
Octrooiraad



⑩ A **Terinzagelegging** ⑪ **8201435**

Nederland

⑲ NL

- ⑤4 **Werkwijze voor het in twee trappen vloeibaar maken van kolen.**
- ⑤1 Int.Cl³: C10G 1/04.
- ⑦1 Aanvrager: The Lummus Company te Bloomfield, New Jersey, Ver. St. v. Am.
- ⑦4 Gem.: Ir. L.W. Kooy c.s.
Octroobureau Vriesendorp & Gaade
Dr. Kuiperstraat 6
2514 BB 's-Gravenhage.

-
- ②1 Aanvraag Nr. 8201435.
- ②2 Ingediend 5 april 1982.
- ③2 Voorrang vanaf 5 augustus 1981.
- ③3 Land van voorrang: Ver. St. v. Am. (US).
- ③1 Nummer van de voorrangsaanvraag: 290246 .
- ⑥2 --

-
- ④3 Ter inzage gelegd 1 maart 1983.

De aan dit blad gehechte afdruk van de beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en) bevat afwijkingen ten opzichte van de oorspronkelijk ingediende stukken; deze laatste kunnen bij de Octrooiraad op verzoek worden ingezien.

Werkwijze voor het in twee trappen vloeibaar maken van kolen.

De uitvinding heeft betrekking op het vloeibaar maken van kolen en in het bijzonder op een verbetering van een tweetrapswerkwijze voor het vloeibaar maken van kolen.

5 Kolen heeft men vloeibaar gemaakt in een enkele vloeibaarmakingstrap, omvattende een voorverhitterspiraal waarin het vloeibaar maken van kolen praktisch wordt voltooid, gevolgd door een oplosinrichting waar zowel oplosmiddel voor het vloeibaar maken als uit kolen verkregen vloeistoffen verder worden gehydroge-

10 neerd. Onlangs werd een zogenaamde tweetrapswerkwijze voor vloeibaar maken voorgesteld waarbij de eerste reactietrap bestaat uit een thermische vloeibaarmaakbewerking met een korte contacttijd, gevolgd door winnen van praktisch asvrije vloeistof die verder in kwaliteit wordt verhoogd in een tweede vloeibaar-

15 makingstrap. De onderhavige uitvinding heeft betrekking op een verbetering van een dergelijke tweetraps vloeibaarmakingswerk-

20 wijze. Volgens de uitvinding wordt voorzien in een verbeterde tweetraps vloeibaarmakingswerkwijze waarbij het oplosmiddel voor het vloeibaar maken dat naar de eerste trap gaat een verpompbare stroom omvat van onoplosbaar materiaal (as, niet opgeloste kolen, enz.), die boven 455° C kokende vloeistof omvat, gewonnen uit de eerste trap van de vloeibaarmaking en boven 455° C

25 kokende vloeistof bevat verkregen uit de tweede vloeibaarmakingstrap. Het oplosmiddel voor het vloeibaar maken dat naar de eerste trap gaat omvat derhalve zware materialen (waaronder onoplosbare stoffen) uit de eerste trap en zwaar materiaal uit de tweede trap.

30 De eerste vloeibaarmakingstrap is in het bijzonder een thermische vloeibaarmakingstrap met een korte contacttijd waarbij wordt gewerkt met een uitlaattertemperatuur van de orde van $440-470^{\circ}$ C bij een druk in de orde van 12,5 MPa tot 19 MPa,

bij een reactiecontacttijd (bij temperaturen boven 350° C) van de orde van 3-15 min.. Het vloeibaarmakingsoplosmiddel voor kolen dat in de eerste trap wordt gebruikt wordt toegepast in een zodanige hoeveelheid dat de gewichtsverhouding van oplosmiddel tot kolen is van de orde van 1,2:1 tot 3:1. Het zal duidelijk zijn dat grotere hoeveelheden gebruikt kunnen worden, maar in het algemeen zijn dergelijke grotere hoeveelheden economisch niet verantwoord. Voorts wordt waterstof aan de eerste trap toegevoerd in een hoeveelheid van 113-425 Nm³ per ton kolen.

Na een behandeling ter verwijdering van onoplosbare stoffen wordt boven 455° C kokende vloeistof die praktisch vrij is van onoplosbare stoffen onderworpen aan een vloeibaarmaking in een tweede trap om de kwaliteit van het materiaal verder op te voeren.

