



Wirtschaftspatent

Erteilt gemäß § 5 Absatz 1 des Änderungsgesetzes zum Patentgesetz

ISSN 0433-6461 (11)

1580 36

Int.Cl.<sup>3</sup> 3(51) C 10 G 1/06

AMT FUER ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) WP C 10 G/ 2289 37G  
(31) P3013337.0

(22) 03.04.81  
(32) 05.04.80

(44) 22.12.82  
(33) DE

(71) siehe (73)  
(72) PEUKERT, ERNST, DR.-ING.; DD;  
(73) RHEINISCHE BRAUNKOHLLENWERKE AG., KOELN; DE;  
(74) PATENTANWALTSBUERO BERLIN, 1130 BERLIN, FRANKFURTER ALLEE 286

(54) VERFAHREN ZUR UMWANDLUNG VON KOHLE UND/ODER HOCHSIEDENDEM ERDOEL- ODER TEERRUECKSTAENDEN DURCH SPALTENDE DRUCKHYDRIERUNG

(57) Bei der spaltenden Druckhydrierung wird ein Gemisch aus gemahlener Kohle in einem asphaltarmen Öl und/oder hochsiedenden Erdoel- und oder Teerrückständen sowie einem hydrieraktiven Katalysator in das obere Ende eines Reaktionsgefäßes eingeführt. In einer oberen Wärmetauschzone strömt dem Gemisch wasserstoffhaltiges, auf Reaktionstemperatur befindliches Gas in einer solchen Menge entgegen, daß das Gemisch entsprechend aufgeheizt bzw. das Gas abgekühlt wird. Das am unteren Ende des Reaktionsgefäßes eingeführte wasserstoffhaltige Gas wird in direktem Wärmeaustausch mit dem auf Reaktionstemperatur befindlichen, aus der Hydrierzone kommenden, feststoffhaltigen Gemisch auf die Reaktionstemperatur aufgeheizt, wobei dieses Gemisch, in dem sich die Hauptmenge der Hydrierungsprodukte befinden, am unteren Ende des Reaktionsgefäßes abgezogen wird. In der oberen und in der unteren Zone des direkten Wärmeaustausches sind Böden für den Gegenstrom von Gas und Flüssigkeit in einer solchen Menge angebracht, dass ein ausreichendes Inberuehrungsbringen des wasserstoffhaltigen Gases mit dem flüssigen Gemisch gewährleistet ist. -Figur-

Verfahren zur Umwandlung von Kohle und/oder hochsiedenden Erdöl- oder Teerückständen durch spaltende Druckhydrierung

Anwendung der Erfindung:

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Umwandlung von Kohle und/oder hochsiedenden Erdöl- oder Teerückständen durch spaltende Druckhydrierung in einem bevorzugt senkrecht angeordneten, mit Zwischenböden versehenen Reaktionsraum unter Gegenstromführung des kohlenstoffhaltigen Materials und des wasserstoffhaltigen Gases.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen:

Die spaltende Druckhydrierung von z. B. Stein- oder Braunkohlen ist seit langer Zeit bekannt. Man behandelt im allgemeinen gegebenenfalls getrocknete und feingemahlene Kohle, mit einem schweren Öl zu einem Brei angerieben, zunächst in der sogenannten Sumpfphase bei hohen Drücken, bis zu etwa 700 bar, und hohen Temperaturen, z. B. 400-500° C, mit Wasserstoff. Das erhaltene Produkt wird z. B. zunächst in einem auf etwas unterhalb der Reaktionstemperatur gehaltenen Heißabscheider geführt, aus dem man ein Sumpfprodukt (Abschlamm) sowie heisse Gase und kohlenwasserstoffhaltige Dämpfe abzieht, die in gewünschter Weise, z. B. destillativ, aufgearbeitet werden.

