

①



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets

⑪

Veröffentlichungsnummer: **0 012 960  
B1**

⑫

## EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

④

Veröffentlichungstag der Patentschrift:  
**01.12.82**

⑤

Int. Cl.<sup>3</sup>: **D 21 C 3/20, D 21 C 7/00,  
C 08 B 37/14, C 08 H 5/00**

⑥

Anmeldenummer: **79105195.6**

⑦

Anmeldetag: **14.12.79**

⑤

**Verfahren und Vorrichtung zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial.**

③

Priorität: **20.12.78 DE 2855052**

⑦

Patentinhaber: **MD-Papierfabriken Heinrich Nicolaus  
GMBH, Ostenstrasse 5, D-8060 Dachau (DE)**

④

Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
**09.07.80 Patentblatt 80/14**

⑦

Erfinder: **Baumeister, Manfred, Dr., Eschenrieder  
Strasse 62, D-8031 Gröbenzell (DE)**  
Erfinder: **Edel, Eugen, Am Waldrand 12A,  
D-8000 München 70 (DE)**

⑤

Bekanntmachung des Hinweises auf die Patenterteilung:  
**01.12.82 Patentblatt 82/48**

⑧

Benannte Vertragsstaaten:  
**AT CH DE FR GB NL SE**

⑦

Vertreter: **Dahlmann, Gerhard, Dipl.-Ing., am Felrain 20,  
D-6940 Weinheim (DE)**

⑥

Entgegenhaltungen:  
**US-A-3 585 104**

**K.W. BRITT: «Handbook of Pulp and Paper Technology», zweite Auflage, 1970, Van Nostrand Reinhold Company, Seiten 145–158 New York, U.S.A. G. Rowlandson: «Continuous Digester»**

EP 0 012 960 B1

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents im Europäischen Patentblatt kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

## Verfahren und Vorrichtung zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial.

Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren und eine Vorrichtung zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial mit organischem Lösungsmittel.

Die wirtschaftlich bedeutenden Verfahren zum Aufschluss von cellulosehaltigen Faserrohstoffen arbeiten heute nach dem Sulfat- oder dem Sulfitverfahren.

Wesentliche Nachteile dieser Verfahren sind die notwendige Grösse von etwa 800 bis 1000 Tagestonnen, um wirtschaftlich zu arbeiten, und die enorme Umweltbelastung in Form von Abwasser und Abgasen, insbesondere weil diese Schwefelverbindungen enthalten.

Die Möglichkeit, cellulosehaltige Pflanzenfasermaterialien mit organischen Lösungsmitteln aufzuschliessen, wurde bereits in der US-A-1 856 567 aufgezeigt.

In der DE-A-2 637 449 ist ein Lösungsmittel-extraktionsverfahren zur Herstellung von Cellulosepulpe beschrieben, bei dem Lignin aus fein zerteiltem fasrigen Pflanzenmaterial bei erhöhter Temperatur und erhöhtem Druck mit einer wässrigen Lösung eines niederen aliphatischen Alkohols extrahiert wird. Dieses Verfahren arbeitet mit einer Mehrzahl von satzweise arbeitenden Extraktoren, wobei in jedem Extraktor eine Reihe von Arbeitsstufen aufeinanderfolgen. Dieses bekannte Verfahren eignet sich nicht für eine kontinuierliche, wirtschaftliche Herstellung von Zellstoff aus Pflanzenfasermaterial. Die Anlagekosten sind aufgrund der erforderlichen grossen Anzahl von Extraktoren unverhältnismässig hoch. Insbesondere ist die Aufheizzeit pro Charge, wenn nicht unverhältnismässig grosse Lösungsmittelmengen verwendet werden sehr lange, so dass bereits vor Erreichen der hohen, für die Lösung des Lignins erforderlichen Temperatur hydrolytische Abbaureaktionen der Cellulose und Hemicellulose erfolgen. Deshalb ist es mit dem bekannten Verfahren nicht möglich, Zellstoffe für die Papierherstellung mit ausreichender Festigkeit zu gewinnen.

In der US-A-3 585 104 und der DE-B-2 644 155 werden kontinuierliche Aufschluss- und Rückgewinnungsverfahren für pflanzliche Faserrohstoffe zur Herstellung von Zellstoff unter Einsatz von organischem Lösungsmittel beschrieben. Bei diesen Verfahren wird keine Vorimprägnierung angewandt. Aus diesem Grund kommt es leicht zu einer Blockierung des Materialflusses, zumal ein zwangsweiser Transport durch den Reaktor nicht vorgesehen ist. Bei den bekannten Verfahren wird das aufgeschlossene Material nach dem Kochen mit kaltem organischem Lösungsmittel gewaschen. Durch Waschen mit kaltem Lösungsmittel werden Ligninreste jedoch nicht entfernt. Das organische Lösungsmittel wird anschliessend in einer Schraubenpresse vom aufgeschlossenen Material abgepresst. Anschliessend wird das aufgeschlossene Material in einer getrennten Einrichtung mit einer wässrigen Natriumhydroxidlösung