Volgens de onderhavige uitvinding wordt de verpompbare stroom van onoplosbaar materiaal (as, onopgeloste kolen, enz.) die boven 455° C kokende vloeistof omvat (gewoonlijk tenminste 45 % en in het algemeen cirka 45-55 % van de stroom bestaat uit boven 455° C kokende vloeistof terwijl de rest onoplosbaar materiaal is), die wordt verkregen bij het ontassen, gebruikt bij het samenstellen van het oplosmiddel voor het vloeibaarmaken voor de eerste trap.

Volgens de uitvinding bestaat het oplosmiddel voor het vloeibaar maken van kolen dat in de eerste trap van de werkwijze wordt gebruikt uit 15-50 % en in het algemeen 20-40 % boven 455° C kokende vloeistof, uit 5-20 % in het algemeen 5-10 % onoplosbaar materiaal en voor de rest uit beneden 455° C kokende vloeistof met een begin kookpunt van tenminste 260° C, waarbij de beneden 450° C kokende vloeistof in het oplosmiddel aanwezig is in een hoeveelheid van tenminste 45 % en in het algemeen in een hoeveelheid van tenminste 50 %, waarbij als deze hoeveelheden als gewichtspercentages worden gerekend. Daarnaast wordt tenminste 10 % en tot 40 % van het oplosmiddel voor het vloeibaarmaken verkregen uit de verpompbare stroom van onoplosbaar materiaal die uit de ontassing van de eerste trap komt en wordt tenminste 25 % van

het oplosmiddel voor het vloeibaar maken verkregen uit de tweede trap. De fractie die wordt verkregen uit de tweede trap kan alleen boven 455° C kokende vloeistof zijn of zowel boven als beneden 455° C kokende vloeistof zijn, maar in de meeste gevallen is de vloeistof die uit de tweede trap wordt verkregen in hoofdzaak 5 boven 455° C kokende vloeistof. Het oplosmiddel voor het vloeibaar maken bestaat derhalve uit vloeistof die kookt boven 260° C, waarbij het oplosmiddel voor het vloeibaar maken materiaal omvat dat kookt boven 455° C (de gehele reeks van materialen met uitzondering 10 van onoplosbare stoffen, verkregen uit de kolen) gewonnen uit zowel de eerste als de tweede trap.

Volgens een voorkeursuitvoeringsvorm wordt het effluent van de eerste trap ontast door toepassing van een vloeistofpromotor met een karakterisatiefactor van tenminste 9,75, 15 waarvan de destillatietemperatuur waarbij 5 vol.% is overgedestilleerd tenminste 120° C en de destillatietemperatuur waarbij 95 vol.% is overgedestilleerd tenminste 175° C en niet hoger dan 455° C is, zoals beschreven in Amerikaanse octrooischrift 3.856.675. Zoals in dat octrooischrift wordt beschreven is een 20 promotorvloeistof waaraan de voorkeur wordt gegeven een kerosinefractie met een destillatietemperatuur waarbij 5 vol.% is overgedestilleerd van 218° C en een destillatietemperatuur waarbij 95 vol.% is overgedestilleerd van 260° C.

Vloeistof die praktisch vrij is van onoplosbaar 25 materiaal (niet meer dan 0,5 % as) en wordt verkregen bij het ontassen wordt daarna behandeld in een terugwinzone om promotorvloeistof terug te winnen, als een dergelijke promotorvloeistof bij het ontassen wordt gebruikt, waarbij componenten die koken beneden 455° C en die worden gebruikt voor het samenstellen van het oplosmiddel voor het vloeibaar maken, met hoger kokende materialen, dat 30 wil zeggen boven 455° C kokend materiaal wordt gebruikt als voeding voor de tweede vloeibaarmakingstrap. Een verpompbare stroom van onoplosbaar materiaal die boven 455° C kokende vloeistof omvat wordt eveneens in de ontassingstrap gewonnen en een deel daarvan 35 wordt gebruikt voor het samenstellen van het oplosmiddel.

