



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(52) СПК
C01B 3/34 (2018.08)

(21)(22) Заявка: 2017123236, 30.06.2017

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
30.06.2017

Дата регистрации:
19.12.2018

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 30.06.2017

(45) Опубликовано: 19.12.2018 Бюл. № 35

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)

(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.

(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.

RU 2 675 561 C1

RU 2 675 561 C1



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(52) CPC
C01B 3/34 (2018.08)

(21)(22) Application: **2017123236, 30.06.2017**

(24) Effective date for property rights:
30.06.2017

Registration date:
19.12.2018

Priority:

(22) Date of filing: **30.06.2017**

(45) Date of publication: **19.12.2018 Bull. № 35**

Mail address:

**142432, Moskovskaya obl., g. Chernogolovka, pr-
kt Akademika Semenova, 1, FGBUN Institut
problem khimicheskoy fiziki Rossijskoj Akademii
nauk (IPKHF RAN), direktoru IPKHF RAN,
akademiku S.M. Aldoshinu**

(72) Inventor(s):

**Arutyunov Vladimir Sergeevich (RU),
Savchenko Valerij Ivanovich (RU),
Nikitin Aleksej Vitalevich (RU),
Sedov Igor Vladimirovich (RU),
Ozerskij Aleksej Valerievich (RU)**

(73) Proprietor(s):

**Federalnoe gosudarstvennoe byudzhethnoe
uchrezhdenie nauki Institut problem
khimicheskoy fiziki Rossijskoj Akademii nauk
(IPKHF RAN) (RU)**

(54) **SYNTHETIC GAS PRODUCTION METHOD**

(57) Abstract:

FIELD: chemical industry.

SUBSTANCE: invention relates to a method for producing synthesis gas, which can be used in the chemical industry for the production of methanol, dimethyl ether, synthetic liquid hydrocarbons and other products. Method involves burning a mixture of hydrocarbons with an oxidizing agent with an oxidizer excess ratio of less than 1, carried out inside the cavity, fully or partially formed by the bulk matrix, permeable

to the gas mixture with the oxidant, while water vapor is pre-mixed into the reaction mixture, heated to a temperature of 400–600 K, in an amount of from 30 to 100 % by volume of the hydrocarbon feedstock.

EFFECT: invention provides a deeper conversion of the initial hydrocarbon feedstock, a stable temperature conversion regime and low soot formation.

1 cl, 2 ex

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.

5 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.

10 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 .

15 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.

20 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. %.

25 30 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.

35 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.

45 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 -
5 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
10 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
15 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
сажеобразования.

20 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
25 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
30 об. % от подаваемого углеводородного сырья.

Настоящее изобретение иллюстрируется следующим примером осуществления предлагаемого способа.

Пример 1

Матричную конверсию метана кислородом проводили в конверторе цилиндрической
35 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 фехральной проволоки. Напротив каждой матрицы был установлен
40 металлический экран с отверстием в центре диаметром 30 мм для выхода конвертированного газа.

Первоначально метанокислородную 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.
45 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.

(57) 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.