Man arbeitet bei der Druckhydrierung in Gegenwart von Katalysatoren, die man im allgemeinen in feiner Form, z.B. aufgeschlämmt in dem Kohlebrei, in den Reaktionsraum einführt und mit dem Abschlamm aus dem Prozess entfernt. Man hat bereits in früherer Zeit vorgeschlagen, bei der Druckhydrierung von Kohle auch in Gegenwart von fest angeordneten Katalysatoren zu arbeiten (DRP 720824), wobei man den Wasserstoff im Gleich- oder Gegenstrom zu der Kohle führt.

Eine solche Hydrierung mit Festbett-Katalysatoren konnte sich jedoch nicht durchsetzen, da die Katalysatoren zu schnell ihre Aktivität verloren. In der Technik hat man daher nur mit im Kohlebrei suspendierten feinverteilten Katalysatoren, z. B. Eisenverbindungen, gearbeitet. Dabei stellte es sich heraus, dass nur leere Reaktoren, insbesondere solche ohne Quereinbauten, zufriedenstellend arbeiteten, da andernfalls sehr schnell Ablagerungen an den Einbauten auftraten, die zum Abstellen der Anlage zwingen konnten (Krönig, "Die katalytische Druckhydrierung von Kohlen, Teeren und Mineralölen", Springer Verlag 1950, S. 26). Ferner erwies sich eine Gleichstromführung von Kohlebrei und Wasserstoff am vorteilhaftesten, da die Einwirkung von Wasserstoff auf den frischen Brei besonders intensiv ist und somit infolge der positiven Wärmetönung der Reaktion die Eintrittstemperatur des Reaktors verhältnismässig niedrig gehalten werden konnte (l. c., S 31). Ausserdem war gefunden worden, dass bei der Vorerhitzung des Kohlebreis zweckmässig Wasserstoff zugegen sein soll, damit die Bildung von Polymeren bei der notwendigen Vorheizertemperatur, bis zu etwa 400° C, vermieden (l. c., S.28) und eine erste Hydrierung der Kohle erreicht wird, die in erheblichem Umfang bereits im Vorheizer verläuft (l. c., S. 39). Man hat daher bis in neuester Zeit die Kohlehydrierung in der Sumpffphase nur in der oben beschriebenen Art durchgeführt, auch bei neuen Versuchen mit Festbettkatalysatoren (DT-OS 2 224 364, DT-OS 2 715 625, DT-AS 2 654 635), obschon diese Verfahrensweise erhebliche Nachteile hat. Neben dem hohen apparativen Aufwand sind besonders störend der Umstand, dass infolge des Kohlebrei-Wasserstoff-Gleichstroms mit fallendem Wasserstoffpartikaldruck dieser nicht den Forderungen entspricht, wie sie angesichts des von Reaktor zu Reaktor schwieriger werdenden Kohleabbaus an sich zu stellen sind, so dass es zu einer unbefriedigenden Ausnutzung des Reaktionsraums kommt. Ferner ist der Wärmeaustausch zwischen den mit niedriger Temperatur eingeführten und mit hoher Temperatur aus dem Reaktionsraum austretenden Produkten nicht optimal, zumal die Wärme des Abschlamms nicht genutzt wird.

Hinzu kommt, dass die Röhrenbündel der üblichen Regeneratoren schnell verschmutzen, wodurch die Wärmedurchgangswerte stark absinken. Aus diesen Gründen wird zur Erreichung der für das Ingangkommen der Hydrierreaktionen erforderlichen Temperatur der Betrieb eines Vorheizers notwendig, der einen hohen Energieverbrauch aufweist.

Ziel der Erfindung:

Der Erfindung liegt unter anderem die Aufgabe zugrunde, die Durchführung der sogenannten Sumpfphasenhydrierung mit Hilfe eines Verfahrens zur Umwandlung von Kohle und/oder hochsiedenden Erdöl- oder Teerrückständen durch spal- tende Druckhydrierung bei Temperaturen von 400-500° C und unter Drücken von 80-700 bar, wobei man ein Gemisch aus in Kohlenwasserstofföle eingebrachter gemahlener Kohle oder hochsiedenden Erdöl- oder Teerückständen und einem Katalysator in Gegenwart von wasserstoffhaltigem Gas durch eine Hydrierzone leitet, zu verbessern, und zwar sowohl hinsichtlich des apparativen Aufwandes als auch des Energiebedarfes.