In de tweede vloeibaarmakingstrap wordt het boven 455° C kokende materiaal in contact gebracht met waterstof en met een oplosmiddel voor het vloeibaar maken in de tweede trap, bij temperaturen van de orde van 400° C tot 455° C en bij drukken van de orde van 14-21,1 MPa, met contacttijden van de orde van 1-5 h. In de tweede trap vindt dit in contact brengen plaats bij aanwezigheid van een katalysator voor het vloeibaar maken van kolen van een in de techniek bekend type, bijvoorbeeld een katalysator met een oxyde of sulfide van een metaal uit Groep VI en Groep VIII, bijvoorbeeld een kobalt-molybdeen- of nikkel-molybdeen-katalysator, op een geschikte drager zoals aluminiumoxyde of siliciumdioxide-aluminiumoxyde.

Volgens een voorkeursuitvoeringsvorm wordt de vloeibaarmaking in de tweede trap uitgevoerd in een borrelend bed met opwaartse stroming, welke borrelende bedden in de techniek wel bekend zijn.

Het effluent van de tweede vloeibaarmakingstrap wordt dan onderworpen aan een verdamping om er lichtere componenten uit te winnen, dat wil zeggen componenten die koken beneden 455° C terwijl het overblijvende produkt wordt gebruikt om oplosmiddel voor het vloeibaar maken voor de tweede trap, een deel van het oplosmiddel voor het vloeibaar maken dat nodig is in de eerste trap en netto vloeibaar gemaakt produkt te leveren.

De uitvinding wordt nu verder beschreven aan de hand van een uitvoeringsvorm die wordt geïllustreerd in de tekening die een schematisch blokschema weergeeft van een uitvoeringsvorm van de uitvinding.

Zoals weergegeven in de tekening worden gemalen poedervormige kolen, in het algemeen bitumineuze kolen, sub-bitumineuze kolen of ligniet, bijvoorbeeld bitumineuze kolen, door leiding 10, wordt waterstof door leiding 11 en wordt een oplosmiddel voor het vloeibaar maken van kolen dat wordt verkregen zoals hierna wordt beschreven, door leiding 12 toegevoerd aan de eerste vloeibaarmakingstrap of zône, die schematisch is weergegeven met 13, waarin een thermische vloeibaarmakingsbewerking van kolen

plaatsvindt met een korte contacttijd. De thermische vloeibaarmaking vindt plaats bij afwezigheid van katalysator. De vloeibaarmaking in deze eerste trap vindt plaats onder de hiervoor beschreven omstandigheden.

5 Een kolenvloeibaarmakingsprodukt van deze eerste trap wordt uit de zône 13 afgevoerd door leiding 14 en ingevoerd in een verdampingszône die schematisch is weergegeven met 15, om er materialen uit af te destilleren die koken in het traject tot circa 260 à 350° C. De afgedampte materialen worden uit de
10 verdampingszône 15 afgevoerd door leiding 16. De verdampingszône 15 dient in de eerste plaats om materialen af te dampen die koken totaan het kookpunt van de promotorvloeistof die moet worden gebruikt in het daaropvolgende ontassingsproces.

De rest van het kolenvloeibaarmakingsprodukt
15 wordt door leiding 17 naar een ontassingszône gevoerd die schematisch is aangegeven met 18, voor het afscheiden van as en andere onoplosbare materialen uit het kolenvloeibaarmakingsprodukt van de eerste trap. Zoals werd beschreven, vindt de ontassing in zône 18 plaats onder toepassing van een promotorvloeistof die de afscheiding
20 van het onoplosbare materiaal bevordert en versterkt; die promotorvloeistof wordt toegevoerd door leiding 19. De afscheiding van as in zône 18 vindt in het bijzonder plaats in één of meer gravitatie-scheiders. De promotorvloeistof en de algemene methode voor het ontassen worden bijvoorbeeld beschreven in het Amerikaanse octrooi-
25 schrift 3.856.675.

De praktisch asvrije overloop wordt uit de ontassingszône 18 afgevoerd door leiding 22 en ingevoerd in een terugwinzône die schematisch wordt aangegeven met 23.

Een onoplosbaar materiaal bevattende onderloop
30 wordt afgevoerd uit de ontassingszône 18 door leiding 20 en naar een afdampzône gevoerd die schematisch wordt aangegeven bij 24 waarin materialen die koken beneden 455° C worden afgedampt. Het afdampen in zône 24 wordt zodanig uitgevoerd dat uit de afdampzône 24 via leiding 25 een stroom materiaal wordt gewonnen die nog kan
35 vloeien en die boven 455° C kokende vloeistof bevat. De afgedampte

componenten worden uit de afdampzône 24 afgevoerd door leiding 26 en ingevoerd in de terugwinzône 23.