gewaschen. Diese Lösung wird schliesslich in einer zweiten Schraubenpresse abgepresst. Diese Verfahrensführung ist wenig wirksam und sehr aufwendig. Insbesondere führt die Notwendigkeit, das organische Lösungsmittel aus dem aufgeschlossenen kalten Material auszutreiben, zu einem erhöhten Energieaufwand.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren und eine Vorrichtung zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial mit organischem Lösungsmittel zu schaffen, wobei die wesentlichen Bestandteile des Pflanzenfasermaterials, nämlich Lignin, Hemicellulose und Cellulose, getrennt und in reiner Form gewonnen werden können, das im industriellen Massstab wirtschaftlich arbeitet, das sich durch eine einfache Verfahrensführung auszeichnet, wobei insbesondere die vorstehend geschilderten Nachteile der bekannten Verfahren vermieden werden, und das einen hochwertigen und leicht bleichbaren Zellstoff liefert.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial, bei dem das Pflanzenfasermaterial im Gegenstrom mit organischem Lösungsmittel behandelt wird und wobei das Pflanzenfasermaterial am Kopf eines Reaktors mittels einer Einbringvorrichtung eingebracht und durch diesen nach unten geführt und am Reaktorboden Cellulose ausgebracht wird, organisches Lösungsmittel im Gegenstrom zum Pflanzenfasermaterial nach oben geführt und am Kopf des Reaktors abgezogen wird, und die beladene Extraktionsflüssigkeit in die wesentlichen Bestandteile Lignin, Hemicellulose und Lösungsmittel getrennt wird, das dadurch gekennzeichnet ist, dass das Pflanzenfasermaterial in einer Imprägniereinrichtung mit organischem Lösungsmittel imprägniert wird, das imprägnierte Pflanzenfasermaterial zwangsweise durch den Reaktor nach unten geführt wird, in der Reaktormitte organisches Lösungsmittel mit einer Temperatur zwischen 130 und 210°C als Extraktionsflüssigkeit eingebracht wird, und am Boden des Reaktors Wasser als Waschflüssigkeit eingespeist, im Gegenstrom zu dem Pflanzenfasermaterial nach oben geführt und in der Reaktormitte abgezogen wird.

Gegenstand der Erfindung ist ferner eine Vorrichtung zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial mit organischem Lösungsmittel, bei der eine Vorbehandlungseinrichtung für das Pflanzenfasermaterial direkt über eine Druckschleuse mit dem Kopf des Reaktors in Verbindung steht und am Reaktorboden ein Auslass für das aufgeschlossene Pflanzenfasermaterial, am Reaktorkopf ein Abzug für die beladene Extraktionsflüssigkeit sowie Trenneinrichtungen für die Separierung von Lignin, Hemicellulose und Lösungsmittel vorgesehen sind, die dadurch gekennzeichnet ist, dass die Vorbehandlungseinrichtung ein als Schneckenförderer ausgebildeter Imprägnierer ist, in dem Reaktor integral eine

Kochzone und eine Waschzone vorgesehen sind, der Reaktor am Boden einen oder mehrere Einlässe für die Waschflüssigkeit im Mittelbereich, eine Abführung für die Waschflüssigkeit und eine oder mehrere Zuführungen für die Extraktionsflüssigkeit und im Reaktorkopf eine Einbringvorrichtung für das Pflanzenfasermaterial umfasst.

Die Vorteile des erfindungsgemässen Verfahrens liegen insbesondere darin, dass wirtschaftliche Betriebsgrössen bereits mit 50 bis 100 Tages-tonnen erreicht werden, dass die neben der Cellulose im Rohmaterial enthaltenen Rohstoffe, nämlich Hemicellulose und Lignin, weitgehend in nativer Form erhalten werden, und dass die zur Extraktion verwendeten organischen Lösungsmittel beispielsweise durch einfache Destillation und anschließende Kondensation wiedergewonnen und wiederverwendet werden können.

Die kontinuierliche Wiedergewinnung der eingesetzten Lösungsmittel ist praktisch verlustlos.

Das Verfahren ist für alle pump-, schütt- und rieselfähigen cellulosehaltigen Rohstoffe anwendbar. Insbesondere kommen als Rohstoffe Hölzer einheimischer und tropischer Provenienz sowie Einjahrespflanzen, wie Stroh und Bagasse, in Betracht.

Die mit dem erfindungsgemässen Verfahren gewonnene Cellulose eignet sich aufgrund ihrer hohen Qualität ausgezeichnet zur Papierherstellung.

Mit dem erfindungsgemässen Verfahren gelingt es jedoch, ausser Cellulose die weiteren wesentlichen Bestandteile des Pflanzenfasermaterials in nativer, reiner Form zu gewinnen, so dass diese Produkte für eine Weiterverarbeitung in verschiedenen Bereichen zur Verfügung stehen.

Bei den bisher einzigen im grossen Umfang eingesetzten Aufschlussverfahren, nämlich dem Sulfit- und dem Sulfat-Verfahren, fielen die Hemicellulosen und das Lignin in Form von Derivaten an, die sich als Rohstoffe zur Weiterverarbeitung nicht eigneten. Diese an sich wertvollen Substanzen wurden daher bisher als reine Abfallprodukte behandelt oder verbrannt.

Demgegenüber gestattet es das erfindungsgemässe Verfahren nunmehr erstmals die weiteren wesentlichen Bestandteile, nämlich Lignin und Hemicellulosen, in Form von reinen, wertvollen Rohstoffen zu gewinnen.

Die Hemicellulosen eignen sich für vielfältige Verwendungen, wobei ihr Einsatz insbesondere in folgenden Bereichen hervorzuheben ist: Herstellung von Zuckern, insbesondere Sorbit und Mannit; Herstellung von Verdickungsmitteln, Klebstoffen, Schlichte- und Verdickungsmittel für die Papier-, Textil- und Lackindustrie; Weiterverarbeitung zu Alkohol durch Vergärung. Hervorzuheben ist, dass es vorteilhaft sein kann, den aus den Hemicellulosen gewonnenen Alkohol als Lösungsmittel bei dem erfindungsgemässen Verfahren wieder einzusetzen.