Darlegung des Wesens der Erfindung:

Zur Lösung dieser Aufgabe schlägt die Erfindung vor, dass man ein kohlenstoffhaltiges Gemisch aus feingemahlener, ggf. getrockneter Kohle in einem asphaltarmen Öl und/oder hochsiedenden Erdöl- und/oder Teerrückständen sowie einem in feinverteilter Form vorliegenden hydrieraktiven Katalysator mit einer Temperatur von 80 - 350° C am oberen Ende eines Reaktionsgefäßes zuführt,

das wasserstoffhaltige Gas teilweise mit einer Temperatur von 20-250° C am unteren Ende des Reaktionsgefäßes und teilweise als kaltes Gas in die auf eine Reaktionstemperatur von 400-500° C gehaltene in dem Reaktionsgefäß befindliche Hydrierzone zuführt und im Gegenstrom zu dem kohlenstoffhaltigen Gemisch leitet,

das kohlenstoffhaltige Gemisch nach seinem Eintritt in das Reaktionsgefäß im direkten Wärmeaustausch mit dem auf Re-

aktionstemperatur befindlichen, aus der Hydrierzone aufwärts strömenden wasserstoffhaltigen Gas auf die Reaktionstemperatur aufheizt und anschliessend das so gekühlte Gas am oberen Ende des Reaktionsgefässes abzieht,

das am unteren Ende des Reaktionsgefässes eingeführte wasserstoffhaltige Gas in direktem Wärmeaustausch mit dem auf Reaktionstemperatur befindlichen, aus der Hydrierzone kommenden feststoffhaltigen Gemisch auf die Reaktionstemperatur aufheizt und dieses Gemisch, in dem sich neben den Feststoffen die Hauptmenge der Hydrierungsprodukte befindet, am unteren Ende des Reaktionsgefässes abzieht,

wobei man in der oberen und der unteren Zone des direkten Wärmeaustausches Böden für den Gegenstrom von Gas und Flüssigkeit in einer solchen Zahl anbringt, dass ein ausreichendes Inberührungbringen des wasserstoffhaltigen Gases mit dem flüssigen Gemisch gewährleistet ist.

Als Ausgangsstoffe können alle Kohlearten, mit besonderem Vorteil Braunkohlen, gewählt werden. Die Kohlen werden im allgemeinen auf eine Korngrösse von unter etwa 5 mm gemahlen und, falls erforderlich, auf einen Wassergehalt von etwa 0,1 -12% getrocknet. Als Anreiböl zur Herstellung des Kohlenstoff und Katalysator enthaltenden Gemischs benutzt man vorteilhaft ein aus dem Verfahren stammendes Öl, z. B. ein Vakuumdestillat aus dem Sumpfprodukt eines hinter dem Hydrierreaktor angeordneten Abscheiders oder Mittel- und Schweröldestillate. Man kann selbstverständlich auch Fremdüle einsetzen. Der Asphaltgehalt des Anreiböls soll unter etwa 5 % liegen. Man wählt im allgemeinen im Gemisch ein Verhältnis von Kohle zu Anreiböl von etwa 1:3 bis 1:0,8, insbesondere 1:1,5 bis 1:1. Das Anreiben kann in bekannter Weise er-

folgen. Bei Wahl der Anreibkomponenten ist darauf zu achten, dass das Gemisch bei den Einführungstemperaturen in den Reaktor, die bei etwa 80-350° C, insbesondere 80-120° C, liegen sollen, noch ausreichend fließfähig ist. Weitere Ausgangsstoffe sind hochsiedende Erdöl- und/oder Teerrückstände, in die ebenfalls Katalysator eingebracht wurde.