Een deel van het boven 455° C kokende materiaal wordt door leiding 31 ingevoerd in een opslagzône voor eerste-
5 traps oplosmiddel die schematisch is aangegeven met 32; dit materiaal dient voor het samenstellen van het vloeibaarmakings oplosmiddel voor de eerste trap zoals hierna wordt beschreven.

De rest van dat materiaal wordt afgevoerd door leiding 33 en kan worden gebruikt als voeding voor een partieel
10 oxydatieproces voor de bereiding van waterstof.

De terugwinzône 23 kan één, twee of meer destillatiekolommen omvatten die zo zijn ontworpen en op een zodanige wijze worden gebruikt dat promotorvloeistof wordt gewonnen via leiding 41 die later wordt ingevoerd in de ontassingszône 18
15 via leiding 19, na toevoegen van aanvullende promotorvloeistof indien nodig via leiding 42. Voorts wordt via leiding 43 een stroom gewonnen die kookt in het traject van cirka 315° C tot cirka 485° C en bestemd is voor gebruik bij het samenstellen van het in de eerstetraps oplosmiddelzône 32 samenstellen van het
20 eerstetraps vloeibaarmakingsoplosmiddel.

Boven 455° C kokend materiaal wordt uit de terugwinzône 23 gewonnen via leiding 51 en wordt ingevoerd in een tweede vloeibaarmakingszône die schematisch wordt aangegeven met
25 52, tezamen met waterstof die wordt toegevoerd door leiding 53 en met tweedetraps vloeibaarmakingsoplosmiddel dat wordt toegevoerd door leiding 54. De tweede vloeibaarmakingszône 52 werkt bij temperaturen en drukken zoals hiervoor beschreven en er wordt bij voorkeur in gewerkt onder toepassing van een katalysator voor het vloeibaar maken van kolen van het hiervoor beschreven type.

30 Volgens een voorkeursuitvoeringsvorm heeft de tweede vloeibaarmakingszône de vorm van een borrelend bed met opwaartse stroming.

Het effluent uit de tweede vloeibaarmakingstrap wordt door leiding 55 afgevoerd naar een verdampingszône, die
35 schematisch is aangegeven met 56, waarin materialen die koken

beneden cirka 455° C worden afgedampt en deze lager kokende materialen via leiding 57 worden gewonnen. Eventueel kan een deel van het materiaal dat wordt afgevoerd door leiding 57 worden gebruikt voor het samenstellen van vloeibaarmakings oplosmiddel en daartoe
5 worden afgevoerd door leiding 62.

Het boven 455° C kokende produkt dat uit de verdampingszône 56 wordt gewonnen, wordt gebruikt voor het vormen van vloeibaarmakingsoplosmiddel voor de tweede trap waardoor het wordt afgevoerd door leiding 54 en voor het samenstellen van eerstetraps
10 vloeibaarmakingsoplosmiddel waartoe het wordt afgevoerd door leiding 59.

Het resterende deel wordt via leiding 61 gewonnen als netto produkt.

Het vloeibaarmakingsoplosmiddel voor de eerste
15 trap in zône 32 wordt dus samengesteld door combineren van materiaal dat kookt in het traject van 315° C tot 485° C, dat wordt toegevoerd door leiding 43, boven 455° C kokende vloeistof die onoplosbare materialen omvat, die wordt toegevoerd door leiding 31 en boven 455° C kokend materiaal dat uit de tweede vloeibaar-
20 makingstrap komt en wordt toegevoerd door leiding 59. Eventueel kan een deel van het lichtere materiaal dat wordt gewonnen uit de tweede trap worden gebruikt voor het samenstellen van het eerste-trapsoplosmiddel.

Hoewel de uitvinding werd beschreven aan de
25 hand van een bepaalde uitvoeringsvorm zal het duidelijk zijn dat de uitvinding niet beperkt is tot alleen die uitvoeringsvorm. Zo kan bijvoorbeeld het ontassen op een andere wijze geschieden dan hiervoor werd beschreven. Evenzo kan de tweede vloeibaarmakings-
trap op een andere wijze worden uitgevoerd dan hier werd beschreven;
30 dat wil zeggen er kan een andere vloeibaarmakingszône worden gebruikt dan een borrelend bed met opwaartse stroming.

