

KfK 3523  
März 1983

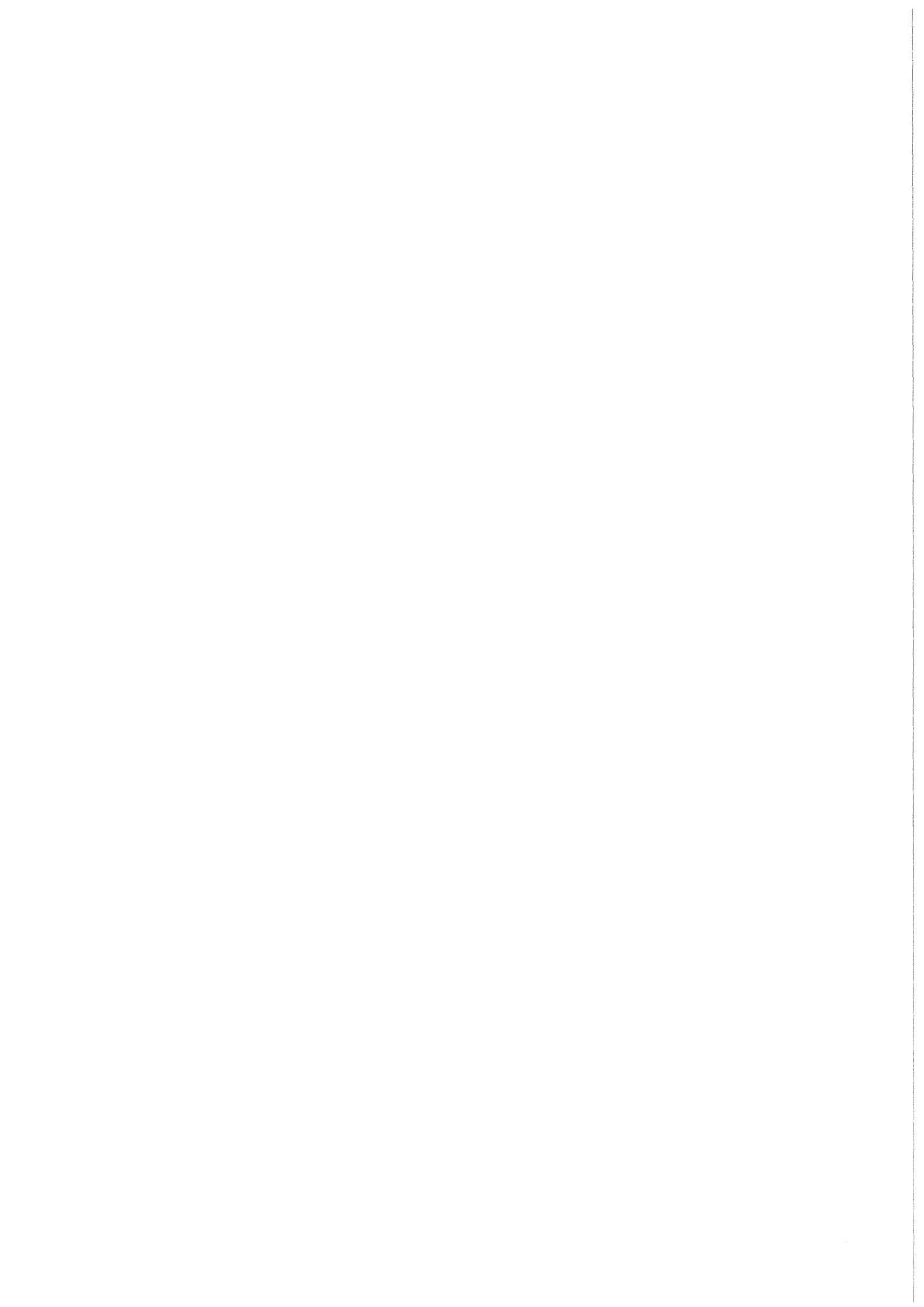
# **Folgen eines verstärkten Kohleeinsatzes in der Bundesrepublik Deutschland**

Studienleiter: R. Coenen  
Abteilung für Angewandte Systemanalyse

## **Materialienband I: Schadstoffemissionen bei der Kohleveredlung**

Autoren:  
H. Jüntgen, K.-H. van Heek, G. Hewing,  
J. Klein, U. Peters, H.-J. Schröter  
Bergbau-Forschung GmbH, Essen

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M   K A R L S R U H E

Abteilung für Angewandte Systemanalyse

KfK 3523

FOLGEN EINES VERSTÄRKTEN KOHLEEINSATZES IN DER  
BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

Studienleiter: R. Coenen

Materialienband I: Schadstoffemissionen bei der Kohleveredlung

Autoren:

H. Jüntgen, K.-H. van Heek, G. Hewing, J. Klein,  
U. Peters, H.-J. Schröter  
Bergbau-Forschung GmbH, Essen

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

# Folgen eines verstärkten Kohleeinsatzes in der Bundesrepublik Deutschland

## Schadstoffemissionen bei der Kohleveredlung

### Zusammenfassung

Der Bericht diskutiert zunächst die Einsatzpotentiale und zeitliche Erwartungen für die Markteinführung von Kohlevergasung und Kohlehydrierung. Die Grundkonzepte der Kohlevergasung und Hydrierung werden beschrieben, anschließend die Umweltrelevanz der Kohleveredlung diskutiert. Für gasförmige Emissionen werden Abschätzungen durchgeführt. Ein weiterer Abschnitt des Berichts beschäftigt sich mit der Abwasserproblematik und Reinigungstechnologien. Dem Bericht ist eine Kurzfassung vorangestellt.

# Consequences of an Expanded Use of Coal in the Federal Republic of Germany

## Pollutant Emissions from Coal Conversion

### Abstract

In this report, first the market potentials and the time horizon for market introduction of coal gasification and liquefaction are discussed. The basic concepts of coal gasification and liquefaction are described, followed by a discussion of the environmental impacts of coal conversion. For gaseous emissions, estimates are presented. A further section of this report deals with the problem of waste water treatment. The report is preceded by a summary version.

## Vorwort

Dieser Bericht entstand im Rahmen eines Unterauftrages zur Studie "Folgen eines verstärkten Kohleeinsatzes in der Bundesrepublik Deutschland", die mit finanzieller Unterstützung des Bundesministers für Forschung und Technologie von der Abteilung für Angewandte Systemanalyse des Kernforschungszentrums Karlsruhe durchgeführt wird.

In dieser Studie werden die technisch-ökonomischen, die ökologischen und die gesellschaftlichen Auswirkungen eines verstärkten Kohleeinsatzes zur Ölsubstitution in der Bundesrepublik Deutschland untersucht. Hierbei werden folgende drei Kohleeinsatzstrategien analysiert, die sich durch die Art der Kohleumwandlung unterscheiden:

Verheizungsstrategie: Einsatz von Kohle in Heizwerken und Heizkraftwerken zur Wärme- und Stromerzeugung

Verstromungsstrategie: Einsatz von Kohle in Großkraftwerken zur Stromerzeugung

Veredlungsstrategie: Einsatz von Kohle in Veredlungsanlagen zur Erzeugung von Kohleöl und Kohlegas.

Basis für die Analysen der Folgen dieser Kohleeinsatzstrategien sind technische Analysen zu den in den Strategien zum Einsatz vorgesehenen Kohleumwandlungsanlagen und Anlagen zur Nutzung der Kohleumwandlungsprodukte. Sie sollen technisch-ökonomische und umweltrelevante anlagenspezifische Kenndaten liefern.

Bei dem vorliegenden von der Bergbau-Forschung GmbH als Unterauftrag erstellten Bericht handelt es sich um eine derartige technische Analyse für Anlagen zur Kohleveredlung. Er stellt eine umfangreiche Materialsammlung zum technischen Entwicklungsstand ausgewählter Anlagen zur Kohlevergasung und Kohleverflüssigung dar. Weiterhin werden auch, soweit nach bisherigen Datenkenntnis möglich, die Emissionen der ausgewählten Modellanlagen abgeschätzt. Damit gibt die Analyse eine Grundlage für die Durchführung der strategiespezifischen Emissions- und Expositionsanalysen.

Da diese Analyse eine in sich geschlossene systematische Bestandsaufnahme darstellt, deren Ergebnisse insgesamt von Interesse sind, aber nur partiell in den Schlußbericht der Kohlestudie einfließen werden, wird sie als Materialienband zur Kohlestudie veröffentlicht.

Für die Betreuung des Unterauftrages (Aufgabenformulierung, Abstimmung etc.) war Herr Dr. Günther Halbritter (AFAS) verantwortlich.

Februar 1983

R. Coenen

## Inhaltsverzeichnis

	Kurzfassung	I
1.	Allgemeiner Überblick über den Entwicklungsstand und die voraussichtlichen Einsatzspektren der verschiedenen Verfahren zur Kohlevergasung und Kohlehydrierung	1
1.1.	Vergasung	1
1.1.1.	Grundlagen	1
1.1.2.	Heutige industrielle Anlagen	10
1.1.3.	Weiterentwicklung der konventionellen Vergasung	22
1.1.4.	Kohlevergasung mit Kernreaktorwärme	31
1.1.5.	Untertagevergasung von Kohle	35
1.2.	Kohlehydrierung	39
1.2.1.	Verfahrensgrundlagen	39
1.2.2.	Frühere industrielle Anwendung	43
1.2.3.	Projekte zur Weiterentwicklung der Hydrierverfahren	45
1.2.3.1.	Amerikanische Entwicklung	45
1.2.3.2.	Neue deutsche Technologie	53
1.3.	Einsatzbereiche und Potential der Kohleumwandlung	58
1.3.1.	Einsatzmöglichkeiten der verschiedenen Verfahren	58
1.3.2.	Vergleich der verschiedenen Prozeßwege	63
1.3.3.	Zeitbedarf bis zur industriellen Einführung	72
2.	Charakterisierung der entstehenden Schadstoffemissionen bei den jeweiligen Verfahrensschritten	76
2.1.	Transport, Lagerung und Aufbereitung der Kohle	76
2.2.	Umwandlung der Kohle (Vergasung, Hydrierung)	78
2.3.	Produktgasaufbereitung, Abgas- und Abwasserbehandlung	78
2.4.	Transport und Lagerung des Rückstandes	82
2.5.	Nebenanlagen	83
3.	Überblick über Rückhaltemöglichkeiten umweltrelevanter Stoffe	84
3.1.	Staubentfernung	85
3.2.	Reinigung von Rohgasen	86
3.3.	Abwasserbehandlung	90



	<u>Seite</u>
4. Grobabschätzung der Gesamtemissionen anhand von Beispielen	94
4.1. Abgase	94
4.2. Abwasser	101
4.3. Feststoffe	103
4.4. Folgerungen	104

Kurzfassung

- Inhalt:
1. Potential der Kohleveredlung
  2. Kohlevergasung
  3. Kohlehydrierung
  4. Umweltrelevanz der Kohleveredlung

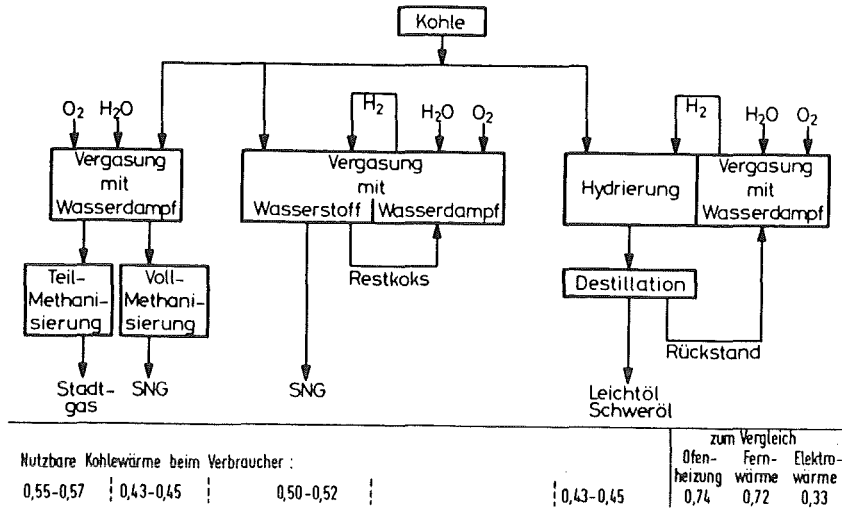
## 1. Potential der Kohleveredlung

Ziel der Kohlevergasung und -verflüssigung ist es, den festen Brennstoff Kohle in Sekundärenergieträger, Motorkraftstoffe und Chemierohstoffe umzuwandeln, die leicht zu handhaben sowie marktgerecht und wirtschaftlich sind. Die breite Anwendungspalette solcher Kohlefolge-Produkte läßt sich durch folgende Hauptanwendungsgebiete charakterisieren (Abb. 1):

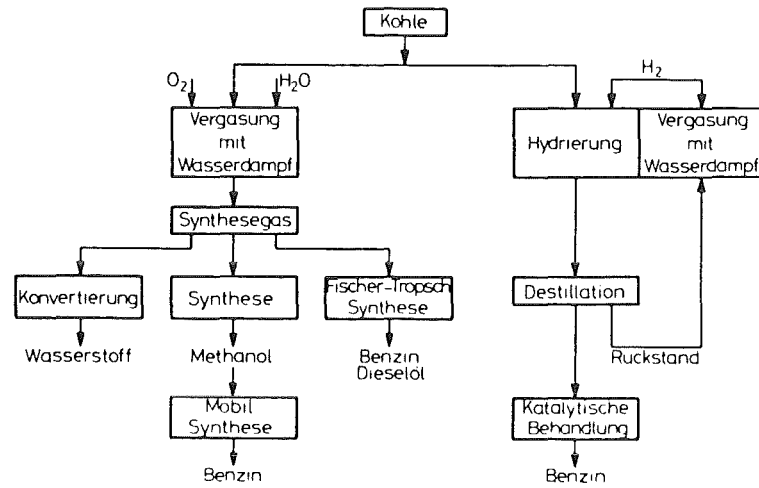
- Wärmeerzeugung in Industrie und Haushalt  
(Brenngas, Erdgasaustauschgas (SNG), Kohleöl)
- Verkehr  
(Gase, Motorkraftstoffe)
- Chemische Industrie  
(Chemierohstoffe)
- Kraftwerkstechnik und Stahlindustrie  
(Brenngas, Heizgas, Reduktionsgas).

Die verschiedenen Prozeßziele können auf unterschiedlichen Wegen erreicht werden. Für die Entscheidung, welcher der möglichen Prozeßwege der optimale ist, spielen zahlreiche Gesichtspunkte eine Rolle, die nur im konkreten Anwendungsfall gewertet und gegeneinander abgewogen werden können. Die wichtigsten Kriterien, anhand derer ein Vergleich der verschiedenen Prozeßwege ermöglicht wird, sind:

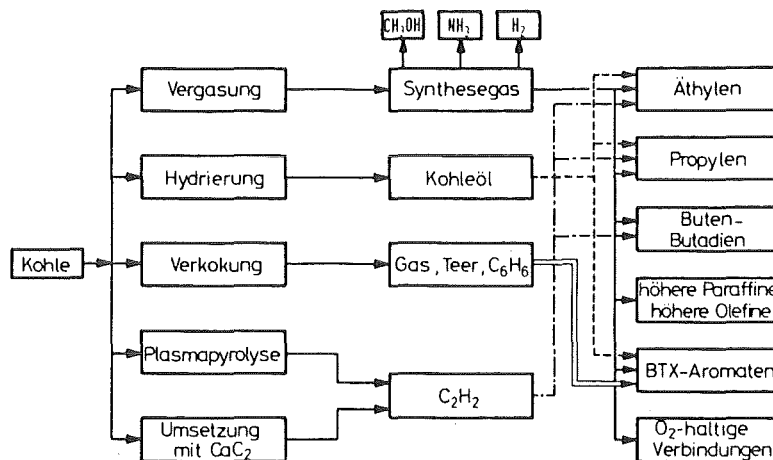
- Eignung und Verfügbarkeit der Kohlen
- Anforderungen an die Produkte
- Wirkungsgrad des Umwandlungsprozesses
- Wirtschaftlichkeit
- Umweltverträglichkeit
- Standortbedingungen
- Nutzung vorhandener Verbrauchsstrukturen.



Vergasung und Hydrierung von Kohle zur Erzeugung von Sekundärenergieträgern



Vergasung und Hydrierung von Kohle zur Erzeugung von Treibstoffen



Vergasung und Hydrierung von Kohle zur Erzeugung von Chemierohstoffen

Abb. 1: Hauptanwendungsgebiete der Kohleveredlung

Der Zeitpunkt der Markteinführung für Kohlevergasung und Hydrierung wird maßgeblich durch die Preisentwicklung für Rohöl, Erdgas und die einzusetzende Kohle bestimmt. Die Rohölpreise sind vor allem wegen der kaum zu beeinflussenden Entscheidungen der OPEC nur sehr schwer vorauszusehen. Im Falle des Erdgases kann davon ausgegangen werden, daß sein Preis an den des Mineralöls gebunden ist und angepaßt wird. Der Kohlepreis wird wesentlich durch die Lohnkosten im Bergbau bestimmt und steigt nach den Erfahrungen der letzten Jahre deutlich weniger als die Preise für Öl und Gas.

Die Preiserhöhungen der Rohstoffe wirken sich - bedingt durch die unterschiedlichen Einflußgrößen und -mechanismen - sehr unterschiedlich auf die hergestellten Produkte aus. Während sich die Steigerungen der Erdöl- und Erdgaspreise sehr stark beim Verbraucher bemerkbar machen, gehen bei der Kohleveredlung die Kohlepreissteigerungen nur etwa zur Hälfte in Preissteigerungen für Veredlungsprodukte ein. Die Ursache hierfür ist in der Kostenstruktur der Kohleveredlungsverfahren zu sehen, bei der rund 55 % des Produktpreises auf die Einsatzkohle, rund 35 % auf die Kapitalkosten und rund 10 % auf die Betriebskosten entfallen.

Aus diesen Gründen kann langfristig mit einer größeren Preisstabilität der Kohleveredlungsprodukte im Vergleich zu Erdöl und Erdgas gerechnet werden. Nach vorsichtigen Abschätzungen könnte danach die Erzeugung von Gas und Öl aus Kohle Anfang bis Mitte der 90er Jahre die Schwelle der Wirtschaftlichkeit erreichen. Dabei werden die Wirtschaftlichkeitschancen für Synthesegas aus Kohle am günstigsten eingeschätzt.

## 2. Kohlevergasung

Die heute üblichen oder in der Entwicklung befindlichen Vergasungsverfahren lassen sich auf einige wenige Grundkonzepte zurückführen. Bei der Wasserdampfvergasung dient Wasserdampf als Vergasungsmittel. Das Verfahren wird als autotherm bezeichnet, wenn durch Zugabe von O<sub>2</sub> die benötigte Wärmemenge für die endotherme Reaktion intern im Vergaser erzeugt wird. Das Produktgas kann nach einer Gasreinigung mittels einer Methanisierung in SNG als Erdgasersatz umgewandelt werden. Wird die benötigte Wärmemenge extern erzeugt und durch Wärme-

übertragung in den Vergaser eingebracht, so spricht man von einem allothermen Verfahren. Dabei ist es möglich, Wärme aus einem Hochtemperatur-Kernreaktor (HTR) für den Vergasungsprozeß nutzbar zu machen.

Bei der hydrierenden Vergasung wird Wasserstoff als Vergasungsmittel verwendet, um in einer exothermen Reaktion Kohlegas mit hohem Methangehalt zu erzeugen. Dabei fallen erhebliche Mengen von Restkoks an, die beispielsweise in einem Kombi-Prozeß mit nachgeschalteter Wasserdampfvergasung umgesetzt werden können.

Die heute weltweit in der Industrie eingesetzten Kohlevergasungsanlagen haben Gasgeneratoren, wie sie in Abb. 2 schematisch dargestellt sind. Es handelt sich dabei ausschließlich um autotherme Verfahren, bei denen die Kohle mit Dampf und Sauerstoff vergast wird.

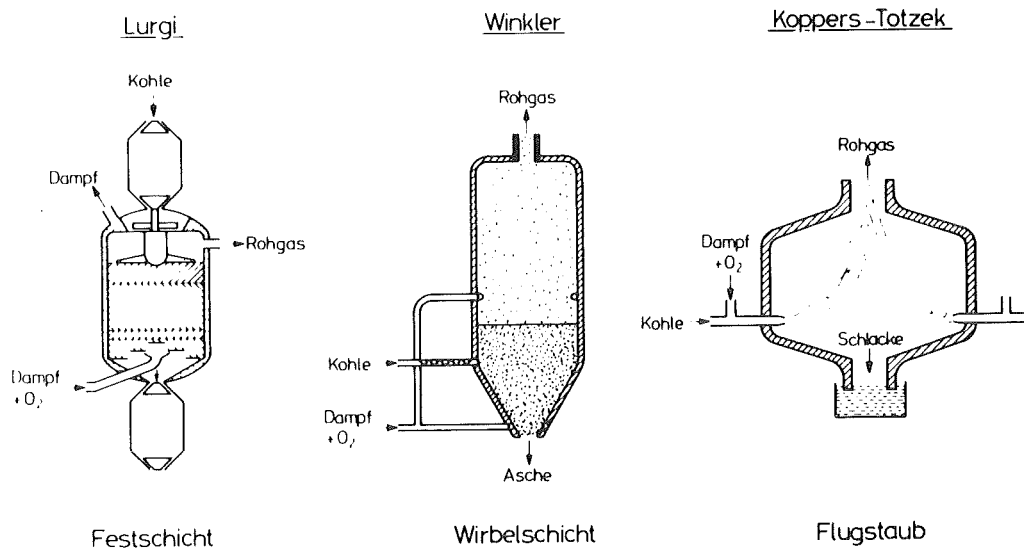


Abb. 2: Gasgeneratoren für die gegenwärtige industrielle Kohlevergasung

Im Lurgi-Gasgenerator erfolgt die Vergasung in einer Festschicht, in der Kohle und Vergasungsmittel im Gegenstrom geführt werden.

Dadurch bilden sich im Gasgenerator ein Temperaturprofil und verschiedene Zonen aus, in denen mit steigender Temperatur die Kohle getrocknet und entgast, schließlich vergast und verbrannt wird. Das Verfahren arbeitet unter Drücken zwischen 25 und 35 bar. Die Kohle wird über ein Schleusensystem in den Gasgenerator eingeführt und die Asche über ein ähnliches System ausgeschleust. Der Gasgenerator ist ein wassergekühlter Druckbehälter mit Durchmesser zwischen 3 und 4 m.

Beim Wirbelschichtverfahren nach Winkler wird Kohle in einem zylindrischen Gasgenerator, der am unteren Ende konisch zuläuft, in einer Wirbelschicht mit Dampf und Sauerstoff vergast. Der Kohleeintrag erfolgt etwa in der Mitte der Schicht mittels einer Schnecke. Das Vergasungsmittel wird einmal am unteren Ende zugeführt und zum anderen auch oberhalb der Wirbelschicht. Durch letztgenannte Maßnahme erreicht man, daß mitgerissene Kohleteilchen nachvergast werden, womit ein hoher Kohlenstoffausbrand und - durch die sich oberhalb der Wirbelschicht ausbildende hohe Temperatur - eine starke Verminderung der Nebenprodukte verbunden sind. Das Winkler-Verfahren wird bisher nur bei Atmosphärendruck betrieben.

Im Flugstaubreaktor nach Koppers-Totzek wird feinkörnige Kohle in einer Flugstaubwolke mit Sauerstoff und Dampf vergast. Wegen der kurzen Verweilzeiten werden durch Zugabe relativ großer Sauerstoffmengen sehr hohe Temperaturen erzeugt und damit hohe Umsatzraten erreicht. Die Asche fällt flüssig an und wird am unteren Ende des Gasgenerators abgezogen. Unmittelbar oberhalb des Gasgenerators befindet sich ein Abhitzekeessel zur Wärmerückgewinnung.

Der eigentliche Vergasungsprozeß ist bei allen Verfahren eingebettet in eine Vielzahl von Nebenanlagen, die im wesentlichen der Erzeugung und Aufbereitung der Reaktionspartner, der Bereitstellung von Energie- und Hilfsstoffen sowie der Weiterbehandlung von Produktgas, Abwasser und Asche dienen.

Für die künftigen Aufgaben der Vergasung von Kohle arbeitet man in verschiedenen Ländern intensiv an deren Weiterentwicklung, wobei zusammengefaßt folgende Tendenzen aufgezeigt werden können:

- Fortentwicklung der konventionellen Verfahren im Hinblick auf eine Verbreiterung der Kohlebasis, eine Erhöhung des Wirkungsgrades und hinsichtlich des Betriebes bei höherem Druck.
- Erzeugung von Methan als Erdgasersatz durch Anwendung der hydrierenden Vergasung.
- Anwendung der Vergasung zur umweltfreundlichen Stromerzeugung.
- Einsparung von Kohle durch Einsatz von Wärme aus Hochtemperaturkernreaktoren.

Tab. 1 gibt eine Übersicht über die in der Bundesrepublik Deutschland laufenden Entwicklungsprojekte und Versuchsanlagen.

Nr.	Projektbezeichnung	Betreiber	Technische Kennzeichen	Stand und Aufgabenstellung
1	Festbettdruckvergasung, Lurgi	Ruhrkohle, Ruhrgas, Steag	Festbettvergasung von Steinkohle mit Dampf und Sauerstoff, getrennter Abzug und Aufbereitung von Entgasungs- und Vergasungsgas; 100 bar, 700 bis 1000°C, 7 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Dorsten; Weiterentwicklung des Lurgi-Verfahrens auf hohe Drücke zur Erzeugung von SNG
2	Kohlenstaubdruckvergasung, Texaco	Ruhrkohle, Ruhrchemie	Flugstaubvergasung von Steinkohle einer Kohle-Wasser-Suspension mit Sauerstoff; 40 bar, 1300 bis 1500°C, 6 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1978 in Oberhausen; Weiterentwicklung des Texaco-Verfahrens für die Herstellung von Synthesegas, auch Einsatz von Hydrierrückständen
3	Saarberg-Otto-Prozeß	Saarbergwerke Dr. C. Otto	Flugstaubvergasung von Steinkohle in einem Schlackenbadgenerator mit O <sub>2</sub> ; 30 bar, 1500 bis 1700°C, 10 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Völklingen/Saar; Weiterentwicklung des Rummel-Generators für Druckbetrieb zur Erzeugung von Synthesegas und Brenngas bei späterem Luftbetrieb
4	Shell-Koppers-Prozeß	Shell, Krupp-Koppers	Flugstaubvergasung von Steinkohle mit Sauerstoff und Dampf; 30 bar, 1500 bis 1850°C, 6 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Hamburg-Harburg; Weiterentwicklung des Koppers-Totzek-Gasgenerators für Druckbetrieb zur Herstellung von Synthesegas und Brenngas bei späterem Luftbetrieb
5	Ballastkohlenvergasung	Kohlegas-Nordrhein	Festbettvergasung von geformten, aschereichen Steinkohlen im diskontinuierlichen Betrieb; Heißblasen mit Luft, Vergasen mit Dampf; 1 bis 6 bar, 950 bis 1150°C, 1,6 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Hückelhoven; Herstellung von Brenn- und Synthesegas aus ballastreichen Kohlen
6	Hochtemperatur-Winkler	Rheinische Braunkohlenwerke	Wirbelschichtvergasung von Braunkohle mit Sauerstoff und Dampf, Zugabe von CaCO <sub>3</sub> zur Erhöhung des Ascheschmelzpunktes und als S-Akzeptor; 10 bar, 1100°C, 1 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Frechen-Wachtberg; Herstellung von Synthese- und Reduktionsgas aus Braunkohle
7	VEW-Teilvergasung	Vereinigte Elektrizitätswerke Westfalen	Partielle Vergasung von Steinkohle mit Luft; ohne Druck; 1 t/h; Erzeugung elektrischer Energie über Kohlen-gas mit Restkoks	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1977 in Stockbm
8	PNP <sup>1)</sup> -Hydrierende Vergasung	Rheinische Braunkohlenwerke und PNP-Partner	Wirbelschichtvergasung von Kohle mit H <sub>2</sub> ; 0,1 t/h (H <sub>2</sub> -Erzeugung durch CH <sub>4</sub> -Spaltung in einem mit nuklearer Prozeßwärme beheizten Röhrenspaltöfen)	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1975 in Wesseling; Herstellung von SNG unter Nutzung von Prozeßwärme aus Hochtemperatur-Kernreaktoren; Versuchsphase 15 t/h 1982/83
9	PNP-Wasserdampfvergasung	Bergbau-Forschung und PNP-Partner	Wirbelschichtvergasung von Kohle mit Dampf unter Zuführung von nuklearer Prozeßwärme; 40 bar, 800°C, 0,2 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1976 in Essen; Herstellung von Synthesegas und SNG unter Nutzung von Prozeßwärme aus Hochtemperatur-Kernreaktoren

<sup>1)</sup> Prototypanlage Nukleare Prozeßwärme: PNP-Partner: Bergbau-Forschung, Essen; Kernforschungsanlage, Jülich, Gesellschaft für Hochtemperaturreaktor-Technik mbH, Bensberg; Hochtemperatur-Reaktorbau, Mannheim; Rheinische Braunkohlenwerke, Köln.

Tabelle 1: Projekte und Versuchsanlagen zur Kohlevergasung in der Bundesrepublik Deutschland



### 3. Kohlehydrierung

Die verschiedenen bis heute entwickelten Hydrierverfahren laufen im Prinzip folgendermaßen ab: Zunächst wird die Kohle auf eine Körnung 90 % < 1 mm und 60 % < 60  $\mu\text{m}$  aufgemahlen. Danach erfolgt gegebenenfalls eine Katalysatorzugabe in der Größenordnung von wenigen Gew.-%. Die Mischung wird danach mit rückgeführtem Öl (etwa 40 % Mittelöl, 60 % Schweröl) "angerieben" (auch "Anmaischen" genannt), wodurch die Kohle aufgrund des eindringenden Öles aufquillt. Diese Kohle/Öl-Emulsion wird dann nach Durchlaufen verschiedener Aufheizstufen (Regeneratoren und Spitzenaufheizer) von unten unter Wasserstoffzugabe in mehrere hintereinander angeordnete Hydrierreaktoren eingegeben.

Nach der Art der Wasserstoffzugabe kann man zwei verschiedene Hydrierverfahren unterscheiden. Bei dem Verfahren nach Bergius und Pier (ab 1913) wird an die Kohle in Anwesenheit von Katalysatoren molekularer Wasserstoff angelagert. Bei dem zweiten Verfahren, dessen Grundlagen von Pott und Broche in den 20iger Jahren entwickelt worden sind, wird die Kohle bei einem Druck von 100 bis 150 bar und Temperaturen um 400  $^{\circ}\text{C}$  mit einem Wasserstoff abgebenden Lösungsmittel behandelt. Als Lösungsmittel werden Tetralin-/Kresolgemische oder auch Mittelöle der Kohle- und Pechhydrierung verwendet.

Der Hydrierreaktor, wie er z. B. für die Hydrierung nach Bergius-Pier verwendet wird, besteht aus einem etwa 18 m hohen druckfesten Stahlrohr mit einem max. Durchmesser von 1 m, das innen zur Wärmeisolation mit Zementasbest ausgekleidet ist (Abb. 3). Der Wasserstoff wird außer von unten auch an seitlichen Stellen eingespeist. Die ablaufende Hydrierreaktion ist exotherm, so daß es im Inneren des Rohres zu steigender Temperatur bis auf etwa 400 - 500  $^{\circ}\text{C}$  kommt. Die Temperatur wird durch Thermoelemente kontrolliert und kann durch Zuspeisen von kaltem Wasserstoff geregelt werden.

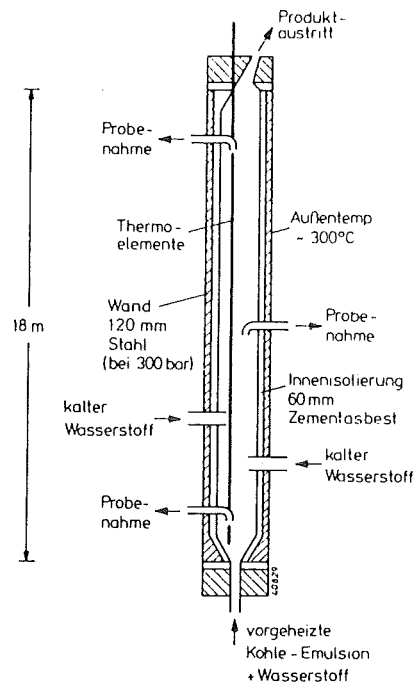


Abb. 3: Hydrierreaktor

Nach dem Verlassen des Hydrierproduktes am Kopf des Reaktors wird zunächst durch Temperaturabsenkung um maximal  $40^{\circ}\text{C}$  eine Heißabscheidung vorgenommen, wobei ein Abschlamm entsteht, der sich aus Restkohle, Asche, Katalysator, Asphaltene und anderen über ca.  $325^{\circ}\text{C}$  siedenden Bestandteilen zusammensetzt. Bei den bis 1945 in Deutschland betriebenen Hydrieranlagen wurde dieser Abschlamm z. T. in die Hydrierreaktoren zurückgeführt und z. T. in Zentrifugen aufgetrennt. Der dabei anfallende Zentrifugenschlamm wurde zur zusätzlichen Gewinnung von Öl in Schnecken- oder Kugelöfen geschwelt. Bei den nach dem 2. Weltkrieg in der Bundesrepublik Deutschland weiterentwickelten Hydrierverfahren wird der Abschlamm des Heißabscheiders in vorteilhafter Weise einer Vakuumdestillation unterzogen und der dann verbleibende Rückstand, der bei erhöhter Temperatur flüssig ist, einer Vergasung zur Wasserstoffgewinnung zugeführt.

Im nachfolgenden Kaltabscheider erfolgt eine weitere Abkühlung des Hydrierproduktes und schließlich in den sog. "Abstreifern" eine Druckabsenkung zur Aufteilung von Kondensat und Gasen. Aus den Gasen wird Wasserstoff zurückgewonnen. Das Kohleöl wird schließlich zur Zerlegung in Produkte unterschiedlicher Siedelagen (Leicht-, Mittel- und Schweröle) einer Destillationsanlage zugeführt.

Die Hydrierung nach den Vorschlägen von Bergius und Pier (IG-Farbenindustrie) wurde bis 1945 in 12 Anlagen betrieben mit einer Gesamtproduktion an Flüssigprodukten von 4 Mio. t/pro Jahr. Hauptprodukte waren Kraftstoffe, insbesondere Flugbenzin.

Die Hydrierung nach Pott-Broche wurde bis 1945 in einer Anlage durchgeführt. Einsatzmaterial war Steinkohle. Als Hauptprodukt wurde ein Extrakt erzeugt, aus dem Elektroden für die Aluminiumherstellung gewonnen wurden. Die Anlage hatte einen Ausstoß von rund 30.000 Jahrestonnen Extrakt.

Die nach dem Kriege in der Bundesrepublik Deutschland verbliebenen Hydrierwerke wurden nach und nach stillgelegt. In den USA und nach der ersten Ölkrise 1973 auch in der BRD wurden die Arbeiten wieder aufgegriffen und neue verbesserte Konzepte zur Kohlenhydrierung erstellt. In der BRD wird seitdem das unter dem Namen "Neue Deutsche Technologie" bekannt gewordene Hydrierverfahren entwickelt. Dieses unterscheidet sich von dem früheren Bergius-Pier-Verfahren in folgenden Punkten:

- Der Verfahrensdruck wird von 700 auf 300 bar abgesenkt.
- Durch neuartige Apparate wird eine verbesserte Wärmerückgewinnung erreicht.
- Als Anmaischöl wird Mittel- und Schweröl aus dem Prozeß verwendet.
- Der im Heißabscheider abgetrennte Rückstand wird destilliert, die Öle werden zurückgeführt und der dann verbleibende noch pumpfähige Rückstand wird zur Herstellung von Wasserstoff vergast.

Aufgrund dieser Maßnahmen können der spezifische Kohledurchsatz und der thermische Wirkungsgrad wesentlich erhöht werden. Dadurch, daß die festen Rückstände nicht mehr wie früher geschwelt sondern vergast werden, wird auch die Umwelt sehr viel weniger belastet.

In der Bundesrepublik Deutschland sind mehrere Unternehmen damit beschäftigt, Großanlagen zur Kohlehydrierung zu projektieren und zu bauen. Z. Z. werden die Auslegungsdaten dieser Projekte in halbtechnischen und Pilotanlagen überprüft und abgesichert. Tabelle 2 gibt einen Überblick über die in Betrieb befindlichen Versuchsanlagen und die projektierten Großanlagen.

<u>Halbtechnische Anlagen</u>				
Betreiber	Ort	Durchsatz	Inbetriebnahme	Aufgabenstellung und Ergebnisse
Bergbau-Forschung	Essen	0,2 t/Tag Steinkohle	1976	Auslegung der Pilotanlage Bottrop Senkung des Druckes auf 300 bar durch dest. Aufbereitung des Rückstandes und Ausschluß der schwer hydrierbaren Asphaltene aus dem Anmischöl
Rheinbraun	Köln	0,3 t/Tag Braunkohle	1980	
<u>Pilotanlagen</u>				
Ruhrkohle/Veba	Bottrop	200 t/Tag Steinkohle	1981	) Ermittlung von Auslegungsdaten für großtechnische Anlagen
Saarberg	Saarbrücken	6 t/Tag Steinkohle	1981	
<u>Großtechnische Anlagen (Planung)</u>				
Ruhrkohle		6 Mio t/Jahr Steinkohle	nicht vor 1990	) Produktion von Benzin
Veba		6 Mio t/Jahr Steinkohle		
Rheinbraun		18 Mio t/Jahr Braunkohle		
Saarberg/PB		2,5 Mio t/Jahr Steinkohle		

Tabelle 2: Anlagen zur Kohlehydrierung in der Bundesrepublik Deutschland

#### 4. Umweltrelevanz der Kohleveredlung

Für Genehmigungsverfahren und Standortfragen hat die Frage der Umweltverträglichkeit der Kohleveredlungsverfahren eine große Bedeutung. Entscheidend für die Umweltrelevanz sind Art und Menge der Emissionen.

Als Emissionsquellen kommen in Frage:

Der eigentliche Veredlungsprozeß, wobei die Art des gewählten Verfahrens und die eingesetzte Kohlensorte eine wesentliche Rolle spielen;  
die zur Reinigung und Umwandlung des Produktgases nachgeschalteten Anlagen sowie  
die vorgelagerten Anlagen der Kohleaufbereitung und der Dampferzeugung.

Im Prinzip fallen alle Emissionstypen an:  
Abluft, Abwasser, Abfall und Lärm.

Ins einzelne gehende Aussagen lassen sich für die Bundesrepublik Deutschland mangels vorhandener Anlagen oder fortgeschrittener Genehmigungsverfahren nicht machen. Aus grundsätzlichen Überlegungen und auf Grund vorliegender Ergebnisse von Versuchsanlagen lassen sich jedoch gewisse Abschätzungen der Emissionen vornehmen. Bezüglich der Reaktionstemperatur gibt es zwei prinzipielle Verfahrenstypen, die Niedertemperatur-Verfahren, wozu z.B. die Lurgi-Druckvergasung, die Winkler-Vergasung und auch die Kohle-Hydrierung gehören, und die Hochtemperatur-Verfahren, wie sie sich z.B. in den Prozessen von Koppers-Totzek- und der Texaco-Staub-Vergasung darstellen. Bei den Niedertemperatur-Verfahren fällt eine breite Palette von Nebenprodukten an, deren umweltverträgliche Beseitigung oder Aufbereitung zu verwertbaren Produkten aufwendiger ist.