Der Katalysator kann an beliebiger Stelle der Einsatzstoff-Zubereitung zugegeben werden, z. B. in Form einer Lösung. Als Katalysator können alle üblichen hydrier- bzw. spaltaktiven Verbindungen gewählt werden, wie sie z. B. aus dem Verfahren der Kohle- oder Ölhydrierung bekannt sind. Da im allgemeinen von einer Wiederverwendung des Katalysators Abstand genommen wird, wird man preiswerte Verbindungen einsetzen, z. B. Eisensalze, und zwar z. B. in Mengen von etwa 0,5 - 10%, bezogen auf die eingesetzte Reinkohle.

Die Einsatzgemische werden in das Reaktionsgefäß in üblicher Weise am oberen Ende eingeführt und gelangen in eine obere Wärmeaustauschzone. Hier strömt ihnen wasserstoffhaltiges, auf Reaktionstemperatur befindliches Gas in einer solchen Menge entgegen, dass das Gemisch entsprechend aufgeheizt bzw. das Gas abgekühlt wird. Die Reaktionstemperatur liegt im allgemeinen bei 400-500° C, insbesondere 470-480° C. Der Reaktionsraum wird auf einen Druck zwischen etwa 80 - 700, insbesondere 100 - 300 bar gehalten. Dabei wird der Druck so gewählt, dass der Hauptteil der Hydrierungsprodukte in flüssiger Form vorliegt und somit am unteren Ende des Reaktionsgefäßes zusammen mit den Feststoffen abgezogen werden kann.

Das dem am Kopf des Reaktionsgefäßes eintretenden kohlenstoffhaltigen Gemisch entgegengeführte Kreislaufgas ist mit in der Hydrierzone erzeugten Kohlenwasserstoffen gesättigt. Deren Hauptmenge, z. B. 80-85 %, kondensiert in dem relativ kalt entgegenströmenden kohlenhaltigen Gemisch.

Dabei wird das Kreislaufgas, z. B. auf etwa die Gemischeintrittstemperatur abgekühlt und am oberen Ende des Reaktionsgefäßes abgezogen. Es kann direkt wieder in dieses oder z. B. über einen Wärmeaustauscher in einen Flüssigproduktabscheider geführt werden. In dem Wärmeaustauscher kann das das Reaktionsgefäß verlassende Gas im indirekten Wärmeaustausch z. B. mit aus dem Flüssigproduktabscheider stammenden Kreislaufgas gekühlt werden, aus dem zuvor die in ihm befindlichen Kohlenwasserstoffe z. B. durch eine Ölwäsche entfernt wurden.

Das mit den kondensierten Kohlenwasserstoffen beladene Gemisch bewegt sich in dem Reaktionsgefäß in die Hydrierzone abwärts. Hierbei erfolgt der Kohlenstoffabbau unter positiver Wärmetönung, wobei durch Zuführung von Kaltgas die Reaktionstemperatur auf die gewünschte Höhe, z. B. 470 - 480° C, eingestellt wird. Bei dem Durchgang durch die Hydrierzone wird der Kohlenstoff in dem Gemisch je nach Einsatzprodukt bis zu 99 % abgebaut. Dies trifft insbesondere auch z. B. bei Braunkohlen zu. Die Verweilzeit des kohlenstoffhaltigen Gemischs bzw. der flüssigen Hydrierprodukte liegt bei etwa 15 - 120, vorzugsweise 30 - 60 Minuten. Dabei ist es ein Vorteil des erfindungsgemässen Verfahrens, dass im Gegensatz zu der Arbeitsweise eines üblichen Sumpfasphasenreaktors, bei dem die neugebildeten Kohlenwasserstoffe dampfförmig aus dem Verfahren abgeführt werden und sich so weitergehender Einwirkung des nur im flüssigen Gemisch wirksamen Katalysators entziehen, der überwiegende Teil der Kohlenwasserstoffe flüssig bleibt, wodurch die Hydrierung verbessert wird.