Mit dem erfindungsgemässen Verfahren gelingt es, Lignin in nativer und weitgehend reiner Form zu gewinnen. Lignin stellt einen äusserst wertvollen Rohstoff dar. Es fällt bei dem Verfahren als Polyol an und eignet sich insbesondere zur Her-

stellung von Kunstharzen. Insbesondere kommt eine Umsetzung mit Aldehyden in Betracht. Als Kunstharze, die ausgehend von Lignin erhalten werden können, seien insbesondere hervorgehoben Polyurethane, Acetalharze, Epoxidharze und Phenolharze.

Als Extraktionsflüssigkeit werden organische Lösungsmittel eingesetzt. Die organischen Lösungsmittel sollen vorzugsweise mit Wasser in jedem Verhältnis mischbar sein. In Betracht kommen insbesondere aliphatische Alkohole mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, einschliesslich mehrwertiger Alkohole, wie Glycol und Glycerin, aromatische und aliphatische Amine, Ketone, wie Aceton und Methyläthylketon, Äther, wie Tetrahydrofuran und Dioxan, und Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid. Bevorzugt werden als Lösungsmittel aliphatische Alkohole, insbesondere Äthylalkohol und Isopropylalkohol, verwendet. Die Lösungsmittel können in reiner Form oder als Mischungen mit Wasser eingesetzt werden. Bei wässrigen Mischungen kommen Konzentrationen des Lösungsmittels im Wasser von 40 und 60% in Betracht. Bezogen auf das aufzuschliessende Pflanzenfasermaterial, wird vorzugsweise mit einem zwei- bis fünffachen Extraktionsmittelvolumen gearbeitet.

Die Imprägnierung kann bei atmosphärischem Druck, was bevorzugt wird, oder bei Überdruck durchgeführt werden. Sie kann bei Raumtemperatur oder erhöhter Temperatur durchgeführt werden, wobei eine Temperatur zwischen 40 und 80°C, insbesondere etwa 60°C, bevorzugt wird.

In der Koch- oder Extraktionszone wird vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 130 und 210°C, insbesondere zwischen 180 und 200°C, extrahiert. Der Druck im Reaktor liegt zwischen 1 und 40 bar, vorzugsweise zwischen 15 und 25 bar.

Die weitere Verarbeitung des aus dem Reaktor austretenden, aufgeschlossenen und gewaschenen Pflanzenfasermaterials, d.h. der Cellulose, erfolgt in üblicher Weise, so dass darauf nicht näher eingegangen werden muss.

Die aus dem Reaktor austretende Extraktionsflüssigkeit, die mit den Stoffen beladen ist, die aus dem Pflanzenfasermaterial extrahiert wurden, wird in ihre Bestandteile, d.h. im wesentlichen Lignin, Hemicellulose und Lösungsmittel, getrennt.

Die Abtrennung des Lösungsmittels, vorzugsweise des Alkohols, kann in einfacher Weise durch Destillation, Strippen oder Entspannung erfolgen. Die verbleibende wässrige Phase, die Lignin und Hemicellulose enthält, kann beispielsweise dadurch in ihre Bestandteile getrennt werden, dass durch die Konzentrationsverschiebung durch die Entfernung des Alkohols und durch Temperaturniedrigung das Lignin zur Ausfällung gebracht wird und dieses in geeigneter Weise, beispielsweise mittels einer Schneckenpresse, Zentrifuge oder einem Schwerphasenabscheider, isoliert wird. Die verbleibenden Hemicellulosen können dann ihrerseits einer Rein-darstellung und Weiterverarbeitung zugeführt werden.

Bei dem erfindungsgemässen Verfahren ist die Imprägnierung des Pflanzenfasermaterials, das meist in Form von Holzhackschnitzeln vorliegt, von Bedeutung. Im Gegensatz zu konventionellen, kontinuierlichen Zellstoffherstellungsverfahren nach dem Sulfat- oder Sulfitverfahren, bei denen eine aufwendige Imprägnierung unerlässlich ist, um eine ausreichende Zellstoffqualität zu gewährleisten, kann die Imprägnierung beim vorliegenden Verfahren in einfacher Weise erfolgen.

Bei den konventionellen Sulfat- oder Sulfitverfahren erfüllt die Imprägnierung im wesentlichen folgende Funktionen. Nicht kondensierbare Gase und Terpene werden aus den Hackschnitzeln ausgetrieben, so dass keine Beeinflussung des Wärmeübergangs und der Diffusion der Kochchemikalien in die Hackschnitzel erfolgt. Die Hackschnitzel adsorbieren Kondensatdampf, wobei gleichzeitig die Dichte erhöht wird. Die Feuchtigkeit verdrängt Luft von der Hackschnitzeloberfläche. Durch diese beiden Effekte wird gewährleistet, dass die Hackschnitzel in der Kochlauge relativ rasch untersinken. Die Temperatur und der Feuchtigkeitsgehalt der Hackschnitzel werden angehoben und vergleichmässigt, so dass im Reaktor eine gleichmässige Kochung erfolgt. Temperatur und Feuchtigkeit führen zu einem Anquellen der Hackschnitzel, so dass die Imprägnierung mit den anorganischen Bestandteilen der Kochlauge erleichtert wird.

Eine ungenügende Imprägnierung der Hackschnitzel kann dann, wenn bei auf Kochtemperatur befindlichen Hackschnitzeln im Kern der Schnitzel keine Kochlauge vorhanden ist, zu einer übermässigen Kondensation des Lignins und damit zu den berüchtigten Schwarzkochungen führen.