Zur Abschätzung der Emissionen werden in dieser Studie vier Verfahren herangezogen und deren Emissionen miteinander verglichen, u.z. die Lurgi-Vergasung, Texaco-Vergasung, die Wasserdampf-Vergasung mit Kernwärme (WKV) sowie die Kohle-Hydrierung nach dem modifizierten Bergius-Verfahren. Die Abschätzung der Umwelteinwirkungen hängt in erster Linie von den gewählten Verfahrenstechniken ab. Darüberhinaus sind auch die speziellen

Eigenschaften der eingesetzten Kohle von Bedeutung. Zur Vereinfachung wird hier für alle untersuchten Verfahren von der gleichen Kohle ausgegangen. In der Praxis gibt es dazu erhebliche Abweichungen. Methodisch wurde so vorgegangen, daß die Emissionsmengen aus der Bilanzierung einzelner Anlagen unter Berücksichtigung der Reinigungsverfahren berechnet wurden. Während für die Vergasung, insbesondere für das Lurgi-Verfahren, das im Ausland schon im großtechnischen Maßstab betrieben wird, schon zahlreiche Daten vorliegen, fehlen diese noch für die Verflüssigung, so daß derzeit nur grobe Abschätzungen vorgenommen werden können.

Große Kohleveredlungsanlagen werden in der Regel neben der Kohleaufbereitung, den Umwandlungs-Reaktoren und den Entsorgungsanlagen auch das jeweils zur Erzeugung der erforderlichen Energie benötigte Kraftwerk umfassen. Dieses Kraftwerk wird nach dem heutigen Stand der Technik umweltfreundlich gebaut und betrieben werden.

Als Ergebnis der Grobabschätzung der Emission am Beispiel der vier genannten Verfahren ist pauschal festzustellen, daß Kohlevergasungs- und Verflüssigungsanlagen in der Bundesrepublik Deutschland bei Einsatz der bereits heute zur Verfügung stehenden Techniken zur Emissionsminderung, Abwasserreinigung und Abfallbeseitigung so betrieben werden können, daß keine schädlichen Umwelteinwirkungen etwa durch Luftverunreinigungen, Abwasser oder unvermeidbare Belästigung durch Geräusche oder Gerüche zu befürchten sind. Dieses Ergebnis gründet sich im wesentlichen darauf, daß die Prozesse in geschlossenen Systemen ablaufen, die schon wegen des hohen Drucks und auch aus Gründen der Wirtschaftlichkeit technisch dicht sein müssen, desweiteren daß die Abgasströme nach technisch bewährten Verfahren effizient gereinigt werden können und mit der Einführung dieser neuen Techniken von vornherein modernsten Maßnahmen zum Schutz der Umwelt entwickelt und eingeplant werden.

Für die durchgeführten Abschätzungen läßt sich im einzelnen folgendes feststellen:

#### 1. Staub

Die wesentlichen Staubemissionsquellen der Gesamtanlage sind

- Kohlevorbehandlung

- die Dampferzeugung
- die Aschedeponie zur Lagerung der Vergaser- und Kesselasche sowie des Rückstandes der Abgasentschwefelung.

Zur Minderung der Staubemissionen sind Technologien aus dem Kraftwerksbereich entwickelt worden und ohne Schwierigkeiten auf die Kohleveredlungsanlagen übertragbar. Dies gilt in gleicher Weise für die Staubemission aus dem Kohledienst wie auch für die Rückstandsentsorgung.

## 2. Gasförmige Emissionen

Bei der Reinigung der anfallenden Produktgase kann auf ausgereifte und technisch erprobte Prozesse zurückgegriffen werden, zum Beispiel Rectisol-, Stretford- bzw. Claus-Verfahren für die Schwefel-Eliminierung. Hinzu kommen die verschiedenen Verfahren zur  $\text{SO}_2$ -Minderung bei den anfallenden Rauchgasen. Die Reduzierung von  $\text{NO}_x$ -Emissionen wird üblicherweise durch geeignete zweistufige Brennersysteme herbeigeführt. Eine grobe Abschätzung der gasförmigen Emissionen kann nur für die hauptsächlich auftretenden Komponenten  $\text{SO}_2$  und  $\text{NO}_x$  durchgeführt werden. Für diese Grobabschätzung wurden folgende Annahmen getroffen:

1. Als Grundlage dienen Durchschnittsanalysen der eingesetzten Kohle, experimentelle Daten zum Schwefel- und Stickstoffein-schluß im Vergasungsrückstand bzw. der Kraftwerksschlacke und Wirkungsgrade der Rohgasreinigungsverfahren.
2. Der gesamte Kohledurchsatz für die Vergasungsverfahren soll  $1,2 \cdot 10^6$  t/a betragen. Nur bei der WKV wird von  $0,6 \cdot 10^6$  t/a ausgegangen, da bei diesem Verfahren die Kohle für die Dampf- bzw. Energieerzeugung vollständig und die Vergaserkohle zu ca. 40% eingespart wird.
3. Die Schwefel- und Stickstoffkonzentration der Vergaser- und Kraftwerkskohlen betragen 1,0 Gew.% bzw. 1,4 Gew.%. Für die Schwefeleinbindung im Vergasungsrückstand wird ein Wert von 10% angenommen. Die im Vergasungsreaktor gebildeten flüchtigen Stickstoffverbindungen, im wesentlichen  $\text{NH}_3$  und  $\text{HCN}$ , sind sehr gut wasserlöslich und treten nicht im Abgas des Vergaserteils auf. Für die Kraftwerkskohlen werden für den Schwefel- bzw.

Stickstoffeinschluß in der Schlacke 10% bzw. 50 - 85% angenommen. Die Schwefel- und Stickstoffgehalte der Hydrierkohle betragen 1,5 bzw. 1,6 Gew. %.

4. Die für die Rohgasreinigung eingesetzten Verfahren, Rectisol- und Stretford- bzw. Claus-Anlagen, weisen Wirkungsgrade von 0,99 bzw. 0,98 auf.

Da ein Betrieb kommerzieller Anlagen zur Kohleveredlung höchstens in ca. 10 Jahren zu erwarten ist, wurde für die Abschätzung der  $\text{NO}_x$ - und  $\text{SO}_2$ -Emissionen von den Maximalwerten für Kraftwerke mit einer Leistung von mehr als  $150 \text{ MW}_{el}$  ausgegangen, die in dem Entwurf zur Großfeuerungsanlagen-Verordnung (Mai 1982) angegeben sind. Danach soll die  $\text{SO}_2$ -Emission auf  $650 \text{ mg/m}^3$  und die  $\text{NO}_x$ -Emission auf  $800 \text{ mg/m}^3$  für trocknen bzw.  $1.300 \text{ mg/m}^3$  für flüssigen Ascheabzug begrenzt werden.

Mit diesen Angaben für den Kraftwerksteil, einen Rauchgasanfall von  $1,025 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{t}$  Kohle, wurden die in Tabelle 3 aufgeführten  $\text{SO}_2$ - und  $\text{NO}_x$ -Emissionen abgeschätzt. Danach sind die absoluten und spezifischen Emissionen von Kohleverflüssigungs- und Kohlevergasungsanlagen geringer als bei einem Kohlekraftwerk mit vergleichbarem Kohledurchsatz. Die geringsten  $\text{SO}_2$ - und  $\text{NO}_x$ -Emissionswerte treten erwartungsgemäß bei der Wasserdampfvergasung unter Nutzung von Kernenergie (WKV) auf.

Die auf diese Weise abgeschätzten Emissionswerte genügen den heute geltenden Bestimmungen für Anlagen der betrachteten Größe. Der in Klammern angegebene  $\text{SO}_2$ -Emissionswert des Kohlekraftwerks ist unter Zugrundelegung des nach dem Erlass des MAGS von 1978 gültigen Grenzwertes von  $850 \text{ mg SO}_2/\text{m}^3$  errechnet worden.

### 3. Abwasser

Die Reinigung der Prozeßwässer erfordert aufgrund der prozeßspezifischen Wasserinhaltsstoffe eine jeweils dem verwendeten Verfahren angepaßte Abwasserreinigungsanlage. Bei den Nieder temperatur-Vergasungsverfahren, z.B. Lurgi, und der direkten Kohleverflüssigung wird nach dem Ammoniak-Stripping eine Phenol-solvananlage oder A-Kohle-Adsorption erforderlich. Bei den Hoch temperaturvergasungsverfahren ist aufgrund des geringen Phenolanfalls eine solche Anlage überflüssig. Zur weiteren Reduzierung der organischen Wasserinhaltsstoffe kann eine Biologie oder



Tabelle 3: SO<sub>2</sub>- und NO<sub>x</sub>-Emissionen von Kohleveredlungsanlagen und einem 475-MW<sub>el</sub> Kraftwerk

Emission	Einheit	Lurgi	Texaco	WKV	Hydrierung	Kohlekraftwerk 475 MW <sub>el</sub>
SO <sub>2</sub>	t <sub>Em</sub> /a	1869 (4140)	1869 (4140)	(322)	1376 (2092)	7995 (10455)
	10 <sup>-3</sup> t <sub>Em</sub> /t <sub>SKE</sub>	1,56 (3,45)	1,56 (3,45)	(0,5)	1,14 (1,74)	6,66 (8,71)
	10 <sup>-1</sup> t <sub>Em</sub> /TJ	0,80 (1,77)	1,07 (2,36)	(0,14)	0,51 (0,77)	-----
	10 <sup>-4</sup> t <sub>Em</sub> /MWh	2,87 (6,44)	3,84 (8,60)	(0,50)	1,83 (2,77)	20,9 (27,4)
NO <sub>2</sub>	t <sub>Em</sub> /a	1640/2665 (1380-4600)	1640/2665 (1380-4600)	(15 - 23 )	522/848 (501-1676)	9840/15990 (9460-31540)
	10 <sup>-4</sup> t <sub>Em</sub> /t <sub>SKE</sub>	13,7 / 22,2 (11,5 - 38,3)	13,7 / 22,2 (11,5 - 38,3)	(0,26 - 0,38)	4,35 / 7,1 (4,1 - 13,95)	82 / 133,3 (78,8 - 262,8)
	10 <sup>-2</sup> t <sub>Em</sub> /TJ <sub>Pr</sub>	7,0 / 11,4 (5,8 - 19,6)	9,4 / 15,2 (7,8 - 26,2)	(0,075 - 0,110)	1,9 / 3,1 (1,8 - 6,1)	----- -----
	10 <sup>-4</sup> t <sub>Em</sub> /MWh	2,5 / 4,1 (2,2 - 7,0)	3,4 / 5,5 (2,8 - 9,5)	(0,028 - 0,040)	0,7 / 1,1 0,6 - 2,22)	25,9 / 42,1 (24,8 - 82,8)
t <sub>Em</sub> = t <sub>Emission</sub>		Emissionswerte setzen sich aus den Emissionen des Veredlungsteils und des Kraftwerks zusammen.				SO <sub>2</sub> -Emission:
t <sub>SKE</sub> = t <sub>Einsatzkohle auf SKE normiert</sub>		Werte ohne Klammern: Für das Kraftwerk werden SO <sub>2</sub> - und NO <sub>x</sub> -Minderungsmaßnahmen angenommen, die die SO <sub>2</sub> -Emission auf 650 mg/m <sub>N</sub> <sup>3</sup> und die NO <sub>x</sub> -Emission auf 800 / 1300 mg NO <sub>2</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup> begrenzen.				Werte ohne Klammern: Grenzwert 650 mg SO <sub>2</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup>
TJ <sub>Pr</sub> = Tera Joule (Produkt)		Werte in Klammern: Keine Rauchgasreinigung; als Grundlage für die Abschätzung dienen die im Text dargestellten Voraussetzungen.				Werte in Klammern: Grenzwert 850mg SO <sub>2</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup>
Anmerkung: Die hier angegebenen NO <sub>2</sub> -Emissionen wurden gemäß den in der Großfeuerungsanlagen-Verordnung benutzten Einheiten (mg NO <sub>2</sub> /m <sup>3</sup> ) aus den im Text angegebenen NO-Emissionen berechnet.						NO <sub>x</sub> -Emission: Werte ohne Klammern: Grenzwert von 800/1300 mg/NO <sub>x</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup> . Werte in Klammern: keine NO <sub>x</sub> -Minderung.

A-Kohle-Adsorptionsanlage, bzw. die Kombination beider Verfahren, eingesetzt werden.

Neben den organischen Prozeßwasserinhaltsstoffen interessiert in besonderem Maße die Freisetzung von Spurenelementen über das Prozeßwasser. Die Abschätzung der Belastung des Prozeßwassers mit Spurenelementen ist sehr problematisch, da nur wenige experimentelle Ergebnisse über ihre Flüchtigkeit unter Vergasungsbedingungen vorliegen. Die Aussagen der bisherigen Untersuchungen lassen sich nicht verallgemeinern, da Kohlen stark schwankende Spurenelement- und Aschegehalte aufweisen und die Bedingungen im Vergasungsreaktor-Gesamtdruck, Partialdrücke der Edukte und Produkte, Temperatur, Temperaturverteilung, Verweilzeit etc. - stark mit dem betrachteten Verfahren variieren. Auf diesem Gebiet, den Techniken der Probennahme und der Analytik sind dringend weitere Forschungsanstrengungen zu unternehmen, um allgemein anwendbare Aussagen zur Spurenelement-, und insbesondere Schwermetall-Flüchtigkeit zu erhalten. Eine weitgehende Eliminierung von evtl. auftretenden Spurenelementen, speziell der Schwermetalle, ist durch den Einsatz von Ionenaustauschern möglich. Eine prozeßspezifische Kombination von verschiedenen Reinigungsschritten ist in der Lage, das Abwasser so weit aufzubereiten, daß es Kühlwasserqualität erreicht und in der Anlage weiter verwendet werden kann.

Die Erörterungen der Verfahren zur Emissionsminderung bei Kohleveredlungsanlagen zeigen, daß einem Einsatz dieser Verfahren umweltpolitische Erwägungen nicht im Wege stehen können.

1. Allgemeiner Überblick über den Entwicklungsstand und die voraussichtlichen Einsatzspektren der verschiedenen Verfahren zur Kohlevergasung und Kohlehydrierung

1.1 Vergasung

1.1.1 Grundlagen

Die heute üblichen oder in der Entwicklung befindlichen Vergasungsverfahren lassen sich auf einige Grundsysteme zurückführen, deren Prinzipien in Abb. 1 schematisch dargestellt sind. Bei der Wasserdampfvergasung (a, b, c) dient Wasserdampf als Vergasungsmittel. Das Verfahren wird als autotherm bezeichnet (a), wenn durch Zugabe von  $O_2$  die benötigte Wärmemenge für die endotherme Reaktion intern im Vergaser erzeugt wird. Das Produktgas kann nach einer Gasreinigung mittels einer Methanisierung in SNG als Erdgasersatz umgewandelt werden (b). Wird die benötigte Wärmemenge extern erzeugt und durch Wärmeübertragung in den Vergaser eingebracht, so spricht man von einem allothermen Verfahren (c). Dabei ist es möglich, Wärme aus einem Hochtemperatur-Kernreaktor (HTR) für den Vergasungsprozeß nutzbar zu machen.

Bei der hydrierenden Vergasung (d) wird Wasserstoff als Vergasungsmittel verwendet, um in einer exothermen Reaktion Kohlegas mit hohem Methangehalt zu erzeugen. Dabei fallen erhebliche Mengen von Restkoks an, die beispielsweise in einem Kombi-Prozeß mit nachgeschalteter Wasserdampfvergasung (e) umgesetzt werden können.

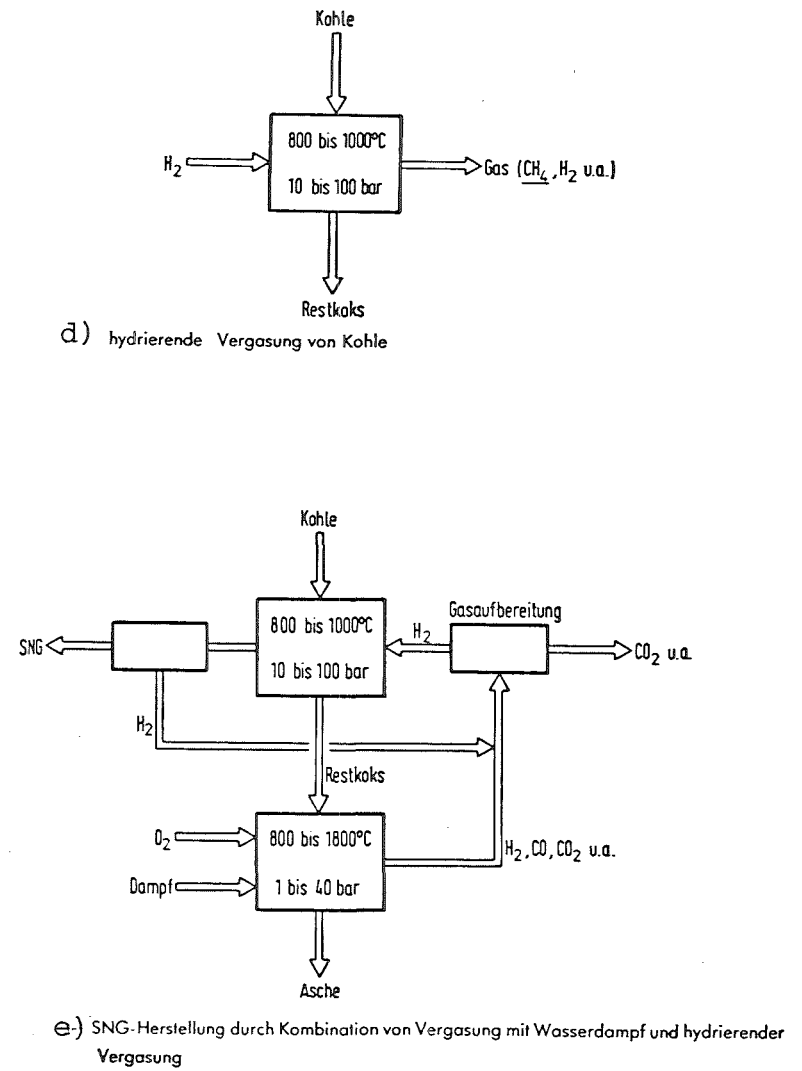
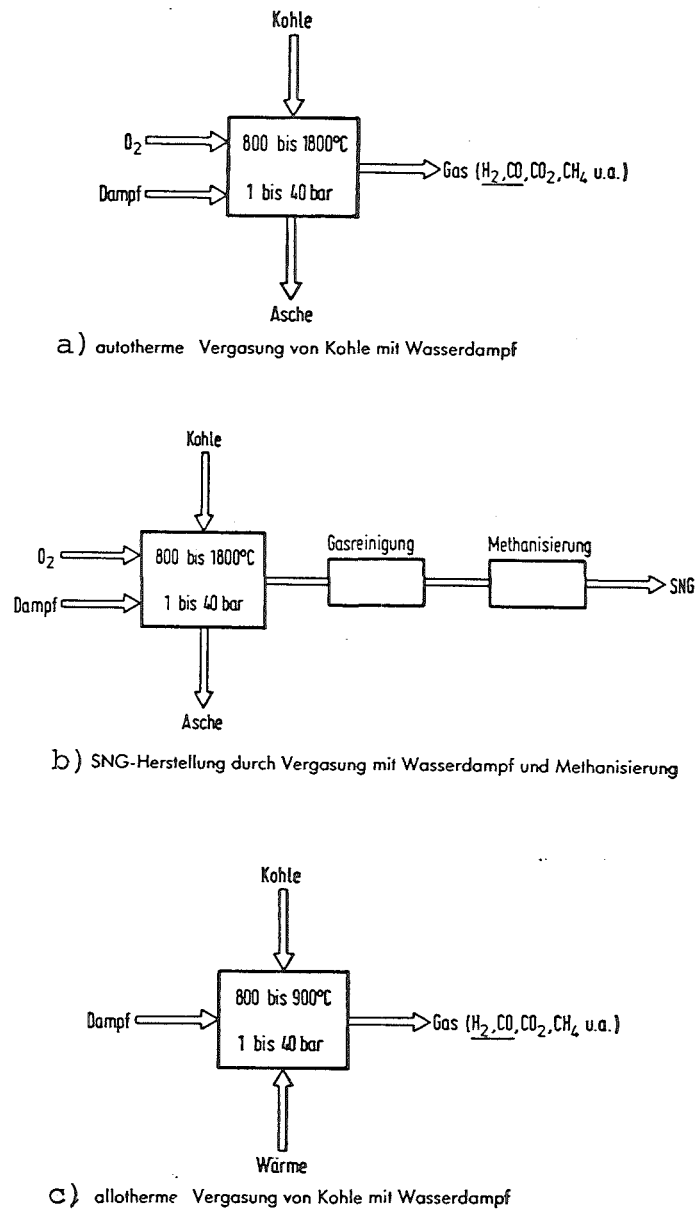


Abb. 1: Verfahrensprinzipien bei der Kohlevergasung

### Hauptreaktionen bei der Kohlevergasung

Am Gesamtablauf der Kohlevergasung sind zwei Grundtypen von Reaktionen beteiligt: zunächst heterogene Reaktionen, bei denen das zugegebene Vergasungsmittel (z. B.  $H_2O$ ,  $H_2$ ), aber auch die entstehenden Produktgase mit dem Feststoff reagieren; zum anderen homogene Reaktionen in der Gasphase, bei denen sich die primären gasförmigen Reaktionsprodukte sowohl untereinander als auch mit dem Vergasungsmittel weiter umsetzen. Das Zusammenspiel dieser Reaktionen bestimmt letztlich den Ablauf des Vergasungsvorganges, seine Wärmetönung sowie die Zusammensetzung des entstehenden Produktgases.

In Tabelle 1 sind die wichtigsten heterogenen und homogenen Reaktionen mit den jeweils entsprechenden Reaktionsenthalpien zusammengestellt. Sie sind in der einschlägigen Literatur<sup>+)</sup>  ausführlich behandelt und sollen daher hier nicht weiter erläutert werden.

Neben den heterogenen und homogenen Reaktionen treten bei der Erhitzung der Kohle auf Reaktionstemperatur noch sogenannte Pyrolysereaktionen, die im unteren Teil von Tab. 1 angegeben sind, auf. Beim Pyrolysevorgang entweichen die flüchtigen Bestandteile aus der Kohle, und die Kohle zersetzt sich zu Koks sowie flüssigen und gasförmigen Substanzen. Je nach den vorliegenden Reaktionsbedingungen werden die Pyrolyseprodukte mit dem Vergasungsmittel weiter zersetzt oder teilweise unzersetzt aus dem Vergasungsreaktor ausgetragen.

---

<sup>+)</sup>  z. B.: Jüntgen, H., K. H. van Heek: Kohlevergasung - Grundlagen und technische Anwendung. Thiemig-Taschenbücher, Band 94, München 1981, Verlag Karl Thiemig

heterogene Reaktionen, Gas/feststoff	$\Delta H$	
	kJ/mol	kcal/mol
heterogene Wassergasreaktion $C + H_2O \rightarrow CO + H_2$	+ 119	+ 28,3
Boudouard-Reaktion $C + CO_2 \rightarrow 2 CO$	+ 162	+ 38,4
hydrierende Vergasung $C + 2 H_2 \rightarrow CH_4$	- 87	- 20,9
Teilverbrennung $C + 1/2 O_2 \rightarrow CO$	- 123	- 29,4
Verbrennung $C + O_2 \rightarrow CO_2$	- 406	- 97
<u>homogene Reaktionen, Gas/Gas</u>		
homogene Wassergasreaktion $CO + H_2O \rightarrow H_2 + CO_2$	- 42	- 10,1
Methanisierung $CO + 3 H_2 \rightarrow CH_4 + H_2O$	- 206	- 49,2
<u>Pyrolyse-Reaktionen</u>		
$C_{1-x-y}H_xO_y = (1-y) C + y CO + \frac{x}{2} H_2$	+ 17,4*	
$C_{1-x-y}H_xO_y = (1-y-\frac{x}{8}) C + y CO + \frac{x}{4} H_2 + \frac{x}{8} CH_4$	+ 8,1*	

\* für Gasflammkohle mit  $x = 0,874$ ,  $y = 0,0794$

Anmerkung zu  $\Delta H$ : Bezugszustand ist 298 K, 1 bar und C als Koks kohlenstoff (nach J. Schmidt: Technologie der Gaserzeugung II, Vergasung, Leipzig 1966)

Tabelle 1: Grundreaktionen des Kohlenstoffes bei der Vergasung

Neben der Reaktion des Kohlenstoffes finden auch Reaktionen der in geringem Umfang in der Kohle enthaltenen Elemente S und N statt, wie in Tabelle 2 zusammengestellt. Sie führen zu den im Vergasungsgas tatsächlich beobachteten S- und N-haltigen Produkten, die in der Gasreinigung entfernt werden.

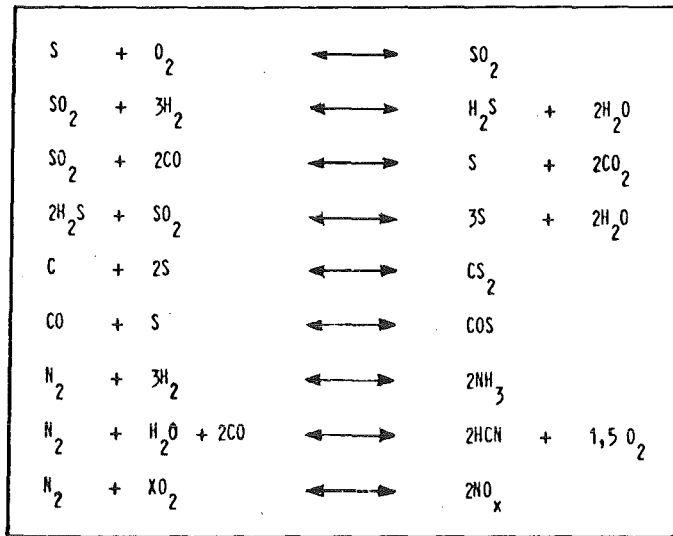


Tabelle 2: Ausgewählte Grundreaktionen von S und N bei der Kohlevergasung

## Verfahrenstechnische Durchführung, Reaktortypen, Wärmeeinkopplung

Die verfahrenstechnische Durchführung der Kohlevergasung wird einmal durch die Art des Kontaktes zwischen Gas und Feststoff, zum anderen durch Gleich- bzw. Gegenstromführung von Feststoff und Vergasungsmittel bestimmt. Die wichtigsten in der Technik angewendeten Prinzipien sind in Abb. 2 dargestellt.

Im Wanderbettreaktor - auch Wanderschicht- oder Festbett(-schicht)-reaktor - wird stückige Kohle durch die Schwerkraft von oben nach unten bewegt, die Vergasungsmittel Sauerstoff und Wasserdampf strömen ihr entgegen. Dabei bilden sich mit ansteigender Temperatur Reaktionszonen der Pyrolyse, der Vergasung und der Teilverbrennung aus. Mit feinkörniger Kohle und höherer Geschwindigkeit des Vergasungsmittels läßt sich eine Vergasung im Wirbelbett (-schicht)-Reaktor durchführen, wobei sich die Temperaturen weitgehend ausgleichen und daher einzelne Reaktionszonen nicht mehr zu unterscheiden sind. Dasselbe gilt auch für Flugstrom- oder Flugstaubreaktoren, in denen feingemahlene Kohle bei hohen Temperaturen in einer Flamme umgesetzt wird. Da unter diesen Temperaturbedingungen die Umsatzgeschwindigkeit der Kohle von der Relativgeschwindigkeit Gas/Feststoff abhängt, wird durch besondere Maßnahmen, z. B. zwei gegenüberliegende Brenner, für eine starke Verwirbelung des Reaktionssystems im Reaktor gesorgt. Im Flugstromreaktor ist ein Gleichstrom zwischen Kohle und Vergasungsmittel gewährleistet. Besondere Sorgfalt erfordert die Abfuhr der nicht umgesetzten Mineralbestandteile. Bei hohen Temperaturen im Reaktor und niedrigem Ascheschmelzpunkt erfolgt der Austrag der Schlacke im flüssigen Zustand. Bei niedrigen Vergasungstemperaturen kann bei Verwendung geeigneter Kohlen auch ein Austrag von fester Asche erfolgen.



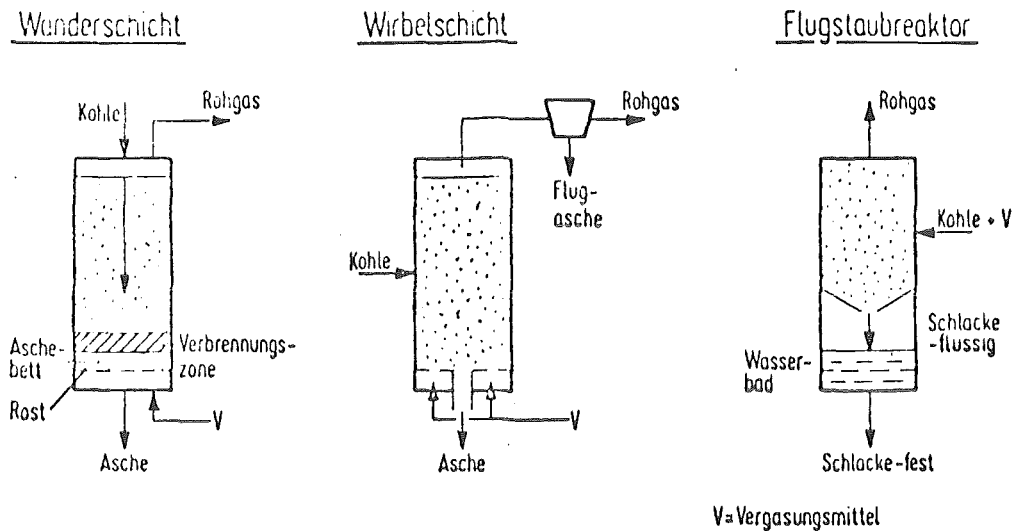


Abb. 2: Typen von Vergasungsreaktoren

Zu erwähnen sind zwei Eigenschaften der einzusetzenden Kohle, die auf den Betrieb eines Gasgenerators großen Einfluß haben. Zum ersten handelt es sich um das Backen von Kohlen, welches darauf beruht, daß Kohlen mit steigender Erwärmung einen Entgasungsvorgang durchlaufen, wobei die Mehrzahl der Steinkohlen im Temperaturbereich zwischen 400 und 600 °C in einen Erweichungs- und Schmelzzustand eintritt, um danach erst zu einem Halbkoks zu erstarren. In diesem Zustand können die einzelnen Körner zusammenkleben und im Gasgenerator eine feste gasundurchlässige Masse bilden. Dadurch kann der Betrieb des Gasgenerators erheblich gestört, ja sogar unmöglich gemacht werden. Außerdem kann das Backen verschiedene verfahrenstechnische Operationen, wie z. B. das Dosieren der Kohle in den heißen Bereich hinein, erheblich stören. Der im Entgasungsvorgang entstehende Teer erfordert gesonderte Maßnahmen bei der Aufbereitung des teer- und staubhaltigen Rohgases. Teerbildung und Backverhalten sind bei den verschiedenen Kohlen unterschiedlich: Anthrazit auf der einen und Braunkohlen auf der anderen Seite backen nicht, während Fettkohlen ein max. Backverhalten aufweisen.

Auch das Verhalten der mit der Kohle innig verwachsenen Mineralbestandteile muß für den Betrieb des Gasgenerators berücksichtigt werden. Unterhalb  $950^{\circ}\text{C}$  wird das Kohlekorn vom Vergasungsmittel im ganzen Volumen angegriffen, da hier die chemische Reaktion geschwindigkeitsbestimmend ist. Die organische Substanz wird dabei vergast, so daß dünne aschehaltige Wände skelettartig zurückbleiben. Schließlich kann das Korn völlig in einen sehr feinen Staub zerfallen. Im Temperaturbereich zwischen  $900$  und  $1200^{\circ}\text{C}$  beginnt die Asche je nach Zusammensetzung zu erweichen, das Korn kann sintern und zur Agglomeration mit anderen Aschebestandteilen neigen. Es ergeben sich dann ähnliche Probleme wie bei dem eben diskutierten Zusammenbacken der Kohle im Erweichungszustand.

Oberhalb  $1300^{\circ}\text{C}$  schließlich liegt die gesamte Mineralsubstanz als flüssige Schlacke vor. Die Beherrschung des Feinstaubes, des Zusammensinterns und des Schlackenabzugs sind von der Verfahrenstechnik zu lösen.

Backeigenschaften verschiedener Steinkohlen und das Verhalten der Aschesubstanz begrenzen in vielen Fällen die heute vorhandenen Vergasungsverfahren. Eine Herabminderung der ungünstigen Einflüsse dieser beiden Kohleeigenschaften ist daher Ziel der neuen Entwicklungen.

Für eine optimale Gestaltung von Vergasungsreaktoren ist auch die Art der Zufuhr der Reaktionswärme entscheidend. Bei einer Wärmeerzeugung im Gasgenerator wird dieser als autotherm, bei einer Wärmeerzeugung außerhalb als allotherm bezeichnet. Die Wärmeerzeugung im autothermen Gasgenerator erfolgt durch exotherme chemische Reaktionen. Dafür kommen die Umsetzungen des Kohlenstoffs mit Sauerstoff - entweder als Luft oder als reiner Sauerstoff - oder die Reaktion des Kohlenstoffs mit Wasserstoff in Frage (siehe Tab. 1). Diese Reaktionsgase werden mit dem eigentlichen Vergasungsmittel, dem Dampf, eingespeist. Bei Sauerstoffeinsatz entstehen zusätzliche Produktmengen von  $\text{CO}$  oder  $\text{CO}_2$ , beim Einsatz von Wasserstoff zusätzliches  $\text{CH}_4$ . Vorteile und Nachteile der genannten Varianten der autothermen Vergasung sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

	Vorteile	Nachteile	Geeignet für
Luft	billig	N <sub>2</sub> Verdünnung	Schwachgas
O <sub>2</sub>	unverdünntes Rohgas	teure Erzeugung	Herstellung von Synthesegas und heizwertreichem Gas
H <sub>2</sub>	hoher CH <sub>4</sub> Gehalt	Separate Erzeugung CH <sub>4</sub> Gehalt bei Synthesegas	Heizgas

Tab. 3: Vergleich der Wärmeerzeugung in autothermen Gasgeneratoren

Bei der allothermen Betriebsweise eines Vergasungsreaktors muß die Wärme mit Wärmeträgern direkt oder im Wärmeaustausch auf die mit dem Wasserdampf reagierende Kohle übertragen werden. Untersuchungen haben ergeben, daß praktisch nur der zweite Weg über Wärmeaustausch zu technisch-wirtschaftlich günstigen Lösungen führt. Dabei wird außerhalb des Gasgenerators ein gasförmiger Wärmeträger erhitzt und durch einen Wärmetauscher geschickt, der tauchsiederartig in den Vergasungsreaktor hineinragt. Zur Erzielung eines optimalen Wärmeübergangs muß bei dieser Variante ein Wirbelschichtreaktor für die Vergasung eingesetzt werden. Hierbei ergibt sich auch die Möglichkeit, Wärme aus Hochtemperatur-Kernreaktoren oder aus anderen Energiequellen für einen Vergasungsprozeß nutzbar zu machen.

### 1.1.2 Heutige industrielle Anlagen

Die heute weltweit in der Industrie eingesetzten Kohlevergasungsanlagen haben Gasgeneratoren, wie sie in Abb. 3 schematisch dargestellt sind. Es handelt sich dabei ausschließlich um autotherme Verfahren, bei denen die Kohle mit Dampf und Sauerstoff vergast wird.

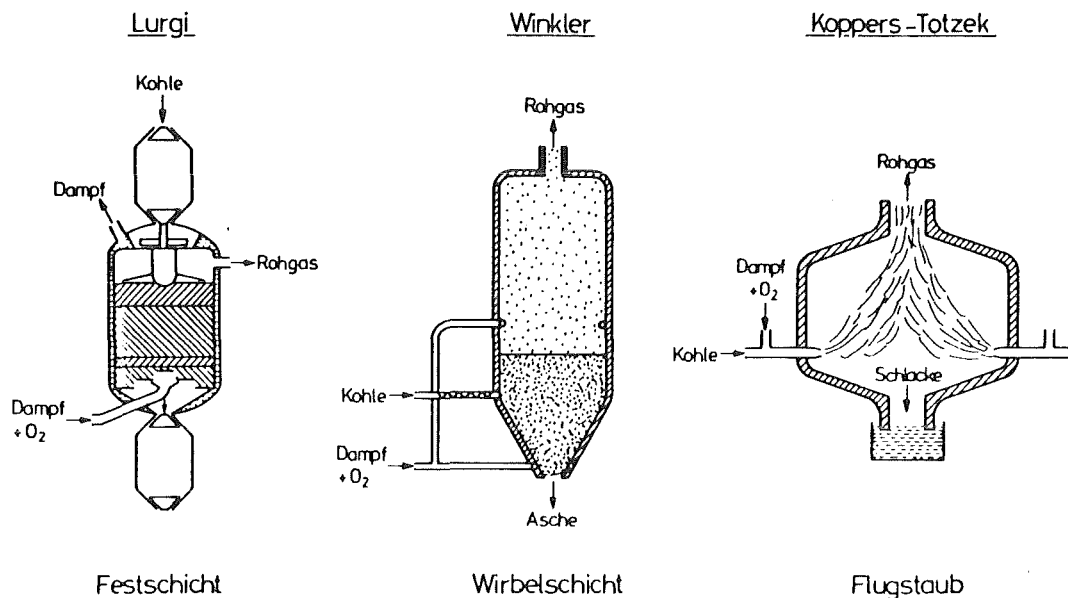


Abb. 3: Gasgeneratoren für die gegenwärtige industrielle Kohlevergasung

Im Lurgi-Gasgenerator erfolgt die Vergasung in einer Festschicht, in der Kohle und Vergasungsmittel im Gegenstrom geführt werden. Dadurch bilden sich im Gasgenerator ein Temperaturprofil und verschiedene Zonen aus, in denen mit steigender Temperatur die Kohle getrocknet und entgast, schließlich vergast und verbrannt wird. Das Verfahren arbeitet unter Drücken zwischen 25 und 35 bar. Die Kohle wird über ein Schleusensystem in den Gasgenerator eingeführt und die Asche über ein ähnliches System ausgeschleust. Der Gasgenerator ist ein wassergekühlter Druckbehälter mit Durchmessern zwischen 3 und 4 m.

Das Wirbelschichtverfahren, benannt nach seinem Erfinder Winkler, wurde bereits in den 20iger Jahren für die Kohlevergasung großtechnisch entwickelt. Kohle wird dabei in einem zylindrischen Gasgenerator, der am unteren Ende konisch zuläuft, in einer Wirbelschicht mit Dampf und Sauerstoff vergast. Der Kohleeintrag erfolgt etwa in der Mitte der Schicht mittels einer Schnecke. Das Vergasungsmittel wird einmal am unteren Ende zugeführt und zum anderen auch oberhalb der Wirbelschicht. Durch letztgenannte Maßnahme erreicht man, daß mitgerissene Kohleteilchen nachvergasst werden, womit ein hoher Kohlenstoffausbrand und - durch die sich oberhalb der Wirbelschicht ausbildende hohe Temperatur - eine starke Verminderung der Nebenprodukte verbunden sind. Das Winkler-Verfahren wird bisher nur bei Atmosphärendruck betrieben.

Im Flugstaubreaktor nach Koppers-Totzek wird feinkörnige Kohle in einer Flugstaubwolke mit Sauerstoff und Dampf vergast. Wegen der kurzen Verweilzeiten werden durch Zugabe relativ großer Sauerstoffmengen sehr hohe Temperaturen erzeugt und damit hohe Umsatzraten erreicht. Die Asche fällt flüssig an und wird am unteren Ende des Gasgenerators abgezogen. Unmittelbar oberhalb des Gasgenerators befindet sich ein Abhitzekessel zur Wärmerückgewinnung.