De onderhavige uitvinding is gunstig omdat
boven 455° C kokend materiaal, verkregen uit de kolen, wordt ge-
bruikt om een deel van het vloeibaarmakingsoplosmiddel te leveren
35 en een deel van dat boven 455° C kokende materiaal wordt verkregen

uit de verpompbare stroom van onoplosbare stoffen die uit de ontassingstrap wordt gewonnen, waarmee de hoeveelheid materiaal uit de tweede trap die nodig is voor het samenstellen van het eerste-traps oplosmiddel voor het vloeibaar maken wordt verminderd.

5

C O N C L U S I E S

1. Werkwijze voor het in twee trappen vloeibaar
5 maken van kolen/^{waarbij}door kolen, een eerste oplosmiddel voor vloeibaar
maken en waterstof in een eerste zône voor het thermisch vloeibaar
5 maken met elkaar in contact worden gebracht onder vorming van een
eerste effluent, uit het eerste effluent een praktisch asvrije
vloeistof en een verpompbare stroom van onoplosbaar materiaal dat
boven 455° C kokende vloeistof bevat worden gewonnen, praktisch
asvrije vloeistof en waterstof in een tweede vloeibaarmakingstrap
10 met elkaar in contact worden gebracht om de kwaliteit van de prak-
tisch asvrije vloeistof te verhogen en een tweede-traps vloeibaar
effluent te verkrijgen en uit het tweede vloeibare effluent een
boven 455° C kokende vloeistof wordt gewonnen, met het kenmerk,
dat het oplosmiddel voor het vloeibaar maken in de eerste trap een
15 deel omvat van de verpompbare stroom van onoplosbaar materiaal die
boven 455° C kokende vloeistof omvat en die wordt gewonnen uit het
eerste effluent en een deel van een boven 455° C kokende vloeistof
omvat die wordt gewonnen uit het vloeibare effluent van de tweede
trap, waarbij dit oplosmiddel voor het vloeibaar maken 15-20 %
20 boven 455° C kokende vloeistof, 5-20 % onoplosbaar materiaal en
tenminste 45 % beneden 455° C kokende vloeistof met een begin
kookpunt van tenminste 260° C omvat en tenminste 10 % van het
oplosmiddel voor het vloeibaar maken wordt verkregen uit de genoem-
de verpompbare stroom en tenminste 25 % van het oplosmiddel voor
25 vloeibaar maken in de eerste trap wordt verkregen uit het vloeibare
effluent van de tweede trap.

2. Werkwijze volgens conclusie 1, met het ken-
merk, dat de verpompbare stroom 45-55 % boven 455° C kokende
vloeistof omvat en voor de rest onoplosbaar materiaal.

30 3. Werkwijze volgens conclusie 1 of 2, met het
kenmerk, dat het oplosmiddel voor het vloeibaar maken in de eerste
trap 20-40 % boven 455° C kokende vloeistof omvat.

4. Werkwijze volgens conclusie 3, met het ken-
merk, dat het oplosmiddel voor het vloeibaar maken in de eerste
35 trap 5-10 % onoplosbaar materiaal omvat.

5. Werkwijze volgens conclusie 4, met het kenmerk, dat het oplosmiddel voor het vloeibaar maken in de eerste trap tenminste 45 % beneden 455° C kokende vloeistof omvat.