Üblicherweise wird die Vorimprägnierung von Hackschnitzeln verfahrenstechnisch folgendermassen durchgeführt: Die Hackschnitzel werden über eine Dosiereinrichtung in einen sogenannten Dämpfbehälter eingebracht. Hier werden die Hackschnitzel bei Drücken von 1 bis 3 bar mit Sattdampf behandelt. Die Dampfvorbehandlung erfolgt aus den oben erwähnten Gründen. Die mit Dampf beheizten Hackschnitzel werden anschliessend in einen Imprägniertank befördert. Hier beginnt die eigentliche Imprägnierung mit Kochlauge. Aus dem Imprägniertank werden die mit Kochlauge gesättigten Hackschnitzel dann mittels einer Hochdruckfördereinrichtung hydraulisch in ein schräg liegendes Separationsrohr am Kopf des Reaktors gepumpt. Die Hackschnitzel werden mittels einer Förderschnecke in den Reaktorkopf befördert. Der Imprägnierlaugenüberschuss wird über ein im Separationsrohr befindliches zylindrisches Sieb zum Imprägniertank zurückgeführt.

Bei dem erfindungsgemässen Verfahren, bei dem anstelle anorganischer Kochlaugen Lösungsmittel bzw. Lösungsmittel/Wasser-Gemische verwendet werden, ergeben sich wesentliche verfahrenstechnische Vereinfachungen der Imprägniereinrichtung. Der wesentliche Vorteil von Lösungsmittel/Wasser-Gemischen liegt in der

weitaus höheren Benetzungsgeschwindigkeit und Diffusion in die Hackschnitzel im Vergleich zu üblichen Kochlaugen auf Basis von Lösungen anorganischer Salze.

Durch das organische Lösungsmittel werden die Terpene und Harze entfernt, die die Penetration der Aufschlussflüssigkeit stören. Aus diesem Grund kann der Einsatz einer unter Überdruck betriebenen Dämpfeinrichtung vollkommen entfallen. Es versteht sich, dass bei dem erfindungsgemässen Verfahren jedoch trotzdem eine Dämpfung der Hackschnitzel vorgenommen werden kann.

Um eine zufriedenstellende Imprägnierung mit dem organischen Lösungsmittel zu erreichen, kann die ganze Imprägniervorrichtung auf ein am Kopf des Reaktors befindliches, schräg stehendes Imprägnierrohr reduziert werden. Die Hackschnitzel werden mittels einer Schnecke in dem mit Extraktionsflüssigkeit gefüllten Steigrohr nach oben gedrückt. Durch die Vorwärmung der Extraktionsflüssigkeit, beispielsweise mit Sattdampf, auf Temperaturen von etwa 60°C wird eine weitere Verbesserung der Imprägnierung erreicht. Die Verweilzeit der Hackschnitzel in der Imprägnierzone beträgt beispielsweise je nach Durchsatz zwischen 1 und 15 min, vorzugsweise 2 bis 5 min. Die Hackschnitzel sind dann ausreichend mit Extraktionsflüssigkeit imprägniert, um in der Kochzone ein sofortiges Untertauchen zu gewährleisten. Durch die drucklose Imprägnierung mit dem organischen Lösungsmittel wird eine gleichmässige Konzentrationsverteilung des Lösungsmittels im Rohstoff erzielt und damit eine definierte Ausgangsbasis für die Extraktionsstufe erreicht.

Das Einbringen der Hackschnitzel gegen den hohen, im Extraktionsgefäss herrschenden Druck erfolgt vorzugsweise mittels einer im Takt gesteuerten Druckschleuse. Es ist vorteilhaft, die Druckschleuse mit Druck, vorzugsweise mittels Wasserdampf, zu beaufschlagen, um die Druckdifferenz zwischen Druckschleuse und Reaktor gering zu halten und dadurch Druckschwankungen im Reaktor zu vermeiden. Erfolgt die Vorimprägnierung drucklos und arbeitet der Reaktor bei 18 bar, ist es beispielsweise vorteilhaft, Wasserdampf mit 16 bar in die Druckschleuse einzuführen.

Die imprägnierten Hackschnitzel lassen sich dann problemlos mit einer Einbringvorrichtung, vorzugsweise einer Schnecke, unter den Flüssigkeitsspiegel im Extraktionsreaktor eindrücken. Die Einbringvorrichtung bewirkt ferner, dass die Hackschnitzel zwangsweise durch den Reaktor gefördert werden. Aufgrund des Vorimprägnierens und der zwangsweisen Förderung kommt es mit Sicherheit nicht zur Ausbildung von Hackschnitzelbrücken an der Eintragstelle und damit zu einer Blockierung des Materialflusses.

Beim kontinuierlichen Zellstoffkochungsverfahren auf Sulfit- bzw. Sulfatbasis kann der Kocher in vier Reaktionszonen unterteilt werden. Die erste Zone ist eine Imprägnierzone. Eine Imprägnierzone ist beim konventionellen Sulfit- oder Sulfataufschluss trotz der Vorimprägnierung notwendig,

um eine einwandfreie Sättigung der Hackschnitzel mit Kochchemikalien zu erreichen. Ohne eine absolut gleichmässige Vorimprägnierung kommt es aufgrund der parallel zum Ligninabbau verlaufenden Ligninkondensation zu Schwarzkochungen. In der auf die Imprägnierzone folgenden Aufheizzone werden die Hackschnitzel auf die gewünschte Kochtemperatur gebracht. Darauf folgt die Kochzone, in der der eigentliche Ligninabbau erfolgt. Daran schliesst sich eine Wasch- und Kühlzone, in der die Entfernung der gelösten Abbaubestandteile durch Gegenstromextraktion mit heissem Wasser erfolgt. Das Waschwasser wird als Quenchflüssigkeit zum Abstoppen der chemischen Abbaureaktion eingesetzt.