Der eigentliche Vergasungsprozeß ist bei allen Verfahren eingebettet in eine Vielzahl von Nebenanlagen, die im wesentlichen der Erzeugung und Aufbereitung der Reaktionspartner, der Bereitstellung von Energie- und Hilfsstoffen sowie der Weiterbehandlung von Produktgas, Abwasser und Asche dienen. Dies ist in den Abb. 4 und 5 unter dem Gesichtspunkt der Umweltrelevanz am Beispiel des Lurgi- bzw. Koppers-Totzek-Verfahrens dargestellt.

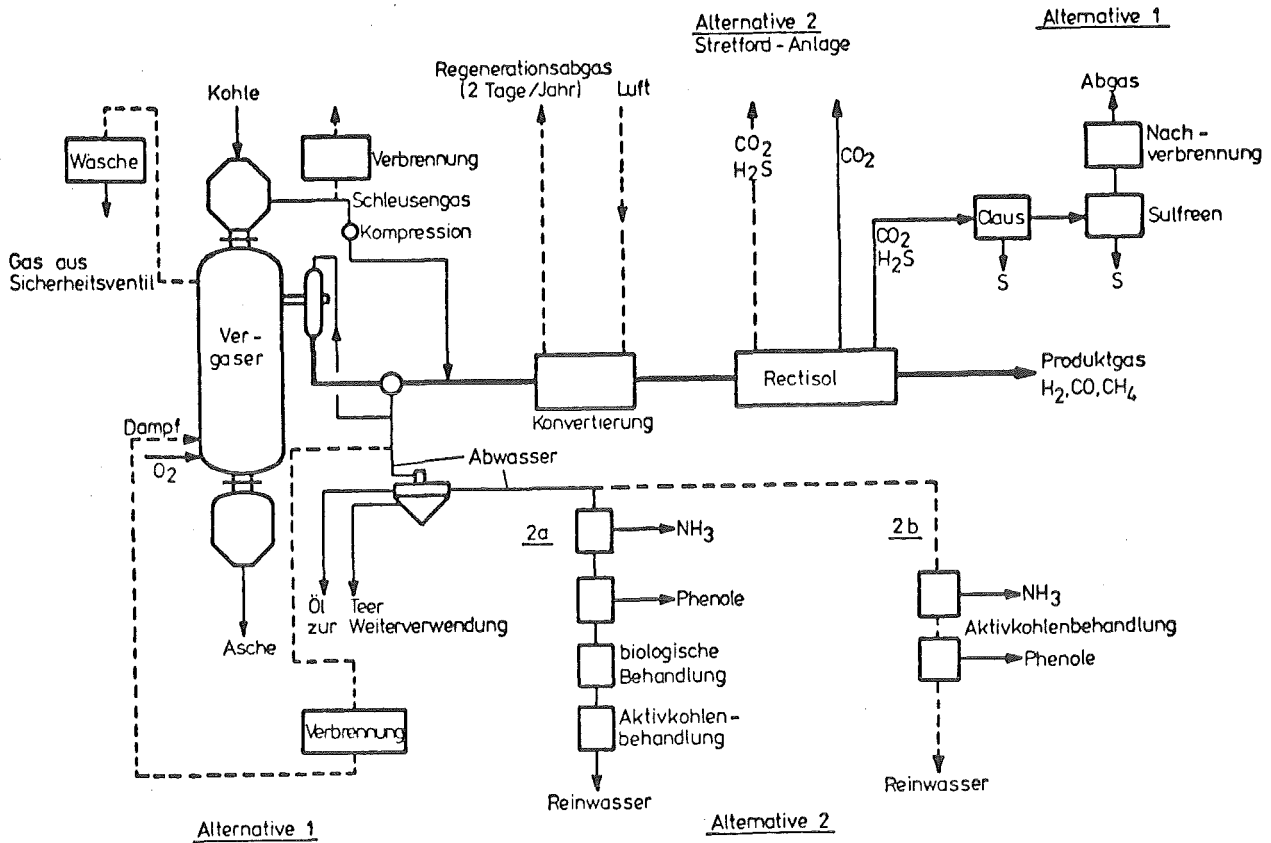


Abb. 4 : Vereinfachtes Fließbild des Lurgi-Verfahrens

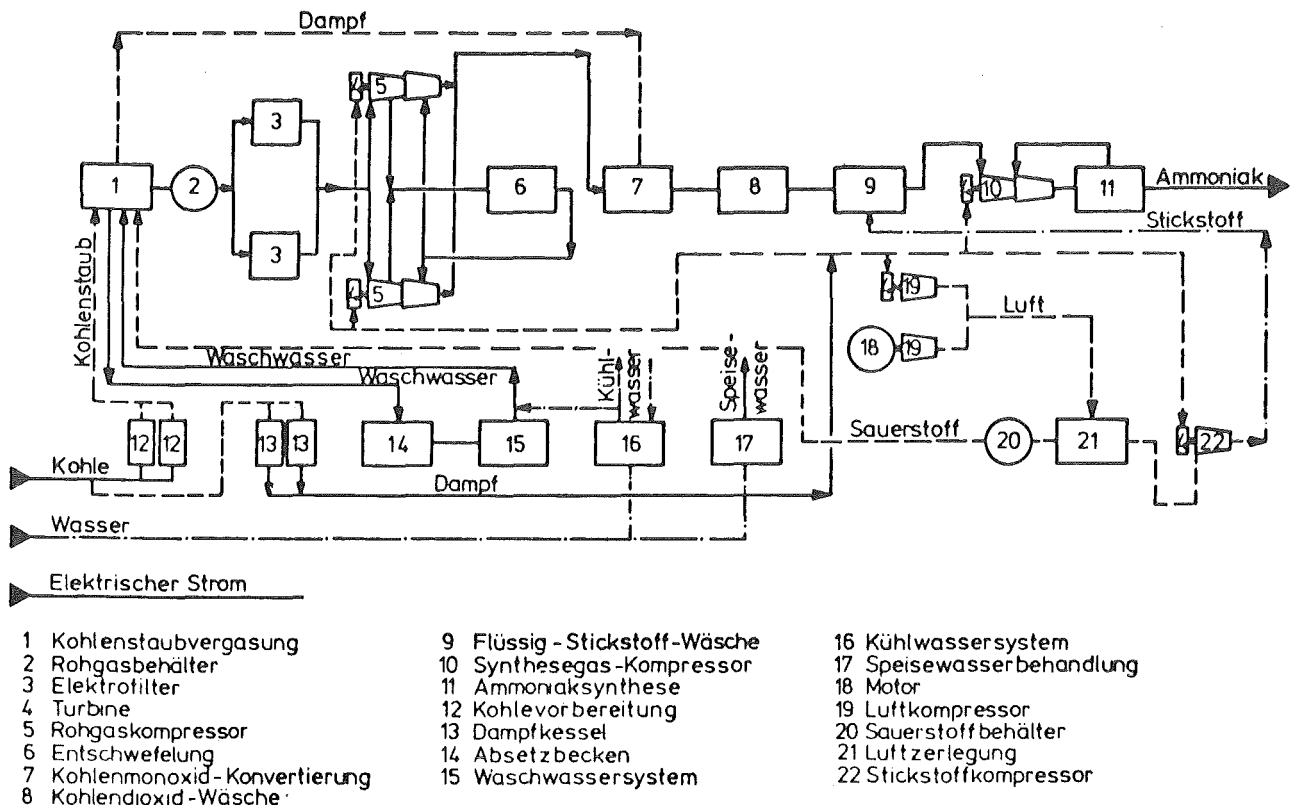


Abb. 5 : Vereinfachtes Fließbild des Koppers-Totzek-Verfahrens

Die Rohkohle wird nach einem Aufbereitungsschritt über eine Dosiervorrichtung der Vergasung zugeführt. Die Asche wird abgezogen, ausgeschleust, verwendet oder deponiert. Die mit dem Rohgas austretenden Feststoffe werden entweder wie die Asche behandelt oder - wenn sie größere Mengen an unverbrauchtem Kohlenstoff enthalten - in den Vergaser zurückgeführt. Kohle kann weiterhin als Brennstoff in einem Kraftwerk zur Bereitstellung von Strom und Dampf dienen. Bei den hier gezeigten autothermen Verfahren wird der Vergaser mit Dampf und Sauerstoff, die in gesonderten Anlagen erzeugt werden, betrieben. Das Rohgas wird entstaubt, gekühlt und schließlich gereinigt und in das Nutzgas für die nachfolgenden Synthesen oder den Verbraucher umgewandelt. Dabei lassen sich die Schadstoffe, insbesondere die Schwefelverbindungen, vollständig entfernen. Letztere werden z. B. in einer Clausanlage in elementarem Schwefel umgewandelt, der verkauft oder umweltfreundlich deponiert wird. Der Reinigungs- und Umwandlungsschritt besteht aus einer Vielzahl von Wäschen und anderen Apparaturen. Die dort entstehende Wärme kann zur Dampferzeugung genutzt werden. Das Abwasser muß aufbereitet werden, bevor es abgeleitet oder - und das wäre in Zukunft wünschenswert - rückgeführt werden kann.

Tabelle 4 ermöglicht einen Vergleich einiger Hauptdaten der drei heute angewandten Kohlevergasungsverfahren. Bezüglich der Kohlebasis für die Verfahren ist anzumerken, daß sich das Lurgi- und das Winkler-Verfahren höchstens für mäßig backende Kohlen eignen, während beim Koppers-Totzek-Verfahren die Backeigenschaften keine Rolle spielen. Außerdem verträgt das Festbettverfahren kein Feinkorn, so daß man nur stückige Kohle verwenden kann und die Feinkohle einem anderen Zweck, z. B. einem Kraftwerk zur Strom- und Dampferzeugung für die Kohlevergasung, zuführen muß. Weiterentwicklungen zielen darauf, die Kohlebasis

<u>Gasgenerator :</u>	<u>Lurgi</u>	<u>Winkler</u>	<u>Koppers-Totzek</u>
Typ	Festbett	Wirbelbett	Flugstaubwolke
Temp. °C	700 - 1000	ca 1000	> 1300
Druck bar	35	1	1
Leistung Gas m <sup>3</sup> /h	35-50000	17-20000	20000 (2 Köpfe) 50000 (4 Köpfe)
<u>Kohle :</u>			
Art	Braun- u. Steinkohle bis mäßig backend	Braun- u. Steinkohle bis mäßig backend	alle Kohlen
Körnung mm	6-40	0-8	< 0,1
<u>Rohgas :</u>			
Vol. % H <sub>2</sub>	37-39	35-46	31
CO	20-23	30-40	58
CO <sub>2</sub>	27-30	13-25	10
CH <sub>4</sub>	10-12	1-2	0,1
<u>Sonstige Kriterien :</u>	- gute Wärmenutzung - wenig Austrag - großer Kohleinhalt - Teer und Öl - hoher Dampfverbrauch	- kein Teer und Öl - großer Kohleinhalt - hoher Austrag - niedriger Vergasungsgrad	- keine Nebenprodukte - hohe Dampfzersetzung - kleiner Kohleinhalt - großer Kohle- und Sauerstoffverbrauch - hoher Austrag

Tabelle 4: Daten zum Vergleich industriell angewandter Kohlevergasungsverfahren

zu verbreitern. Beim Festbettverfahren macht sich ein hoher Methangehalt im Rohgas bemerkbar, der zum einen auf die gesonderte Entgasungszone, zum anderen auf den erhöhten Druck zurückgeht. Das Lurgi-Verfahren eignet sich dadurch besonders für die Herstellung eines heizwertkräftigen Gases und wurde ursprünglich auch für die Herstellung von Stadtgas entwickelt. Das Rohgas aus dem Winkler- und Koppers-Totzek-Verfahren zeichnet sich durch einen sehr geringen Methangehalt aus. Diese Verfahren eignen sich daher insbesondere für die Synthesegasherstellung.

In der Tabelle sind weiterhin einige Kriterien aufgeführt, die bei der Auswahl der Verfahren je nach Art und Kosten der Kohle und des angestrebten Produktes eine Rolle spielen.



Die industrielle Anwendung der Kohlevergasung ist z. Z. im wesentlichen ausgerichtet auf die Ammoniakherstellung für die Kunstdüngerproduktion sowie auf die sog. indirekte Hydrierung, bei der durch eine der Vergasung nachfolgende Synthese flüssige Treibstoffe erzeugt werden.

Einen Eindruck von der heutigen Anwendung der Kohlevergasung zur Ammoniak-Synthese gibt die Tabelle 5, in der die Synthesegaskapazitäten unter Berücksichtigung der Vergasungsverfahren und der Einsatzbrennstoffe, soweit sie in der westlichen Welt arbeiten, zusammengefaßt sind. Dabei wurde der Kohleverbrauch unter der Verwendung des durchschnittlichen Verbrauches für die Produktion von einer Tonne Produkt einschließlich des Anteils für die Energieerzeugung abgeschätzt. Außerdem wurde dazu angenommen, daß alle Anlagen 330 Tage im Jahr arbeiten, und daß für eine Tonne Ammoniak 14 Gcal an Kohle eingesetzt werden müssen. Für diese Randbedingungen zeigt die Tabelle 5, daß ungefähr 4 Mio. Tonnen SKE pro Jahr für die Produktion von Ammoniak in der westlichen Welt eingesetzt werden. Davon sind 27 % Braunkohle oder Lignit und 73 % Steinkohle. Bezüglich der Vergasungsverfahren hat das Verfahren nach Koppers-Totzek daran einen Anteil von 86,7 %, Winkler von 9,3 % und Lurgi von 4 %.

Prozeß	Anlagen Vergaser		Kohle	Mio. t SKE /a	NH <sub>3</sub> t /d	Land
Lurgi	2	5	Steinkohle	0,15	230	Pakistan, Korea
Winkler	3	6	Braunkohle	0,35	530	Jugoslawien Indien, Türkei
Koppers-Totzek	6	14	Braunkohle	0,69	1030	Zambia, Griechenland S.-Afrika, Indien u.a.
	6	14	Steinkohle	2,6	3920	
Gesamt	17	39		3,8	5710	

Tabelle 5: Heutige Anwendung der Kohlevergasung zur Ammoniakherstellung (westliche Welt)

Einen Überblick über die Verfahren der indirekten Verflüssigung und ihre Anwendung gibt Tabelle 6. Den größten Anteil hält dabei

Prozeß	Produkt	Entw.-stand	Produktion 1980 [t/a]	Ausg.-stoffe	Prozeß-Bedingungen			
					Reaktor-typ	Druck [bar]	Temp. [°C]	Katalysator
CH <sub>3</sub> OH-Synthese	CH <sub>3</sub> OH	größt.	12 · 10 <sup>6</sup>	Synthesegas H <sub>2</sub> :CO=2,3:1	Festbett	250 - 350	300 - 400	ZnO/Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
		Anw.				150 - 250	250 - 300	CuO/ZnO Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
						40 - 80	260	Cu, Zn, Cr
F.-T.-Synthese	aliph. KW	größt.	2,4 · 10 <sup>6</sup>	Synthesegas H <sub>2</sub> :CO=17:1 H <sub>2</sub> :CO=3:1	Festbett	23 - 25	220 - 250	Fällungs-Kat. Fe
		Anw.			Flugstrom	22	340	Schmelz-Kat. Fe
Mobil - Synthese	Aromaten < C <sub>10</sub>	techn.		CH <sub>3</sub> OH	Festbett (2-stufig)	14 - 23	320 - 450	Zeolith z. B. ZMS 5
		Erprob.			Wirbelbett	0,5 - 3,5	315 - 430	

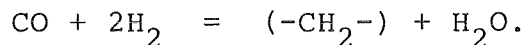
40920

Tabelle 6: Heutige Anwendung der indirekten Kohleverflüssigung

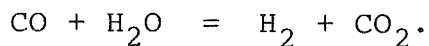
die Methanol-Synthese. So wurden im Jahre 1980 rund 12 Mio. t Methanol aus Synthesegas hergestellt. Methanol wird heute verwendet als Ausgangsstoff für zahlreiche chemische Prozesse und gewinnt in Zukunft an Bedeutung als alternativer Vergaserkraftstoff oder als Ausgangsstoff für die Mobil-Oil-Synthese. Anstelle der älteren Hochdruck-Methanol-Synthese der BASF oder der UK-Wesseling (350 bar, 350 °C, ZnO/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Katalysator) stehen heute moderne Nieder- und Mitteldruckverfahren zur Verfügung, die bei neu errichteten Anlagen dominieren. Der Prozeß der ICI, mit dem bereits ein Drittel der Weltproduktion an Methanol erzeugt wird, arbeitet bei 100 bar und 250 °C mit Kupfer-/Zink-/Aluminium-Katalysatoren. Lurgi bietet ein Niederdruck-Verfahren an mit Drucken um 40 bis 50 bar und Temperaturen von 260 °C.

Kombiniert man den Vergasungsprozeß mit der Methanol-Synthese, so kann man bei Optimierung mit Druckvergasungsprozessen geringste Rohmaterial- und Energieverbräuche von 10,5 Gcal/t Methanol (1,5 t Kohle des Heizwertes 7 Gcal/t) erreichen. Auch der bei 1 bar betriebene Koppers-Totzek-Prozeß kann günstig mit einer Methanolanlage verbunden werden, wobei der Kohleverbrauch ca. 12,4 Gcal/t Methanol beträgt.

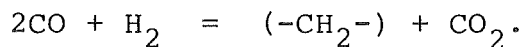
Die Fischer-Tropsch-Synthese wandelt Synthesegas in meist lineare aliphatische Kohlenwasserstoffe um in einem weiten Bereich des Molekulargewichtes von gasförmigen Produkten bis zu hochsiedenden Paraffinen. Die erste Grundreaktion ist die eigentliche Fischer-Tropsch-Umsetzung:



Die zweite Grundreaktion ist die homogene Wassergasreaktion, die besonders leicht als Folgereaktion an Eisenkatalysatoren abläuft:



Unter Berücksichtigung dieser Folgereaktion ergibt sich für die Fischer-Tropsch-Reaktion an Eisenkatalysatoren die Bruttogleichung:



Will man über die Fischer-Tropsch-Synthese Kraftstoffe wie Benzin und Diesel erzeugen, so kann das entweder dadurch erreicht werden, daß man selektiv hauptsächlich kleinere Moleküle synthetisiert und diese anschließend zu größeren Molekülen überführt, oder indem man zunächst große Kohlenwasserstoffmoleküle erzeugt, die anschließend destillativ getrennt werden oder durch Hydrocracking in die gewünschte Fraktion umgewandelt werden.

Die Verfahrensprinzipien - Festbettreaktor oder zirkulierendes Wirbelbett - unterscheiden sich im wesentlichen in Bezug auf das Vergrößerungsverhalten. Die Vergrößerung des Festbettreaktors ist begrenzt, so daß man für eine wirtschaftliche Synthese in sehr großen Einheiten die zirkulierende Wirbelschicht bevorzugt.

Das Fischer-Tropsch-Verfahren in Verbindung mit der Lurgi-Druckvergasung wird heute vorwiegend in Süd-Afrika eingesetzt. Seit Beginn der 60er Jahre ist die Anlage Sasol I mit 17 Lurgi-Vergasern in Betrieb, wobei jährlich 2,6 Mio. t Steinkohle vergast und 270.000 t Benzin gewonnen werden. Gleichzeitig werden Chemierohstoffe und Stadtgas erzeugt. Dabei kommt sowohl die Festbettsynthese als auch die Synthese in der zirkulierenden Wirbelschicht zur Anwendung.

Ein zweites Werk, Sasol II, für eine vorgesehene Produktion von 1,5 Mio. t/a Benzin (verkaufsfähige Produkte insgesamt 2,1 Mio. t/a) wurde 1980 in Betrieb genommen. Ein drittes, gleich großes Werk befindet sich im Bau. Bei diesen Erweiterungen wird in der Fischer-Tropsch-Synthese ausschließlich das Verfahren der zirkulierenden Wirbelschicht eingesetzt. Abb.6 zeigt ein schematisiertes Fließbild dieser Anlage. Die wesentlichen Schlüsseldaten des Werkes Sasol II sind in Tabelle 7 zusammengestellt.

SASOL II - ANLAGE

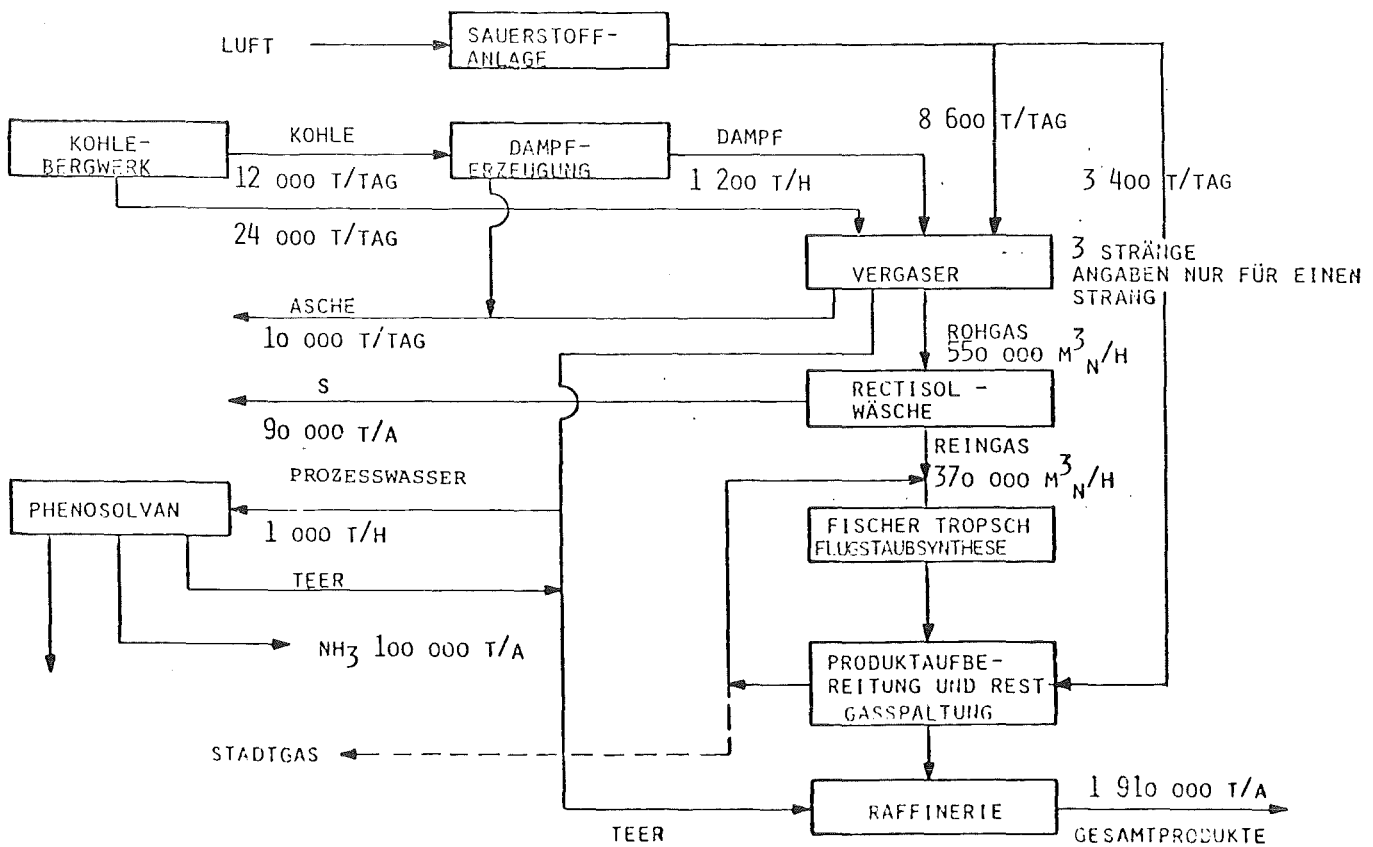


Abb. 6: Schematisches Fließbild des Kohlevergasungs- und Synthesewerkes Sasol II

KÜHLE

Schwarzer Lignit Heizwert (trocken)	23.000	kJ/kg
Oberflächenfeuchte	6 - 11	%
innere Feuchte	5	%
Asche (waf)	21,5	%
Kohlensstoff (waf)	79,6	%
Schwefel (waf)	1,3	%
Wasserstoff (waf)	4,3	%
Stickstoff (waf)	2,0	%
Sauerstoff (waf)	13,6	%

VERGASUNG

Kohledurchsatz	8,4	Mio t/a
Dampfverbrauch	1.230	t/h
Sauerstoffverbrauch	8.600	t/d
Vergaser	36 mit je 4	m Durchmesser
Rohgasproduktion	1,65	Mio m <sup>3</sup> (i.N.)/h

RECTISOL-WASCHE

Rohgas	1,65	Mio m <sup>3</sup> (i.N.)/h
Reingas	1,1	Mio m <sup>3</sup> (i.N.)/h
Anzahl der Stränge	4	
Schwefelgehalt im Reingas	0,07	ppm

GASZUSAMMENSETZUNG

	Vol.-%	Rohgas	Reingas
CO <sub>2</sub>		32,0	1,5
H <sub>2</sub> + CO		57,1	84,1
CH <sub>4</sub>		9,4	13,5
H <sub>2</sub> S		0,7	-
N <sub>2</sub> + A		0,3	0,5
C <sub>n</sub> H <sub>m</sub>		0,5	0,4

SAUERSTOFFERZEUGUNG

Durchsatz	6 Einheiten je	2.300	t/d
Sauerstoffdruck		34	bar

DAMPFERZEUGUNG

Durchsatz	6 Dampferzeuger je	540	t/h
Dampf Temperatur		450	°C
Dampfdruck		40	bar
Kohleverbrauch		4,4	Mio t/a

KÜHLWASSERSYSTEM

Wasserumlauf	165.000	m <sup>3</sup> /h
Temperaturbereich	27 - 40	°C
Anzahl der Kühltürme	4	
Abmessungen	151	m Höhe
	105	m Durchmesser (unten)
Typ	Naturzug	

SYNTHOL ANLAGE (FISCHER TROPSCH)

Anzahl der Reaktoren	7
Synthesegasverbrauch (ges.)	1,9 Mio m <sup>3</sup> (i.N.)/h

RESTGASUMWANDLUNG

Gaszufuhr	225.000	m <sup>3</sup> (i.N.)/h (90 % CH <sub>4</sub> )
Gasproduktion	550.000	m <sup>3</sup> (i.N.)/h (4 % CH <sub>4</sub> )
Sauerstoffverbrauch	3.400	t/d
Anzahl der Umformer		

SASOL-II-PRODUKTE

Motorenkraftstoff	1.500.000	t/a
Äthylen	185.000	t/a
Chemikalien	85.000	t/a
Teer-Produkte	180.000	t/a
Ammoniak	100.000	t/a
Schwefel	90.000	t/a
verkäufliche Gesamtproduktion	2.140.000	t/a

PERSONALBEDARF

Fachkräfte und Angelernte

Betriebspersonal	1.000
Wartungspersonal	1.800
Technisches Personal	160
Verwaltungspersonal	400
Bergwerkspersonal	700

Ungelernte Arbeiter

in der Anlage	1.000
im Bergwerk	2.000

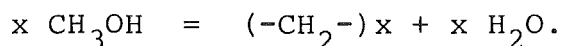
FLÄCHENBEDARF

Chemische Anlagen	196	ha
Tanklager	93	ha
Verwaltung u. Versand	135	ha
Zentralbereich (Werkstätten usw.)	33	ha
Abwasserbehandlung	165	ha
Ascheentsorgung	180	ha

Tabelle 7 : Schlüsseldaten des Kohlevergasungs- und Synthesewerkes Sasol II

Eine Neuentwicklung zur Herstellung von Benzin aus Kohle über indirekte Hydrierung stellt das Mobil-Oil-Verfahren dar, das von Methanol als Zwischenprodukt ausgeht. Dieser Prozeß ist inzwischen technisch erprobt, wird jedoch kommerziell noch nicht angewandt.

Im Mobil-Prozeß wird Methanol unter Dehydratisierung zunächst in Dimethyläther umgewandelt und setzt sich unter weiterer Dehydratisierung zu Kohlenwasserstoffen um. Die Reaktionsgleichung kann als Summengleichung folgendermaßen dargestellt werden.



Durch die Verwendung neuer zeolithischer Katalysatoren mit besonderer Porenstruktur werden vorwiegend Kohlenwasserstoffe mit 4 bis 10 C-Atomen mit hohen Aromatanteilen erhalten. Diese Kohlenwasserstoffe weisen Oktanzahlen von 90 bis 100 ohne Bleizusatz auf.

Ausgehend von Rohmethanol mit 17 % Wasser, das nicht gereinigt werden muß, werden Gesamtausbeuten an Kohlenwasserstoffen von 36,2 Gew.-% gefunden. Benutzt man Reinmethanol als Ausgangsstoff, so erhöhen sich die Ausbeuten auf 43,6 Gew.-%. Nimmt man einen spezifischen Kohlenverbrauch von 1,5 t Kohle (7.000 Mcal/t) pro Tonne Methanol an, so ergibt sich ein Kohlenverbrauch zur Produktion von 1 t Kohlenwasserstoffe von 3,4 t. Diese Verbrauchsziffer erscheint wesentlich günstiger als bei der Fischer-Tropsch-Synthese (4 t Kohle mit 7.000 Mcal/t pro t Kohlenwasserstoff). Bemerkenswert ist, daß ungefähr 80 % der Kohlenwasserstoffe in der Fraktion von Kohlenwasserstoffen mit über 5 C-Atomen liegen. Diese Ausbeute erhöht sich durch Alkylierung der niedrig siedenden Kohlenwasserstoffe, wodurch eine Ausbeute von 86 % Gasolin, 13,6 % Flüssiggas und 1,4 % Gas entsteht.

### 1.1.3 Weiterentwicklung der konventionellen Vergasung<sup>x)</sup>

#### Ziele der Weiterentwicklung:

Für die künftigen Aufgaben der Vergasung von Kohle arbeitet man in verschiedenen Ländern intensiv an deren Weiterentwicklung, wobei zusammengefaßt folgende Tendenzen aufgezeigt werden können:

- Fortentwicklung der konventionellen Verfahren im Hinblick auf eine Verbreiterung der Kohlebasis, eine Erhöhung des Wirkungsgrades und hinsichtlich des Betriebes bei höherem Druck.
- Erzeugung von Methan als Erdgasersatz durch Anwendung der hydrierenden Vergasung.
- Anwendung der Vergasung zur umweltfreundlichen Stromerzeugung.
- Einsparung von Kohle durch Einsatz von Wärme aus Hochtemperaturkernreaktoren.

Im folgenden werden im wesentlichen die Projekte in der Bundesrepublik Deutschland, in Großbritannien, in den Vereinigten Staaten von Amerika und in Indien anhand von tabellarischen Zusammenstellungen vorgestellt.

#### Entwicklungsprojekte:

##### Bundesrepublik Deutschland:

Zur Weiterentwicklung der konventionellen Vergasung sind in der Bundesrepublik Deutschland zur Zeit sieben größere Demonstrationsanlagen mit einem Durchsatz zwischen 5 und 10 t Kohle/h in Betrieb (Tab. 8 , Zeilen 1 bis 7). Bis auf das von Rheinbraun betriebene Hochtemperatur-Winkler-Verfahren werden sie für den Einsatz von Steinkohle entwickelt. Ruhrgas, Ruhrkohle und Steag arbeiten gemeinsam mit der Lurgi als Engineering-Unternehmen an der Weiterentwicklung der Druckvergasung. Ziel ist eine Durchführung der Wanderbettvergasung nach Lurgi bei 100 bar zur Er-

---

<sup>x)</sup> siehe auch: van Heek, K. H.: Überblick über den internationalen Entwicklungsstand der Kohlevergasungsverfahren. Stahl und Eisen 100 (1980) Nr. 7.



Nr.	Projektbezeichnung	Betreiber	Technische Kennzeichen	Stand und Aufgabenstellung
1	Festbettdruckvergasung, Lurgi	Ruhrkohle, Ruhrgas, Steag	Festbettvergasung von Steinkohle mit Dampf und Sauerstoff, getrennter Abzug und Aufbereitung von Entgasungs- und Vergasungsgas; 100 bar, 700 bis 1000°C, 7 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Dorsten; Weiterentwicklung des Lurgi-Verfahrens auf hohe Drücke zur Erzeugung von SNG
2	Kohlenstaubdruckvergasung, Texaco	Ruhrkohle, Ruhrchemie	Flugstaubvergasung von Steinkohle einer Kohle-Wasser-Suspension mit Sauerstoff; 40 bar, 1300 bis 1500°C, 6 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1978 in Oberhausen; Weiterentwicklung des Texaco-Verfahrens für die Herstellung von Synthesegas, auch Einsatz von Hydrirückständen
3	Saarberg-Otto-Prozeß	Saarbergwerke Dr. C. Otto	Flugstaubvergasung von Steinkohle in einem Schlackenbadgenerator mit O <sub>2</sub> ; 30 bar, 1500 bis 1700°C, 10 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Völklingen/Saar; Weiterentwicklung des Rummel-Generators für Druckbetrieb zur Erzeugung von Synthesegas und Brenngas bei späterem Luftbetrieb
4	Shell-Koppers-Prozeß	Shell, Krupp-Koppers	Flugstaubvergasung von Steinkohle mit Sauerstoff und Dampf; 30 bar, 1500 bis 1850°C, 6 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Hamburg-Harburg; Weiterentwicklung des Koppers-Totzek-Gasgenerators für Druckbetrieb zur Herstellung von Synthesegas und Brenngas bei späterem Luftbetrieb
5	Ballastkohlenvergasung	Kohlegas-Nordrhein	Festbettvergasung von geformten, aschereichen Steinkohlen im diskontinuierlichen Betrieb; Heißblasen mit Luft, Vergasen mit Dampf; 1 bis 6 bar, 950 bis 1150°C, 1,6 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Hückelhoven; Herstellung von Brenn- und Synthesegas aus ballastreichen Kohlen
6	Hochtemperatur-Winkler	Rheinische Braunkohlenwerke	Wirbelschichtvergasung von Braunkohle mit Sauerstoff und Dampf, Zugabe von CaCO <sub>3</sub> zur Erhöhung des Ascheschmelzpunktes und als S-Akzeptor; 10 bar, 1100°C, 1 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979 in Frechen-Wachtberg; Herstellung von Synthese- und Reduktionsgas aus Braunkohle
7	VEW-Teilvergasung	Vereinigte Elektrizitätswerke Westfalen	Partielle Vergasung von Steinkohle mit Luft; ohne Druck; 1 t/h; Erzeugung elektrischer Energie über Kohlen- gas mit Restkoks	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1977 in Stockbm
8	PNP <sup>1)</sup> - Hydrierende Vergasung	Rheinische Braunkohlenwerke und PNP-Partner	Wirbelschichtvergasung von Kohle mit H <sub>2</sub> ; 0,1 t/h (H <sub>2</sub> -Erzeugung durch CH <sub>4</sub> -Spaltung in einem mit nuklearer Prozeßwärme beheizten Röhrenspaltöfen)	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1975 in Wesseling; Herstellung von SNG unter Nutzung von Prozeßwärme aus Hochtemperatur-Kernreaktoren; Versuchsphase 15 t/h 1982/83
9	PNP-Wasserdampfvergasung	Bergbau-Forschung und PNP-Partner	Wirbelschichtvergasung von Kohle mit Dampf unter Zuführung von nuklearer Prozeßwärme; 40 bar, 800°C, 0,2 t/h	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1976 in Essen; Herstellung von Synthesegas und SNG unter Nutzung von Prozeßwärme aus Hochtemperatur-Kernreaktoren

<sup>1)</sup> Prototypanlage Nukleare Prozeßwärme: PNP-Partner: Bergbau-Forschung, Essen; Kernforschungsanlage, Jülich, Gesellschaft für Hochtemperaturreaktor-Technik mbH, Bensberg; Hochtemperatur-Reaktorbau, Mannheim; Rheinische Braunkohlenwerke, Köln.

Tabelle 8: Projekte und Versuchsanlagen zur Kohlevergasung  
in der Bundesrepublik Deutschland

reichung eines höheren Methangehaltes und eines besseren Durchsatzes. Durch Trennung von Entgasungs- und Vergasungsgas will man außerdem die Gasaufbereitung verbessern und durch geeignete Maßnahmen im Gasgenerator erreichen, daß sich auch stark backende Kohlen einsetzen lassen. Shell und Krupp-Koppers entwickeln mit dem Shell-Koppers-Prozeß einen Koppers-Totzek-Gasgenerator, der bei Drücken bis zu 30 bar arbeiten soll. Ruhrkohle und Ruhrchemie arbeiten mit ihrem Projekt "Flugstaubdruckvergasung" an

einer weiteren Entwicklung des Texaco-Verfahrens, die Saarbergwerke AG entwickeln gemeinsam mit der Firma Dr. C. Otto den Saarberg-Otto-Prozeß, ein Vergasungsverfahren, das - aufbauend auf dem bekannten Rummel-Prozeß - Kohle über einem Schlackenbad, d. h. bei hohen Temperaturen, vergast. Schließlich arbeitet die Kohlegas Nordrhein - ein Tochterunternehmen des Steinkohleerzeugers Sophia Jacoba und des Flick-Konzerns - an dem Projekt "Ballastkohlenvergasung" mit dem Ziel, aschereiche Steinkohlen zu vergasen, wobei man unter Rückführung des Schwelgases ein teerfreies Erzeugnis erhält.

Shell-Koppers-, Texaco- und Saarberg-Otto-Verfahren sind ausgesprochene Hochtemperaturprozesse. Das dabei entstehende Gas besteht vorwiegend aus Kohlenmonoxid und Wasserstoff und ist frei von Teer und Nebenprodukten, so daß es sich in hervorragendem Maße für chemische Synthesen eignet. Die Festbettdruckvergasung in Weiterführung des Lurgi-Verfahrens zielt in erster Linie auf die Herstellung von SNG als Erdgasersatz ab. Deutsche Projektvorschläge für eine industrielle Nutzung von Kohlegas sind in Tabelle 9 zusammengestellt.

