН),
директору ИПХФ РАН, академику С.М.
Алдошину**

(72) Автор(ы):

**Арутюнов Владимир Сергеевич (RU),
Савченко Валерий Иванович (RU),
Никитин Алексей Витальевич (RU),
Седов Игорь Владимирович (RU),
Озерский Алексей Валериевич (RU)**

(73) Патентообладатель(и):

**Федеральное государственное бюджетное
учреждение науки Институт проблем
химической физики Российской Академии
наук (ИПХФ РАН) (RU)**

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ СИНТЕЗ-ГАЗА

(57) Реферат:

Изобретение относится к способу получения синтез-газа, который может быть использован в химической промышленности для производства метанола, диметилового эфира, синтетических жидких углеводородов и других продуктов. Способ включает горение смеси углеводородного сырья с окислителем с коэффициентом избытка окислителя менее 1, осуществляемое внутри полости, полностью или частично образованной объемной матрицей, проницаемой для смеси газа с окислителем, при этом в реакционную смесь предварительно примешивают водяной пар, нагретый до температуры 400-600 К, в количестве от 30 до 100 об.% от подаваемого углеводородного сырья. Изобретение обеспечивает более глубокую конверсию исходного углеводородного сырья, стабильный температурный режим конверсии и низкое сажеобразование. 2 пр.

Изобретение относится к процессу получения синтез-газа путем конверсии углеводородов, а именно к процессам окислительной конверсии. Полученный синтез-газ может быть использован в химической промышленности для производства метанола, диметилового эфира, синтетических жидких углеводородов и других продуктов. Полученный водород после его выделения из смеси газов может быть использован для питания топливных элементов транспортных средств и автономных источников электроснабжения, а также в качестве сырья и восстановителя в

химической, нефтехимической, металлургической и других отраслях промышленности.

Основными промышленными способами получения синтез-газа в настоящее время являются паровой, парокислородный и автотермический риформинг природного газа или угля. В случае необходимости промышленного получения водорода его выделяют различными методами из полученного синтез-газа (смеси H_2 и CO). Дополнительное количество водорода получают, конвертируя CO в присутствии водяного пара в водород и CO_2 .

Однако эти способы требуют применения дорогостоящих катализаторов и отличаются высокой сложностью и громоздкостью оборудования, большими удельными капитальными затратами, что делает их малоприменимыми для создания небольших автономных источников синтез-газа и водорода.

Из уровня техники [патент RU 2320531 C2, опубл. 27.03.2008] известен способ получения синтез-газа, осуществляемый в проточном двухкамерном реакторе в турбулентном режиме при горении смеси углеводородного сырья и окислителя. Дополнительно к указанной смеси в проточный реактор подают перегретый водяной пар в количестве 5-20 мас. % по отношению к массе поданного углерода в виде углеводородного сырья. Производят воспламенение трехкомпонентной смеси в камере сгорания струей горячего газа из внешнего источника, давление в котором при воспламенении превышает давление в первой камере. Продукты сгорания из первой камеры реактора через сопло с критическим перепадом давления направляют во вторую камеру и продолжают процесс горения до содержания кислорода в продуктах горения не более 0,3 об. %.

К недостатку такого способа можно отнести его низкую эффективность, которая связана с высоким расходом окислителя и невозможностью конверсии углеводородных смесей с высоким содержанием негорючих компонентов, имеющих низкую теплотворную способность.

Также из уровня техники [патент RU 2374173 C1, опубл. 27.11.2009] известен способ получения синтез-газа при горении смеси углеводородного сырья с окислителем с коэффициентом избытка окислителя менее 1 при температуре менее 1400 К внутри одной или нескольких полостей, полностью или частично образованных материалом, проницаемым для смеси углеводородного сырья с окислителем. Причем ввод смеси углеводородного сырья с окислителем производят через проницаемое дно полости/полостей, или через проницаемые стенки полости/полостей, или через проницаемые стенки и дно полости/полостей, а вывод продуктов горения осуществляют через верхнее сечение полости/полостей.

Недостатком данного способа является его недостаточная эффективность, связанная с большой потерей тепла с отходящими газами и, как следствие, невозможностью конверсии углеводородных смесей с высоким содержанием негорючих компонентов, имеющих низкую теплотворную способность.

Известен способ получения синтез-газа при горении смеси углеводородного сырья с окислителем с коэффициентом избытка окислителя менее 1 при температуре менее 1400 К внутри полости, полностью или частично образованной объемной матрицей, проницаемой для смеси газа с окислителем. Ввод смеси углеводородного сырья с окислителем производят через проницаемое дно полости, или через проницаемые стенки полости, или через проницаемые стенки и дно полости, а вывод продуктов горения - через верхнее сечение полости. Смесь углеводородного сырья с окислителем или один из этих газов в полном объеме или частично перед вводом в полость нагревают за счет тепла, выделяемого продуктами горения. Матрицу дополнительно подогревают тепловым излучением, отраженным от проницаемого для продуктов горения экрана, размещенного в полости матрицы [патент RU 2374173 C1, опубл. 27.11.2009]. Данное техническое решение выбрано за прототип.