Bei dem erfindungsgemässen Verfahren unter Anwendung organischer Lösungsmittel als Extraktionsflüssigkeit kann die verfahrenstechnische Führung der Aufschlussreaktion wesentlich vereinfacht werden. Der Reaktor umfasst nur zwei Zonen, nämlich eine Kochzone und eine Waschzone.

Aufgrund der leichten Imprägnierbarkeit der Hackschnitzel mit dem organischen Lösungsmittel ist keine weitere Imprägnierzone erforderlich.

Die Hackschnitzel werden am Kopf des Reaktors in die Kochflüssigkeit eingetragen, wobei bei Extraktionsflüssigkeitstemperaturen zwischen 130 und 210 °C gearbeitet wird. Die Kochung erfolgt im Gegenstrom, wobei die Delignifizierung der Hackschnitzel praktisch augenblicklich bei Kontakt mit der heissen Extraktionsflüssigkeit beginnt. Es ist für die Erzielung ausreichender Delignifizierungs-raten notwendig, möglichst schnell eine ausreichend hohe Temperatur der Hackschnitzel zu erreichen. Der Ligninabbau mittels organischer Lösungsmittel bzw. Lösungsmittel/Wasser-Gemische ist im wesentlichen ein thermischer Radikalabbau und erreicht erst bei höheren Temperaturen eine für die Praxis ausreichende Geschwindigkeit. Da die Ligninkondensation und damit Verunlöschung jedoch bereits bei niedrigen Temperaturen beginnt, bedeutet eine zu lange Aufheizperiode, dass das Lignin nur unvollständig extrahiert werden kann. Das notwendige schnelle Aufheizen der Hackschnitzel erfolgt bei dem erfindungsgemässen Verfahren aufgrund der Führung der imprägnierten Hackschnitzel im Gegenstrom zur heissen Extraktionsflüssigkeit.

Die frische Extraktionsflüssigkeit wird bei dem Verfahren vorzugsweise durch eine Ringleitung von der Peripherie des Reaktors aus eingespeist. Anstatt oder vorzugsweise zusätzlich zur Einspeisung von der Peripherie her kann Extraktionsflüssigkeit in der Reaktormitte, beispielsweise über eine Hohlwelle, eingespeist werden. Die im Gegenstrom zu den Hackschnitzeln nach oben steigende Extraktionsflüssigkeit wird am Kopf des Reaktors abgezogen. Durch Destillation und Kondensation wird das organische Lösungsmittel wiedergewonnen und im Kreislauf zurückgeführt.

Am Boden des Reaktors wird Wasser, das kalt oder warm sein kann, als Waschflüssigkeit eingespeist, welches sich im Kontakt mit den nach unten wandernden Hackschnitzeln erhitzt. Die Ein-

speisung erfolgt vorzugsweise über eine periphere Ringleitung und/oder eine in der Reaktorachse angeordnete Hohlwelle. Aufgrund der hohen Diffusionsgeschwindigkeit organischer Lösungsmittel wird bei der Gegenstromwäsche der Hackschnitzel das Lösungsmittel aus dem weitestgehend delignifizierten Material praktisch vollständig entfernt. In der Mitte des Reaktors wird die mit Lösungsmittel und Abbauprodukten beladene Waschflüssigkeit im allgemeinen zusammen mit einem Teil der heissen Kochflüssigkeit abgezogen.

Vorzugsweise wird der abgezogenen Waschflüssigkeit, beispielsweise mittels einer Dosierpumpe, Lösungsmittel in einer solchen Menge zugesetzt, dass die gewünschte Zusammensetzung der Extraktionsflüssigkeit wieder erreicht wird. Die Extraktionsflüssigkeit wird dann, beispielsweise über einen Wärmetauscher, auf die erforderliche Temperatur gebracht und über eine periphere Ringleitung und/oder eine Hohlwelle in der Reaktormitte eingespeist.

Wesentlich bei dem erfindungsgemässen Verfahren ist, dass die Waschflüssigkeit nicht zum Quenchen der Reaktion dient, sondern eine Komponente der in den Reaktor eingespeisten Extraktionsflüssigkeit darstellt.

Schwankungen des Prozesses und des Rohmaterials, die Veränderungen in der Zusammensetzung der Extraktionsflüssigkeit bedingen, können bei dem erfindungsgemässen Verfahren leicht ausgeglichen werden.

Vorteilhaft ist ferner, dass die Hackschnitzel im Gegenstrom mit reinem Wasser bei verhältnismässig hoher Temperatur gewaschen werden. Aufgrund der niedrigen Konzentration des Waschwassers an organischem Lösungsmittel ist die Waschung viel wirksamer als eine Waschung, bei der reines Extraktionsmittel als Waschflüssigkeit verwendet wird.

Das aufgeschlossene Material wird üblicherweise über einen Blastank ausgetragen, gegebenenfalls nochmals gewaschen, und dann in üblicher Weise sortiert und weiterverarbeitet.

Die Erfindung wird nachstehend anhand der Zeichnung näher erläutert.

Die einzige Figur zeigt ein Fließbild der Imprägnier-, Extrahier-, Wasch- und Trennstufe des erfindungsgemässen Verfahrens.

Das Pflanzenfasermaterial, beispielsweise Holzschnitzel, wird über die Eintragsvorrichtung 16 in den bei Atmosphärendruck und bei einer Temperatur von 60 °C arbeitenden Imprägnierer 1 eingebracht. Über Leitung 17 wird dem Imprägnierer ein Äthanol-Wasser-Gemisch zugeführt. Die durchtränkten Hackschnitzel werden mittels der Transportschnecke 18 durch den schräg liegenden Imprägnierer nach oben gefördert und über eine Austragsvorrichtung 19 einer Druckschleuse 2 zugeführt. Die mit Druck beaufschlagten Hackschnitzel werden dann in den Reaktor 3 oben eingeführt.