Unternehmen	Produkte	Einsatzstoffe	Technische Verfahren	Planung, Bau, Betrieb	Standort
Ruhrkohle AG, Ruhrgas AG	$0,23 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ SNG 0,5 Mio t/a Methanol	$1,5 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Lurgi Festbettvergasung	1981/86 1987/91 ab 1992	Ruhrrevier
Ruhrkohle AG, Ruhrchemie AG	$0,7 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Synthesegas	$0,4 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Texaco Kohlenstaubvergasung	1980/82 1981/84 ab 1985	Oberhausen-Holten
Thyssengas GmbH	$0,1 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ SNG	$0,3 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Synthesegas	Methanisierung in einer Wirbelschicht	1982/84 1983/85 ab 1985	Oberhausen-Holten
Deutsche Shell AG	0,4 Mio t/a Methanol oder 0,2 Mio t/a Methanol und $0,5 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Synthesegas	$0,6 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Shell-Koppers Kohlenstaubvergasung	1981/83 1982/85 ab 1986	Nordseeküste
Deutsche Texaco AG, Ruhrkohle AG	$0,65 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Synthesegas	$0,36 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Texaco Kohlenstaubvergasung	offen offen offen	Moers-Meerbeck
Gelsenberg AG, Fried. Krupp GmbH	Synthesegas zur Erzeugung von 0,5 Mio t/a Methanol	$1,0 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Koppers-Totzek- Vergasung	1980 1982 ab 1985	Nordseeküste
Klöckner-Werke AG	$2 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Synthesegas für Stahlwerk	$0,9 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Kohlenstaub- vergasung im Eisenbadreaktor	1980/83 1982/84 ab 1984	Bremen
PCV Projektierung Chemische Ver- fahrenstechnik GmbH	$0,4 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Industrieheizgas	$0,25 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Festbettvergasung	1980/84 1983/86 1986	Hückelhoven
Saarbergwerke AG	$0,8 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Synthesegas für ein 55 MW-Kombi- Kraftwerk	$0,4 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Steinkohle	Saarberg-Otto-Vergasung	offen offen offen	Völklingen
Rheinische Braun- kohlenwerke AG	$0,9 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ Synthesegas zur Methanolerzeugung	$1,5 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Rohbraunkohle	Hochtemperatur- Winkler-Vergasung	1980/83 1982/84 ab 1984	Berrenrath
Rheinische Braun- kohlenwerke AG	$0,6 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ SNG	$4,4 \cdot 10^6 \text{ t/a}$ Rohbraunkohle	Hydrierende Vergasung	1984/85 1985/90 ab 1990	Rheinisches Braunkohlenrevier

Tabelle 9: Projektvorschläge für die industrielle Erzeugung von Kohlengas (Stand März 1981 ; Specks und Klusmann: Stand und Aussichten der Vergasung und Verflüssigung von Steinkohle, Glückauf, 117 (1981), Nr. 11a)

## Großbritannien

Der industrielle Einsatz der Kohlevergasung für die Herstellung von Stadtgas wurde Mitte der 70er Jahre mit der Schließung der Vergasungsanlage Westfield (Schottland) beendet. Diese Anlage steht seitdem jedoch als Versuchszentrum zur Verfügung. Unter anderem wurde hier, wie Tabelle 10 zeigt, der bereits in den 60er Jahren von British Gas entwickelte Slagging Gasifier für den Einsatz amerikanischer Kohlen weiterentwickelt. Dazu wurde ein be-

Projektbezeichnung	Betreiber	Technische Kennzeichen	Stand und Aufgabe
„Slagging Gasifier“ Westfield	British Gas, amerikanische Firmen, Lurgi	Festbett-(Lurgi-)Vergaser mit Abzug flüssiger Schlacke, Demonstrations-Gasgenerator	Durchführung von Versuchen mit Kohle aus den Vereinigten Staaten von Amerika für die Conoco-Demonstrationsanlage
-	NCB-CRE <sup>1)</sup> , Leatherhead	Wirbelschichtvergasung unter Wärmeübertragung durch heißen Feinkoks – COGAS-Gasgenerator; 2 bar, 900°C, 2 t/h	Durchführung von Versuchen für die geplante Demonstrationsanlage der ICGG <sup>1)</sup> (Vereinigte Staaten von Amerika)
-	NCB-CRE <sup>1)</sup> , Cheltenham	Wirbelschichtvergasung mit Dampf und Luft; 6 bar, 1050°C, rd. 0,1 t/h	Kleinere Versuchsanlagen in Betrieb; Erzeugung von Brenngas zum Einsatz zur Stromerzeugung
Composite Gasifier	British Gas	Festbettvergasung mit Abzug flüssiger Schlacke, kombiniert mit Flugstaubvergasung; 0,8 t/h	Anlage in Planung
Chemically active fluidized bed	Esso Petroleum, Abingdon	Wirbelschichtvergasung von Kohle mit Dampf und Luft	Versuchsanlage in Betrieb; Vergasung von amerikanischen Kohlen zur Herstellung von Brenngas für Industrief Feuerungen

<sup>1)</sup> National Coal Board – Coal Research Establishment. – <sup>2)</sup> Illinois Coal Gasification Group (Zusammenschluß von Gasverteilungsunternehmen).

Tabelle 10: Versuchsanlagen und Projekte in Großbritannien

stehender Lurgi-Vergaser mit trockener Entaschung entsprechend umgebaut, so daß die Versuche im vollen Maßstab durchgeführt werden konnten. Auch das zweite aufgeführte Projekt diente der Absicherung einer amerikanischen Entwicklungslinie, des COGAS-Projektes. In der Versuchsstation des National Coal Board in Leatherhead werden dazu in einem zweistufigen, allothermen Vergaser Versuche zur Wärmeübertragung mit heißem Feinkoks durchgeführt. Eine weitere kleine Versuchsanlage des National Coal Board befaßt sich mit der Erzeugung von Brenngas zum Einsatz für die Stromerzeugung, wobei insbesondere die Fragen der Reinigung des Gases von Staub und Schwefel bei hohen Temperaturen das Versuchsprogramm mitbestimmen. Mit der Konzeption des

Composite Gasifier versucht man, einen Festbettvergaser so mit einem Flugstaubvergaser zu kombinieren, daß diese zweistufige Einheit nunmehr auch Feinkohle vergasen kann, womit ein Nachteil des Festbettvergasers überwunden wäre. Schließlich arbeitet man bei einem Projekt von Esso daran, in einer Versuchsanlage Kohle mit Luft und Dampf zu einem Brenngas für Industriefeuerungen umzuwandeln.

Vereinigte Staaten von Amerika

Angesichts des hohen Je-Kopf-Energieverbrauchs sowie des Anteils des Gases von 30 % am Primärenergieverbrauch einerseits und der zwar großen, aber doch beschränkten Gasreserven innerhalb der Vereinigten Staaten von Amerika andererseits zeichnet sich für die fernere Zukunft eine Verknappung des Erdgases ab. Da die Vereinigten Staaten von Amerika über sehr große Kohlevorräte verfügen, war es daher ein Ziel der seinerzeit beginnenden Entwicklung von Vergasungsverfahren, aus Kohle SNG als Austauschgas für Erdgas herzustellen. Dazu wurde eine Reihe von Versuchsanlagen betrieben, die in Tabelle 11, Zeilen 1 bis 4, zusammengestellt sind. Die HYGAS- und BI-GAS-Anlagen haben das Ziel, dafür

Versuchsanlagen Projektbezeichnung	Betreiber	Technische Kennzeichen	Stand und Aufgabenstellung
HYGAS	IGT Chicago	Zweistufige, hydrierende Vergasung in Flugstaub- und Wirbelschichtreaktor; Wasserdampfvergasung des Restkokes; 70 bar, 3 t/h	Pilotanlage in Betrieb seit dem Jahre 1972; zur Zeit Versuche zur Vorbereitung von Engineering-Arbeiten für eine Demonstrationsanlage; SNG-Erzeugung durch hydrierende Vergasung
BIGAS	BCR Monroeville, Pa.	Hydrierende Vergasung der Kohle in der Flugstaubwolke und Vergasung des Restkokes mit Wasserdampf; 70 bar, 5 t/h	Pilotanlage in Betrieb seit dem Jahre 1976; SNG-Erzeugung durch hydrierende Vergasung
CO <sub>2</sub> -Akzeptor	Conoco	Wasserdampfvergasung mit exothermer CO <sub>2</sub> -Bindung in der Wirbelschicht und anschließender Methanisierung; 10 bar, 2 t/h	Pilotanlage in Betrieb in den Jahren von 1972 bis 1977; Arbeiten abgeschlossen
Synthane	COE-ERC Pittsburgh	Wirbelschichtvergasung mit Dampf und Sauerstoff, anschließend Methanisierung; 40 bis 70 bar, 3 t/h	Pilotanlage in Betrieb in den Jahren von 1976 bis 1978; Arbeiten abgeschlossen
Katalytische Vergasung	Exxon, Baytown	Vergasung mit CO und H <sub>2</sub> unter Zuführung von Katalysatoren, CH <sub>4</sub> -Abtrennung durch Tieftemperaturzerlegung; 700°C, 35 bar, 1 t/Tag	Versuchsanlage in Betrieb seit dem Jahre 1979; Herstellung von SNG durch katalysierte Vergasung
Demonstrationsanlagen des US-DOE			
-	Conoco	Einsatz des „Slagging Gasifiers“ mit anschließender Methanisierung	Planung der Anlagen wird durchgeführt mit dem Ziel, ein Konzept für die Demonstration der Funktionstüchtigkeit der SNG-Erzeugung auszuwählen
-	ICGG	Einsatz des COGAS-Gasgenerators mit anschließender Methanisierung (Nebenprodukt: Öl aus vorgeschalteter Pyrolyse)	

Tabelle 11: Projekte und Versuchsanlagen zur Erzeugung von SNG in den Vereinigten Staaten von Amerika

die hydrierende Vergasung anzuwenden und damit eine energetisch günstigere Umwandlung von Kohle zu Methan zu erreichen, als sie beispielsweise über Wasserdampfvergasung und anschließende Methanisierung des Synthesegases zu erwarten ist. Dieser Weg wurde über den  $\text{CO}_2$ -Akzeptor-Prozeß und das Synthane-Verfahren angestrebt; beide Entwicklungsrichtungen muß man jedoch wohl als gescheitert ansehen. Ein ganz neuer Prozeß ist die katalytische Vergasung der Exxon, die sich jedoch noch in einem kleinen Versuchsmaßstab befindet. Die in Tabelle 11, Zeilen 5 und 6, aufgeführten Demonstrationsanlagen befinden sich zur Zeit im Stadium der Planung, die mit dem Ziel durchgeführt wird, ein Konzept für die SNG-Erzeugung zur Realisierung auszuwählen. Beide Demonstrationsanlagen gehen den konventionellen Weg über Wasserdampfvergasung und Methanisierung zur  $\text{CH}_4$ -Erzeugung.

Neben der Erzeugung von Erdgas-Austauschgas ist in den letzten Jahren ein steigendes Interesse an der Herstellung von Schwachgas für die Verwendung in Industriefeuerungen, für den Einsatz in kombinierten Gas-Dampf-Turbinenkraftwerken zur Stromerzeugung und letztlich auch für Synthesezwecke in den Vereinigten Staaten von Amerika zu verzeichnen. Entsprechend zeigt Tabelle 12 eine Vielzahl von Projekten und Versuchsanlagen. Diese befinden sich in unterschiedlichen Entwicklungsstadien, von dem fast kommerziellen Einsatz zweier Lurgi-Vergaser bis zur Vergasung im Salzbad, die die Atomics International versuchsweise durchführt.

Das US Department of Energy fördert gegenwärtig die Planung von zwei Demonstrationsanlagen - Tabelle 12, Zeilen 1 und 2; einmal auf der Basis des vom Institute of Gas Technology entwickelten U-Gas-Vergasers und zum anderen auf der Basis des Texaco-Vergasers, um die technische und wirtschaftliche Machbarkeit der Umwandlung von Kentucky-Kohle in sauberes Brenngas für Industriefeuerungen oder in Synthesegas zur Ammoniak-erzeugung unter Beweis zu stellen.

Demonstrationsanlagen des US-DOE <sup>1)</sup>			
Projektbezeichnung	Betreiber	Technische Kennzeichen	Stand und Aufgabenstellung
Memphis	Memphis Light, Gas and Water Division, Memphis	Einsatz des U-Gas-Vergasers	Planungsstadium; Nachweis der technischen und wirtschaftlichen Machbarkeit der Umwandlung von Kentucky-Kohle (backend, hoher Schwefelgehalt) als Brenngas für Industriefeuerungen
Grace	W. R. Grace & Co., New York	Einsatz des Texaco-Vergasers mit 85 bar, 1700 t/Tag	Planungsstadium wie Memphis, aber Herstellung von Synthesegas zur Ammoniakherzeugung
Versuchsanlagen			
-	General Electric and Commonwealth, Edison	Zwei Lurgi-Vergaser mit Luftbetrieb, 480 t/Tag	Anlage in Betrieb; Herstellung und Verwendung von sauberem Brenngas zur Stromerzeugung
-	US-DOE <sup>1)</sup> , ERC <sup>2)</sup> , Morgantown	Festbettreaktor mit Rührer; Vergasung mit Dampf, Luft und O <sub>2</sub> ; 20 bar, 10 t/Tag	Anlage in Betrieb seit dem Jahre 1968; Tests mit unterschiedlichen Kohlen (backend) unter verschiedenen Bedingungen
-	US-DOE <sup>1)</sup> , ERC <sup>2)</sup> , Grand Forks	Festbettreaktor, Vergasung mit Dampf, Luft und O <sub>2</sub> ; 4 bis 26 bar	Anlage gebaut im Jahre 1950; wieder in Betrieb seit dem Jahre 1976; Tests wie vorstehend
-	Westinghouse	Zweistufige Wirbelschicht; Entgaser und Vergaser: 10 bis 20 bar, 900°C; Brennkammer: 10 bis 20 bar	Anlage mit 15 t/Tag in Betrieb; Herstellung von Brenngas zur Stromerzeugung
-	Combustion-Engineering	Festbettreaktor; Vergasung mit Dampf und Luft; 1 bar, 900°C, 5 t/Tag	Anlage in Betrieb; Herstellung von Brenngas zur Stromerzeugung
-	Atomics International	Vergasung im Salzbad; 20 bar, 100°C	Anlage in Betrieb; Erzeugung eines Brenngases speziell für Verbrennungskammern von MHD-Generatoren
Gegas	General Electric	Festbettreaktor; Vergasung mit Luft und Dampf; 24 bar, 24 t/Tag	Anlage in Betrieb; Herstellung eines Brenngases zur Stromerzeugung
U-Gas	IGT <sup>3)</sup> , Chicago	Wirbelschicht; Vergasung mit Luft und O <sub>2</sub> sowie Dampf; 1 bar, 1000°C, 6 t/Tag	Anlage in Betrieb; Herstellung von Brenngasen vornehmlich für Industriefeuerungen

<sup>1)</sup> US-Dept. of Energy. - <sup>2)</sup> Energy Research Center. - <sup>3)</sup> Institute of Gas Technology.

Tabelle 12: Projekte und Versuchsanlagen zur Schwachgasherzeugung in den Vereinigten Staaten von Amerika

### Indien:

Der indische Subkontinent verfügt über große Vorräte an Stein- und Braunkohle, von denen gegenwärtig rd. 100 Mill. t/Jahr gefördert werden. Ein großer Teil dieser Kohle wird heute als Hausbrand, zur Stromerzeugung in Kraftwerken sowie für den Verkehr eingesetzt. Ein gewisser Teil dient jedoch auch für die Herstellung von Synthesegas, um Düngemittel auf der Basis von Ammoniak zu erzeugen. Die Fertilizer Corporation of India und andere Gesellschaften haben dazu industrielle Vergasungsanlagenbetrieben. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt befinden sich in Talcher und Ramagundam große Koppers-Totzek-Anlagen in Betrieb, mit denen Synthesegas für je 1000 t Ammoniak/Tag hergestellt wird.

Erstes Ziel der in Tabelle 13 aufgeführten Versuchsanlagen ist es daher, die industrielle Anwendung der Kohlevergasung durch vorlaufende und begleitende Versuche abzusichern. Die ersten drei der aufgeführten Anlagen dienen daher vornehmlich dazu, die Einsatzfähigkeit der verschiedenen indischen Kohlen für die Vergasung in der Flugstaubwolke oder in der Festschicht unter

Anlage oder Projekt	Betreiber	Technische Kennzeichen	Stand und Aufgabe
Flugstaubvergaser	CFRI <sup>1)</sup> , Dhanbad	Vergasung mit Dampf und Sauerstoff; 1 bar, 0,1 t/h, 1 Brenner	In Betrieb seit dem Jahre 1958; Test von verschiedenen indischen Kohlen für Einsatz in Koppers- Totzek-Vergasern
Festbettvergaser	CFRI <sup>1)</sup> , Dhanbad	Vergasung mit Dampf und Sauerstoff; 32 bar, 0,8 t/h	In Betrieb seit dem Jahre 1962; Test an verschiedenen indischen Kohlen für Einsatz in Lurgi-Vergasern
Festbettvergaser	RRL <sup>2)</sup> , Hyderabad	Vergasung mit Dampf und Sauerstoff; 25 bar, 1 t/h	In Bau, Inbetriebnahme im Jahre 1982; Anlage zum Test von regionaler indischer Kohle für Einsatz in Lurgi- Vergasern
Festbettvergaser	BHEL <sup>3)</sup> , Trichy	Vergasung mit Luft und Dampf; 10 bar, 6 t/h	In Bau, Inbetriebnahme im Jahre 1980; Erprobung eines Festbettvergasers im Hinblick auf Einsatz im Gas- Dampf-Turbinenkraftwerk
Wirbelschichtvergaser	BHEL <sup>3)</sup> , Trichy	Vergasung mit Luft und Dampf	Geplant; Erprobung eines Wirbelschichtvergasers im Hinblick auf Einsatz zur Stromerzeugung

<sup>1)</sup> Central Fuel Research Institute, Dhanbad. - <sup>2)</sup> Regional Research Laboratory, Hyderabad. - <sup>3)</sup> Bharat Heavy Electricals Limited, Trichy.

Tabelle 13: Versuchsanlagen und Projekte zur Kohlevergasung  
in Indien

verschiedenen Bedingungen zu testen. Beteiligt sind daran das Central Fuel Research Institute in Dhanbad und das Regional Research Laboratory in Hyderabad. Daneben versucht man - wie an anderen Stellen der Welt auch -, den Kraftwerksprozeß im Wirkungsgrad zu verbessern und in der Umweltfreundlichkeit zu steigern. Dazu arbeitet die Bharat Heavy Electrical Limited intensiv an neuen Technologien und plant den Betrieb von entsprechenden Versuchsanlagen.



### 1.1.4 Kohlevergasung mit Kernreaktorwärme

Bei allen konventionellen Verfahren ist Kohle einmal Rohstofflieferant für das zu erzeugende Gas und zum anderen aber auch Energiequelle zur Abdeckung der Reaktionswärmen und der übrigen bei der Vergasung benötigten Energien. In der Praxis führt das dazu, daß 30 bis 40 % der Kohle verbrannt werden müssen, um den Rest in Gas zu überführen. Durch Einsatz von Wärme aus Hochtemperatur-Kernreaktoren kann der Energiebedarf einer Vergasungsanlage so gedeckt werden, daß die Kohle vollständig in nutzbares Gas überführt wird (siehe Abb.7).

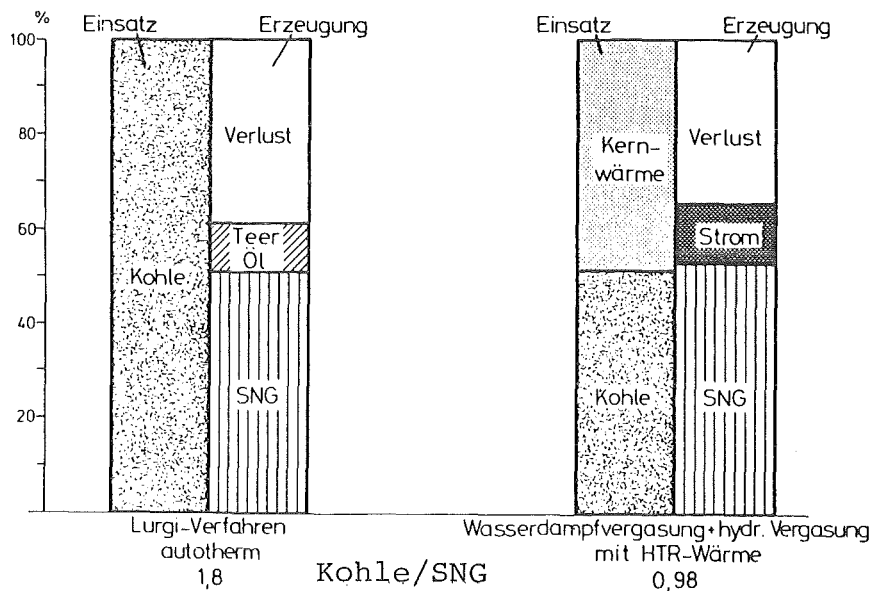


Abb. 7 Möglichkeit der besseren Nutzung der Primärenergien und insbesondere der Kohle durch Einsatz von HTR-Wärme für die Kohlevergasung

Die Vorteile einer solchen Vorgehensweise sind

- Schonung der Kohlereserven und bessere Nutzung der verfügbaren Kohle,
- Verminderung der kohlespezifischen Emissionen, da weniger Kohle verbrannt wird,
- Bessere Nutzung der Kernenergie durch Einkopplung der Wärme in einen chemischen Prozeß,
- Geringere Herstellungskosten für das Kohlegas.

Zur Entwicklung der entsprechenden Verfahren bis zur großtechnischen Reife arbeiten im PNP-Projekt (Prototypanlage Nukleare Prozeßwärme) Firmen der Kernreaktor- und Kohleindustrie (Bergbau-Forschung GmbH, Essen; Gesellschaft für Hochtemperaturreaktor-Technik mbH, Bensberg; Hochtemperatur-Reaktorbau GmbH, Mannheim; Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Jülich; Rheinische Braunkohlenwerke AG, Köln) zusammen, um den HTR, wärmetauschende Komponenten und zugehörige Vergasungsverfahren zu entwickeln. Dabei sollen einerseits das Verfahren der Kombination der hydrierenden Vergasung mit der nuklear beheizten Methanspaltung und andererseits die Wasserdampfvergasung, in die als endothermer Prozeß Kernreaktorwärme direkt eingekoppelt werden kann, realisiert werden (Tab. 8 , Zeilen 8 und 9). Abb. 8 zeigt die Kopplung von Hochtemperatur-Kernreaktor und Wasserdampfvergasung. Der Hochtemperatur-Kernreaktor ist der in Deutschland entwickelte Typ mit kugelförmigen Brennelementen, die sich in

- 1 Hochtemperatur-Kernreaktor
- 2 Wärmetauscher
- 3 Dampfkraftanlage
- 4 Gasgenerator
- 5 Gasaufbereitung

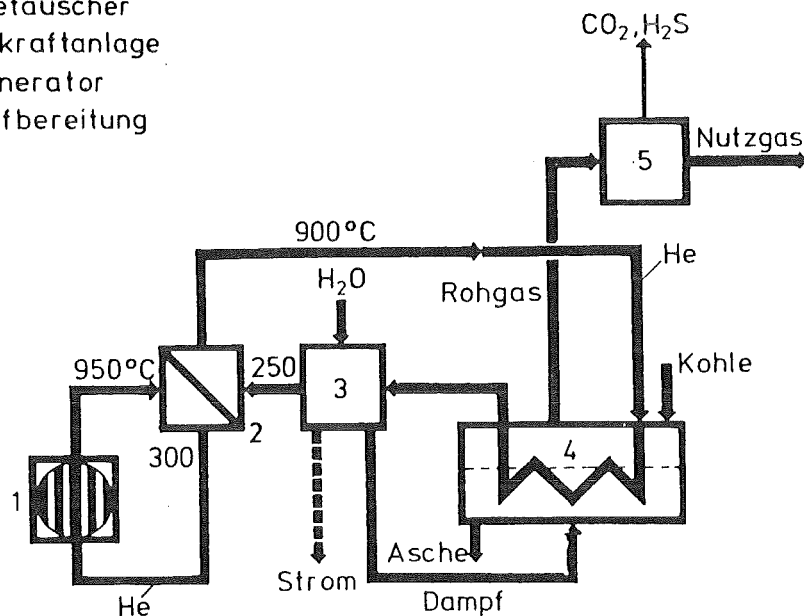


Abb. 8 : Kopplung von Hochtemperatur-Kernreaktor und Wasserdampfvergasung

einem Wanderbett befinden, das von Helium durchströmt wird, welches sich dabei auf Temperaturen bis 950 °C aufheizt. Ein Versuchsreaktor befindet sich in der Kernforschungsanlage Jülich seit Jahren in Betrieb. Aus Sicherheitsgründen wird die Wärme über einen Wärmetauscher auf einen Sekundärkreislauf ausgekoppelt, in dem Helium umgepumpt wird. Dieses durchströmt den Wärmetauscher des Gasgenerators dessen Wärmetauscherrohre in eine Wirbelschicht aus Kohle und Dampf hineinragen und somit die Wärme für die endotherme Reaktion übertragen. Auf niedrigerem Temperaturniveau wird die Wärme des Heliums im Zwischenkreislauf noch zur Erzeugung von Dampf genutzt, der z. T. als Prozeßdampf, z. T. aber auch für die Stromerzeugung eingesetzt wird. Das entstehende Rohgas wird konventionell umgewandelt und genutzt.

Das Ergebnis eines konstruktiven Entwurfs für den benötigten Gasgenerator zeigt Abb. 9. Er ist ein liegender zylindrischer Druckbehälter von etwa 33 m Länge und 7 m Ø, der aus fünf Modulen besteht. Im unteren Teil befindet sich eine Wanne, in die durch

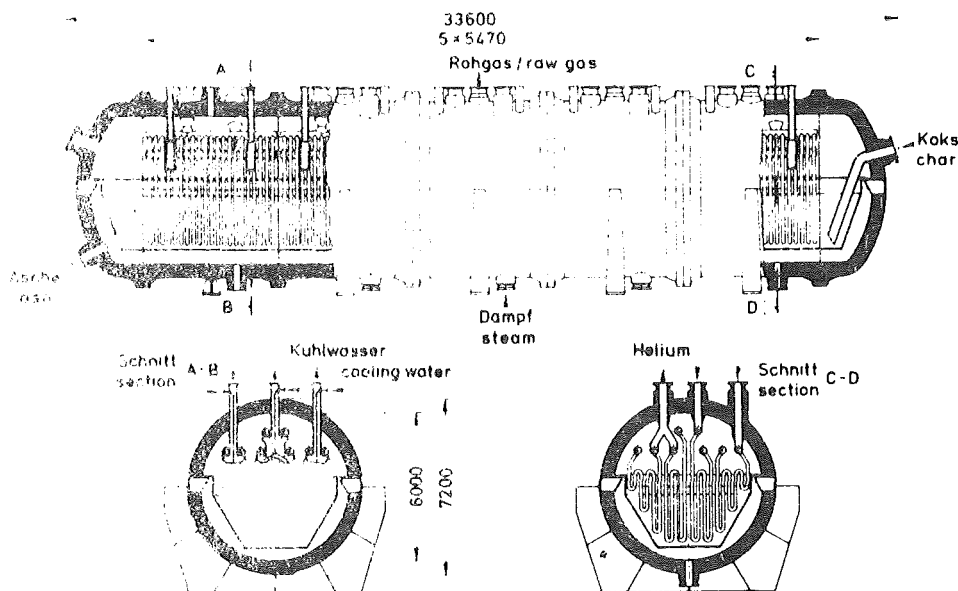


Abb. 9 : Konstruktiver Entwurf des großtechnischen Gasgenerators für die Wasserdampfvergasung unter Nutzung von nuklearer Prozeßwärme

Öffnungen von unten Dampf in das von ihr getragene Kohle-Dampf-Wirbelbett einströmen kann. Kohle oder Koks werden an dem einen Ende in die Wirbelschicht eingetragen, durchwandern dann die Wirbelrinne, wobei ein C-Abbrand von über 95 % erreichbar ist, so daß am anderen Ende eine aschereiche Fraktion abgezogen werden kann.

Die Wirbelschichtvergasung unter Auskopplung von Wärme aus einem Heliumkreislauf bei Drücken bis zu 40 bar und bei Helium-Eintrittstemperaturen zwischen 900 und 1000 °C wird erstmals in einer halbtechnischen Anlage der Bergbau-Forschung durchgeführt. Der Gasgenerator dieser Anlage ist ein Ausschnitt aus dem großtechnischen Gasgenerator, und zwar so, daß Wirbelbett-höhe sowie Länge und Anordnung der Wärmetauscherrohre dem großtechnischen Konzept entsprechen. Die Wirbelschicht selbst hat eine Grundfläche von ca. 1 m<sup>2</sup> und kann bis zu einer Höhe von 4 m betrieben werden. Die Anlage ist seit Mitte 1976 in Betrieb.

Die Kopplung eines Hochtemperaturreaktors mit der hydrierenden Vergasung zeigt Abb. 10. Die hydrierende Vergasung selbst ist ein

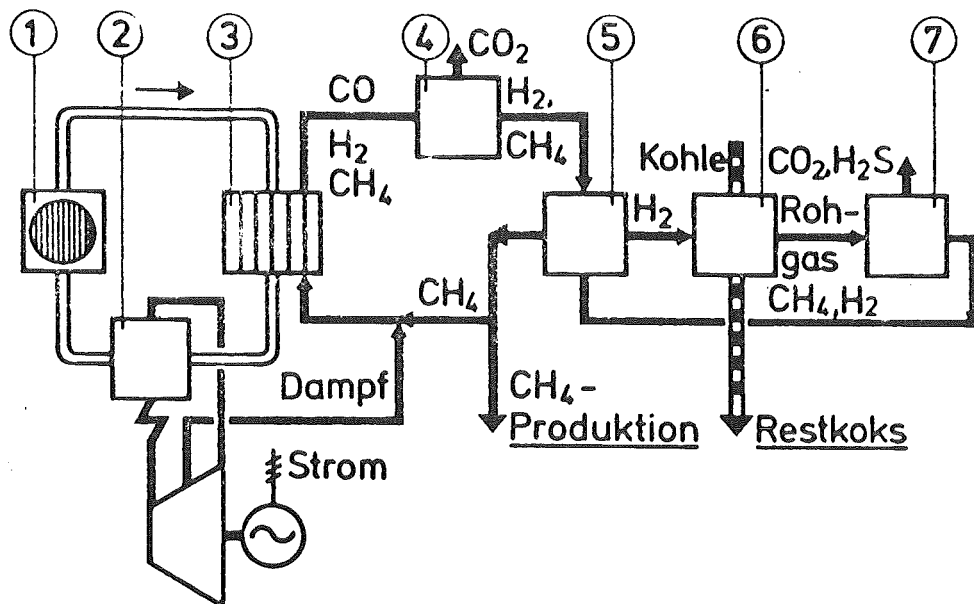


Abb. 10: Kopplung von Hochtemperatur-Kernreaktor und hydrierender Vergasung

1 Kernreaktor, 2 Dampferzeuger, 3 Röhrenspaltofen,

4 Konvertierung, 5 Gaszerlegung, 6 Vergaser, 7 Gaswäsche

exothermer Prozeß, so daß dafür keine Reaktionswärme aus dem Kernreaktor bereitgestellt werden muß. Man benötigt nukleare Wärme jedoch in erster Linie für die Herstellung des Wasserstoffs und zur Abdeckung anderer in der Gesamtanlage benötigter Energien. Zur Erzeugung des Wasserstoffs zweigt man einen Teil des in der hydrierenden Vergasung gebildeten Methans ab und wandelt es mit Dampf in einem heliumbeheizten Röhrenspalt-ofen zu Hydriergas um, welches man zu Wasserstoff aufarbeitet und damit die hydrierende Vergasung betreibt.

Eine Versuchsanlage zur hydrierenden Vergasung ist seit 1976 bei der Rheinische Braunkohlenwerke AG in Betrieb. Eine Pilot-anlage wird z. Z. errichtet. Die Kopplung der hydrierenden Ver-gasung mit der nuklearen Wasserdampfvergasung ist möglich und vorteilhaft.

#### 1.1.5 Untertagevergasung von Kohle

Unter der Untertagevergasung oder auch "in situ"-Vergasung ver-steht man die Umwandlung von Kohle in Gas durch Reaktion mit einem Vergasungsmittel in der Lagerstätte, dem Flöz. Das Pro-duktagas wird anschließend nach Übertage gefördert und dort ver-braucht. Abb. 11 stellt stark vereinfacht das Grundkonzept der Untertagevergasung von Kohle dar.

Wie links im Bild gezeigt, drückt man über eine Kompressor-station und ein Bohrloch Luft in das untenliegende Kohleflöz. Die Kohle wird zunächst zu  $\text{CO}_2$  verbrannt, anschließend rea-giert dieses  $\text{CO}_2$  in der Boudouard-Reaktion zu  $\text{CO}$ . Das produ-zierte Gas wird durch ein weiteres Bohrloch an die Oberfläche gefördert und dort genutzt.

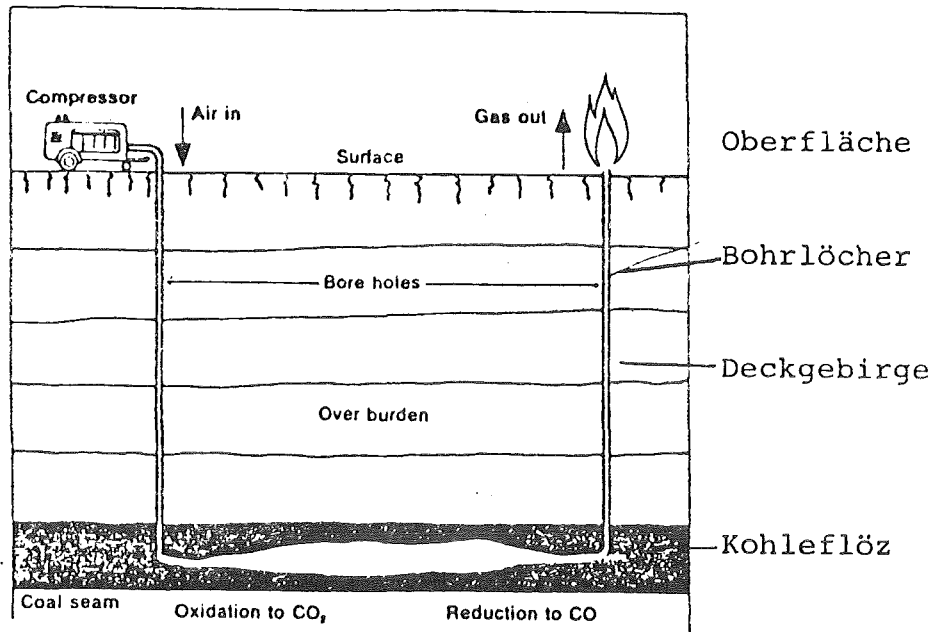


Abb. 11: Grundkonzept der Untertagevergasung von Kohle

Die Untertagevergasung wird heute insbesondere als Mittel angesehen, Kohlen aus Lagerstätten, die mit herkömmlicher bergmännischer Technik nicht zugänglich sind, in Zukunft doch zur Energieerzeugung zu nutzen. So befinden sich z. B. in der BRD Deutschland, insbesondere unter dem Münsterland, sehr große Kohlevorräte, die bis zu einer Teufe von 2000 m 287 Milliarden t und bis zu einer Teufe von 5000 m 500 Milliarden t betragen. Ähnliche Lagerstätten finden sich auch in den Niederlanden, in Belgien und in England. Tabelle 14 gibt einen Überblick über die bekanntesten Projekte der Untertagevergasung und deren wichtigste Kenndaten.

Zusammenfassend kann man die Untertagevergasung etwa wie folgt bewerten: Die Technik zur Schwachgaserzeugung ist in relativ kleinen Anlagen und in bodennahen Flözen bei Teufen bis zu 200 m erprobt. Der Prozeß erweist sich als kaum steuerbar, daher hat man im allgemeinen mit einem Verlust von Vergasungsmittel, mit einer schlechten Auskohlung und mit einem hohen Sicherheits- und Umweltrisiko insbesondere bei bodennahen Flözen zu rechnen, die eine Anwendung in bewohnten Gebieten nicht möglich erscheinen lassen. Bei der Ausbeutung tiefliegender Flöze sind insbesondere die hohen Kosten für die Bohrungen in Betracht zu ziehen, und dabei ist weiterhin zu berücksichtigen, daß mit der Auskohlung der Flöze immer wieder neue Bohrungen angebracht werden müssen.

Projekt	Art des Hangenden	Teufe m	Einflallen Grad	Mächtigkeit m	Bohrloch-durchmesser cm Aufschluß	Verbindungs-verfahren	Verhalten des Hangenden	Gasverluste m <sup>3</sup> /h	Sonstiges
Gorgas (USA)	Schiefer, Sandstein	45	Flach 2,3	1,05 bis 1,15 SK	Bohrlöcher 45	Feuerkanal	Bruch	> 1000	Zur Senkung der Gasverluste wurde Fließsand eingeblasen
Hanna (USA)	Sandstein, Kalkstein, Schiefer	120	6 bis 9	SK	Bohrlöcher 12	Hydraulisch mit Sand-Wasser-Emulsion	Bruch	Keine	Wasser wurde der Reaktionszone ferngehalten, da es durch den Druck in die Mikrorisse gepreßt wurde
Western Kentucky (USA)	Keine Angaben	33	Leicht einfallend	2,7 SK	Bohrlöcher 30 bis 18	Pneumatisch, Feuerkanal	Bruch, zeitweilig Blähen	Keine Angaben	Die Gasdurchlässigkeit der Kohle wurde durch Druck, der 30 % des Gebirgsdrucks betrug, erhöht
Tula (UdSSR)	Lehm, Sand, Kalk	40 bis 60	Flach	4 - 5 BK	Bohrlöcher 30	Pneumatisch	Bruch	Keine Angaben	Verrohrung wurde gezogen und wiederverwandt
Schatsk (UdSSR)	Lehm, Sand	60	Flach	1 - 4 BK	Bohrlöcher 30	Pneumatisch, Feuerkanal	Bruch	Keine Angaben	
Angren (UdSSR)	Kaolin, Lehm, Sand	150 bis 200	5 bis 10	6 - 8 BK	Bohrlöcher 23 bis 40	Pneumatisch, Feuerkanal, bei 7 bis 10 bar	Bruch	Keine Angaben	Seitlicher Gasabzug
Lisitschansk (UdSSR)	Keine Angaben	24 bis 33	36 bis 45	0,7 SK	Bohrlöcher richtungs-gelenkt	Pneumatisch 21 bis 26 bar	Bruch	Keine Angaben	
Juzhno-Abinsk (UdSSR)	Keine Angaben	200	Halbsteil	2 - 8 SK	Bohrlöcher	Richtungsgelenktes Turbinenbohren/ Pneumatisch mit 7 bar	Bruch	Vorhanden, aber keine Angaben	Simultanvergasung von drei Flözen
Gorlowka (UdSSR)	Keine Angaben	40 bis 100	Steil	1,8 SK 0,7 SK	Bohrlöcher	Keine Angabe	Keine Angabe	Keine Angaben	
Leninkusnetz (UdSSR)	Keine Angaben	20 bis 30	Flach	5 SK	Strömungs-verfahren	Keine Angabe	Bruch	Keine Angaben	Hangendeinbrüche verminderten zeitweilig die Vergasungsmittelzufuhr
Koutowo und Nova Bass (UdSSR)	Keine Angaben	20 bis 60	Leicht einfallend	2 - 6 BK	Strömungs-verfahren, später Fil-trationsver-fahren	Feuerkanal	Bruch	Keine Angaben	Asche schmolz bei 1780K und bedeckte die Kohle
Borislav (CSSR)	Ton, Sand	20	Flach	1 - 4,5 BK	Bohrlöcher	Natürliche Permeabilität	Quasi pla-stische Absenkung im Alten Mann	Sehr hoch, aber keine Angaben	Gasverluste über Störung
Brezno (CSSR)	Ton, Sand	20 bis 55	Flach	0,4 - 2 1,8 - 2,5 1,8 - 2,5 BK	Bohrlöcher	Feuerkanal mit 6 bar	Quasi pla-stische Absenkung im Alten Mann	Große, im oberen Flöz 20 bis 30 %	Drei Flöze, die nacheinander vergast wurden; geringe Wasserzuflüsse unter kritischen Werten
Chomotov (CSSR)	Ton, Lehm	20 bis 70	Flach	2,7 5,9 BK 4,9	Bohrlöcher 20 bis 35	Keine Angabe	Keine Angaben	Keine Angaben	Vergasung von drei Flözen
Newman-Spinney (GB)	Schieferton	Bis 35	8	1 1 SK 1	Vom Ausbliß über Bohr-löcher in die Flöze	Keine Angabe	Keine Angaben	Hoch, nach Beschädigung der Zementierung	Drei Flöze, jeweils 3 m mächtig, davon 1 m Kohle

SK - Steinkohle BK - Braunkohle

Tab. 14 : In Betrieb befindliche Projekte der Untertagevergasung (nach Franke et al., Glückauf 114 (1978), S. 248)

Abschließend läßt sich sagen, daß überall dort, wo die Kohle bergmännisch gewonnen werden und nach Übertage gefördert werden kann, die Vergasung in einer Übertageanlage unbedingt vorzuziehen ist und die Untertagevergasung als eine Option zu betrachten ist, um die tiefliegenden Flöze zu erschließen.