Недостатком прототипа является низкая конверсия исходного углеводородного сырья, нестабильность процесса конверсии, сопровождаемого большими колебаниями температуры рабочей поверхности матрицы и, соответственно, состава получаемого синтез-газа, что также приводит к повышенному сажеобразованию и необходимости мер по очистке получаемого синтез-газа от сажи.

Задачей предлагаемого изобретения является разработка такого способа получения синтез-газа, при котором повысится конверсия исходного углеводородного сырья и будет достигаться стабильный температурный режим конверсии и низкое сажеобразование.

Технический результат, достигаемый настоящим изобретением, заключается в достижении более глубокой конверсии исходного углеводородного сырья, более

стабильного температурного режима конверсии углеводородного сырья и снижении сажеобразования по сравнению с прототипом.

Указанный технический результат достигается способом получения синтез-газа при горении смеси углеводородного сырья с окислителем с коэффициентом избытка окислителя менее 1, осуществляемым внутри полости, полностью или частично образованной объемной матрицей, проницаемой для смеси газа с окислителем, согласно которому для стабилизации процесса в реакционную смесь предварительно примешивают водяной пар, нагретый до температуры 400-600 К в количестве до 100 об. % от подаваемого углеводородного сырья.

Настоящее изобретение иллюстрируется следующим примером осуществления предлагаемого способа.

Пример 1

Матричную конверсию метана кислородом проводили в конверторе цилиндрической формы, внутри полости, образованной двумя матричными блоками. Исходная газовая смесь, в том числе и водяной пар, подавалась в торцы конвертора и нагревалась в камерах предварительного подогрева, затем через апертурное кольцо диаметром 150 мм направлялась на матрицы толщиной 8 мм и диаметром 250 мм, выполненные из прессованной фехралево проволоки. Напротив каждой матрицы был установлен металлический экран с отверстием в центре диаметром 30 мм для выхода конвертированного газа.

Первоначально метаноокислородную смесь (метан 56 об. %, кислород 44 об. %), с расходом 8 м.куб./час подвергали матричной конверсии в отсутствие подачи водяного пара. Колебания температуры на рабочей стороне матрицы составляли ± 150 К. Температура обратной стороны матрицы (сторона на которой не протекает горение) колебалась от 600 до 700 К. Процесс проводили в течение 1 часа, при этом периодически горение начинало протекать на входной стороне матрицы. В результате конверсии получали газовую смесь в количестве 10,4 м.куб./час и сажу в количестве 273 г/час. После осушки газовая смесь содержит (% объемные): 52% водорода, 30% монооксида углерода, 5,3% диоксида углерода и 12,7% метана. Конверсия метана составляет 77,3%.

К исходной метаноокислородной смеси добавили водяной пар нагретый до температуры 400 ± 10 К, в количестве 67 об. % от подаваемого углеводородного сырья (объемное соотношение метан : водяной пар 1,5:1). Колебания температуры на рабочей стороне матрицы не превышали ± 50 К. Температура обратной стороны матрицы (сторона на которой не протекает горение) составляла 550 ± 10 К, горения на ее поверхности не наблюдалось. Процесс проводили в течение 5 часов.

В результате конверсии получали газовую смесь в количестве 11,2 м.куб./час и сажу в количестве 119 г/час. После осушки газовая смесь содержала (% объемные): 56% водорода, 33% монооксида углерода, 6,7% диоксида углерода и 4,3% метана. Конверсия метана составляет 92,3%.

Пример 2

Матричную конверсию метана кислородом проводили в конверторе, описанном в примере 1.

К исходной метаноокислородной смеси добавили водяной пар нагретый до температуры 600 ± 10 К, в количестве 100 об. % от подаваемого углеводородного сырья (объемное соотношение метан : водяной пар 1:1). Колебания температуры на рабочей стороне матрицы не превышали ± 50 К. Температура обратной стороны матрицы (сторона на которой не протекает горение) составляла 520 ± 10 К, горения на ее поверхности не наблюдалось. Процесс проводили в течение 3 часов.

В результате конверсии получали газовую смесь в количестве 10,9 м.куб./час и сажу в количестве 116 г/час. После осушки газовая смесь содержала (% объемные): 55% водорода, 32% монооксида углерода, 7,5% диоксида углерода и 5,5% метана. Конверсия метана составляет 90,1%.

Таким образом, заявленный способ обеспечивает более высокую конверсию исходного углеводородного сырья, достижение существенно более стабильного температурного режима конверсии углеводородного сырья и снижение сажеобразования по сравнению с прототипом.

Формула изобретения

Способ получения синтез-газа при горении смеси углеводородного сырья с окислителем с коэффициентом избытка окислителя менее 1, осуществляемый внутри полости, полностью или частично образованной объемной матрицей, проницаемой для смеси газа с окислителем, отличающийся тем, что для стабилизации процесса в реакционную смесь предварительно примешивают водяной пар, нагретый до

температуры 400-600 К, в количестве от 30 до 100 об.% от подаваемого углеводородного сырья.