Im Reaktor werden die Schnitzel von der vertikal angeordneten Schnecke 20 unter das Flüssigkeitsniveau gedrückt und durch den Reaktor nach

unten geführt. Auf ihrem Weg durch den Reaktor werden die Schnitzel zuerst von heisser Extraktionsflüssigkeit im Gegenstrom durchströmt, wobei das sich lösende Lignin und andere Cellulosebegleiter aus den Schnitzeln durch Diffusion herausgezogen und von der aufwärts strömenden Extraktionsflüssigkeit weggeführt werden.

Die mit Extrakt angereicherte Extraktionsflüssigkeit verlässt den Reaktor über Leitung 10. Die Extraktionsflüssigkeit wird dann über einen Kühler 23 einem Ablaugenentspannungsgefäß 24 zugeführt. Die freiwerdenden Lösungsmittelbrüden werden in einem Brüdenkondensator 25 kondensiert und das Lösungsmittel über Leitung 33 im Kreislauf in den Prozess zurückgeführt.

Die verbleibende wässrige Lösung aus Hemicellulosen und Lignin wird mit einer Pumpe 26 über einen weiteren Kühler 27 einer Schneckenpresse 28 zugeführt. An die Stelle der Schneckenpresse können eine Zentrifuge oder ein Schwerphasenabscheider treten. Bei niedriger Temperatur fällt in der Schneckenpresse das Lignin aus und wird von den Hemicellulosen getrennt. Die Hemicellulosen und das Lignin, die über Leitungen 29 bzw. 30 abgezogen werden, können dann getrennt einer Weiterverarbeitung zugeführt werden.

Am Ende der Kochzone 4 ist die Auflösung der Cellulosebegleiter abgeschlossen. Die Kochflüssigkeit wird in der anschliessenden Waschzone 5 durch aufsteigendes Wasser aus dem aufgeschlossenen Material ausgewaschen und mit diesem in der Mitte des Reaktors über Abführung 8, Leitung 11 und Pumpe 21 abgezogen. Über Leitung 15 wird der Waschflüssigkeit frisches Lösungsmittel zudosiert, und nach Aufheizen im Wärmetauscher 14 wird sie als Extraktionsflüssigkeit über Leitungen 13, 13' durch die oben in den Reaktor reichende Hohlwelle 22 durch Zuführung 9 in der Mitte des Reaktors und über Ringleitung 31 eingespeist.

Frisches Lösungsmittel wird dem Prozess über Leitung 34 zugeführt.

Der ausgewaschene Zellstoff wird am Ende der Waschzone 5 über Auslass 7 aus dem Reaktor abgezogen. Waschflüssigkeit in Form von Wasser wird dem Reaktor am Reaktorboden über die periphere Ringleitung 32 und/oder die Hohlwelle 6 zugeführt.

Es versteht sich, dass die einzelnen Stoffströme mittels geeigneter Mess- und Regelvorrichtungen gesteuert werden.

Mit dem erfindungsgemässen Verfahren werden Zellstoffe ausgezeichneten Qualität und Bleichbarkeit erhalten, die sich bestens als Rohstoff für die Papierherstellung eignen. Hemicellulosen und Lignin werden in reiner Form erhalten und sind als wertvolle Rohstoffe vielfältig einsetzbar.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial, bei dem das Pflanzenfasermaterial im Gegenstrom mit organi-

schem Lösungsmittel behandelt wird und wobei das Pflanzenfasermaterial am Kopf eines Reaktors mittels einer Einbringvorrichtung eingebracht und durch diesen nach unten geführt und am Reaktorboden Cellulose ausgebracht wird, organisches Lösungsmittel im Gegenstrom zum Pflanzenfasermaterial nach oben geführt und am Kopf des Reaktors abgezogen wird und die beladene Extraktionsflüssigkeit in die wesentlichen Bestandteile Lignin, Hemicellulose und Lösungsmittel getrennt wird, dadurch gekennzeichnet, dass das Pflanzenfasermaterial in einer Imprägniereinrichtung mit organischem Lösungsmittel imprägniert wird, das imprägnierte Pflanzenfasermaterial zwangsweise durch den Reaktor nach unten geführt wird, in der Reaktormitte organisches Lösungsmittel mit einer Temperatur zwischen 130 und 210°C als Extraktionsflüssigkeit eingebracht wird und am Boden des Reaktors Wasser als Waschflüssigkeit eingespeist, im Gegenstrom zu dem Pflanzenfasermaterial nach oben geführt und in der Reaktormitte abgezogen wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das organische Lösungsmittel in Form einer Mischung aus organischem Lösungsmittel und Wasser mit einer Konzentration zwischen 40 und 60% Lösungsmittel eingesetzt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass als organisches Lösungsmittel Äthylalkohol oder Isopropylalkohol eingesetzt werden.

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Imprägnierung bei Atmosphärendruck erfolgt.

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Imprägnierung bei erhöhter Temperatur, insbesondere zwischen 40 und 80%, erfolgt.

6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Imprägnierung in einem Schneckenförderer durchgeführt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das in der Reaktormitte eingeführte Extraktionsmittel eine Temperatur zwischen 180 und 200°C aufweist.

8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der in der Reaktormitte abgezogene Waschflüssigkeit organisches Lösungsmittel zugegeben und diese Mischung als Extraktionsflüssigkeit wieder dem Reaktor zugeführt wird.