## 1.2. Kohlenhydrierung

### 1.2.1. Verfahrensgrundlagen

Für die Umwandlung von Kohle in flüssige Produkte kommen grundsätzlich zwei Verfahrenswege infrage. Im ersten Fall wird durch Vergasung der Kohle mit Dampf und Sauerstoff zunächst ein Synthesegas hergestellt, aus dem anschließend über Fischer-Tropsch-Synthese oder Methanolsynthese mit anschließendem Mobil-Oil-Prozeß flüssige Kohlenwasserstoffe aufgebaut werden. Die Umwandlung der Kohle erfolgt hier also durch einen Vergasungsprozeß, auf den aber bereits in Kapitel 1.1. näher eingegangen worden ist.

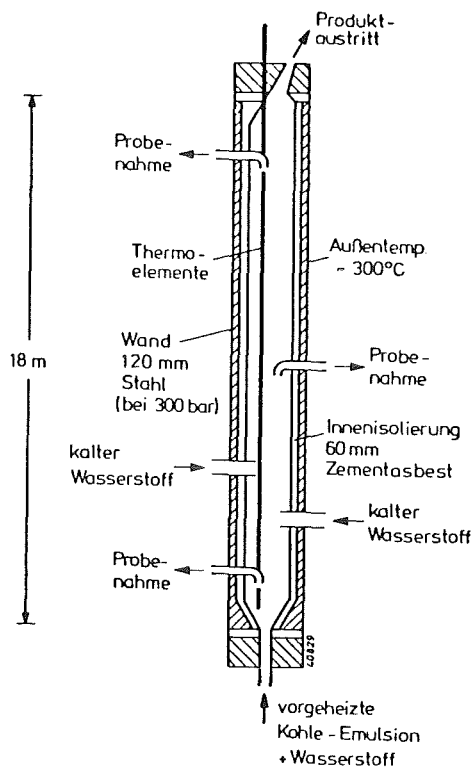
Im zweiten Fall wird die Kohle durch Temperatureinwirkung aufgespalten und unter gleichzeitiger Anlagerung von Wasserstoff unmittelbar in flüssige Produkte umgewandelt. Dieser Weg der Kohleveredlung wird im eigentlichen Sinne als Kohlehydrierung bezeichnet und wird daher im folgenden beschrieben.

Nach der Art der Wasserstoffzugabe kann man zwei verschiedene Hydrierverfahren unterscheiden. Bei dem Verfahren nach Bergius und Pier (ab 1913) wird an die Kohle in Anwesenheit von Katalysatoren molekularer Wasserstoff angelagert. Die Einsatzkohle wird hierzu zunächst aufgemahlen und mit einem geeigneten Lösungsmittel gemischt. Die Hydrierung erfolgt dann in der sogenannten "Sumpphase" unter Zugabe von Wasserstoff bei hohen Drucken und bei Temperaturen zwischen 400 - 500 °C. Die Reaktion wird durch Katalysatoren beschleunigt, sie kann auch durch die mineralischen Bestandteile der Kohle günstig beeinflußt werden. In Abhängigkeit von den Verfahrensbedingungen Druck und Temperatur sowie dem Wasserstoffumsatz, der u. a. durch die Verweilzeit im Reaktor gesteuert werden kann, erhält man Kohleöle unterschiedlicher Siedelagen.

Bei dem zweiten Verfahren, dessen Grundlagen von Pott und Broche in den 20iger Jahren entwickelt worden sind, wird die Kohle bei einem Druck von 100 bis 150 bar und Temperaturen um 400 °C mit einem Wasserstoff abgebenden Lösungsmittel behandelt. Als Lösungsmittel werden Tetralin-/Kresolgemische oder auch Mittelöle der Kohle- und Pechhydrierung verwendet. In diesen wird der größte Teil der organischen Kohlesubstanz gelöst. Die ungelösten Bestandteile werden durch Filtration abgetrennt, so daß ein asche- und schwefelarmer pechartiger Extrakt entsteht. Bei der Extraktion gibt das Lösemittel Wasserstoff an die Kohle ab. Die Wasserstoffabgabe aus dem Lösungsmittel ist relativ gering, sie reicht aber aus, um die bei der Polymerisation der Kohle frei werdenden Valenzen abzusättigen.

Die verschiedenen bis heute entwickelten Hydrierverfahren laufen im Prinzip folgendermaßen ab: Zunächst wird die Kohle auf eine Körnung 90 % < 1 mm und 60 % < 60 µm aufgemahlen. Danach erfolgt gegebenenfalls eine Katalysatorzugabe in der Größenordnung von wenigen Gew.-%. Die Mischung wird danach mit rückgeführtem Öl (etwa 40 % Mittelöl, 60 % Schweröl) "angerieben" (auch "Anmaischen" genannt), wodurch die Kohle aufgrund des eindringenden Öles aufquillt. Diese Kohle/Öl-Emulsion wird dann nach Durchlaufen mehrerer Aufheizstufen (Regeneratoren und Spitzenaufheizer) von unten unter Wasserstoffzugabe in mehrere hintereinander angeordnete Hydrierreaktoren (Abb. 12) eingegeben.

Der Hydrierreaktor, wie er für die Sumpffphasenhydrierung nach Bergius-Pier verwendet wird, besteht aus einem etwa 18 m hohen druckfesten Stahlrohr mit einem max. Durchmesser von 1 m, das innen zur Wärmeisolation mit Zementasbest ausgekleidet ist. Der Wasserstoff wird außer von unten auch an seitlichen Stellen eingespeist. Die ablaufende Hydrierreaktion ist exotherm, so daß es im Inneren des Rohres zu steigender Temperatur bis auf etwa 400 - 500 °C kommt. Die Temperatur wird durch Thermoelemente kontrolliert und kann durch Zuspeisen von kaltem Wasserstoff geregelt werden.



40829

Abb. 12: Hydrierreaktor

Beim Anstieg der Temperatur bis auf etwa  $500^{\circ}\text{C}$  erhöht sich die Löslichkeit des Wasserstoffs im Anreibeöl. Dadurch gelangt er in das Korninnere und kann sich an die zu zersetzenden Kohlemoleküle anlagern.

Bei dem Verfahren nach Pott-Broche, bei dem die Wasserstoffabgabe aus dem Lösungsmittel erfolgt (sog. Wasserstoffdonatoren) kommt es zu einer Dehydrierung des Lösungsmittels, wobei beispielsweise aus dem Tetralin Naphthalin entsteht.

Nach dem Verlassen des Hydrierproduktes am Kopf des Reaktors wird zunächst durch Temperaturabsenkung um maximal  $40^{\circ}\text{C}$  eine Heißabscheidung vorgenommen, wobei ein Abschläm entsteht, der sich aus Restkohle, Asche, Katalysator, Asphaltene und anderen über ca.  $325^{\circ}\text{C}$  siedenden Bestandteilen zusammensetzt. Früher wurde dieser Abschläm z. T. in die Hydrierreaktoren zurückgeführt und z. T.

in Zentrifugen aufgetrennt. Der dabei anfallende Zentrifugenschlamm wurde zur zusätzlichen Gewinnung von Öl in Schnecken- oder Kugelöfen geschwelt. Bei den nach dem 2. Weltkrieg in der Bundesrepublik Deutschland weiterentwickelten Hydrierverfahren wird der Abschlamm des Heißabscheiders in vorteilhafter Weise einer Vakuumdestillation unterzogen und der damverbleibende Rückstand, der bei erhöhter Temperatur flüssig ist, einer Vergasung zur Wasserstoffgewinnung zugeführt.

Im nachfolgenden Kaltabscheider erfolgt eine weitere Abkühlung des Hydrierproduktes und schließlich in den sog. "Abstreifern" eine Druckabsenkung zur Aufteilung von Kondensat und Gasen. Aus den Gasen wird Wasserstoff zurückgewonnen. Das Kohleöl wird schließlich zur Zerlegung in Produkte unterschiedlicher Siedelage (Leicht-, Mittel- und Schweröle) einer Destillationsanlage zugeführt.

Typische Prozeßbedingungen einer Hydrierung in der Sumpfphase sind in Tabelle 15 enthalten.

Reaktives Agens	H <sub>2</sub>
Temp. °C	max. 500, typisch 475
Druck bar	max. 700, typisch 300
Phasen der Reaktion	Gas (H <sub>2</sub> )/(flüssig) Emulsion Kohle in Öl
Wärmetönung	stark exotherm 600 kcal/m <sup>3</sup> (i.N.) H <sub>2</sub>
Primärprodukte	Gase (CH <sub>4</sub> Paraffine) "Öl" = Hauptprodukt - Leichtöl Rückstand - Mittelöl - Schweröl
Ausbeute auf Reinkohle und Produktverteilung	abhängig von Verhältnis H <sub>2</sub> /Kohle Typische Werte: 20 % Gas 50 % Öl 30 % Rückstand
Prozeßwirkungsgrad (Heizwert Produkte/Heizwert Kohle als Endenergie)	47 - 56 %
Einsatzkohlen	Braunkohlen junge Steinkohlen - Fl. Best. 35 - Inertinitgehalt 5-10 - Asche 5 %
Katalysatoren	z. B. Eisenoxide

Tab. 15 : Typische Prozeßbedingungen der Kohlehydrierung  
(Hydrierung in der "Sumpfphase")

### 1.2.2. Frühere industrielle Anwendung

Die in Kapitel 1.2.1. in den Grundzügen dargestellten Verfahren zur Kohlehydrierung sind in Deutschland entwickelt und in den 30iger und 40iger Jahren großtechnisch angewendet worden (Tab. 16).

Hydrierwerk	Bezirk	Hauptrohstoffe	Hydrier- verfahren	Druck at		Kapazität in 1000 t/a ca.
				Sumpf- phase	Gas- phase	
Leuna	Mitteldeutschland	Braunkohle (Braunkohlenteer)	Sumpf- + Gasphase	200	200	600
Bohlen	Mitteldeutschland	Braunkohlenteer	Sumpf- + Gasphase	300	300	240
Magdeburg	Mitteldeutschland	Braunkohlenteer	Sumpf- + Gasphase	300	300	230
Zeitz	Mitteldeutschland	Braunkohlenteer	TTH + MTH	300	300	300
Wesseling	Niederrhein	Braunkohle	Sumpf- + Gasphase	700	300	200
Brux	Sudetenland	Braunkohlenteer	Sumpf- + Gasphase	300	300	400
Scholven	Ruhr	Steinkohle	Sumpf- + Gasphase	300	300	200
Geisenberg	Ruhr	Steinkohle	Sumpf- + Gasphase	700	300	350
Blechhammer	Oberschlesien	Steinkohle	Sumpf- + Gasphase	700	300	500
Welheim	Ruhr	Steinkohlenteer	Sumpf- + Gasphase	700	700	180
Lützkendorf	Mitteldeutschland	Erdölrückst., Kokereiteer	Sumpf- + Gasphase	700	700	50
Pölitz	Stettin	Steinkohle, Kokereiteer, Erdölrückst.	Sumpf- + Gasphase	700	300	600
Eigentliche Hydrierung						3850
Moosbierbaum	Österreich	Erdölbenzin, Hydrierbenzin	HF	-	ca. 15	100
Ludwigshafen- Oppau	Oberrhein	Erdölbenzin, Hydrierbenzin	DHD	-	ca. 50	50
Gesamte Hydrierwerke						4000

Tab. 16 : Technische Kohlehydrieranlagen in Deutschland vor 1945  
(nach J. Falbe (Hrsg)): Chemierohstoffe aus Kohle,  
Stuttgart, Georg-Thieme-Verlag, 1977

Die Hydrierung nach den Vorschlägen von Bergius und Pier (IG-Farbenindustrie) wurde bis 1945 in 12 Anlagen betrieben mit einer Gesamtproduktion an Flüssigprodukten von 4 Mio. t/pro Jahr. Pro Anlage wurde rund 400.000 t/pro Jahr produziert. Hauptprodukte waren Kraftstoffe, insbesondere Flugbenzin.

Die Hydrierung nach Pott-Broche wurde bis 1945 in einer Anlage durchgeführt. Einsatzmaterial war Steinkohle. Als Hauptprodukt wurde ein Extrakt erzeugt, aus dem Elektroden für die Aluminiumherstellung gewonnen wurden. Die Anlage hatte einen Ausstoß von rund 30.000 Jahrestonnen Extrakt.

In der Tabelle 16 fällt auf, daß ein Teil der Hydrierwerke statt mit Stein- oder Braunkohle mit deren Teer betrieben wurde. Es hatte sich seinerzeit nämlich gezeigt, daß die bei der Schwelung von Kohlen erhaltenen flüssigen Produkte sich im allgemeinen leichter als die Kohlen selbst hydrieren lassen. Die in den Hydrierwerken eingesetzten Teere stammten hierbei aus verschiedenen Schwelwerken.

Bei vielen Anlagen wurde eine 2-stufige Verfahrensweise bevorzugt, bei der zunächst in der Sumpfphasenhydrierung die Kohle bis zu mittelsiedenden Ölen hydriert wurde und danach in der Gasphasenhydrierung diese Öle zu den leichten Treibstoffen abgebaut wurden. Der Verfahrensweg in der Gasphasenhydrierung entspricht hierbei grundsätzlich demjenigen der Sumpfphasenumsetzung.

Die Hydriertemperaturen lagen zwischen 400 - 500 °C. Der Druck richtete sich im wesentlichen nach der Qualität der Katalysatoren. Im Falle von Ammoniumchlorid und Zinkoxalat lag er bei 300 bar, im Falle billigerer Eisenkatalysatoren bei etwa 700 bar.

Die nach dem Kriege in der Bundesrepublik Deutschland verbliebenen Hydrierwerke wurden nach und nach stillgelegt. In den USA und nach der ersten Ölkriste 1973 auch in der BRD wurden die Arbeiten wieder aufgegriffen und neue verbesserte Konzepte zur Kohlenhydrierung entwickelt.

### 1.2.3. Projekte zur Weiterentwicklung der Hydrierverfahren

#### 1.2.3.1. Amerikanische Entwicklung

Bereits Mitte der 30iger Jahre war in den USA Interesse für die Kohlehydrierung geweckt worden, wobei im Vordergrund der Bemühungen die Erzeugung von chemischen Rohstoffen stand. Ziel der Arbeiten war hierbei die Herstellung von Aromaten, während Kraftstoffe und Aliphaten möglichst nicht anfallen sollten. An diesen Bemühungen beteiligten sich insbesondere Union Carbide, Carbon Chemicals Co sowie das staatliche Bureau of Mines. Nach dem Kriege verwertete man bei den Labor- und Pilotanlagen-Versuchen in verstärktem Maße auch die Erfahrungen des deutschen I.G.-Verfahrens. Anfang der 50iger Jahre begann sich die Firma Koppers & Co. in den USA für die Kohlehydrierung von amerikanischen Kohlen zu interessieren. Später, insbesondere Anfang der 70iger Jahre, kamen andere amerikanische Firmen und Institute hinzu.

Basierend auf den Erfahrungen in Deutschland strebte man bei den Neuentwicklungen folgende Verbesserungen an:

- Reduzierung des Verfahrensdruckes auf 150 - 300 bar
- Erhöhung des relativen Kohlendurchsatzes
- Nutzung der Hydrierrückstände zur Wasserstoffherzeugung
- Verbesserung der Umweltverträglichkeit.

Im folgenden werden einige amerikanische Verfahren, die in den letzten Jahren entwickelt worden sind, kurz beschrieben. Tabelle 17 gibt hierzu einen Überblick über die wichtigsten Prozesse und den Stand der Entwicklung.

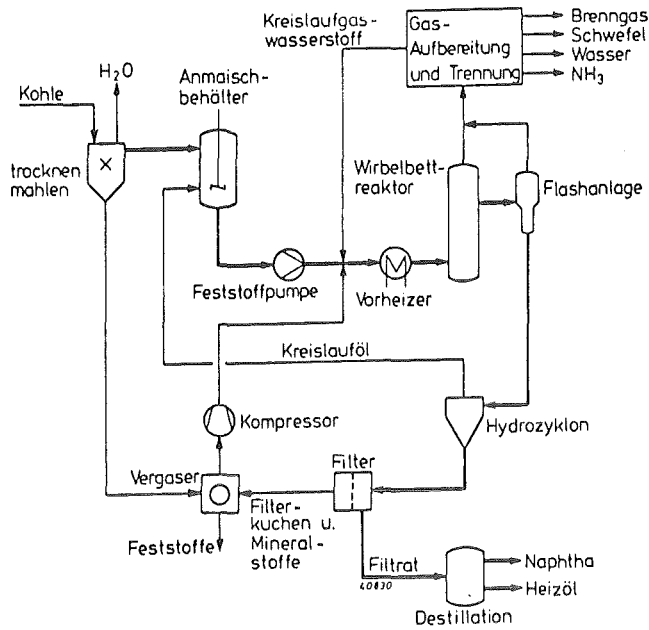
Prozeß	Entwickler	Produkt	Halbtechnische Anlage	Pilotanlage
H-Coal	Hydrocarbon Research inc.	Destillate u. Treibstoffe	3 t/Tag Trenton, N.Y.	600 t/Tag Catlettsburg Ky (im Bau)
C S F Consol Synthetic Fuels Process	Consolidated Coal Comp.	Destillate		206 t/Tag Cresap W.Va
E D S Exxon Donor-Solvent	Exxon	Destillate u. Treibstoffe	1 t/Tag Baytown, Tex	250 t/Tag Baytown, Tex (im Bau)
C C L Gulf Catalytic Coal Liquids Process	Gulf Oil Comp.		1 t/Tag Harmarville, Pa	
S R C I Solvent Refined Coal I	Pittsburg and Midway Coal Mining Comp. Gulf Oil Corporation	Kohleöl als Kraftwerksbrennstoff Treibstoffe	6 t/Tag Wilsonville, Ala	50 t/Tag Tacoma, Wash

Tabelle 17: Stand der Kohlehydrierung in den USA  
(aus HdT-Vortragsveröffentlichung 405, 1978)

a) H-Coal-Verfahren

Bei diesem Verfahren wird gemahlene und getrocknete Kohle mit Rückführöl angetrieben, mit Kreislauf-Wasserstoff von 200 bar aufgeheizt und durch einen Verteilerboden in den bei 450 °C arbeitenden Hydrierreaktor eingeführt. In dem Reaktor wird ein sogenanntes "wallendes" Katalysatorbett eingestellt. Es werden dazu zylindrische Katalysatorkörper aus Co/Mo auf Al von 0,8 mm Durchmesser und 6,4 m Länge verwendet, die im Reaktorinhalt suspendiert sind. Von unten wird dem Hydrierreaktor von Zeit zu Zeit verbrauchter Katalysator entnommen und von oben frisches Material nachgefüllt. Das Verfahrensschema ist in Abb. 13 abgebildet.





40830

Abb. 13: H-Coal-Prozeß von HRI

Besondere Probleme bei diesem Prozeß bestehen bei der Feststoffabtrennung aus dem Hydrierprodukt, für das verschiedene Möglichkeiten bereits untersucht worden sind. In Tab. 18 sind die Ausbeuten nach diesem Prozeß, ausgehend von einer Illinois-6-Kohle zusammengestellt.

Angestrebtes Produkt	synth. Rohöl	schwefelarmes Heizöl
Ausbeuten in Gew.-% der Reinkohle:		
C <sub>1</sub> -C <sub>3</sub> Kohlenwasserstoffe	10,7	5,4
Destillat von C <sub>4</sub> bis 204 °C siedend	17,2	12,1
von 204 bis 343 °C siedend	28,2	19,3
von 343 bis 524 °C siedend	18,6	17,3
Rückstand über 524 °C siedend	10,0	29,5
Restkohle (aschefrei)	5,2	6,8
H <sub>2</sub> O, NH <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> S, CO, CO <sub>2</sub>	15,0	12,8
Gesamt (100,0 Kohle + chemisch gebundener Wasserstoff)	104,0	103,2
%Schwefel in den Flüssigprodukten oberhalb von C <sub>4</sub>	0,19	0,43

Tab. 18: Ausbeuten nach dem H-Coal-process der HRI, ausgehend von Illinois-No. 6-Kohle bei zwei verschiedenen Fahrweisen zu synth. Rohöl" oder zu "schwefelarmen Heizöl" (nach J. Falbe (Hrsg): Chemierohstoffe aus Kohle, Stuttgart, Georg-Thieme-Verlag 1977)

Bei Versuchen in der 3st/d-Versuchsanlage<sup>+)</sup>  hat sich u. a. gezeigt, daß die verwendeten Katalysatoren auf Kobalt/Molybdän-Basis erheblich wirkungsvoller sind als die bei der Sumpffphasenhydrierung verwendeten Eisenoxide. Auch kann der Prozeßdruck mit 185 bis 200 bar relativ gering gehalten werden. Seit 1980 wird in Catlettsburg eine Demonstrationsanlage für 200 st/d betrieben. Dabei wird u. a. untersucht, ob gelöste, fein verteilte Aschen vom Katalysator adsorbiert werden und ob hochmolekulare Asphalte auf dem Katalysator verkoken.

#### b) Consol-Verfahren (CSF)

Die Firma Consolidation Coal Company entwickelte in den 60iger Jahren ein modifiziertes Pott/Broche-Verfahren, mit dem aus schwefelreicher Pittsburg-Kohle ein schwefelarmer Kohleextrakt als Brennstoff für Kraftwerke hergestellt werden sollte. Dazu wurde in einer 20 st/d-Versuchsanlage in Cresap W.V. feingemahlene Kohle mit Rückfuhrmittelöl der Siedelage 230 - 400 °C angerieben. Das Öl entstammte z. T. aus der Extraktstufe, z. T. aber auch aus der Weiterhydrierung des Extraktes zu synthetischem Rohöl. Die Extraktion erfolgt bei 380 °C und 28 bar in mehrstufigen Rührreaktoren, die von unten nach oben durchströmt werden. Dabei gegen ca. 70 - 80 % der Kohle in Lösung. Besondere Schwierigkeiten bereitete beim Versuchsbetrieb die Entfernung aus der Extraktlösung, weshalb die Anlage 1970 auch stillgelegt wurde.

Inzwischen wurden die Versuche durch die Fluor Corporation mit staatlicher Unterstützung wieder aufgenommen:

#### c) Exxon-Donor-Solvent-Verfahren (EDS)

Ähnlich wie bei dem Consol-Verfahren wird beim Exxon-Prozeß eine hydrierende Extraktion der Kohle unter Verwendung eines wasserstoffabgebenden Lösungsmittels durchgeführt. Das Lösungsmittel wird aus der Mittelölfraction gewonnen und nach Hydrierung wieder katalytisch aufhydriert. Im Hydrierreaktor selber wird kein Katalysator benötigt.

---

<sup>+)</sup>  st = short ton

Die Feststoffe werden in einer Destillationskolonne abgetrennt. Der Rückstand kann zur Wasserstoffherzeugung eingesetzt oder auch unter weiterer Ölgewinnung verkocht werden. Das Verfahren ist in Abb. 14 anhand eines Fließbildes der 1 st/d-Versuchsanlage dargestellt. Der Reaktionsdruck ist mit 170 bar außerordentlich niedrig. Die Hydriertemperatur liegt um 480 °C. Z. Z. wird in Baytown/Texas eine 250 t/d Demonstrationsanlage gebaut, in der als Hauptprodukt Rohbenzin und Heizöl mit niedrigem Schwefelgehalt erzeugt werden sollen.

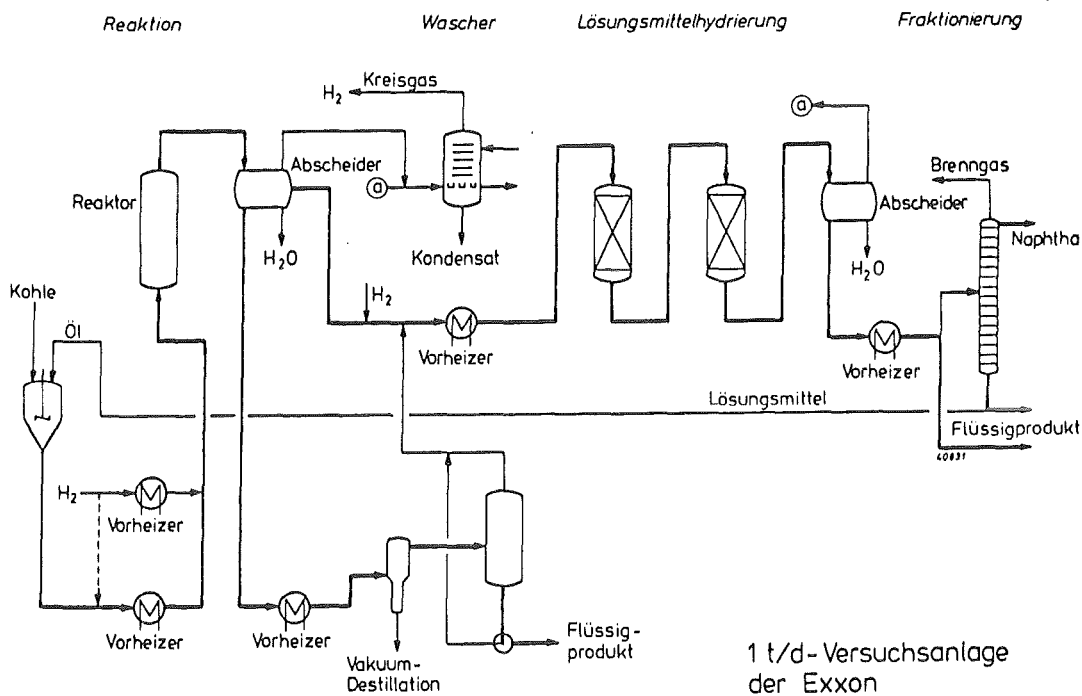


Abb. 14 : 1 t/d-Versuchsanlage der Exxon

#### d) Catalytic-Coal-Liquid-Prozeß (CCL)

In diesem von der Firma Gulf Research and Development entwickelten Prozeß wird ein Co/Mo-Katalysator verwendet, der im Hydrierreaktor fest angeordnet ist. Die gemahlene und mit Rückführöl angeriebene Kohle wird bei etwas mehr als 140 bar und 400 °C hydriert. Bei der Trennung der Restkohle aus dem Flüssigprodukt werden Filtrationsverfahren angewendet. Endprodukt ist ein schwefelarmes Öl, das zu Kraftstoffen oder petrochemischen Rohstoffen aufgearbeitet werden kann.

Die Probleme dieses Verfahrens liegen in der Beaufschlagung des Querschnittes mit Gas und Kohlebrei, die auch in großtechnischen Reaktoren möglichst gleichmäßig erfolgen muß. Andernfalls muß damit gerechnet werden, daß die Feststoffe sich teilweise im Katalysatorbett festsetzen und zu einer Verkokung führen. Z. Z. werden die zunächst in einer Kleinapparatur durchgeführten Versuche in einer 1 st/d-Anlage weitergeführt.

e) Solvent-Refined-Coal-Prozeß (SRC)

Dieses Verfahren wurde von der Pittsburg and Midway Coal Mining Comp., der Firma Gulf und vom Office of Coal Research Anfang der 60iger Jahre entwickelt. Zu diesem Zweck wurden Versuchs- und Demonstrationsanlagen von 1 - 50 st/d betrieben. Je nach Versuchsbedingungen können SRC-1-Produkte (= feste Kohlenextrakte) und SRC-2-Produkte (= Kohleöle) hergestellt werden.

Das Verfahrensprinzip der 50 st/d-Anlage ist in Abb. 15 dargestellt.

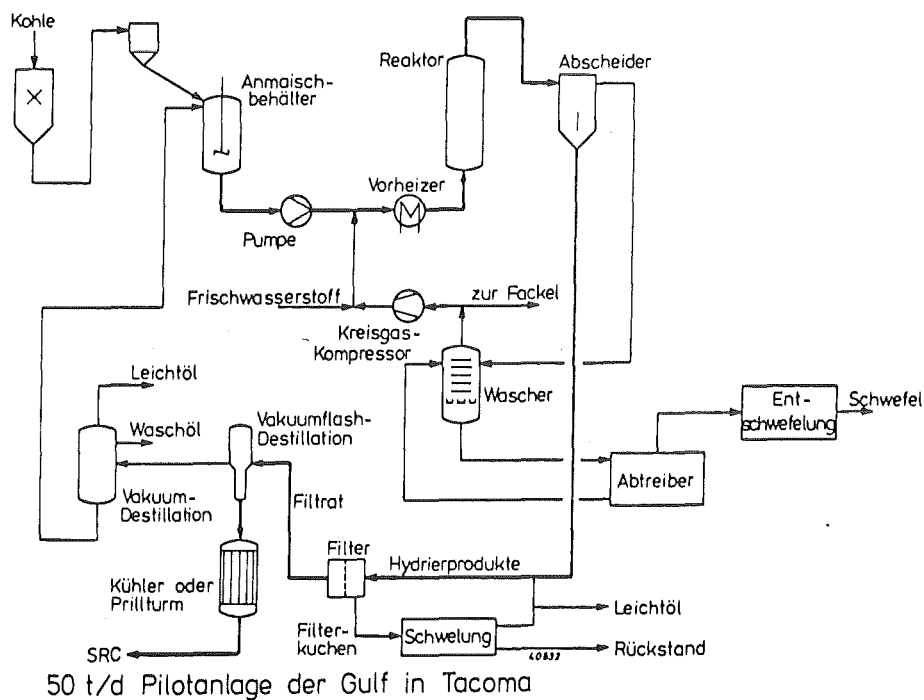


Abb. 15: 50 st/d Pilotanlage der Gulf in Tacoma

Die feingemahlene Kohle wird mit einem Rückführöl aus der Vakuum-Destillation angerieben und unter Zugabe von Wasserstoff bei ca. 425 °C und dem sehr niedrigeren Druck von 70 bar Wasserstoff, der durch Vergasung des Vakuumrückstandes erzeugt wird, hydriert. Dabei wird kein Katalysator zugegeben. Die katalytische Wirkung der Kohlenasche (Pyrit) reicht aus. Begünstigt wird dies durch eine Teilrückführung der Reaktionsprodukte, wodurch der Aschegehalt im Hydrierreaktor allmählich ansteigt. Das Verfahren ist besonders für schwefel- bzw. pyritreiche Kohlen, wie sie in den USA reichlich zur Verfügung stehen, geeignet.

Aus dem Hydrierprodukt wird der Feststoff durch Filtration entfernt und das Filtrat in Vakuum destilliert, wobei als Rückstand eine "Solvent-Refined-Coal" (SRC1) erhalten wird.

Wie bereits oben erwähnt, handelt es sich bei SRC1-Produkten um feste Kohlenextrakte, die als schwefelarmer Brennstoff im Gegensatz zu vielen U.S.-Steinkohlen umweltfreundlich in Kraftwerken verfeuert werden können. In Tabelle 19 ist das Mengenfließschema des SRC1-Prozesses angegeben.

In den letzten Jahren wurde unter Förderung durch das DOE und unter Beteiligung von deutschen und japanischen Forschungsstellen die Verfahrensvariante zur Herstellung von Ölen (SRC2-Produkte) vorangetrieben. Ziel dieser Arbeiten ist die Herstellung eines schwefelarmen Heizöls für Kraftwerke. Aufbauend auf den Versuchen in der 50 t/d-Demonstrationsanlage wurde eine 30.000 t/d-Produktionsanlage geplant. Wegen Finanzierungsschwierigkeiten mußten diese Arbeiten allerdings im vergangenen Jahr unterbrochen werden.

Betriebsbedingungen:	
Katalysator (% bez. auf Reinkohle)	kein Kat.
Temperatur (°C)	425
Wasserstoff-Zugabe (als 100%iger H <sub>2</sub> ) in Gew.-% der Reinkohle	2,9
Gesamtdruck (bar)	70
H <sub>2</sub> -Partialdruck (bar):	
Eingang	57
Ausgang	22
Bilanz in Gew.Teilen:	
Eingang: Reinkohle	100,00
H <sub>2</sub> (chem.geb.)	2,24
	Sa. 102,24
Ausgang: SRC	65,25
Leichtöl	12,03
	77,28
Filterkuchen (aschefrei)	5,37
Phenole im Abwasser	0,40
Wasserbildung	9,20
Abgas H <sub>2</sub> S	2,30
CO <sub>2</sub> (aus Kohle)	0,27
CH <sub>4</sub>	3,89
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	2,03
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	1,12
C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	0,38
Ges.Sa:	102,24
Summe des vergasteten Kohlenstoffs	5,83
Erweichungspunkt (°C) SRC	180

Tab. 19 : Mengenfließschema des SRC-Prozesses  
(nach J. Falbe (Hrsg): Chemierohstoffe aus  
Kohle, Stuttgart, Georg-Thieme-Verlag 1977)

### 1.2.3.2. Neue deutsche Technologie

Auf der Grundlage des früheren IG-Verfahrens, dessen Ergebnisse noch in der BASF zur Verfügung standen sowie unter Mitwirkung ehemaliger Mitarbeiter an diesem Prozeß, wurde in der BRD das Konzept der "Neuen Deutschen Technologie" entwickelt. Dieses unterscheidet sich von den früheren Verfahren in folgenden Punkten:

- Der Verfahrensdruck wird von 700 auf 300 bar abgesenkt.
- Durch neuartige Apparate wird eine verbesserte Wärmerückgewinnung erreicht.
- Als Anmaischöl wird Mittel- und Schweröl aus dem Prozeß verwendet.
- Der im Heißabscheider abgetrennte Rückstand wird destilliert, die Öle werden zurückgeführt und der dann verbleibende noch pumpfähige Rückstand wird zur Herstellung von Wasserstoff vergast.

Aufgrund dieser Maßnahmen können der spezifische Kohledurchsatz und der thermische Wirkungsgrad wesentlich erhöht werden.

Für die Reduzierung des Hydrierdruckes, aus der sich die geschilderten Vorteile letztlich ergaben, waren folgende Überlegungen maßgeblich. Der hohe Druck war in dem früheren IG-Verfahren eine Folge der Rückstandsaufarbeitung über Zentrifugen. In dem daraus zurückgeführten Zentrifugenöl waren in großer Konzentration Asphaltene enthalten, die nur durch einen hohen Wasserstoffpartialdruck abgebaut werden konnten. Eine Zurückführung von Asphaltene zusammen mit dem Anmaischöl mußte daher verhindert werden. Als Vorteilhaft stellte sich dabei die Vakuumdestillation des Hydrierschlammes aus dem Heißabscheider heraus. Das asphaltfreie Vakuumdestillat wird dann zum Anmaischen zurückgeführt, während aus dem asphalt- und feststoffhaltigen Destillationsrückstand durch Druckvergasung Wasserstoff erzeugt wird.

Abb. 16 zeigt das Prozeßschema der neuen deutschen Technologie. Der wichtigste Unterschied zur Sumpffphasenhydrierung nach dem IG-Verfahren besteht in der Vakuumdestillation des Heißabscheider-Rückstandes, der früher zentrifugiert wurde. Auch wird auf die umweltbelastende Schwelung fester Rückstände verzichtet. Stattdessen wird durch Vergasung daraus Hydrierwasserstoff gewonnen.

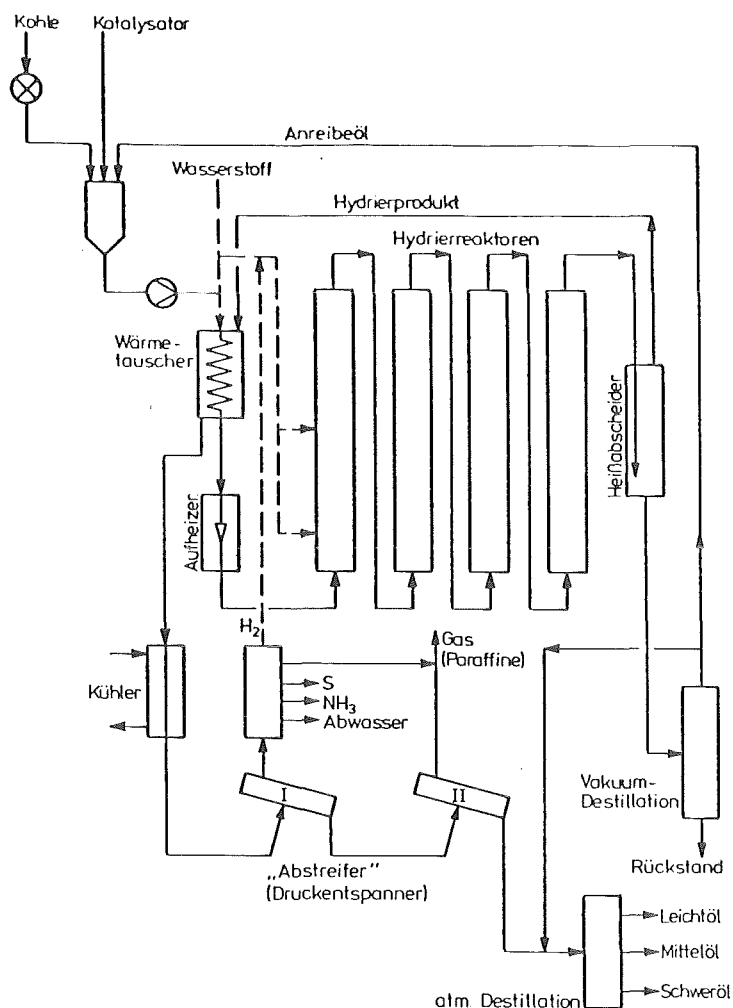


Abb. 16: Prozeßschema für die Kohlehydrierung nach der "Neuen Deutschen Technologie"



Die durch die getroffenen Maßnahmen zu erwartenden Vorteile machen die Verwendung wirksamerer aber auch teurerer Katalysatoren nicht zwingend erforderlich. Der Prozeß kommt wie das frühere IG-Verfahren mit einem relativ billigen Eisenoxidkatalysator aus.

In der Bundesrepublik Deutschland sind mehrere Unternehmen damit beschäftigt, ausgehend von dem verbesserten IG-Verfahren Großanlagen zur Kohlehydrierung zu projektieren und zu bauen. Z. Z. werden die Auslegungsdaten dieser Projekte in halbertechnischen und Pilotanlagen überprüft und abgesichert. Tabelle 20 gibt einen Überblick über die in Betrieb befindlichen Versuchsanlagen und die projektierten Großanlagen. Die größte Versuchsanlage mit 200 t/d ist 1981 in Betrieb gegangen und wird von RAG und VEBA betrieben. RAG beteiligt sich auch an einigen amerikanischen Projekten, wobei u. a. die dort verwendeten neuen Katalysatoren erprobt werden sollen.

<u>Halbertechnische Anlagen</u>				
Betreiber	Ort	Durchsatz	Inbetriebnahme	Aufgabenstellung und Ergebnisse
Bergbau-Forschung	Essen	0,2 t/Tag Steinkohle	1976	Auslegung der Pilotanlage Bottrop Senkung des Druckes auf 300 bar durch dest. Aufbereitung des Rückstandes und Ausschluß der schwer hydrierbaren Asphaltene aus dem Anmischöl
Rheinbraun	Köln	0,3 t/Tag Braunkohle	1980	
<u>Pilotanlagen</u>				
Ruhrkohle/Veba	Bottrop	200 t/Tag Steinkohle	1981	) Ermittlung von Auslegungsdaten für ) großtechnische Anlagen
Saarberg	Saarbrücken	6 t/Tag Steinkohle	1981	
<u>Großtechnische Anlagen (Planung)</u>				
Ruhrkohle		6 Mio t/Jahr Steinkohle	nicht vor 1990	) Produktion von Benzin
Veba		6 Mio t/Jahr Steinkohle		
Rheinbraun		18 Mio t/Jahr Braunkohle		
Saarberg/		2,5 Mio t/Jahr Steinkohle		

Tab.20: Anlagen zur Kohlehydrierung in der Bundesrepublik Deutschland (aus H. Jüntgen, Vorlesung GH Essen 1981)

Abb. 17 zeigt das Blockdiagramm der Großversuchsanlage in Bottrop und Tab.20a einen Überblick über die Einsatzstoffe und die Produkte dieser Anlage.