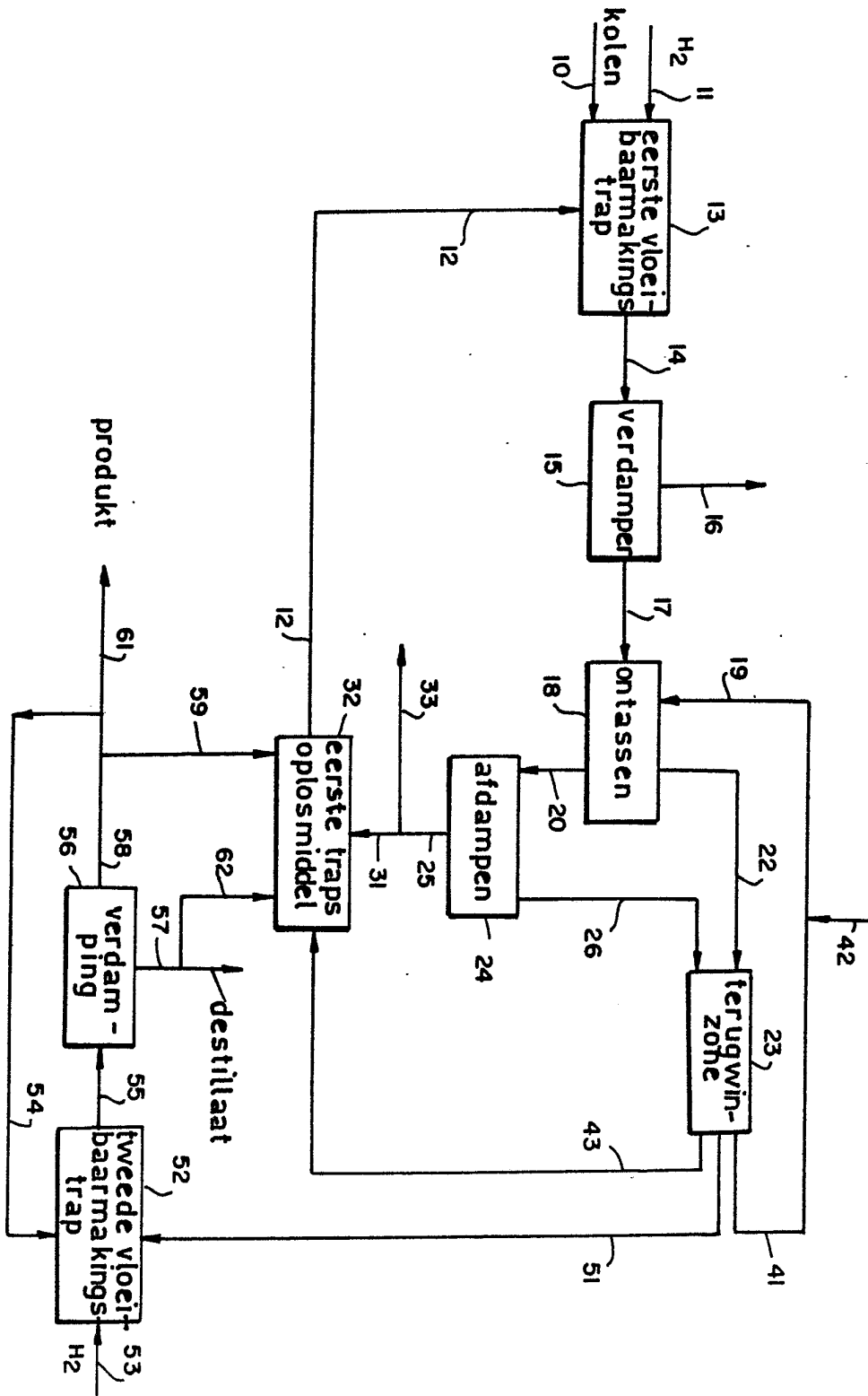
5 merk, dat de fractie van tenminste 25 % van het oplosmiddel voor het vloeibaar maken in de eerste trap die wordt verkregen uit het vloeibare effluent van de tweede trap bestaat uit zowel beneden als boven 455° C kokende vloeistof.

10 7. Werkwijze volgens conclusie 2, met het kenmerk, dat niet meer dan 40 % van het oplosmiddel voor het vloeibaar maken in de eerste trap wordt verkregen uit de verpompbare stroom van onoplosbaar materiaal.

15 8. Werkwijze volgens één der voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat het thermisch vloeibaar maken in de eerste trap plaatsvindt bij een uitlaattemperatuur van 440-470° C, een druk van 12,5 MPa tot 19 MPa en in afwezigheid van katalysator.

9. Werkwijze volgens conclusie 8, met het kenmerk, dat het vloeibaar maken in de tweede trap plaatsvindt in een borrelend bed met opwaartse stroming.

20



The Lummus Company
 Bloomsfield, New Jersey
 Verenigde Staten van Amerika

8201435