9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Extraktionsflüssigkeit über eine Hohlwelle in die Reaktormitte und/oder eine Ringleitung von der Peripherie des Reaktors aus eingespeist wird.

10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass, bezogen auf das Pflanzenfasermaterial, Extraktionsflüssigkeit in zwei- bis fünffacher Volumenmenge eingesetzt wird.

11. Vorrichtung zum kontinuierlichen Aufschliessen von Pflanzenfasermaterial mit organischem Lösungsmittel, bei der eine Vorbehandlungseinrichtung für das Pflanzenfasermaterial direkt über eine Druckschleuse (2) mit dem Kopf des

Reaktors (3) in Verbindung steht und am Reaktorboden ein Auslass (7) für das aufgeschlossene Pflanzenfasermaterial, am Reaktorkopf ein Abzug (10) für die beladene Extraktionsflüssigkeit sowie Trenneinrichtungen (24, 25, 28) für die Separierung von Lignin, Hemicellulose und Lösungsmittel vorgesehen sind, dadurch gekennzeichnet, dass die Vorbehandlungseinrichtung ein als Schneckenförderer ausgebildeter Imprägnierer (1) ist, in dem Reaktor (3) integral eine Kochzone (4) und eine Waschzone (5) vorgesehen sind, der Reaktor (3) am Boden einen oder mehrere Einlässe (6, 32) für die Waschflüssigkeit im Mittelbereich, eine Abführung (8) für die Waschflüssigkeit und eine oder mehrere Zuführungen (9, 31) für die Extraktionsflüssigkeit und im Reaktorkopf eine Einbringvorrichtung (20) für das Pflanzenfasermaterial umfasst.

12. Vorrichtung nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Abführung (8) über Leitungen (11, 12, 13, 13') und Wärmetauscher (14) mit den Zuführungen (9, 31) in Verbindung steht, wobei in eine der Leitungen (11, 12, 13, 13') eine Zuführung (15) zur Zudosierung von organischem Lösungsmittel mündet.

13. Vorrichtung nach Anspruch 11 oder 12, dadurch gekennzeichnet, dass in dem Reaktor eine von oben bis etwa in die Mitte desselben reichende Hohlwelle (22) zum Zuführen weiterer Extraktionsflüssigkeit über eine Zuführung (9) angeordnet ist.

14. Vorrichtung nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass ein weiterer Einlass (6) in Form einer Hohlwelle für die Zuführung der Waschflüssigkeit in der Mitte des Reaktorbodens vorgesehen ist.

15. Vorrichtung nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Einbringvorrichtung (20) in Form eines Schneckenförderers ausgebildet ist.

16. Vorrichtung nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass für die Trennung von Lignin, Hemicellulose und Lösungsmittel ein Ablaugentensionsgefäß (24), ein Brüdenkondensator (25) und eine Schneckenpresse (28) vorgesehen sind.

## Claims

1. A process for the continuous digestion of plant fibre material, wherein the plant fibre material is treated countercurrently with an organic solvent and wherein the plant fibre material is introduced at the top of a reactor by means of an in-feeding device, is conducted by the latter in a downward direction and cellulose is produced at the bottom of the reactor, organic solvent is conducted upwardly in countercurrent to the plant fibre material and is withdrawn at the top of the reactor, and the laden extraction liquor is separated into its essential components of lignin, hemicellulose and solvent, characterised in that the plant fibre material is impregnated in an impregnating device with organic solvent, the impregnated plant fibre material is positively conducted downwardly through the reactor, organic

solvent at a temperature of between 130 and 210 °C is introduced as an extraction liquor into the centre of the reactor and at the bottom of the reactor water is fed in as a wash liquor, conducted upwardly in countercurrent to the plant fibre material and is withdrawn at the centre of the reactor.

2. A process according to claim 1, characterised in that the organic solvent is used in the form of a mixture of an organic solvent and water having a concentration of solvent of between 40 and 60%.

3. A process according to claim 1 or 2, characterised in that ethyl alcohol or isopropyl alcohol is used as organic solvent.

4. A process according to claim 1, characterised in that the impregnation takes place at atmospheric pressure.

5. A process according to claim 1, characterised in that the impregnation takes place at an elevated temperature, particularly between 40 and 80 °C.

6. A process according to claim 1, characterised in that the impregnation is performed in a screw conveyor.

7. A process according to claim 1, characterised in that the extraction agent introduced at the centre of the reactor has a temperature of between 180 and 200 °C.

8. A process according to claim 1, characterised in that organic solvent is added to the wash liquor withdrawn at the centre of the reactor and this mixture is recycled to the reactor as the extraction liquor.

9. A process according to claim 1, characterised in that the extraction liquor is fed via a hollow shaft to the centre of the reactor and/or via an annular manifold from the periphery of the reactor.

10. A process according to claim 1, characterised in that extraction liquor is used in an amount two to five times the volume of the plant fibre material.

11. Apparatus for the continuous digestion of plant fibre material with an organic solvent wherein a pretreatment apparatus for the plant fibre material is directly connected via a pressure lock (2) with the top of the reactor (3), and at the bottom of the reactor there is an outlet (7) for the digested plant fibre material, at the top of the reactor there is an outlet (10) for the laden extraction liquor as well as separating devices (24, 25, 28) for the separation of lignin, hemicellulose and solvent, characterised in that the pretreatment apparatus consists of an impregnating device (1) formed as a screw conveyor, a digestion zone (4) and a washing zone (5) are provided integrally in the reactor (3), the reactor (3) including one or more inlets (6, 32) for wash liquid at the centre region of its bottom, an outlet (8) for the wash liquor, and one or more feed inlets (9, 31) for the extraction liquid and an in-feed device (20) for the plant fibre material at the top of the reactor.