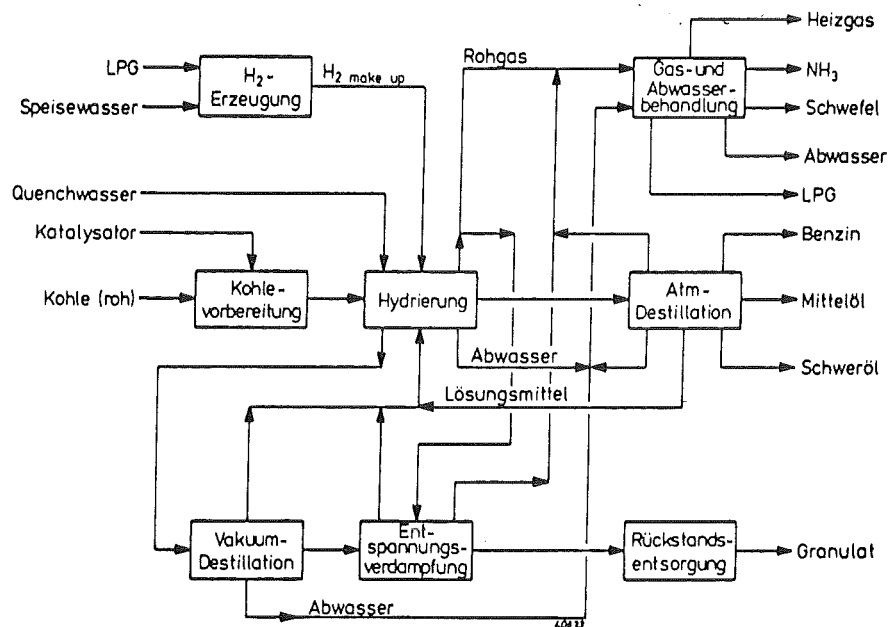


Abb. 17 : Blockdiagramm der Kohleöl-Großversuchsanlage (aus HdT- Vortragsveröffentlichung 405 (1978))

Größe	Einheit	Anlagengröße 200 t/d
Einsatz		
Kohle (waf)	t/d	200
Wasserstoff	m <sup>3</sup> /d	220 000
Rohwasser	t/d	41,2
Katalysator (Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	t/d	4,0
Elektrische Energie	kWh/d	126 000
Produkte		
LPG	t/d	13,3
Benzin (stab.)	t/d	28,8
Mittelöl	t/d	68,8
Schweröl	t/d	-
Rückstand	t/d	69,2
NH <sub>3</sub>	t/d	2,3
Schwefel	t/d	0,7

Tab. 20a: Einsatz, Betriebsmittel und Produkte der Kohlenöl-Großversuchsanlage der Ruhrkohle AG (aus W. Peters, Glückauf 115 (1979), 325/329)

Der Wasserstoffdruck beträgt maximal 300 bar und die Hydriertemperatur liegt bei ca. 475 °C. Bei der anschließenden Produkttrennung fallen Flüssiggas, Leicht- und Mittelöl an. Durch Raffination, Destillation und Reformierung können die Flüssigprodukte zu den gewünschten Endprodukten, wie z. B. Benzin und Heizöl weiter verarbeitet werden. Die Umwandlung von Kohleöl beispielsweise in Superbenzin ist schematisch in Abb. 18 dargestellt. Durch Druckraffination werden zunächst die Aromaten zu Naphthenen hydriert und heterozyklische N-, S- und O-haltige Ringe aufgespalten. Danach wird eine destillative Trennung beim Siedepunkt von 175 °C vorgenommen. Im Hydrocracker werden die hochmolekularen Bestandteile (> 175 °C) hydrierend gespalten. Dieses Hydrocrackprodukt wird dann zusammen mit der Leichtölfraktion des Druckraffinates (< 175 °C) durch katalytische Behandlung bei 450...550 °C und 10...20 bar reformiert. Die Produktbilanz ist in Abb. 18 mit angegeben.

Die Weiterverarbeitung des Kohleöles wird parallel zu der Entwicklung des eigentlichen Hydrierprozesses z. Z. noch in Versuchsanlagen näher untersucht. Aufgrund der unterschiedlichen Eigenschaften von Mineralöl und kohlestämmigen Ölen kann man nicht ohne weiteres auf bereits vorhandene großtechnische Verfahren zurückgreifen. So enthält z. B. Kohleöl Sauerstoff, der bei Mineralöl fast völlig fehlt. Spezifisch für Kohleöl ist auch seine höhere Dichte.

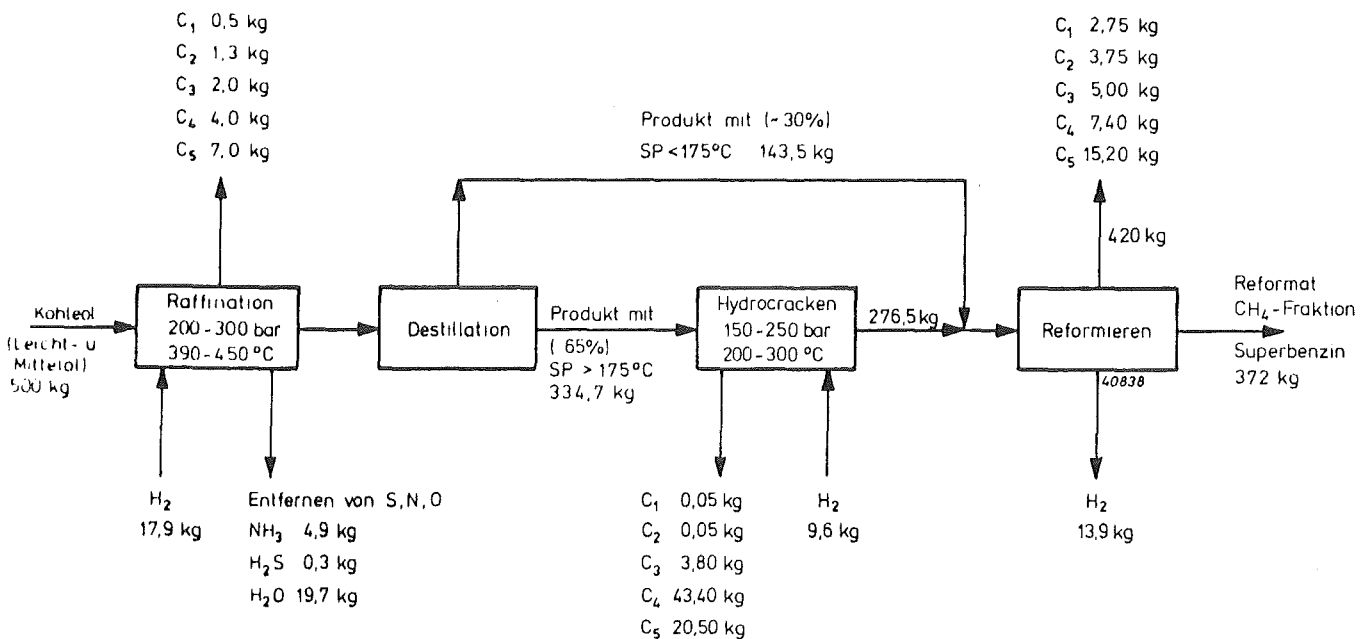


Abb. 18: Umwandlung von Kohleöl in Superbenzin

Vereinfachtes Prozessschema mit Produktionsbilanz

(aus H. Jüntgen, Vorlesung GHS Essen, 1981)

### 1.3. Einsatzbereiche und Potential der Kohleumwandlung

#### 1.3.1. Einsatzmöglichkeiten der verschiedenen Verfahren

Ziel der Kohlevergasung und -verflüssigung ist es, den festen Brennstoff Kohle in Sekundärenergieträger umzuwandeln, die leicht handhabbar sowie marktgerecht und wirtschaftlich sind. Die breite Anwendungspalette solcher Sekundärenergie-Produkte ist in Abb. 19 am Beispiel der Wasserdampfvergasung dargestellt. Die Hauptanwendungsgebiete der aus Kohle erzeugten Pro-

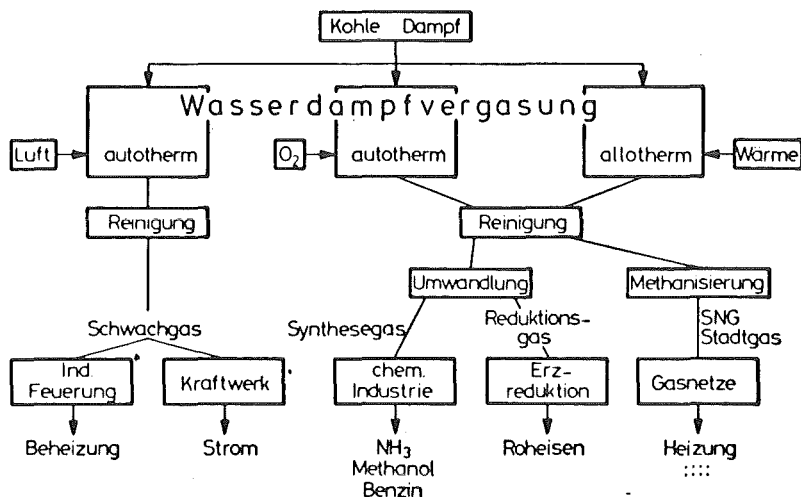


Abb. 19 : Einsatzmöglichkeiten der Wasserdampfvergasung

Produkte lassen sich wie folgt charakterisieren:

- Wärmeerzeugung in Industrie und Haushalt (Brenngas, SNG, Kohleöl)
- Verkehr (Gase, Treibstoffe durch Synthese oder Hydrierung)
- Chemische Industrie (Synthesegase, Chemierohstoffe)
- Kraftwerkstechnik und Stahlindustrie (Brenngas, Heizgas, Reduktionsgas).

Die Produktpalette für diese Einsatzgebiete wird nachfolgend näher erläutert. Für die Wärmeerzeugung in Industrie und Haushalt ( Abb. 20 ) lassen sich über Vergasung und Verflüssigung von Kohle sowohl Stadtgas, Erdgasersatz oder leichtes und schweres Heizöl erzeugen.

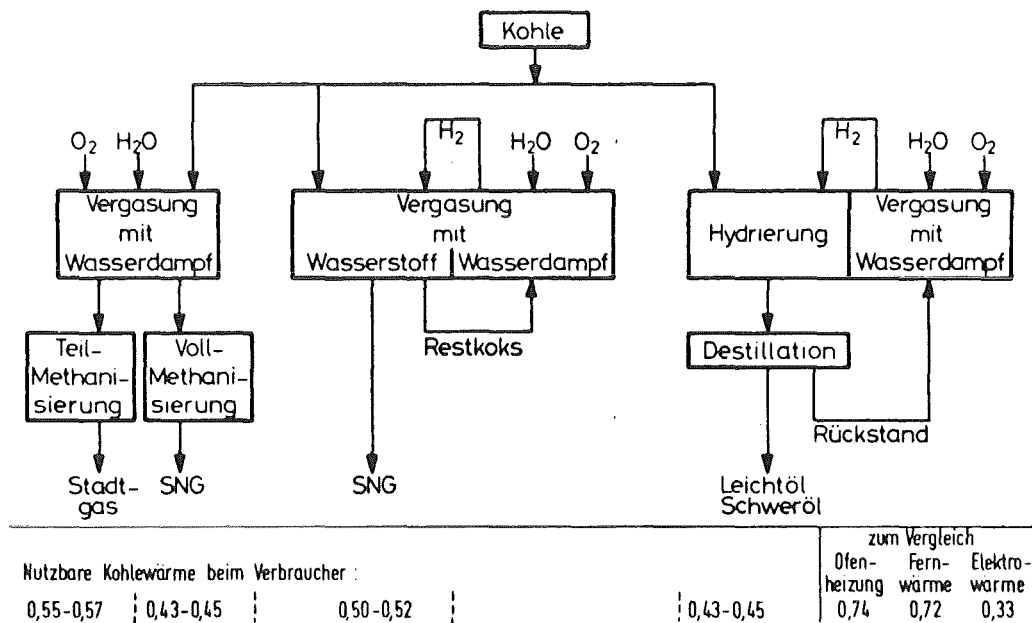


Abb. 20 : Vergasung und Hydrierung von Kohle zur Erzeugung von Sekundärenergieträgern

Zum Vergleich sind in Abb. 20 Wirkungsgrade der Wärmeerzeugung mittels dieser Sekundärenergieträger denen der direkten Wärmeerzeugung aus Kohle und der Verstromung und Widerstandsheizung (Elektrowärme) gegenübergestellt. Man erkennt daraus, daß über die Verwendung von SNG, Stadtgas oder Kohleöl als Brennstoff eine erhebliche Wirkungsgradverbesserung zu erreichen ist gegenüber einer Verstromung von Kohle und Verwendung dieses Stromes zur Wärmeerzeugung durch Widerstandsheizung. Noch günstiger im Wirkungsgrad ist natürlich die direkte Wärmeerzeugung aus Kohle. Diese ist jedoch mit Komforteinbußen und höheren Emissionen behaftet.

Wie schon vor 1945 großtechnisch demonstriert, läßt sich Kohle über Vergasung und Hydrierung auch in Treibstoffe für den Verkehr umwandeln. Die alternativen Möglichkeiten sind in Abb. 21 dargestellt. Über Synthesegas lassen sich im wesentlichen drei Wege verfolgen. Einmal kann man Synthesegas sehr leicht in Wasserstoff umwandeln. Wasserstoff ist ein umweltfreundlicher Alternativtreibstoff, der versuchsweise bereits in Autobussen und Personenwagen eingesetzt wird.

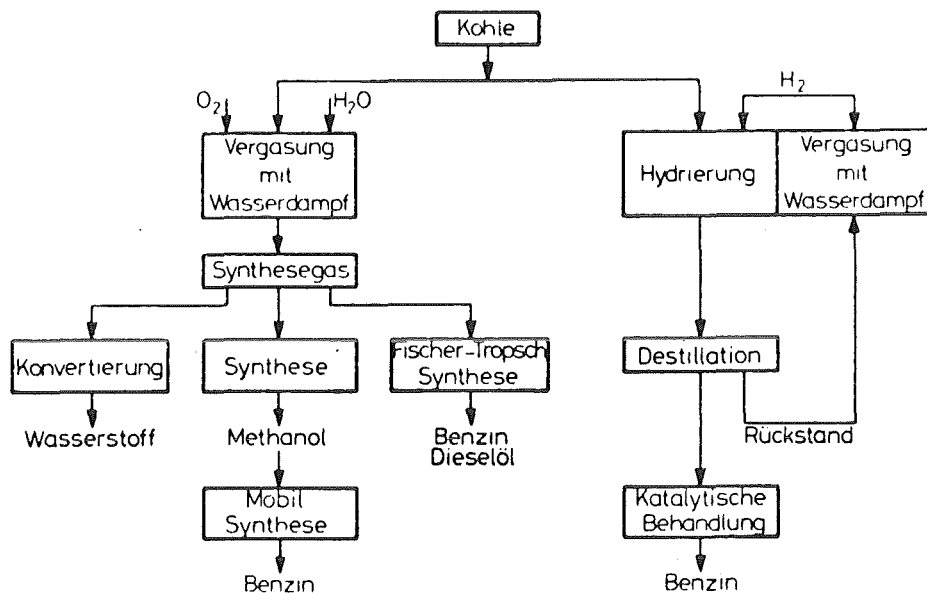


Abb. 21 : Vergasung und Hydrierung von Kohle zur Erzeugung von Treibstoffen

Weiter ist Methanol über die Methanolsynthese zugänglich. Auch Methanol ist bereits als Treibstoff eingesetzt worden und eignet sich auch zu einer Zumischung zu den konventionellen Kohlenwasserstofftreibstoffen. Durch einen neuen Prozeß, die sogenannte Mobil-Synthese, ist es gelungen, Methanol unmittelbar mit hohem Wirkungsgrad in Benzin umzuarbeiten.

Der dritte Weg über Synthesegas erfolgt über die sogenannte Fischer-Tropsch-Synthese, die in Deutschland entwickelt wurde, und die jetzt großtechnisch in Südafrika eingesetzt wird.

Daneben besteht die Hydrierung, die ebenfalls vor 1945 eingesetzt wurde, und zu einem aromathaltigen Benzin mit großer Klopfestigkeit führt. Die nach der Destillation erhaltenen Produkte werden durch eine katalytische Behandlung auf Benzin umgearbeitet.

Auch als Chemierohstoff läßt sich Kohle einsetzen, wie in Abb. 22 gezeigt ist. Hier macht die Vergasung zu Synthesegas die Produkte Wasserstoff, Ammoniak und Methanol zugänglich. Neuerdings sind Synthesen ausgearbeitet worden, die unmittelbar zu Äthylen führen. Die Fischer-Tropsch-Synthese macht auch höhere Paraffine, höhere Olefine und sauerstoffhaltige Verbindungen zugänglich.

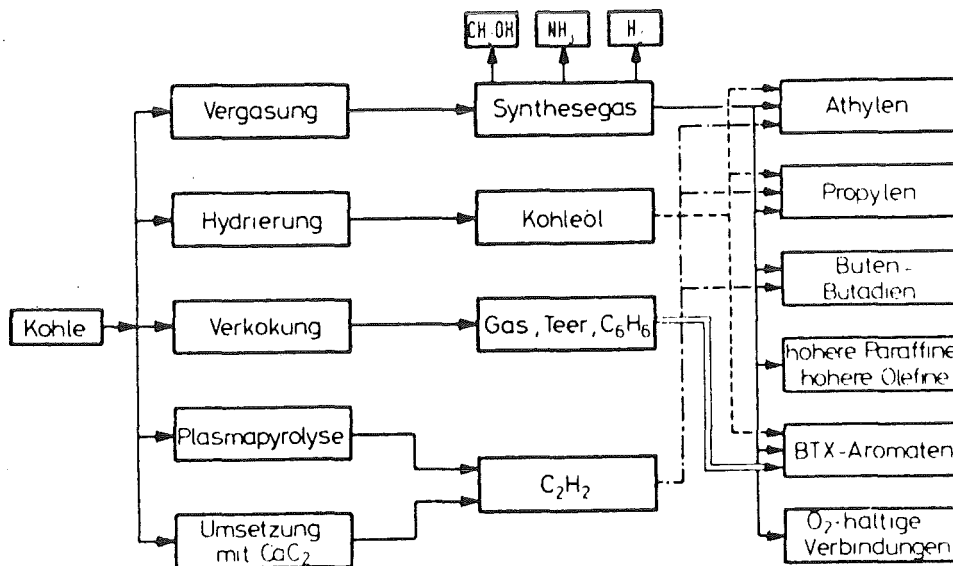


Abb. 22 : Hydrierung und Vergasung von Kohle zur Erzeugung von Chemierohstoffen/Vergleich mit anderen Prozessen

Auch die Hydrierung führt über Kohleöl im wesentlichen zu Äthylen und Aromaten. Ein interessanter Weg ist auch die unmittelbare Umsetzung von Kohle in einem Plasmabrenner zu Acetylen. Acetylen ist als wichtiger Chemierohstoff in alle die genannten Produkte zu verarbeiten.

In der Kraftwerkstechnik wird die Kohlevergasung bzw. -teilvergasung als Alternative zur direkten Verbrennung der Kohle untersucht. Man verspricht sich davon folgende Vorteile:

- einfachere Abtrennung von Schadstoffen aus dem Brenngas und dadurch Herabsetzung der Emissionen von Staub,  $SO_2$ , Fluor und Chlor;
- kombinierte Anwendung von Gas- und Dampfturbinen zur Steigerung des Kraftwerkswirkungsgrades.

Grundsätzlich lassen sich mit gewissen Einschränkungen alle Ver-gasungsverfahren mit Kraftwerken kombinieren.

In der Stahlindustrie kann aus Kohle gewonnenes Gas eingesetzt werden als Reduktionsgas zur Gewinnung von Roheisen. Dazu bieten sich im Prinzip zwei Möglichkeiten an. Die erste besteht in der Einspeisung von Gas als zusätzliches Reduktions- und Heizgas in den Hochofen, die zweite im Einsatz von Gas in den sich in der Entwicklung befindlichen Gas-Direktreduktionsprozessen. In der Bundesrepublik muß diese Technik mit dem Hochofenprozeß konkurrieren, der mit Koks aus Kohle betrieben wird. Alle bisherigen Studien dazu haben gezeigt, daß der Einsatz deutscher Steinkohle - mit guter Koks-kohlenqualität - die Rohreisengewinnung über den Hochofenprozeß klare wirtschaftliche Vorteile gegenüber der Gas-Direktreduktion besitzt.



### 1.3.2. Vergleich der verschiedenen Prozeßwege

Nach den Ausführungen in Kapitel 1.3.1 ist es über Kohlevergasung und-verflüssigung grundsätzlich möglich, alle auf Erdöl oder Erdgasbasis erzeugten Produkte - das sind Sekundärenergieträger zur Wärmeerzeugung, Chemierohstoffe und Treibstoffe - zu substituieren. Dabei können die verschiedenen Prozeßziele auf unterschiedlichen Wegen erreicht werden. Die Frage, welcher der möglichen Prozeßwege der optimale ist, läßt sich allgemein nicht beantworten. Für eine solche Entscheidung spielen zahlreiche Gesichtspunkte eine Rolle, die nur im konkreten Anwendungsfall gewertet und gegeneinander abgewogen werden können. Die wichtigsten Gesichtspunkte, anhand derer ein Vergleich der verschiedenen Prozeßwege ermöglicht wird, sind:

- Kohleneignung und Kohlenverfügbarkeit
- Anforderungen an die Produkte
- Wirkungsgrad
- Wirtschaftlichkeit
- Umweltverträglichkeit
- Standortbedingung
- Nutzung vorhandener Verbrauchsstrukturen.

Unter Beachtung dieser Gesichtspunkte werden im folgenden für die Bundesrepublik Deutschland einige vergleichende Betrachtungen zu den verschiedenen Prozeßwegen angestellt, wobei nach den o. g. Hauptproduktgruppen - Sekundärenergieträger, Chemieprodukte und Treibstoffe - unterteilt wird. Dabei wird auf die Umweltverträglichkeit nicht näher eingegangen, da sie Gegenstand der Ausführungen in den Kapiteln 2 und 3 ist.

#### Sekundärenergieträger aus Kohle für den Wärmemarkt

Rund 3/4 des Endenergiebedarfs der Bundesrepublik Deutschland entfällt auf Raumheizung und Prozeßwärmedarbietung im häuslichen, gewerblichen und industriellen Bereich. Dieser Wärmemarkt wird heute in der Hauptsache durch Erdöl mit ca. 44 %, Erdgas mit ca. 27 % und Kohle mit ca. 16 % abgedeckt. Hier besteht bei knapper und damit teurer werdenden Erdöl- und Erdgasreserven ein großes Potential für Gas und Öl aus Kohle.

Bei der Bereitstellung von Heiz- und Prozeßwärme durch Kohleprodukte werden in Zukunft hohe Anforderungen an den Komfort bei der Anwendung, an die Umweltfreundlichkeit sowie an den Umwandlungswirkungsgrad und damit an die Wirtschaftlichkeit gestellt. In Bezug auf komfortable Handhabung sind Kohleöl und Kohlegas in etwa gleichrangig zu bewerten. Im folgenden sollen daher die Wirkungsgrade der Energienutzung für die Wärmeerzeugung bei verschiedenen Sekundärenergieträgern aus Kohle vergleichend betrachtet werden.

Tabelle 21 zeigt diese Wirkungsgrade, definiert als das Verhältnis der nutzbaren Wärme im Produkt zur gebundenen Wärme in der Einsatzkohle. Die genannten Wirkungsgrade ergeben sich als das Produkt aus den Wirkungsgraden sämtlicher Umwandlungsstufen von der Kohleförderung einschließlich Einsatz beim Verbraucher. Man erkennt in dieser Tabelle, daß der höchste Wirkungsgrad bei der Wärmeerzeugung durch direkte Kohlenfeuerung erzielt werden kann. Das gestiegene Komfortbedürfnis der Bundesbürger sowie die für Erdöl und Erdgas geschaffenen Verbrauchsstrukturen werden jedoch dazu führen, daß der direkte Kohleneinsatz auf dem Wärmemarkt sich im wesentlichen auf Fernheizung - dies allerdings nur innerhalb relativ dicht besiedelter Gebiete - und evtl. noch auf industrielle Großfeuerungen beschränkt.

Die Wirkungsgrade beim Kohlegas, und zwar sowohl bei Stadtgas als auch bei SNG, liegen etwas höher als beim Kohlenöl, erreichen aber in keinem Falle die hohen Werte der direkten Kohlenfeuerung. Dies wäre möglich, wenn es gelingt, Hochtemperatur-Kernreaktorwärme als Prozeßwärme für die Vergasung von Kohle bereitzustellen. Bei den in Tabelle 21 hierzu angegebenen Zahlen ist die Kernenergie als Einsatzenergie mit einberechnet worden. Bezieht man die nutzbare Wärme allein auf die Kohle, so würde man Wirkungsgrade um 81 % erhalten. In diesen Zahlen liegt ein ganz besonderer Anreiz, die Technik der nuklearen Kohlevergasung für die Zukunft weiter zu entwickeln.

Prozeß der Wärmeerzeugung	
Ofenheizung (Kohle oder Koks)	um 74 %
Elektroheizung mit Strom aus Kohle	um 33 %
Fernheizung (Heizwerke mit Kohle) - nur innerhalb dichtbesiedelter Gebiete -	68-75 %
Kohlengas (SNG), konventionell	40-52 %
Kohlengas (SNG), mit HTR	60-70 %
Kohlengas (Stadtgas), konventionell	47-57 %
Kohlengas (Stadtgas), mit HTR	63-73 %
Kohlenöl	38-45 %
$= \frac{\text{Nutzmenge beim Verbraucher als Wärme}}{\text{Primärenergie}}$	

Tab. 21: Wirkungsgrade der Wärmeerzeugung

### Chemieprodukte aus Kohle

Die Abbildung 23 zeigt eine vereinfachte Gegenüberstellung der Gewinnung von Chemierohstoffen aus Erdöl und aus Kohle. Aus ihr geht hervor, daß die wichtigsten Zweige der Chemie über Verkokung (Schwelung), Hydrierung und Vergasung von Kohle aufgebaut werden können und daß so der gesamte Bereich der heutigen Erdölchemie substituiert werden kann.

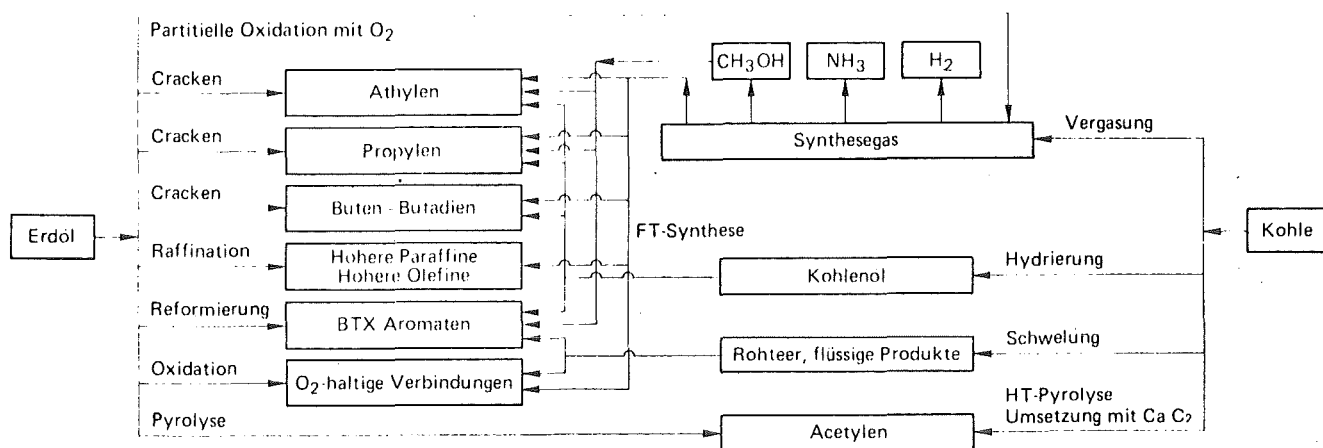


Abb.23: Chemierohstoffe aus Erdöl und aus Kohle

Der Schwerpunkt der Kohlehydrierung lag bis zum Ende des zweiten Weltkrieges auf der Herstellung von Motorentreibstoffen. Nach dem Kriege wurden verstärkt Bemühungen aufgegriffen, aus den Hydrierprodukten der Kohle auch Chemierohstoffe, insbesondere Aromaten und Olefine, zu gewinnen. So werden beim amerikanischen H-Coal-Verfahren aus dem durch mehrstufige Hydrierung erzeugten Schwerbenzin durch Reformieren Aromaten gewonnen, die anschließend in die Hauptprodukte Benzol, Toluol, o- und p-Xylol aufgetrennt werden. Das Leichtbenzin, die Nicht-Aromaten und die C<sub>2</sub> bis C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffe aus der Gastrennung werden gemeinsam in einer Pyrolyseanlage gecrackt, wobei Olefine, insbesondere Äthylen, Propylen und Butylen gewonnen werden. In ähnlicher Weise wird auch in der Bundesrepublik Deutschland an der Aufbereitung der bei der Kohlehydrierung entstehenden Produkte zu Chemierzeugnissen gearbeitet.

Der Abbildung ist weiterhin zu entnehmen, daß bei der Darstellung von Chemieprodukten aus Kohle dem Synthesegas, das durch Kohlevergasung erzeugt wird, eine ganz besondere Bedeutung zukommt. Es führt nämlich nicht nur zu den traditionellen Folgeprodukten wie Ammoniak, Wasserstoff und Methanol, sondern über die Fischer-Tropsch-Synthese auch zu höheren Paraffinen, höheren Olefinen und sauerstoffhaltigen Verbindungen.

Zur Erzeugung von Ammoniak aus Synthesegas sind auf der Welt zahlreiche Anlagen auf Kohlenbasis in Betrieb, wobei die Kohlevergasung fast ausnahmslos aufgrund der günstigen Rohgaszusammensetzung nach dem Prinzip von Koppers-Totzek durchgeführt wird. Auch Methanol wird seit langem großtechnisch aus Synthesegas hergestellt, so daß dieser Weg ebenfalls für die Kohle zugänglich ist. Auch hierfür bietet der Koppers-Totzek-Prozeß und seine in der Bundesrepublik Deutschland betriebenen Weiterentwicklungen (Shell/Koppers und Texaco/Ruhrchemie/Ruhrkohle-Verfahren) Vorteile. Darüber hinaus wird in der Bundesrepublik Deutschland an der Weiterentwicklung der Winkler-Vergasung zur Erzeugung von Synthesegas gearbeitet. Hierbei spielen allerdings spezielle Standortbedingungen im vorhandenen Chemiekomplex eine prozeßbestimmende Rolle. Eine Festbettvergasung nach Lurgi kommt bei der Synthesegas-Erzeugung nur dann infrage, wenn die anfallenden Teere und Öle, die bei den anderen Vergasungsverfahren weitgehend fehlen, genutzt werden sollen.

Das Haupteinsatzgebiet der Lurgi-Vergasung ist bis heute die Produktion von Kohlenwasserstoffen nach dem Fischer-Tropsch-Verfahren (Sasol-Anlagen in Südafrika). Es bestehen allerdings verstärkte Anstrengungen, durch Abwandlung der Prozeßbedingungen in der Fischer-Tropsch-Synthese auch Olefine im Bereich von  $C_2 - C_4$  zu synthetisieren. Daneben wird die Umsetzung sauerstoffhaltiger Zwischenprodukte, wie Methanol und Äthanol zu niedrigen Olefinen untersucht.

#### Treibstoffe aus Kohle

Die Herstellung von Treibstoffen aus Kohle kann über die direkte Kohlehydrierung oder über Synthesegaserzeugung und Fischer-Tropsch-Synthese erfolgen. Unter den Bedingungen für die Bundesrepublik Deutschland ergibt ein Vergleich der beiden Prozeßwege folgendes Bild: Die Benzinherstellung über Fischer-Tropsch-Synthese erfordert im Vergleich zur direkten Hydrierung höhere spezifische Investitionskosten und auch einen höheren Energieaufwand pro t Flüssigprodukt. Abb. 24 zeigt die Herstellkosten von Benzin aus Kohle nach dem Verfahren der direkten Hydrierung und nach der Fischer-Tropsch-Synthese. Zusätzlich sind die Kosten für den neuen in der

Entwicklung befindlichen Mobil-Oil-Prozeß aufgetragen. Man erkennt, daß für deutsche Verhältnisse die Benzingerinnung durch direkte Kohlehydrierung die niedrigsten Herstellkosten ergibt. Im oberen Teil der Abbildung sind die für die Berechnung zugrundegelegten Produktausbeuten und Kohleneinsätze angegeben. Interessant ist hierbei, daß der spezifische Kohleneinsatz beim Mobil-Oil-Prozeß, bei dem das Synthesegas zunächst in Methanol überführt und dieses dann zu Dimethyläther und weiter zu Kohlenwasserstoffen dehydratisiert wird, noch geringer ist als bei der direkten Kohlenhydrierung.

Art der Herstellung	Produkt/a	Kohleneinsatz tSKE/a	tSKE/t Flüssigprodukt
Hydrierbenzin	$2 \times 10^6$	$6 \times 10^6$	3,6
Benzin nach FT-Synthese	$1,96 \times 10^6$	$9,03 \times 10^6$	4,0
Benzin nach Mobil-Synthese	$1,05 \times 10^6$	$4,136 \times 10^6$	3,4

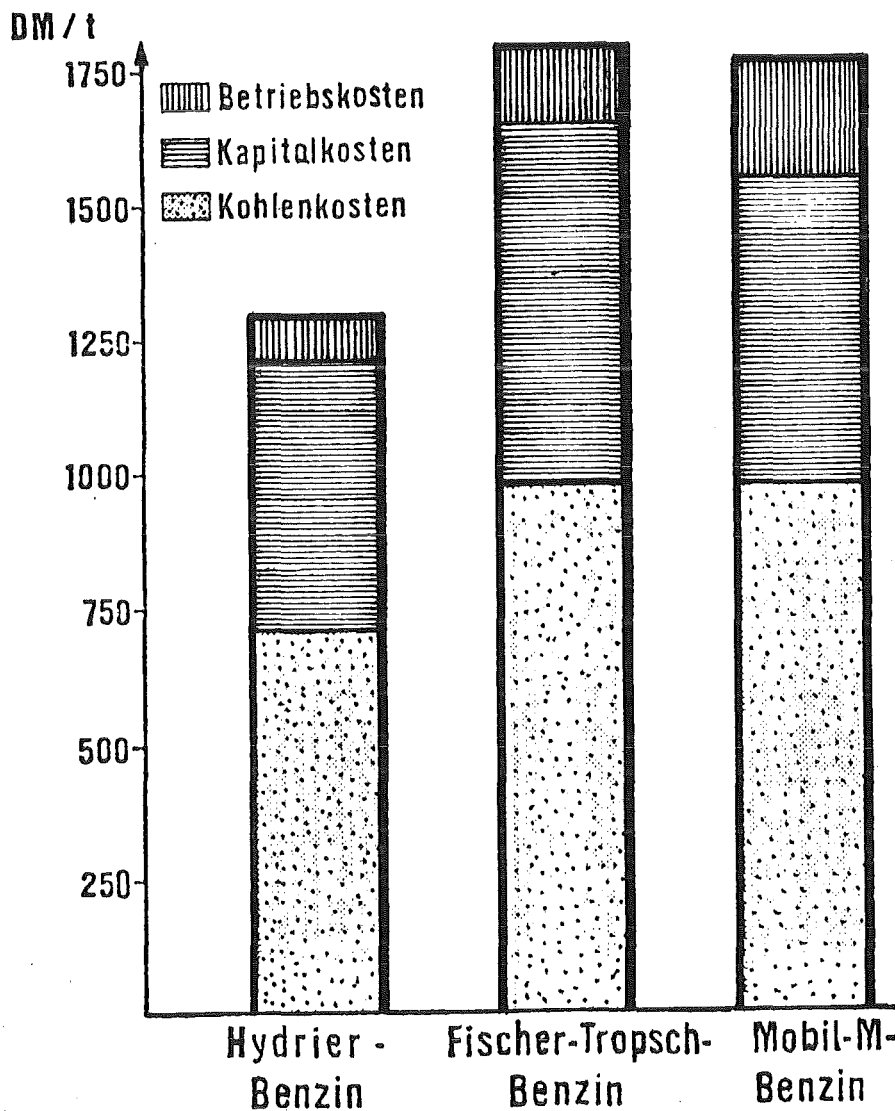


Abb. 24: Herstellkosten von Benzin aus Kohle nach verschiedenen Verfahren (aus H. Jüntgen, Vorlesung GHS Essen, 1981)

Neben den Unterschieden, die sich für die Treibstoffkosten ergeben, sind weitere wichtige Gesichtspunkte bei einer Beurteilung der verschiedenen Prozeßwege zu beachten. So ist z. B. bekannt, daß sich bei weitem nicht alle Kohlen auf dem direkten Wege hydrieren lassen. Diese Tatsache spielt bei der Treibstoffgewinnung über Fischer-Tropsch-Synthese keine Rolle, da alle Kohlen nach dem Verfahren von Koppers-Totzek in Synthesegas vergast werden können.

Weitere Unterschiede zwischen Hydrierbenzin und Fischer-Tropsch-Benzin treten zutage, wenn man sich die Eigenschaften der Kraftstoffe näher ansieht. In Tabelle 22 sind diese Eigenschaften für die beiden Prozeßwege gegenübergestellt, wobei auch die Werte für Kraftstoffe aus dem Mobil-Oil-Prozeß und für Benzin aus Erdöl zum Vergleich mit aufgeführt sind. Es fällt auf, daß Superbenzin aus der Direkthydrierung hinsichtlich der Klopfestigkeit ausreichende Werte für ROZ und MOZ ohne Bleizusatz aufweist, daß aber der Wert für FOZ zu gering und das spezifische Gewicht zu hoch sind. Demgegenüber werden die Qualitätsanforderungen für Benzin und Diesel aus der Fischer-Tropsch-Synthese, wie das Beispiel der Sasol-Anlagen in Südafrika zeigt, voll erfüllt. Beim Mobil-Oil-Prozeß werden nach den bisherigen Untersuchungen Oktanzahlen im günstigen Bereich zwischen 90 und 100 ohne Bleizusatz erwartet. Auch dies liegt an dem relativ hohen Aromatenanteil.

An verschiedenen Stellen wird intensiv daran gearbeitet, Methanol, das sich ebenfalls über Synthesegas aus Kohle herstellen läßt, unmittelbar oder im Gemisch mit bereits verfügbaren Produkten als Motorentreibstoff einzusetzen. Methanol wird heute bereits großtechnisch hergestellt. Für eine Verwendung in Kraftfahrzeugen müßten jedoch die Motoren und das Verteilungsnetz für diesen Treibstoff umgerüstet werden. Grundsätzliche technische Schwierigkeiten bestehen dabei nicht, doch kann eine solche Umrüstung nur langfristig erfolgen. Hinsichtlich Kraftstoffverbrauch und Umweltbelastung können beim Methanol Vorteile gegenüber Benzin erwartet werden.



Eigenschaft	Benzin			Superbenzin			Diesel		
	Erdöl	Fischer-Tropsch ohne   mit Teerverarbeitung		Erdöl	direkte Hydrierung	Mobil- Prozeß	Erdöl	Fischer-Tropsch ohne   mit Teerverarbeitung	
spez. Gewicht	0,715-0,755 (15°C)	0,69	0,71-0,72	0,744 (15°C)	0,810 (15°C)	0,730	0,815-0,855 (15°C)	0,77	0,79-0,81
Siedeanalyse ASTM	Vol.% °C			°C	°C		Vol.% °C		
Vol.% 5	15-45 70			33	65	10 } 47-169 90 }	65 250		
50	42-70 100			95	120		85 350		
95	90 180			177	180		90 360		
Stoffklassen		(Gew.%)	(Gew.%)	(Vol.%)	(Vol.%)	(Gew.%)		(Gew.%)	(Gew.%)
Paraffine					18	56			
Naphthene				54	6	4			< 5
Olefine				14	0	7			
Aromaten		0	10-20	32	76	33		0	<10
Klopffestigkeit									
ROZ	91	92	95	99	101	96,8			
MOZ	82			88	89				
FOZ				93	85				
Cetan-Zahl							45	75	70
Blei g/l	0,15			0,14	0		0	0	0
		0,15 ml TEL/l							

Tab. 22: Qualität von aus Kohle hergestellten Kraftstoffen und Vergleich mit Erdölprodukten (aus H. Jüntgen, Vorlesung GHS Essen, 1981)

### 1.3.3. Zeitbedarf bis zur industriellen Einführung

Der Zeitpunkt der Markteinführung für Kohlenvergasung und Hydrierung wird maßgeblich durch die Preisentwicklung für Rohöl, Erdgas und die einzusetzende Kohle bestimmt. Die Rohölpreise sind vor allem wegen der kaum zu beeinflussenden Entscheidungen der OPEC nur sehr schwer vorauszusehen. Im Falle des Erdgases kann davon ausgegangen werden, daß sein Preis mit geringerer Zeitverschiebung an den des Mineralöls angepaßt wird. Während sich die Steigerungen der Erdöl- und Erdgaspreise sehr stark beim Verbraucher auswirken, bringt im Falle der Kohlekosten deren Verdopplung z. B. nur eine Preissteigerung der Kohleveredlungsprodukte um etwa 50 %. Die Ursache hierfür ist in der Kostenstruktur der Kohleveredlungsverfahren zu sehen, bei der rund 55 % des Produktpreises auf die Einsatzkohle, rund 35 % auf die Kapitalkosten und rund 10 % auf die Betriebskosten entfallen. Aus diesen Gründen kann langfristig mit einer größeren Preisstabilität der Kohlenveredlungsprodukte im Vergleich zu Erdöl und Erdgas gerechnet werden. Nach vorsichtigen Abschätzungen könnte danach die Erzeugung von Gas und Öl aus Kohle Anfang bis Mitte der 90er Jahre die Schwelle der Wirtschaftlichkeit erreichen. Dabei werden die Wirtschaftlichkeitschancen für Synthesegas aus Kohle am günstigsten eingeschätzt.

Der genannte Zeitpunkt kann sich aufgrund der vielen Unsicherheiten bei seiner Abschätzung sicher verschieben. Nach den Erfahrungen seit 1973 können dabei dramatische Preissteigerungen beim Erdöl in seinem Gefolge auch beim Erdgas nicht ausgeschlossen werden, wodurch Kohlenöl und Kohlengas schon erheblich schneller an die Wirtschaftlichkeitsschwelle gelangen können. In jedem Falle dürfte die Zeit gerade noch ausreichen, um bis Anfang der 90er Jahre großtechnisch erprobte und wirtschaftlich arbeitende Verfahren zur Kohlevergasung und Kohlehydrierung verfügbar zu haben. Es war daher richtig, daß sich schon Mitte der 70er Jahre Industrie und Öffentliche Hand entschlossen haben, die dazu notwendigen Entwicklungsarbeiten in Angriff zu nehmen.

In den Jahren von 1976 - 1981 sind zahlreiche Versuchsanlagen im Maßstab zwischen 5 und 200 t/d Kohledurchsatz in Betrieb gegangen. Z. Z. stehen die Entscheidungen für den Bau erster Betriebsanlagen an. Diese Anlagen werden noch nicht wettbewerbsfähig sein und erfordern daher noch eine erhebliche finanzielle Unterstützung durch die öffentliche Hand.

Der Zeitbedarf für die bereits begonnenen Vorplanungsarbeiten wird wesentlich mitbestimmt von der Akzeptanz der Kohlenveredlung durch die Bevölkerung. Die Diskussion über die Umweltauswirkungen, die Standortauswahl und das Genehmigungsverfahren werden Zeitplan für Planung und Bau der ersten Industrieanlagen wesentlich mitbestimmen. Nur bei zügiger Abwicklung dieser Arbeiten in der Vorplanungs- und Genehmigungsphase kann mit einem Bauentscheid im Jahre 1984 gerechnet werden. Danach ist mit einer Bauzeit von mindestens 6 - 7 Jahren zu rechnen, so daß mit der Inbetriebnahme Anfang der 90er Jahre der oben abgeschätzte Ecktermin gerade erreicht werden kann. Kohlevergasung und Kohlehydrierung können daher in der Bundesrepublik Deutschland bei heute gebotener zügiger Weiterentwicklung ab Mitte der 90er Jahre preisregulierend wirken. Das ist aber auch der Zeitpunkt, an dem mit Sicherheit heute mit einer ernsthaften Verknappung von Erdöl und Erdgas und daher rapider Preissteigerung gerechnet werden muß. Aufgrund des gewaltigen Investitionsbedarfes und der gewaltigen Kohlemengen, die für den Ersatz von Erdöl und Erdgas auf längere Sicht gesehen verfügbar gemacht werden müssen, erscheint es notwendig, auch die Entwicklung der Kohlevergasung unter Nutzung von Kernreaktorwärme, deren Entwicklung verständlicherweise länger dauern wird, weiterhin zügig voranzutreiben. Bei diesem Verfahrensweg sind aufgrund des heute erreichten Entwicklungsstandes erste kommerzielle Anlagen zu Beginn des nächsten Jahrhunderts zu erwarten.

Verwendete Literatur von BF und RAG zu Kapitel 1

- 1) H. D. Schilling, B. Bonn, U. Krauß  
Kohlenvergasung  
Bestehende Verfahren und neue Entwicklungen  
Verlag Glückauf GmbH, Essen, 1981, Band 22
- 2) H. Jüntgen, J. Klein, K. Knoblauch, H. J. Schröter, J. Schulze  
Conversion of coal and gases produced from coal  
into Fuels, Chemicals, and other products  
Chemistry of Coal Utilization, second supplementary volume,  
chapter 30, 1981, John Wiley & Sons. INC.
- 3) K. H. van Heek  
Überblick über den internationalen Entwicklungs-  
stand der Kohlevergasungsverfahren  
Stahl und Eisen 100 (1980), Nr. 7, S. 363-370
- 4) K. H. van Heek  
Kohlevergasung zur Produktion von Wasserstoff  
Tagung "Wasserstoff - Energieträger der Zukunft"  
HdT, Essen, 24. und 25.03.1981
- 5) K. H. van Heek  
Stand und neue Entwicklungen der Kohlevergasung  
DVGW Jahrestagung 16. Mai 1979, Ulm
- 6) H. Jüntgen  
Verwendung von Kohlengas und von Kohlenöl  
Glückauf, 115 (1979), Nr. 8, S. 329-338
- 7) W. Peters  
Möglichkeiten und Grenzen des zukünftigen Einsatzes  
von Kohle in der Energieversorgung  
Brennstoff-Wärme-Kraft 32 (1980), Nr. 9, September
- 8) W. Peters  
Kohle statt Erdöl und Erdgas  
Entwicklungsstand und Erwartungshorizont  
Glückauf, 115 (1979), Nr. 23, S. 1159-63 und 1168

- 9) W. Peters  
Die Kohlenverflüssigung in der Bundesrepublik Deutschland  
Glückauf, 115 (1979), Nr. 8, S. 325-329
- 10) R. Specks, A. Klusmann  
Stand und Aussichten der Vergasung und Verflüssigung  
von Steinkohle  
Glückauf, 117 (1981) Nr. 11a, S. 8-14
- 11) J. Langhoff, R. Dürrfeld, E. Wolowski  
Neue Technologien zur Steinkohlenveredlung  
Stand der Entwicklungsprojekte der Ruhrkohle AG  
Erdöl und Kohle, Bd. 34, Heft 9, September 1981, S. 379-386
- 12) J. Romey  
Stand der Kohlehydrierung  
HdT, Essen, Tagung vom 7. - 8.12.1977, Heft 405
- 13) B. Strobel, U. Bönisch, F. Friedrich  
Ergebnisse der Versuchsanlage Kohleöl der Bergbau-Forschung  
HdT, Essen, Tagung vom 7. - 8.12.1977, Heft 405
- 14) E. Wolowski  
Die RAG/STEAG-Großversuchsanlage zur katalytischen  
Hydrierung von Steinkohle  
HdT, Essen, Tagung vom 7. - 8.12.1977, Heft 405
- 15) K. H. van Heek  
Stand der Kohlevergasung  
HdT, Essen, Tagung vom 7. - 8.12.1977, Heft 405
- 16) H. Jüntgen, I. Romey, K. H. van Heek  
in VDI-Bildungswerk "Kohlevergasung und -hydrierung zur  
Bereitstellung von Sekundärenergien, Treibstoffen und  
Chemierohstoffen  
12. - 14.5.1980, 9. - 11.3.1981, 26. - 28.10.1981

## 2. Charakterisierung der entstehenden Emissionen bei den jeweiligen Verfahrensschritten

Jede Teil- oder Nebenanlage des Kohleveredlungskomplexes wird Eingangs- und Ausgangsstoffströme in den drei Aggregatzuständen aufweisen. In diesen Stoffströmen sind sowohl die Produkte und Nebenprodukte des Prozesses enthalten als auch die unter Umständen umweltrelevanten Elemente und Verbindungen. Die Betrachtung dieser Stoffströme, eingeteilt nach ihren Aggregatzuständen, ist die Basis für eine zunächst qualitative Beschreibung der auftretenden Emissionen. Die Einteilung über das Kriterium Aggregatzustand ergibt sich auch daraus, daß sehr unterschiedliche Techniken angewendet werden müssen, um umweltrelevante Substanzen aus dem betrachteten Stoffstrom zu eliminieren. Man faßt die jeweils gasförmigen bzw. wäßrigen Ströme verschiedener Anlagenteile zusammen und reinigt sie gemeinsam vor dem Ableiten in die Umwelt. Wie schon in den Beschreibungen der verschiedenen Verfahren dargestellt wurde, läßt sich jede Anlage zur Kohleveredlung prinzipiell in folgende Komponenten zerlegen:

- Transport, Lagerung und Aufbereitung der Kohle
- Umwandlung der Kohle (Vergasung, Hydrierung)
- Produktgasaufbereitung, Abgas- und Prozeßwasserbehandlung
- Transport und Lagerung des Rückstandes
- Nebenanlagen

### 2.1. Transport, Lagerung und Aufbereitung der Kohle

Der Antransport der Kohle zur Veredlungsanlage wird in der Regel auf dem Schienenweg durch Großraumgüterwagen erfolgen. Diese werden im geschlossenen Zugverband kontinuierlich entleert. Von der Tiefentladestation wird die Kohle über Bandanlagen zum Mischlager transportiert, das notwendig ist, um bei der Kohleanlieferung von verschiedenen Zechen eine gleichmäßige Kohlequalität zu gewährleisten.

Befindet sich der Standort der Veredlungsanlage in unmittelbarer Nähe eines Bergwerkes, wird eine Bandanlage den Kohletransport direkt übernehmen. Gleiches gilt für den Fall, daß die Kohle durch See- bzw. Kanaltransport angeliefert werden kann.

Die Aufbereitung der Kohle für den Umwandlungsschritt ist abhängig von dem gewählten Verfahren:

Während bei Festbettvergäsern (z.B. Lurgi-Verfahren) stückige (5-30 mm) und für Wirbelschichtvergaser (z.B. HT-Winkler-Verfahren) feinkörnige (bis 8 mm) Kohle benötigt wird, besteht der Einsatzstoff bei den Flugstrom-Vergäsern (z.B. Koppers-Totzek-, Texaco-Verfahren) und dem Hydrierprozeß aus Kohlestaub ( $<90\mu\text{m}$  bzw.  $<200\mu\text{m}$ ). In der Regel wird Kohle durch eine Mahltrocknung für den Umwandlungsprozeß vorbereitet, als Wärmequelle für die Trocknung dient das Rauchgas aus der Energieerzeugungsanlage. Eine Ausnahme bildet das Texaco-Verfahren; hierbei wird die Kohle naß aufgemahlen und die resultierende Suspension direkt in den Vergaser eindosiert. Dadurch wird der bei den anderen Verfahren auftretende Staubanfall bei der Kohleinschleusung in den Reaktor verhindert. Werden die Kohlevorbehandlungsanlagen in Gebäuden untergebracht, die mit einer zentralen Entstaubungsanlage versehen sind, sind nennenswerte Staubemissionen aus diesem Bereich nicht zu erwarten. An die Entstaubungsanlage können auch die Bandübergabestellen, Mühlen, Siebe und Vorlagebunker, bei denen es zu einem größeren Staubanfall kommen kann, angeschlossen werden.

Die Entstaubung des Rauchgases aus der Mahltrocknung ist mit bewährten Technologien möglich.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß a) für den Bereich der Staubemission beim Kohletransport, der Lagerung und der Aufbereitung der Kohle weitgehende Erfahrungen aus anderen Industriebereichen vorliegen und b) die Staubemission kein spezifisches Problem der Kohleveredlungstechnologie darstellt.

## 2.2. Umwandlung der Kohle (Vergasung, Hydrierung)

Im eigentlichen Kohleumwandlungsteil der Veredlungsanlage, dem Vergasungs- bzw. Hydrierreaktor, finden hauptsächlich die in Abschnitt 1.1.1. bzw. 1.2.1. beschriebenen Reaktionen statt, die zu den gewünschten Produkten führen. Diese sind bei der Vergasung die Verbindungen  $H_2$ ,  $CO$  und  $CH_4$ , deren Ausbeuten, wie oben beschrieben, stark vom gewählten Verfahren und damit von den Reaktionsbedingungen abhängen. Bei der Hydrierung sind die attraktivsten Produkte die kurzkettigen Kohlenwasserstoffe bis zur Benzin bzw. Dieselfraktion und die BTX-Aromaten.

Neben diesen gewünschten Produkten kommt es zur Bildung einer Reihe von anderen Verbindungen, die aus dem Produktstrom entfernt werden müssen. Dabei kann es sich um verkaufsfähige Stoffe, wie z.B.  $NH_3$  oder Phenole, oder um Katalysatorgifte, z.B.  $H_2S$ , handeln, die bei nachgeschalteten Prozessen, wie der Methanisierung oder Methanolsynthese, den Katalysator desaktivieren würden. Weiterhin sind einige umweltrelevante Spurenelemente, z.B.  $Cd$ ,  $Hg$ ,  $Se$ , zu einem gewissen Teil unter den Umwandlungsbedingungen flüchtig und werden mit dem Produktgasstrom in die nachgeschalteten Reinigungsanlagen eingetragen.

Die im Umwandlungsreaktor entstehenden Schadstoffe werden nicht unmittelbar aus dem Reaktor emittiert. Da sämtliche zur kommerziellen Nutzung infrage kommenden Verfahren bei hohen Temperaturen ( $400 - 1500^{\circ}C$ ) und hohen Drücken ( $10 - 300$  bar) arbeiten, ist schon aus rein technischen Gründen ein völlig geschlossenes, dichtes und in hohem Maße abgesichertes System erforderlich, so daß eine merkliche Emission von Schadstoffen aus diesem Anlagenteil ausgeschlossen werden kann.

## 2.3. Produktgasaufbereitung, Abgas- und Abwasserbehandlung

Die Aufarbeitung der Produkte des Kohleveredlungsprozesses geschieht genau wie die eigentliche Umwandlungsreaktion in geschlossenen Anlagenteilen. Erst am Ende einer Kette von



Reinigungs- und Aufarbeitungsprozeduren besteht die Möglichkeit, daß entstandene Schadstoffe, die im Produktstrom mitgeführt werden, in die Umwelt gelangen können. An diesen Stellen müssen die in Abschnitt 3. beschriebenen Emissionsminderungstechniken eingesetzt werden.

### Vergasungsprozesse

Nach dem Vergasungsreaktor wird das Rohgas gekühlt; u.U. muß zur Einstellung des gewünschten CO/H<sub>2</sub>-Verhältnisses eine Konvertierung an schwefelfesten Katalysatoren vorgeschaltet werden. Bei der Kühlung des Rohgases kondensieren nichtreagierter Wasserdampf und höhere Kohlenwasserstoffe. Die Bildung dieser Kohlenwasserstoffe, speziell die der Phenol-, Öl- und Teer-Komponenten, tritt in besonders hohem Maße bei Vergasungsprozessen auf, die bei relativ geringen Temperaturen arbeiten (z.B. Lurgi). Dies macht eine mit der Gaswassertrennung verbundene Teer-Öl-Abscheidung notwendig. Die Öl-Fraktion wird abgetrennt und als Produkt zum Tanklager gefördert. Der staubhaltige Teer wird in den Reaktor zurückgeführt. Das im Prozeßwasser enthaltene Phenol kann durch eine Phenolsolvan- oder eine A-Kohle-Adsorptions-Anlage isoliert und nach einer Reinigung dem Tanklager zugeführt werden. Bei dem Hochtemperaturvergasungsverfahren (z.B. Texaco) findet keine Bildung von Kohlenwasserstoffen statt; darum sind die oben aufgeführten Reinigungsverfahren des Prozeßwassers nicht notwendig.

Als umweltrelevante Komponenten treten hier wie auch bei den anderen Vergasungsverfahren Stoffe auf, die im Wasser löslich sind. Dies sind vor allem NH<sub>3</sub> und H<sub>2</sub>S und die als Salze gelösten Spurenelemente, insbesondere die Schwermetalle.

NH<sub>3</sub> und H<sub>2</sub>S lassen sich durch Strippping isolieren; das NH<sub>3</sub> wird gereinigt und als verkaufsfähiges Produkt gelagert, das H<sub>2</sub>S wird der Schwefelgewinnungsanlage (siehe unten) zugeführt.

Das mit gewissen Restbelastungen an organischen Verbindungen,  $H_2S$ ,  $NH_3$  und den anorganischen wie organischen Salzen behaftete Prozeßwasser wird dann der Abwasseraufbereitung (s. Abschnitt 3.3.) zugeleitet. Diesem Prozeßwasser wird das Aschewasser zugemischt, das bei der Kühlung der Asche anfällt und suspendierten Feststoff sowie gelöste Salze enthält.

Zur Abwasserreinigung läßt sich zusammenfassend feststellen, daß Teilprozesse, wie z.B. die Vorreinigung, die Flocculation und der biologische Abbau organischer Verbindungen bereits in der großtechnischen Anwendung erfolgreich eingesetzt und erprobt worden sind, z.B. in der chemischen Industrie und der Erdölraffination. Weitgehend ungeklärt sind jedoch die Rückhaltungsmöglichkeiten für Spurenelemente und deren Einfluß auf die biologische Reinigungseinheit in Abwasseraufbereitungsanlagen. Um so bald wie möglich zu einer unter ökonomischen und ökologischen Gesichtspunkten sinnvollen großtechnischen Lösung zu gelangen, müssen vorliegende Literaturdaten zusammengestellt und durch experimentelle Arbeiten, die u.a. bei der Bergbau-Forschung in Angriff genommen worden sind, ergänzt werden.

Das durch die Gaskühlung schon in gewissem Umfang gereinigte Produktgas, das durch Konvertierung schon das gewünschte  $CO/H_2$ -Verhältnis aufweist, ist noch mit einem großen Teil der Schwefelkomponenten, speziell  $H_2S$ , beladen. Diese und andere Schwefelverbindungen, z.B.  $COS$  und  $CS_2$ , müssen aus dem Gas bis zu einer Schwefelrestkonzentration von 0,1ppm entfernt werden, um die Weiterverarbeitung des Synthesegases an den hochgradig schwefelempfindlichen Katalysatoren für die Methan- und Methanolsynthese zu ermöglichen. Diese Reinigung kann mit einem der in Abschnitt 3.2. beschriebenen Entschwefelungsverfahren durchgeführt werden; technisch ausgereift und erprobt ist das Rectisol-Verfahren. Das bei diesen Verfahren erhaltene  $H_2S$ -Reichgas wird einer Claus-Anlage zugeleitet und dort in elementaren Schwefel umgewandelt, der keine Gefährdung der Umwelt darstellt. Das an  $CO_2$  reiche Abgas der Rectisol-Anlage

sowie die Gase der Gaswassertrennung und der Kohleschleusen werden zur Nachverbrennung geleitet. Das hieraus abgegebene Gas enthält im wesentlichen  $\text{CO}_2$  und geringe Mengen an  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CO}$  und  $\text{NO}_x$ .

Das gereinigte Synthesegas kann in den angeschlossenen Anlagen, auf die hier nicht eingegangen werden soll, weiterverarbeitet werden.

Zusammenfassend läßt sich zur Abgasreinigung feststellen, daß die Technologie auf diesem Gebiet weit fortgeschritten ist und sich bereits in der Großtechnik bewährt hat.

#### Kohlehydrierung

Das aus dem Hydrierreaktor stammende Kohleöl wird zunächst der atmosphärischen Destillation unterworfen und die Produkte in Flüssiggas, Leicht- und Mittelöl zerlegt, die, wie das durch Vakuumdestillation gewonnene Schweröl, dem Tanklager zugeführt werden. Der bei der Vakuumdestillation anfallende Rückstand wird bei ca.  $1500^\circ\text{C}$ , also oberhalb des Ascheschmelzpunktes, unter Zugabe von Kohle durch eine partielle Oxidation vergast. Aus diesem Reaktionsgas wird über eine Konvertierung und verschiedene Reinigungsstufen, wie sie schon bei der Vergasung beschrieben wurden, der zur Hydrierung notwendige Wasserstoff gewonnen. Die bei der Kohlehydrierung zu erwartenden Emissionen setzen sich aus den Emissionen der Anlagenteile zusammen, die zum einen für die Hydrierung, zum anderen für die zur Wasserstoffproduktion notwendige Rückstandsvergasung spezifisch sind. Die Emissionen, die bei der Vergasung auftreten, und entsprechende Reinigungsverfahren wurden oben bereits besprochen. Die für die Anlagenteile der Hydrierung, einschließlich der Destillationen, zu erwartenden Emissionen werden vergleichbar mit Emissionen aus der Erdölraffination sein. Zur Emissionsminderung werden demzufolge auch Verfahren angewandt werden können, die in diesem Industriebereich seit längerer Zeit erprobt sind.

#### 2.4. Transport und Lagerung des Rückstandes

Neben den bei den Kohleveredlungsverfahren gewünschten Produkten fällt der Vergasungsrückstand an, der im wesentlichen aus dem mineralischen Anteil der Kohle gebildet wird. Als Begleitkomponente kommt bei einigen Verfahren organischer nicht abreagierter Restkohlenstoff in Betracht. In wieweit bei der Entsorgung der Asche auf Deponien Spurenelemente herausgelöst werden können, ist noch Gegenstand der Forschung. Ein Laugungstest an Lignitasche aus einem Lurgivergaser führt zu den in Tab. 23 aufgeführten Ergebnissen. Diese Ergebnisse sind aber nur für die dabei verwendete Einsatzkohle, die eingestellten Vergasungsbedingungen und die Arten des Ascheaustrages spezifisch und können nicht auf andere Einsatzkohlen und Vergasungsverfahren übertragen werden. Allgemein gültige Aussagen zum Spurenelementaustrag durch das Aschewasser lassen sich nur durch gezielte Experimente ableiten. Dazu sind Untersuchungen u.a. in der Bergbau-Forschung begonnen worden.

Tabelle 23 : Konzentrationen von Spurenelementen bei einem 24-stündigen Auslaugversuch (200 g Lignitasche, 400ml H<sub>2</sub>O, 50-60°C) (14)

Element	Konzentration mg/l
As	0,005
B	9,0
Cd	0,01
Cu	0,01
Hg	0,1
Pb	0,05
Zn	0,01

Wie bei der Beschreibung des Verbleibs der Spurenelemente im Abwasser von Vergasungsanlagen läßt sich auch hier feststellen, daß weitere Untersuchungen notwendig sind, um den Einfluß der Aschevorbehandlung auf die Auslaugbarkeit von Spurenelementen eindeutig zu klären und so eine Minimierung der Emission dieser Elemente zu ermöglichen. Dies gilt besonders für den Hydrierprozeß, bei dem durch die Katalysatorzugabe eine zusätzliche Spurenelementquelle auftritt. Der Staubanfall bei der Handhabung des Vergasungsrückstands dürfte aufgrund der Feuchte, die durch die Aschekühlung bedingt ist, minimal sein.

#### 2.5. Nebenanlagen

Die Emissionen der Nebenanlagen, speziell der Anlagen für die Energie- und Dampferzeugung und das Tanklager, sind aus bestehenden vergleichbaren Anlagen bekannt und nicht spezifisch für die Kohleveredlungsanlagen.

Durch moderne Feuerungstechnik und die Verfahren zur Rauchgasentschwefelung lassen sich die Schadstoffemissionen der angeschlossenen Kraftwerke weitgehend minimieren.

Für den Umschlag und die Lagerung der Produkte aus Kohleveredlungsanlagen ist zur Verlustminimierung der Einsatz modernster Technik geplant. Praktische Erfahrungen aus der Mineralölindustrie stehen für diesen Bereich zur Verfügung. Das gleiche gilt für die Leckage-Verluste. Hier ist der Einsatz moderner, hochabgesicherter Dichtelemente bei Absperr-, Regel- und Förderorganen, bei denen der Hauptanteil an den gesamten Leckageverlusten auftritt, vorgesehen.

3. Überblick über Rückhaltemöglichkeiten umweltrelevanter Stoffe

Bei den Kohleveredlungsverfahren muß davon ausgegangen werden, daß zu einem gewissen Umfang umweltrelevante Stoffe entstehen. Diese sind dann in den Stoffströmen, die den Reaktor verlassen, enthalten. Als umweltrelevante Begleitstoffe sind die im folgenden aufgeführten Verbindungen zu erwarten. Eine Unterscheidung zwischen Hydrierung und Vergasung ist an dieser Stelle nicht notwendig, da der Kohlehydrierung immer eine (Rückstands-) Vergasung zur Bereitstellung des Wasserstoffs angeschlossen sein muß.

Tabelle 24 : Überblick über die in den verschiedenen Stoffströmen enthaltenen Verbindungen

Stoffstrom	Inhaltsstoff
Abgas	H <sub>2</sub> S, COS, CS <sub>2</sub> , NH <sub>3</sub> , HCN, CO, SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> flüchtige Verbindungen von Spurenelementen
	Kohlenwasserstoffe Verbindungen mit Heteroatomen: O-Verbindungen (z.B. Phenole, Aldehyde) N-" (z.B. Amine, N-Heterocyclen) S-" (z.B. Mercaptane)
	Stäube
Prozeßwasser	Salze, NH <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> S
	Kohlenwasserstoffe, Verbindungen mit Heteroatomen
	suspendierter Feststoff
Rückstand	Asche (= Mineralsubstanz der Kohle) Restkohlenstoff, Teer

Im folgenden sollen die Rückhaltemöglichkeiten für die umweltschädlichen Begleitstoffe des Produktgasstromes und des Prozeßwassers beschrieben werden.

### 3.1. Staubentfernung

Die Verfahren der Staubentfernung lassen sich grob in drei Kategorien einteilen (1):

Tabelle 25 : Entstaubungsverfahren (1)

Massenkräfte	Filter	Elektrofilter
Zyklone	Gewebefilter	Naßfilter
Naßabscheider	Schüttschichten Filterkerzen	Trockenfilter

Die Technologie der Staubabscheidung ist soweit entwickelt, daß eines, oder eine Kombination mehrerer, der oben angeführten Verfahren in der Lage sein sollte, die Staubgehalte der Abgase unter die durch gesetzliche Verordnungen vorgegebenen Grenzwerte abzusenken.

Bei den geplanten Anlagen zur Kohleveredlung kann davon ausgegangen werden, daß sämtliche Prozesse, die eine Staubentwicklung hervorrufen, in Gebäuden untergebracht und mit einer zentralen Entstaubungsanlage verbunden sind.

### 3.2. Reinigung von Rohgasen

Bei den Vergasungsprozessen wird das den Reaktor verlassende Gas einer Gaskühlung zugeführt. Dabei wird eine erste Auftrennung in die Stoffströme Rohgas und Gaswasser vorgenommen, die in nachgeschalteten Anlagenteilen von ihren Begleitstoffen gereinigt werden.

Die wesentlichen Bestandteile des Rohgases sind neben den Produkten  $H_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$  die flüchtigen Schwefel-Verbindungen wie  $H_2S$ ,  $R-SH$ ,  $COS$  und  $CS_2$ .

Tabelle 26 gibt eine Übersicht über die  $H_2S$ -Eliminierungsverfahren und deren Effizienz (2).

Tabelle 26 : Kommerzielle  $H_2S$ -Absorptionsprozesse (2)

Prozess	Absorbent	Abscheidegrad für $H_2S$ in %	Selektivität	Endprodukt
<b>chemische Wäschen</b>				
1. MEA	Monoethanolamin	99	$H_2S$ , $COS$ , $CS_2$	$H_2S$
2. DEA	Diethanolamin	99	$H_2S$ , nicht für $COS$ , $CS_2$	"
3. TEA	Triethanolamin	99	$H_2S$	"
4. Alkazid	Kalium-dimethylamin-Acetat	99	$H_2S$	"
5. Benfield	Kaliumcarbonat-Lösung	99	$H_2S$	"
6. Catacarb	Kaliumcarbonat-Lösung	99	$H_2S$ und $COS$ , $CS_2$	"
<b>physikalische Wäschen</b>				
7. Sulfinol	Sulfolan + Diisocrotylamin	99	$H_2S$ , $COS$ , $CS_2$ , Mercaptane	"
8. Selexol	Polyethylenglycolether	99	$H_2S$ und $COS$	"
9. Rectisol	Methanol	99	$H_2S$	"
<b>Oxidations-Verfahren</b>				
10. Stretford	Natriumcarbonat + Antraquinonesulfonsäure	99,9	$H_2S$	elementarer Schwefel
11. Townsend	Triethylenylcol	99,9	$H_2S$	"
<b>Trockenentschwefelung</b>				
12.	Hydratisiertes Eisenoxid oder Aktivkohle	99	$H_2S$ , $COS$ , $CS_2$ und Mercaptane	"



Aus der Tabelle ist zu entnehmen, daß sämtliche Verfahren Rückhaltegrade für  $H_2S$  von 99% und mehr haben. Darüber hinaus sind Verfahren entwickelt worden, wie z.B. Catacarb, Sulfinol und Selexol, die neben  $H_2S$  die möglichen Rohgasinhaltsstoffe  $COS$ ,  $CS_2$  und Mercaptane adsorbieren. Weitere Entwicklungen gehen dahin, auch  $H_2S$ -arme Gasströme selektiv zu reinigen (3,4).

Bei dem z.Zt. hauptsächlich angewandten Entschwefelungsverfahren, dem Rectisolprozeß, werden weitere Verunreinigungen des Gases, wie z.B. höhere Kohlenwasserstoffe, mit ausgewaschen.

Nachgeschaltet sind der Entschwefelung (in diesem Fall dem Rectisolprozeß) z.B. eine Stretford bzw. eine Claus-Anlage, die das  $H_2S$ -Reichgas in elementaren Schwefel umwandeln. Dieser läßt sich problemlos lagern und ist ein verkaufsfähiges Produkt.

Bei dem Verfahren der Kohlehydrierung muß vor der  $H_2S$ -Eliminierung ein Ammoniak-Stripper eingesetzt werden, der das Ammoniak aus dem Produktgas, das die leichten Kohlenwasserstoffe enthält, entfernt. Die weitere Behandlung des Produktgases geschieht analog dem Rohgas der Vergasung.

Die Abgase aus den oben beschriebenen Anlagenteilen und die Abgase anderer Teile der Verflüssigungsanlage, z.B. Schleusengase, werden einer Nachverbrennung zugeführt. Eine Nachverbrennungsanlage, die auf einem hohen Temperaturniveau arbeitet (ca.  $1000^{\circ}$ -  $1200^{\circ}C$ ), ermöglicht, Restgehalte von Kohlenwasserstoffen jeglicher Art in  $CO_2$  und  $H_2O$ , Schwefelverbindungen in  $SO_2$  und die unter Umständen gebildete Blausäure in  $NO_x$ -Verbindungen zu überführen (5).

Die relativ geringen Abgasmengen können dem Rauchgas der Dampfkraftanlage zugemischt werden. Für  $SO_2$  existieren heute schon zahlreiche Minderungstechniken. Einige sind in der Tabelle

27 aufgeführt. Zur Minderung der  $NO_x$ -Emission von Kraftwerken ist nach dem Erlaß des Ministeriums für Arbeit, Gesundheit und Soziales (TA Luft Teil3, 1978) der neuste Stand der Technik vorgeschrieben. Ein Beispiel für diese Technologie ist die Verwendung von Stufenbrennern, die gegenüber älteren Brennern weniger  $NO_x$  freisetzen. Andere Minderungsmaßnahmen befinden sich in der Entwicklung (s. Tabelle 28).

Tabelle 27 :SO<sub>2</sub>-Minderungsverfahren ( 6 )

Verfahren	Wirkungsprinzip	Endprodukt
Wellmann-Lord	Reaktion mit Na <sub>2</sub> SO <sub>3</sub> -Lösung	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
Cat-Ox	katalytische Oxidation des SO <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
FW-BF	Adsorption an AK	SO <sub>2</sub> -Reichgas
Catalytic-IFP	Absorption mit NH <sub>3</sub> -Wasser	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
Chiyoda	Absorption mit verdünnter H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> und katalytische Oxidation der gebildeten schwefeligen Säure zu H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	CaSO <sub>4</sub>

Tabelle 28: Neuentwicklungen zur NO<sub>x</sub>-Minderung (7)

Verfahren	Verfahrensbeschreibung
1) Shell/UOP	Trockene SCR von NO <sub>x</sub> im Plattenreaktor an CuO (bzw. Trockene Simultan-SCR von SO <sub>x</sub> /NO <sub>x</sub> )
2) Hitachi Zosen	Trockene SCR im metallischen „Wabenreaktor“
3) Kurabo Khorca	Trockene SCR im Wanderbett-Reaktor
4) JGC Paranox	Trockene SCR im Plattenreaktor
5) Moretana Calcium	Nasse Simultanabscheidung SO <sub>x</sub> /NO <sub>x</sub> (Oxidation mit ClO <sub>2</sub> /Absorption/Reduktion)
6) Ishi Kawajima H.I.	Nasse Simultanabscheidung SO <sub>x</sub> /NO <sub>x</sub> (Oxidation mit O <sub>3</sub> /Absorption/Reduktion)
7) Asahi Chemical	Nasse Simultanabscheidung SO <sub>x</sub> /NO <sub>x</sub> (Absorption an Eisen-Ethylen-Diamin-tetraessigsäure/Reduktion)

Typische Verfahrensschritte der Rauchgasreinigung sind in Abb. 24 schematisch dargestellt.

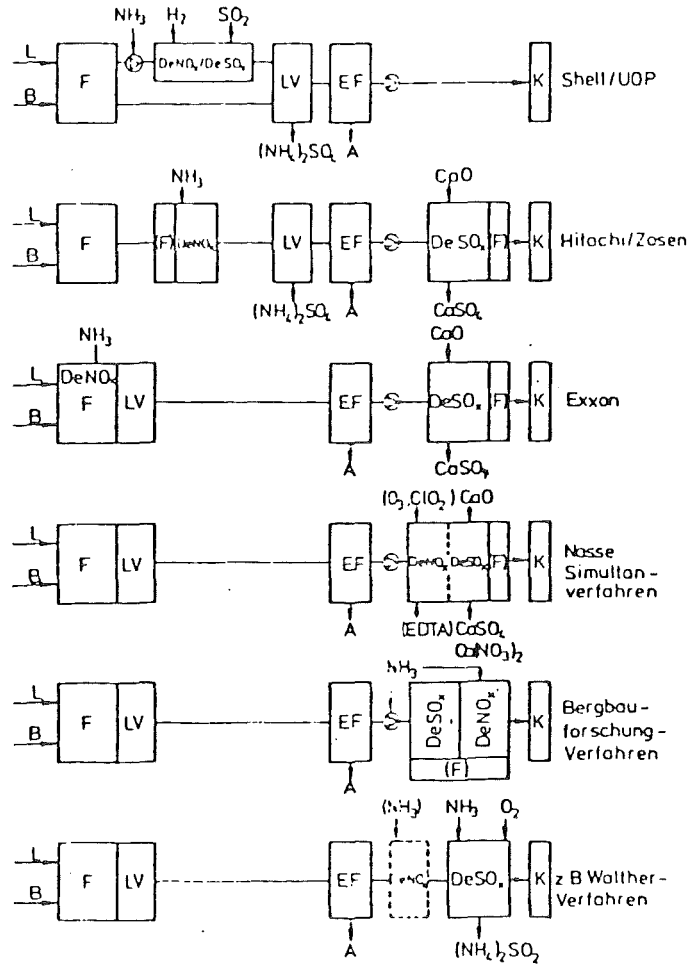


Abb. 24 : Verfahren zur Abgasreinigung, schematisch

Abkürzungen:

- L = Luft
- B = Brennstoff
- F = Kesselfeuerung
- (F) = Zusatzfeuerung
- LV = Luftvorwärmung
- EF = Elektro- oder Tuchfilter
- K = Kamin
- DeNO<sub>x</sub> = Stickoxidreinigung des Abgases
- DeSO<sub>x</sub> = Schwefeloxidreinigung des Abgases
- A = Asche

### 3.3. Abwasserbehandlung

Grundsätzlich wird man bei der Abwasserreinigung gemäß dem "zero discharge"-Konzept bestrebt sein, das Prozeßwasser soweit aufzuarbeiten, daß es bei den Vergasungsprozessen in den Reaktor zurückgeführt oder als Kühlwasser verwendet werden kann. Gleichzeitig dient die Abwasseraufbereitung zur Gewinnung verkaufsfähiger Produkte wie z.B. Ammoniak und Phenol.

Die Abwasserbehandlungsanlagen werden sehr prozeßspezifisch konzipiert sein. So ist bei der Lurgi-Vergasung aufgrund der geringen Reaktionstemperatur, die die Freisetzung von hochsiedenden Kohlenwasserstoffen ermöglicht, das Gaswasser einer Teer-Öl-Separation zuzuführen. Bei dieser Behandlung werden auch die im Wasser suspendierten Feststoffteilchen entfernt. Nach dieser Behandlung ist eine der in Abbildung 25 angegebenen Routen zur weiteren Reinigung des Lurgi-Prozeßwassers von Phenolen (und anderen organischen Verbindungen) und Ammoniak zu beschreiten.

Beim Ammoniak-Stripping werden die Konzentrationen von  $H_2S$  und  $HCN$  auf Spurengehalte reduziert. In der anschließenden biologischen Behandlung werden Fettsäuren und organische Salze abgebaut, so daß eine COD-Reduktion von 65-75% erreicht wird (8). Eine anschließende Behandlung durch Flocculation, Filtration und A-Kohle (Abb. 26) bewirken eine weitere Verbesserung der Abwasserqualität.