12. Apparatus according to claim 11, characterised in that the outlet (8) is connected via ducts (11, 12, 13, 13') and a heat exchanger (14) with the feed inlets (9, 31), a supply duct (15) for the addition of organic solvent debouching into one of the ducts (11, 12, 13, 13').



13. Apparatus according to claims 11 or 12, characterised in that a hollow shaft (22) extending from the top to approximately the centre of the reactor is arranged for the supply of additional extraction liquid via a feed inlet (9).

14. Apparatus according to claim 11, characterised in that a further inlet (6) in the form of a hollow shaft is provided for the supply of wash liquid at the centre of the bottom of the reactor.

15. Apparatus according to claim 11, characterised in that the infed device (20) is in the form of a screw conveyor.

16. Apparatus according to claim 11, characterised in that a spent liquor flash evaporator (24), a vapour condenser (25) and a worm extruder (28) are provided for the separation of lignin, hemicellulose and solvent.

### Revendications

1. Procédé pour désagréger en continu une matière végétale fibreuse suivant lequel la matière végétale fibreuse est traitée à contre-courant au moyen d'un solvant organique en introduisant cette matière végétale fibreuse à l'aide d'un dispositif d'alimentation dans la partie supérieure d'un réacteur et en la conduisant vers le bas en direction du fond de ce dernier où la cellulose est prélevée, le solvant organique étant conduit vers le haut et à contre-courant par rapport à la matière végétale fibreuse pour être évacué à la partie supérieure du réacteur et les composants essentiels du liquide d'extraction chargé, tels que la lignine, l'hémicellulose et le solvant, étant séparés, caractérisé en ce que la matière végétale fibreuse est imprégnée d'un solvant organique dans un dispositif d'imprégnation, en ce que la matière végétale fibreuse imprégnée est conduite de façon contrôlée de haut en bas à l'intérieur du réacteur, en ce qu'en tant que liquide d'extraction un solvant organique présentant une température comprise entre 130 et 210 °C est introduit au centre du réacteur et en ce qu'en tant que liquide de lavage, de l'eau est introduite dans le réacteur au niveau du fond de ce dernier, cette eau étant conduite vers le haut à contre-courant par rapport à la matière végétale fibreuse pour être évacuée par le centre du réacteur.

2. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que le solvant organique utilisé est constitué par un mélange de solvants organiques et d'eau présentant une concentration en solvant comprise entre 40 et 60%.

3. Procédé suivant l'une des revendications 1 ou 2, caractérisé en ce qu'on utilise de l'alcool éthylique ou de l'alcool isopropylique en tant que solvant.

4. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que l'imprégnation s'effectue sous la pression atmosphérique.

5. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que l'imprégnation s'effectue à une température élevée comprise notamment entre 40 et 80 °C.

6. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que l'imprégnation s'effectue dans un transporteur à vis sans fin.

7. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que l'agent d'extraction introduit au centre du réacteur présente une température comprise entre 180 et 200 °C.

8. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce qu'on additionne au liquide de lavage prélevé au centre du réacteur un solvant organique et en ce que ce mélange est introduit de nouveau dans le réacteur en tant que liquide d'extraction.

9. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que le liquide d'extraction est introduit dans le centre du réacteur par l'intermédiaire d'un arbre creux et/ou dans la zone périphérique du réacteur par l'intermédiaire d'un conduit annulaire.

10. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que le liquide d'extraction utilisé est de deux à cinq fois le volume de la matière végétale fibreuse.

11. Dispositif pour désagréger en continu une matière végétale fibreuse au moyen d'un solvant organique dans lequel un dispositif de traitement préliminaire pour la matière végétale fibreuse communique directement avec la partie supérieure du réacteur (3) par l'intermédiaire d'un sas de pression (2), dispositif qui présente au fond du réacteur une ouverture d'évacuation (7) pour la matière végétale fibreuse désagrégée et à la partie supérieure du réacteur un conduit de prélèvement (10) pour le liquide d'extraction chargé ainsi que des dispositifs (24, 25, 28) pour la séparation de la lignine, l'hémicellulose et le solvant, caractérisé en ce que le dispositif de traitement préliminaire est constitué par un appareil d'imprégnation (1) réalisé sous forme d'un transporteur à vis sans fin, en ce que le réacteur (3) présente une zone de cuisson (4) et une zone de lavage (5) et en ce que le réacteur (3) présente dans son fond une ou plusieurs entrées (6, 32) pour le liquide de lavage, dans sa zone médiane un conduit d'évacuation (8) pour ce dernier et un ou plusieurs conduits d'admission (9, 31) pour le liquide d'extraction, et au niveau de sa partie supérieure un dispositif (20) pour introduire la matière végétale fibreuse.

12. Dispositif suivant la revendication 11, caractérisé en ce que le conduit d'évacuation (8) communique avec les conduits d'admission (9, 31) par l'intermédiaire de conduits (11, 12, 13, 13') et de l'échangeur (14), un conduit (15) pour l'addition dosée d'un solvant organique débouchant dans l'un des conduits (11, 12, 13, 13').

13. Dispositif suivant l'une des revendications 11 ou 12, caractérisé en ce qu'il est prévu à l'intérieur du réacteur un arbre creux (22) s'étendant d'en haut jusqu'à sensiblement à mi-hauteur du réacteur et destiné à l'introduction d'une quantité de liquide d'extraction supplémentaire à l'aide d'ouvertures d'admission (9).

14. Dispositif suivant la revendication 11, caractérisé en ce qu'un autre conduit d'admission (6) en forme d'arbre creux et destiné à l'introduction du