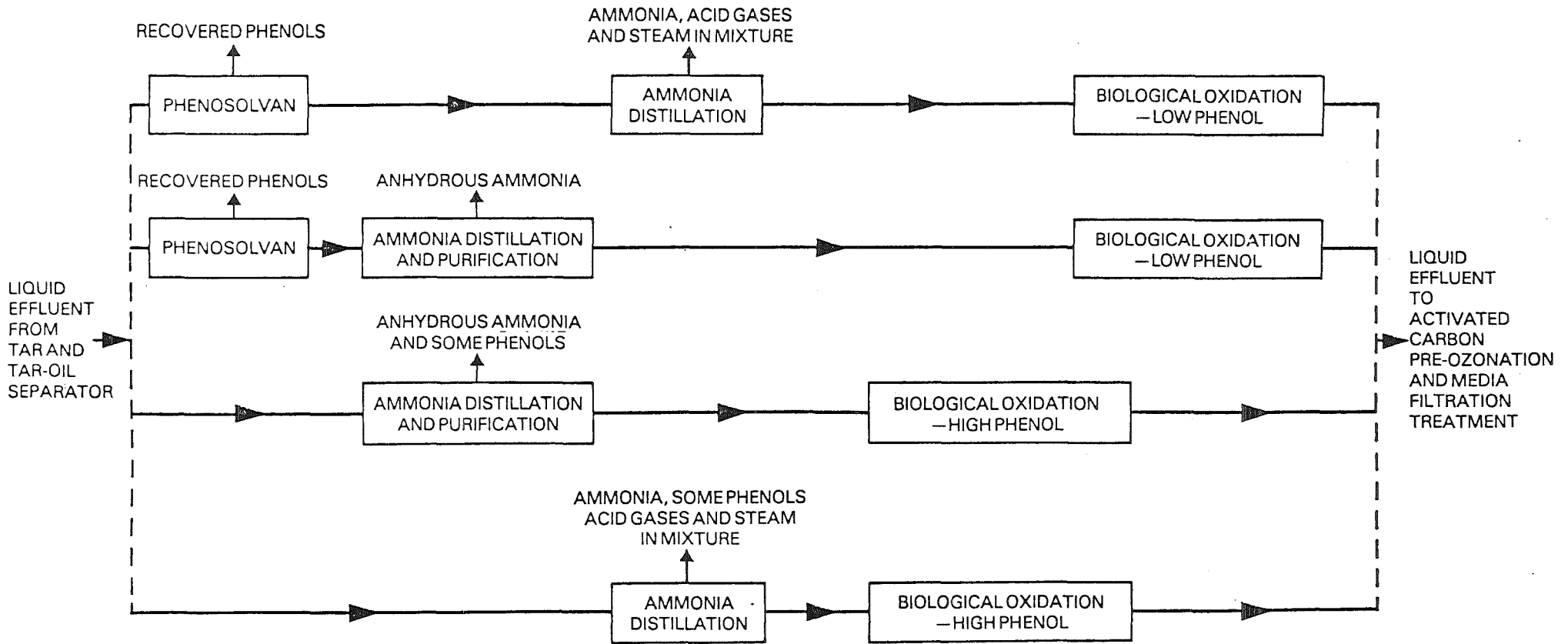


Abb. 25: By-product recovery and effluent treatment alternatives for Lurgi gas liquor (18)

Bei der Texaco-Vergasung kommt es aufgrund der höheren Reaktionstemperatur zu einer geringeren Beladung des Prozeßwassers mit organischen Verbindungen; eine Teer-Öl-Separation ist aus diesem Grunde nicht notwendig. Das Prozeßwasser kann nach dem  $\text{NH}_3$  - Stripping direkt der biologischen Behandlung oder einer Kombination aus Biologie und A-Kohle zugeleitet werden.

Bei der Kombination der biologischen Stufe mit der A-Kohle-Stufe sind folgende Punkte bemerkenswert:

1. Die Besiedlung der A-Kohle mit Mikroorganismen wirkt sich positiv auf die Adsorptionskapazität der A-Kohle aus, was durch eine teilweise biologische Regenerierung der A-Kohle begründet wird (9).
2. Die Adsorptionskapazität der A-Kohle für Spurenelemente, spezielle Schwermetalle, wird durch die Mikroorganismen erhöht. Dies wird auf die Bildung von leicht adsorbierbaren Metallorganen zurückgeführt (10).

Als abschließende Stufe der Reinigung von Prozeßabwässern aus Kohleveredlungsanlagen ist zur weiteren Eliminierung der Schwermetalle ein Ionenaustausch geplant (siehe Abb. 26).

Für die Kohlehydrierung wird die Abwasseraufbereitung so konzipiert, daß eine gemeinsame Behandlung der Prozeßwässer aus der Hydrierung und der Rückstandsvergasung, die der Bereitstellung des Wasserstoffs dient, vorgenommen werden kann, und sie besteht aus den oben bereits angeführten Anlageteilen.

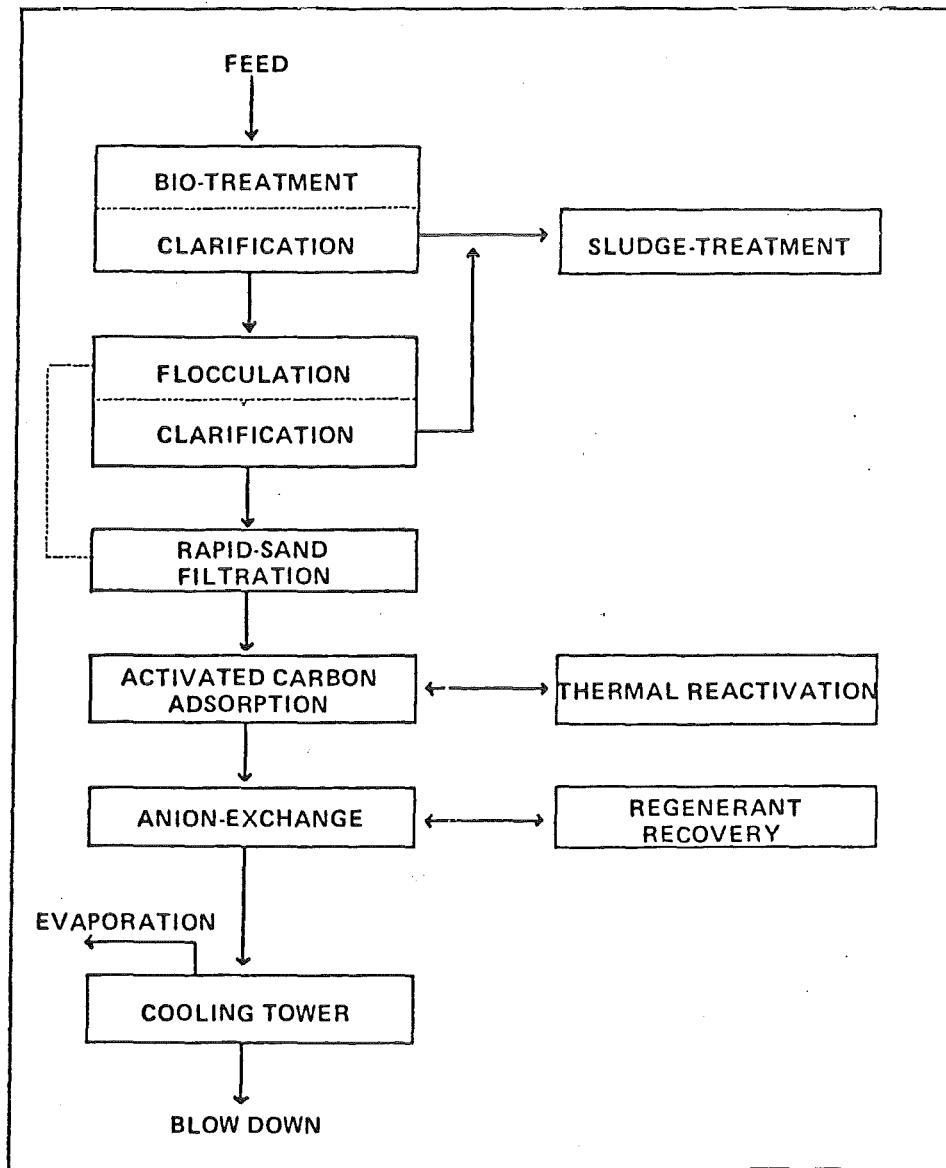


Abb. 26: Verfahrensschritte zur Prozeßwasseraufbereitung nach der biologischen Stufe (8)

#### 4. Grobabschätzung der Gesamtemissionen anhand von Beispielen

Um die Emissionen von Kohleveredlungsanlagen abzuschätzen, werden die Lurgi-Druckvergasung, die Texaco-Vergasung, die Wasserdampfvergasung unter Nutzung von Kernreaktorwärme (WKV) und die Kohlehydrierung nach dem modifizierten Bergius-Pier-Verfahren als Beispiele betrachtet.

Wird eine bestimmte Kohleeinsatzmenge zugrunde gelegt, lassen sich bei Kenntnis der Umwandlungsrate in den einzelnen Verfahrensschritten Massenbilanzen aufstellen. Aus diesen lassen sich unter Berücksichtigung der Reinigungsgrade der eingesetzten emissionsmindernden Verfahren die insgesamt auftretenden Emissionen im Abgas und Prozeßwasser abschätzen.

##### 4.1 Abgase

Bei der hier angestellten groben Abschätzung werden nur die wesentlichen umweltrelevanten Schwefeldioxid- und Stickoxid-Emissionen betrachtet. Grundlagen für diese Abschätzungen bilden die Reinigungsleistungen für das Rectisol-Verfahren und die Stretford- bzw. Claus-Anlage, die für die Entschwefelung des Rohgases aus der Kohlevergasung eingesetzt werden. Für die Anlage zur Dampf- bzw. Energieerzeugung werden die zur Zeit geltenden Richtlinien für die  $\text{SO}_2$ - und  $\text{NO}_x$ -Emission zugrunde gelegt. In der Ergänzung des Erlasses des MAGS (NRW) aus dem Jahre 1978 zur TA-Luft von 1974 wurde die maximale  $\text{SO}_2$ -Emission für Feuerungsanlagen mit einer thermischen Leistung von  $> 4 \text{ TJ/h}$  ( $\hat{=} 420 \text{ MWel}$ ) auf  $850 \text{ mg SO}_2/\text{m}^3$  festgelegt. Dieser Wert entspricht den  $2,75 \text{ kg SO}_2/\text{MWh}$ , die in dem Erlaß des MAGS (NRW, 1974) als maximale  $\text{SO}_2$ -Emission angegeben wurde. Für die  $\text{NO}_x$ -Emission von Feuerungsanlagen besteht derzeit keine gesetzliche Regelung.

Die Abschätzung der  $\text{NO}_x$ -Emission aus dem Kraftwerk zur Energie- und Dampferzeugung ist sehr problematisch. Aus experimentellen Untersuchungen (7) folgt, daß abhängig von der Konstruktion des Brennerraums und der Brennstoffzufuhr der Brennstoffstickstoff zu 15 - 30% zu  $\text{NO}_x$  umgesetzt wird. Erhöht man die obere Grenze auf 50%, so ist gewährleistet, daß die thermische  $\text{NO}_x$ -Bildung



aus Luftstickstoff bei der Abschätzung berücksichtigt wird. Bei der Abschätzung wird nur NO zugrundegelegt, weil der NO<sub>2</sub>-Anteil, wie experimentelle Daten zeigen (7), zu vernachlässigen ist. Weiterhin bleibt die NO<sub>x</sub>-Emission aus dem Kohleveredlungsteil der Anlage bei der Grobabschätzung unberücksichtigt. Stickstoffverbindungen, die im Vergasungs- oder Hydrierreaktor gebildet werden, wie z.B. NH<sub>3</sub> und HCN, sind gut wasserlöslich und werden aus dem Prozeßwasser isoliert. Es gelangen nur Spuren dieser Verbindungen über die Rectisolwäsche und die nachgeschaltete Stretford- bzw. Claus-Anlage in die Nachverbrennung. Zur Vereinheitlichung und Vereinfachung der Emissionsberechnungen wird für alle betrachteten Anlagen jeweils von einem Kohlegesamtdurchsatz von  $1,2 \cdot 10^6$  t SKE/a ausgegangen. Die mit den folgenden Voraussetzungen ermittelten Emissionswerte sind in Tab. 29 in Klammern aufgeführt.

#### Vergasung

Die Voraussetzungen für die Grobabschätzung bei den Vergasungsverfahren sind:

1. Vergaserkohle:  $1,0 \times 10^6$  t/a
2. Kohle für Energie und Dampferzeugung:  $0,2 \times 10^6$  t/a .
3. Schwefelgehalt der Kohle: 1,0 Gew%
4. 10% des Schwefels werden beim Umwandlungsprozeß und bei der Verbrennung in der Kraftanlage in der Asche eingeschlossen.
5. Reinigungsgrade der Gasreinigungs-Anlagen (3)  
Rectisol : 0,99  
Stretford bzw. Claus : 0,98

Die Abgase der Rectisol-, Claus bzw. Stretford-Anlage werden nachverbrannt.

Bei Zugrundelegung dieser Voraussetzungen werden 268 t/a Schwefel ( $\hat{=}$  536 t/a SO<sub>2</sub>) aus dem Veredlungsteil freigesetzt.

Aus der Kraftanlage fallen bei dem zugrundegelegten Kohlen-durchsatz ( $0,2 \times 10^6$  t/a  $\hat{=}$  80 MWel)  $2,05 \times 10^9$  m<sup>3</sup>/a Rauchgas und  $3,6 \times 10^3$  t/a SO<sub>2</sub> ( $\hat{=}$  1760 mg/m<sup>3</sup>) an. Insgesamt werden bei den Vergasungsverfahren  $4,14 \times 10^3$  t SO<sub>2</sub>/a emittiert.

Für die Abschätzung der  $\text{NO}_x$ -Emissionen werden folgende Voraussetzungen gemacht:

1. Stickstoffgehalt der Kohle: 1,4 Gew.%
2. Der Anteil der Vergaserkohle an der  $\text{NO}_x$ -Emission wird gegenüber dem Anteil der Kraftwerkskohle vernachlässigt.
3. Stickstoffumsatz: 15 - 50%

Mit diesen Annahmen werden 420 bis 1400 t/a Stickstoff bzw. 900 - 3000 t  $\text{NO}_x$ /a entbunden.

Diese  $\text{NO}_x$ -Emission entspricht einer Konzentration im Abgas von 439 bis 1463  $\text{mg/m}^3$ .

Bei Anwendung der allothermen Kohlevergasung mit Kernenergie (WKV) wird durch die Einkopplung der Prozeßwärme eines HTR zur Erzeugung der gleichen Menge Synthesegas die Vergaserkohle zu 40% und die Kraftwerkskohle vollständig eingespart. Unter den oben angeführten Bedingungen beträgt die  $\text{SO}_2$ -Emission 322 t/a und die  $\text{NO}_x$ -Emission etwa 10-15 t/a.

### Kohlehydrierung

Die Kohlehydrieranlage soll einen Kohledurchsatz von insgesamt  $1,2 \times 10^6$  t/a haben. Dieser Kohlebedarf gliedert sich in  $1,026 \times 10^6$  t/a Hydrierkohle,  $1,104 \times 10^5$  t/a Vergaserkohle und  $6,36 \times 10^4$  t/a Kohle für die Dampferzeugung.

Bei der Abschätzung der  $\text{SO}_2$ -Emission werden folgende Voraussetzungen gemacht:

1. Schwefelgehalt der Hydrierkohle : 1,5 Gew.%
- " " Vergaser- und Energiekohle: 1,0 Gew.%
2. 10% des Schwefels verbleiben im Rückstand bzw. in der Asche.
3. Reinigungsgrade der emissionsmindernden Anlagenteile (3):  
Rectisol : 0,99  
Stretford bzw. Claus : 0,98

Die Abgase der Rectisol-, Claus- bzw. Stretford-Anlage werden nachverbrannt und nicht der Rauchgasentschwefelung unterzogen.

Mit diesen Voraussetzungen werden 446 t/a S ( $\hat{=}$  892 t/a SO<sub>2</sub>) aus der Hydrierung, 30 t/a S ( $\hat{=}$  60 t/a SO<sub>2</sub>) aus der Vergasung freigesetzt. Die Abgasmenge aus der Dampferzeugung beträgt  $6,52 \times 10^8 \text{ m}^3/\text{a}$ . Mit den oben genannten Annahmen läßt sich die aus diesem Anlagenteil emittierte SO<sub>2</sub>-Menge zu  $1,14 \times 10^3 \text{ t/a}$  abschätzen. Die SO<sub>2</sub>-Konzentration im Abgas beträgt also  $1750 \text{ mg/m}^3$ . Die gesamte SO<sub>2</sub>-Emission beträgt 2092 t/a.

Bei der Ermittlung der NO<sub>x</sub>-Emission sollen die folgenden Bedingungen gelten:

1. Stickstoffgehalt der Kohle : 1,6 Gew.%
2. Die NO<sub>x</sub>-Emission aus dem Hydrier- und Vergaserteil der Anlage wird gegenüber der NO<sub>x</sub>-Emission aus der Dampferzeugung vernachlässigt.
3. Stickstoffumsatz in der Dampferzeugung : 15 - 50%.

Damit ergibt sich eine Stickstofffreisetzung von 150 - 508 t/a, was einer NO<sub>x</sub>-Emission von 330 - 1090 t/a entspricht.

Da aus derzeitiger Sicht kommerzielle Anlagen zur Kohleveredlung frühestens in ca. 10 Jahren in Betrieb gehen, wird für eine weitere Grobabschätzung auf gesetzliche Auflagen zur Abgasreinigung von Kraftanlagen extrapoliert, wie sie vermutlich für diesen Zeitpunkt zu erwarten sind. Grundlage hierfür bildet der Entwurf zur Großfeuerungsanlagen-Verordnung (Mai 1982). Darin ist für Feuerungsanlagen mit einer Leistung über 150 MW<sub>e1</sub> eine maximale SO<sub>2</sub>-Emission von  $650 \text{ mg/m}^3$  vorgesehen. Für kleinere Anlagen wird ein Wert von  $2000 \text{ mg/m}^3$  angestrebt.

In diesem Entwurf ist auch eine Regelung für die NO<sub>x</sub>-Emission von Feuerungsanlagen enthalten. Danach soll in Abhängigkeit von der Art des Ascheabzugs die Emission von NO<sub>x</sub> auf  $800 \text{ mg/m}^3$  für trockenen Abzug und auf  $1300 \text{ mg/m}^3$  für flüssigen Abzug begrenzt werden.

Durch die Zugrundelegung von  $1,025 \times 10^4 \text{ m}_N^3$  Abgas/t SKE und den maximalen Emissionswerten für  $\text{SO}_2$  ( $650 \text{ mg/m}^3$ ) und  $\text{NO}_x$  ( $800$  bzw.  $1300 \text{ mg/m}^3$ ) können die Emissionen der Anlage zur Energie- und Dampferzeugung bei den Vergasungs- und dem Hydrierverfahren abgeschätzt werden. Durch die Addition der aus den Umwandlungsreaktoren stammenden Emissionen, die mit den oben dargestellten Voraussetzungen abgeschätzt werden, läßt sich die Gesamtemission an  $\text{SO}_2$  und  $\text{NO}_x$  angeben (Tabelle 29, Werte ohne Klammern).

Um weitere Bewertungskriterien zu erhalten, sind in Tabelle 29 zusätzlich die spezifischen Emissionen angegeben. Dabei werden die Emissionen zum einen auf die Einsatzkohlemenge, zum anderen auf die Energieinhalte der gebildeten Produkte bezogen. Die Energieinhalte der Produkte werden wie folgt festgelegt:

- 1) Lurgi: Endprodukt SNG  
Aus  $1 \cdot 10^6$  t SKE entstehen  
 $1,95 \cdot 10^4$  TJ SNG
- 2) Texaco: Endprodukt Methanol  
Aus  $1 \cdot 10^6$  t SKE entstehen  
 $1,46 \cdot 10^4$  TJ Methanol
- 3) WKV : Endprodukt SNG  
Aus  $1 \cdot 10^6$  t SKE entstehen unter  
Einkopplung von Kernwärme  
 $3,48 \cdot 10^4$  TJ SNG.
- 4) Hydrierung: Endprodukt Mittelöl  
Aus  $1 \cdot 10^6$  t SKE entstehen  
 $2,26 \cdot 10^4$  TJ Flüssigprodukte

Zusätzlich sind in Tab. 29 die Emissionswerte für ein Kohlekraftwerk mit einem Kohledurchsatz von  $1,2 \cdot 10^6$  t SKE/a ( $\sim 475 \text{ MW}_{el}$ , Rauchgasmenge  $\sim 12,3 \cdot 10^9 \text{ m}^3/\text{a}$ ) angeführt. Bei einem Schwefelgehalt von 1,0 Gew.% (10% Schwefeleinbindung in die Asche) und einem Stickstoffgehalt von 1,6 Gew.% (15 - 50%-iger Umsatz) beträgt die  $\text{SO}_2$ -Konzentration im Rauchgas  $1760 \text{ mg/m}^3$ , die  $\text{NO}_x$ -Konzentration  $1673 \text{ mg/m}^3$ .

Damit ist eine Rauchgasentschwefelung sowohl nach der TA-Luft, wie auch nach dem Entwurf zur Großfeuerungsanlagen-Verordnung vorgeschrieben. Die in diesen Bestimmungen enthaltenen Grenzwerte dienen in Verbindung mit der anfallenden Rauchgasmenge zur Abschätzung der in Tabelle 29 angegebenen  $\text{SO}_2$ -Emissionswerte.

Die für die  $\text{NO}_x$ -Emission aufgeführten Werte sind aus der Rauchgasmenge und den Maximalwerten für die  $\text{NO}_x$ -Konzentration, gemäß dem Entwurf der Großfeuerungsanlagen-Verordnung, abgeschätzt worden. Werden die oben dargestellten Voraussetzungen für die  $\text{NO}_x$ -Freisetzung bei der Verbrennung zur Abschätzung der  $\text{NO}_x$ -Emission benutzt, d.h. es findet keine  $\text{NO}_x$ -Abscheidung statt, so ist mit den in Tabelle 29 (Werte in Klammern) angegebenen  $\text{NO}_x$ -Emissionen zu rechnen.

Der Vergleich der  $\text{SO}_2$ - und  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen bei den Verfahren ohne Rauchgasreinigung (siehe Text und Tabelle 29, Werte in Klammern) mit den Maximalmissionswerten, die im Entwurf zur Großfeuerungsanlagen-Verordnung angegeben sind, zeigt, daß für Anlagen der betrachteten Größe eine Rauchgasentschwefelung nicht notwendig sein wird. Inwieweit das Rauchgas einer  $\text{NO}_x$ -Abscheidung unterzogen werden muß, ist von der Art des Ascheabzugs, dem Stickstoffgehalt der eingesetzten Kohle und dem Stickstoffumsatz abhängig.

Der Vergleich der in Tabelle 29 angegebenen Werte zeigt deutlich, daß die geringsten  $\text{SO}_2$ -Emissionen bei der Wasserdampfvergasung mit Kernreaktorwärme auftreten. Da für die WKV keine Kraftanlage erforderlich ist, liegen die Emissionswerte, die nur aus dem Vergasungsteil stammen, weit unter den Grenzwerten. Werden die  $\text{SO}_2$ -Emissionen auf den Energiegehalt der Produkte bezogen, weist die WKV gegenüber den anderen Kohleveredlungsverfahren einen um den Faktor 4-25 geringeren  $\text{SO}_2$ -Ausstoß auf.

Ein Vergleich der Verfahren hinsichtlich der  $\text{NO}_x$ -Emission zeigt die Vorteile der WKV sehr deutlich. Hier liegen die Emissionswerte der anderen Kohleveredlungsanlagen um den Faktor 90-200 höher.

Tabelle 29: SO<sub>2</sub>- und NO<sub>x</sub>-Emissionen von Kohleveredlungsanlagen und einem 475-MW<sub>el</sub> Kraftwerk

Emission	Einheit	Lurgi	Texaco	WKV	Hydrierung	Kohlekraftwerk 475 MW <sub>el</sub>
SO <sub>2</sub>	t <sub>Em</sub> /a	1869 (4140)	1869 (4140)	(322)	1376 (2092)	7995 (10455)
	10 <sup>-3</sup> t <sub>Em</sub> /t <sub>SKE</sub>	1,56 (3,45)	1,56 (3,45)	(0,5)	1,14 (1,74)	6,66 (8,71)
	10 <sup>-1</sup> t <sub>Em</sub> /TJ	0,80 (1,77)	1,07 (2,36)	(0,14)	0,51 (0,77)	-----
	10 <sup>-4</sup> t <sub>Em</sub> /MWh	2,87 (6,44)	3,84 (8,60)	(0,50)	1,83 (2,77)	20,9 (27,4)
NO <sub>2</sub>	t <sub>Em</sub> /a	1640/2665 (1380-4600)	1640/2665 (1380-4600)	(15 - 23 )	522/848 (501-1676)	9840/15990 (9460-31540)
	10 <sup>-4</sup> t <sub>Em</sub> /t <sub>SKE</sub>	13,7 / 22,2 (11,5 - 38,3)	13,7 / 22,2 (11,5 - 38,3)	(0,26 - 0,38)	4,35 / 7,1 (4,1 - 13,95)	82 / 133,3 (78,8 - 262,8)
	10 <sup>-2</sup> t <sub>Em</sub> /TJ <sub>Pr</sub>	7,0 / 11,4 (5,8 - 19,6)	9,4 / 15,2 (7,8 - 26,2)	(0,075 - 0,110)	1,9 / 3,1 (1,8 - 6,1)	-----
	10 <sup>-4</sup> t <sub>Em</sub> /MWh	2,5 / 4,1 (2,2 - 7,0)	3,4 / 5,5 (2,8 - 9,5)	(0,028 - 0,040)	0,7 / 1,1 0,6 - 2,22)	25,9 / 42,1 (24,8 - 82,8)
t <sub>Em</sub> = t <sub>Emission</sub> t <sub>SKE</sub> = t <sub>Einsatzkohle auf SKE normiert</sub> TJ <sub>Pr</sub> = Tera Joule (Produkt)		Emissionswerte setzen sich aus den Emissionen des Veredlungsteils und des Kraftwerks zusammen. Werte ohne Klammern: Für das Kraftwerk werden SO <sub>2</sub> - und NO <sub>x</sub> -Minderungsmaßnahmen angenommen, die die SO <sub>2</sub> -Emission auf 650 mg/m <sub>N</sub> <sup>3</sup> und die NO <sub>x</sub> -Emission auf 800 / 1300 mg NO <sub>2</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup> begrenzen. Werte in Klammern: Keine Rauchgasreinigung; als Grundlage für die Abschätzung dienen die im Text dargestellten Voraussetzungen.				SO <sub>2</sub> -Emission: Werte ohne Klammern: Grenzwert 650 mg SO <sub>2</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup> Werte in Klammern: Grenzwert 850mg SO <sub>2</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup> NO <sub>x</sub> -Emission: Werte ohne Klammern: Grenzwert von 800/1300 mg/NO <sub>x</sub> /m <sub>N</sub> <sup>3</sup> . Werte in Klammern: keine NO <sub>x</sub> -Minderung.
Anmerkung: Die hier angegebenen NO <sub>2</sub> -Emissionen wurden gemäß den in der Großfeuerungsanlagen-Verordnung benutzten Einheiten (mg NO <sub>2</sub> /m <sup>3</sup> ) aus den im Text angegebenen NO-Emissionen berechnet.						

## 4.2 Abwasser

Das Prozeßwasser der Lurgi-Druckvergasung ist aufgrund der relativ geringen Vergasungstemperatur mit verschiedenen organischen Verbindungen, hauptsächlich Phenolen beladen. Hinzu kommen außerdem die beim Vergasungsprozeß gebildeten wasserlöslichen Salze. Tabelle 32 gibt die Konzentrationen und die pro Jahr anfallenden Mengen von Prozeßwasserinhaltsstoffen nach einer Abwasserbehandlung an (4).

Tabelle 30: Abwasser-Inhaltsstoffe nach der Reinigung

Wasserart	Anfallende Menge	Möglicher Gehalt an Inhaltsstoffen
Gaswasserablauf (Abwasser gesamt)	$1,3 \times 10^6 \text{ m}^3/\text{a}$	
Phenole (gesamt)	1,3 t/a	1 mg/l
NH <sub>3</sub> (gesamt)	13,0 t/a	10 mg/l
SCN <sup>-</sup>	n.n.	n.n.
S <sup>2-</sup>	n.n.	n.n.
CN <sup>-</sup>	n.n.	n.n.
Cl <sup>-</sup>	13,0 t/a	10 mg/l
F <sup>-</sup>	26,0 t/a	20 mg/l
		n.n. = nicht nachweisbar
CSB		80 mg O <sub>2</sub> /l
BSB <sub>5</sub>		5 mg O <sub>2</sub> /l

Das bei der Texaco-Vergasung anfallende Prozeßwasser ist nur gering belastet. Es enthält aufgrund der hohen Vergasungstemperatur keine Kohlenwasserstoffe und Phenole.

Charakteristische Daten für das Abwasser einer Hydrieranlage sind in Tabelle 33 angegeben (15). Daraus lassen sich unter Berücksichtigung der anfallenden Abwassermenge die Emissionen der Hauptinhaltsstoffe ermitteln.

Tabelle 31: Spezifikationen des Prozeßwassers vor der  
Reinigung (15)

Wasserart	Anfallende Menge	möglicher Gehalt an Inhaltsstoffen
Abwasser Hydrierstufe	$2,14 \times 10^5$ t/a	
Phenol	$1,28 \times 10^3$ t/a	6 g /l
$\text{NH}_4^+$	$5,13 \times 10^3$ t/a	24 g /l
$\text{CO}_3^{2-}$	$5,34 \times 10^3$ t/a	25 g /l
$\text{H}_2\text{S}$	$0,43 \times 10^3$ t/a	2 g /l
Abwasser Vergaserstufe	$0,73 \times 10^6$ t/a	Abwasseranalyse pH 7 Härte $5^\circ$ dH elek. Leitfähigkeit 3000 $\mu\text{s/cm}$ CSB-Wert 60 mg $\text{O}_2/\text{l}$
Abdampfrückstand	$4,6 \times 10^2$ t/a	600 mg/l
Gesamtschwefel	$0,7 \times 10^2$ t/a	70 mg/l
Chlor	$3,8 \times 10^2$ t/a	500 mg/l
$\text{NO}_2^-$ + $\text{NO}_3^-$	$3,1 \times 10^2$ t/a	400 mg/l
$\text{CN}^-$	$0,04 \times 10^2$ t/a	5 mg/l

Die Abschätzung der Spurenelement-Emissionen aus Kohlevered-  
lungsanlagen ist aufgrund der Vielzahl von Einflußgrößen be-  
sonders schwierig. Neben der natürlichen Schwankungsbreite  
der Spurenelementkonzentrationen in der Ausgangskohle haben die  
Reaktionsbedingungen (Partialdrücke, Gesamtdruck, Temperatur),  
die sich auf die Flüchtigkeit der Spurenelemente auswirken, und  
die Art der Aschebehandlung einen Einfluß auf den Spurenelement-  
gehalt des Abwassers. Aus den in Tabelle 34 angegebenen Fläch-  
tigkeiten einiger umweltrelevanter Spurenelemente, die unter den  
Bedingungen der Lurgi-Vergasung ermittelt wurden, lassen sich  
unter Zugrundelegung der aufgeführten Konzentrationen in der  
Kohle und einem Kohledurchsatz von  $1,2 \times 10^6$  t/a die Emissionen  
dieser Elemente abschätzen.



Tabelle 32: Spurenelemente in der Einsatzkohle und deren Flüchtigkeit

Spurenelemente		Gehalt (ppm)	Flüchtigkeit (%)	Emission (t/a)
Arsen	As	8,0	9,0	0,864
Quecksilber	Hg	0,2	98,5	0,24
Molybdän	Mo	5,0	15,5	0,93
Nickel	Ni	6,7	6,5	0,5226
Blei	Pb	2,7	11,5	0,373
Selen	Se	0,4	86,0	0,413
Tellur	Te	0,27	88,0	0,285
Wismut	Bi	< 0,1	100,0	0,12
Cadmium	Cd	< 1,0	85,5	1,026
Vanadium	V	21,3	10,0	2,556
Zink	Zn	6,7	25,3	2,03

Exakte Aussagen über die Spurenelement-Emissionen der anderen Verfahren - Texaco-Vergasung, WKV und Kohlehydrierung - setzen umfangreiches experimentell ermitteltes Datenmaterial voraus, das eine detaillierte Bilanzierung ermöglicht und zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht vorliegt. Weiterhin können zur Zeit keine Angaben über den Rückhalt der Spurenelemente in den verschiedenen Prozeßschritten der Abwasseraufbereitung gemacht werden.

#### 4.3. Feststoffe

Je nach Kohleart werden bei Aschegehalten von 10-20 Gew.% 1,2 - 2,4 x 10<sup>5</sup> t/a Asche anfallen. Abhängig vom Gehalt an Spurenelementen und deren Auslaugbarkeit (s. S. 83) wird die Asche als Baustoff genutzt oder deponiert.

#### 4.4 Folgerungen

Die aus dieser ersten Abschätzung resultierenden Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die neuen Technologien der Kohleveredlung sind als umweltverträglich einzustufen. Bei den zu reinigenden Gasen handelt es sich, verglichen mit Kraftwerksfeuerungen, um relativ geringe Mengen, zu deren Reinigung in anderen Industriezweigen erprobte Reinigungsverfahren mit hohem Wirkungsgrad zur Anwendung kommen werden, so daß die Gesamtemission einer kommerziellen Anlage zur Vergasung und/oder Verflüssigung geringer ist als die einer äquivalenten Großfeuerung unter Berücksichtigung des derzeitigen Stands der Kraftwerkstechnik.
- Die geringsten spezifischen Emissionen sind für die "Wasserdampfvergasung mit Kernwärme" zu verzeichnen, im wesentlichen bedingt durch Substitution der für den Wärmebedarf benötigten Kohle durch Hochtemperatur-Prozeßwärme.
- Die Reinigung der Produktgase auf die vorgeschriebenen Werte kann als Stand der Technik angesehen werden.
- Für die Reinigung der Prozeßwässer liegen technisch erprobte Lösungen derzeit schon vor, z.B. in den Anlagen der Sasolwerke, Südafrika. Dabei ist aber die Frage des Verbleibs und der Abscheidung der Spurenelemente noch ungeklärt.

Obwohl dieser ersten Abschätzung schon die o.g. wesentlichen Hinweise über die Umweltverträglichkeit von Kohleveredlungsanlagen entnommen werden können, ist jedoch zu einer genauen Bilanzierung, insbesondere über den Verbleib der Spurenelemente, die Erstellung von Stoff- und Mengenbilanzen für die einzelnen Verfahrensschritte erforderlich, um zu einer exakten Aussage über die Mengen an emittierten Schadstoffen in Abhängigkeit von der Auslegung der Gesamtanlage und der einzelnen Reinigungsprozesse sowie von der Kohleart (insbesondere S-Gehalt etc.) zu gelangen.

Eine Abschätzung der Schwankungsbreiten verschiedener Anlagenauslegungen läßt sich zunächst dadurch erzielen, daß man vorhandene Studien vergleichend analysiert. So ist als Vorarbeit für eine genaue Bilanzierung die Analyse folgender Studien als sinnvoll anzusehen:

- der "Fluor-Studie", die von der Fluor GmbH, Düsseldorf, einer nicht zum Kohlebergbau gehörenden Gesellschaft erstellt wurde und
- der "Gesamtverbands-Studie", wobei der Gesamtverband Dachorganisation des deutschen Steinkohlenbergbaus ist
- sowie evtl. weiterer noch in Arbeit befindlicher Studien (z.B. Studie der Saarbergwerke/BASF).

Die zur Bilanzierung gehörende Kenntnis von Menge und Verbleib der Spurenelemente, die nur durch Experimente an relevanten Versuchsanlagen gewonnen werden kann, könnte als weiterer Schritt der Bilanzierung an einer in Betrieb befindlichen Anlage modellmäßig durchgeführt werden.

Dazu bietet sich die im halbtechnischen Maßstab (200 kg Kohle Durchsatz/h) bei der Bergbau-Forschung betriebene Anlage zur "Wasserdampfvergasung mit Kernwärme" an, die mit öffentlichen Mitteln (BMFT) gefördert wird und deren Daten deshalb zugänglich sind. An dieser Anlage könnten Probennahmetechnik, Analysemethodik etc. erprobt und getestet werden, so daß im nachfolgenden Schritt die Bilanzierung in Pilot-Anlagen erfolgen kann.

Wie schon gesagt, kann die Gasreinigung als Stand der Technik angesehen werden, während die Abwasser- bzw. Prozeßwasseraufbereitung von verschiedenen Seiten noch als problematisch angesehen wird. Speziell zur Aufbereitung von Prozeßwässern der Kohleveredlung liegen bei der Bergbau-Forschung schon Erfahrungen vor:

- So wurde z.B. eine Prototypanlage zur adsorptiven Reinigung des Gaskondensates einer Kokerei über 3 Jahre erfolgreich betrieben. Eine weitere kommerzielle Anlage nach diesem von BF entwickelten Verfahren ist nunmehr seit 4 Jahren auf einer Kokerei in Italien in Betrieb.
- Die Wasserproben aus verschiedenen Anlagen der Lurgi-Vergasung sowie aus Versuchsanlagen zur Wasserdampfvergasung mit Kernwärme wurde in den letzten Jahren insbesondere auf organische Inhaltsstoffe analysiert.

- Gemeinsam mit Ingenieur-Firmen, z.B. der Uhde GmbH, wurde ein Verfahren zur kombinierten Anwendung von Aktivkohle und Biologie entwickelt und erprobt. Diese Kombination scheint evtl. auch für Prozeßwässer der Kohleveredlung eine erfolgversprechende Methode zu sein.

Aufgrund dieser Kenntnisse wäre die Bergbau-Forschung in der Lage, zum Problem der Prozeßwasseraufbereitung weitere Arbeiten durchzuführen, die neben der Analytik der Abwasserinhaltsstoffe, die zur Bilanzierung notwendig ist, auch Vorschläge zu Minderungs-technologien beinhalten könnten.

Literaturverzeichnis zu Kapitel 2 bis 4

- 1) GUNTERNATSCH H., et al.  
in Ullmanns Enzyklopädie d. tech. Chemie  
4. Auflage, Band 6, 293 ff
- 2) WITTMER F.E.  
Symp. St. Louis, Sept. 1980
- 3) BLANC C.J., FLUGE J., LALLEMAND F.J.  
Hydr. Carbon Proc. Aug. 1981, 111-116
- 4) BERRY R.L.  
Chem. Engng. Oct. 6. 1981, 92-93
- 5) VICK E.  
Chem. Techn. 10 (11), 1099-1108 (1981)
- 6) ROSENDAHL F.  
Verfahrenstechnik 15 (7), 485-88 (1981)
- 7) VGB Technische Vereinigung der Großkraftwerksbetreiber e.V.  
Heft 8, Minderungstechnologie für NO<sub>x</sub>-Emissionen steinkohlen-  
gefeuerter Großkraftwerke
- 8) ROLKE D.E.  
Chemsa 9, 142-144 (1978)
- 9) FISCHER K., BARDTKE D.  
gwf-Wasser/Abwasser 122 (2), 58-64 (1981)
- 10) BERNDT C.L. et al.  
Water and Waste Engng. 15 (3), 48-50 (1978)
- 11) Quantifizierung der Umweltbeeinträchtigung durch moderne  
Verfahren der Kohlevergasung und -verflüssigung  
Studie ausgeführt von FLUR-GmbH, Düsseldorf, im Auftrag  
des Umweltbundesamtes, Forschungsber. 104 O3 348, Berlin,  
Januar 1981
- 12) Bericht von O. Abel, H.H. Oelert, Clausthal-Zellerfeld  
im Auftrag des Ministers für Wirtschaft, Mittelstand und  
Verkehr des Landes NRW, August 1981 (unveröffentlicht)

- 13) JÜNTGEN H.  
Umweltrelevanz der Kohlevergasung und der Kohle-  
verflüssigung  
Vortrag im Haus der Technik, Essen, 26.11.1981
- 14) Lurgi-Information Nr.7, 6.Jahrgang, Ausgabe 1-1981
- 15) Versuchsergebnisse der Kohleölanlage der Bergbau-  
Forschung GmbH (unveröffentlicht)
- 16) SOMMERVILLE M.H. et al.  
An Environmental Assessment of a Proposed 250 MMSCFD  
Dry Ash Lurgi Coal Gasification Facility Located in  
Dunn County, North Dakota,  
Volume VI, University of North Dakota  
Bulletin No. 76-12-EES-08, December 1976
- 17) Koppers Handbuch d. Brennstofftechnik  
H. Koppers GmbH, Essen 1953
- 18) ERIKSSON S., PRIOR M.  
Treatment of Liquid Effluents from Coal Gasification  
Plants, IEA/EAS-Report No B2/79 (International Energy  
Agency/Economic Assessment Service), March 1979