Das nicht für die Hydrierung verbrauchte wasserstoffhaltige Gas wird in einem Kreislaufgasstrom im Gegenstrom zu dem kohlenstoffhaltigen Gemisch am unteren Ende oder seitlich unter dem gewünschten Reaktionsdruck in das Reaktionsgefäß geführt. Sein Wasserstoffgehalt wird im allgemeinen über etwa 65 Vol.-%, insbesondere über etwa 75 Vol.-%, liegen. Man kann den Kreislaufgasstrom vorwärmen, z. B. im

tionsraums abgeführten Gasen und Dämpfen, z. B. auf Temperaturen bis zu ca. 250° C, insbesondere bis zu ca. 100° C. Die weitere Aufheizung des Kreislaufgasstromes auf die Reaktionstemperatur erfolgt dann in einer Wärmeaustauschzone im unteren Teil des Reaktionsgefässes, wobei die aus der Hydrierzone kommenden, auf Reaktionstemperatur befindlichen Produkte ihre Wärme auf das Gas übertragen. Die Menge des Kreislaufgasstroms wird vorteilhaft so gross gewählt, dass dieses in der unteren Wärmeaustauschzone unter entsprechender Kühlung der Produkte auf die gewünschte Reaktionstemperatur, z. B. 470 - 480° C, aufgeheizt wird. Das in die Hydrierzone eingeführte Kaltgas wird durch die Reaktionswärme auf die Reaktionstemperatur gebracht.

Der Wasserstoff, der den bei der Hydrierung verbrauchten sowie den mit den Produkten aus dem Reaktionsraum in gelöster Form entfernten Wasserstoff ersetzen soll, wird als sogenanntes "Frischgas", das vorteilhaft einen Wasserstoffgehalt von z. B. über 95 Vol.-% besitzt, dem Kreislaufgas zugesetzt oder auch in Form von Kaltgas an einer oder mehreren Stellen des Reaktors eingeführt. Die Menge des Kaltgases muss so gewählt werden, dass sie ausreicht, die bei der chemischen Umsetzung freiwerdende Wärme zu entfernen, soweit diese nicht mit den Produkten, die den Reaktionsraum verlassen, oder durch Abstrahlung abgeführt wird. Die somit zur beliebigen Verwendung verfügbare Wärme ist grösser als bei der bisher üblichen apparativen Anordnung einer Sumpfphase, bei der die abgestrahlte und daher nicht nutzbare Wärmemenge wegen der grösseren Anzahl der notwendigen Apparate, z. B. Generatoren, Kühler, heisser Leitungen, erheblich grösser ist als bei dem erfindungsgemässen Verfahren.

Die weitere Aufarbeitung der Umsetzungsprodukte wie auch der in ihnen enthaltenen Feststoffe erfolgt in bekannten und üblichen Arbeitsweisen. Auch bei der erfindungsgemässen Art der Hydrierung kann es vorteilhaft sein, neben dem Teil des Sumpfproduktes aus dem Abscheider oder auch bestimmter Ölfractionen, die als Anreiböl Verwendung finden, weitere



Mengen im Kreislauf in die Umsetzung zurückzuführen. Im allgemeinen ist dies aber nicht erforderlich.

Da auch eine Rückführung eines Teils des feststoffhaltigen Abschlamms, wie sie bei der üblichen Arbeitsweise in einer Sumpffphase vorgenommen wird, bei dem erfindungsgemässen Verfahren entfallen kann, und wegen der kurzen Verweilzeit der Feststoffe ist der Asphaltgehalt in dem abgeführten Produkt sehr niedrig und die in ihm befindlichen Feststoffe neigen nicht dazu, Verkrustungen oder unerwünschte körnige Ausfällungen, den sogenannten Kaviar, zu bilden, die sich sonst durch allmähliches Zusetzen von Reaktor und Leitungen sehr störend bemerkbar machen. Dadurch ist auch ein geringerer Druckabfall gegeben als z. B. bei der früher üblichen Sumpffphasenhydrierung.

Die erfindungsgemässe Kombination von Wärmeaustausch und Hydrierung im Gegenstrom gestattet eine besonders gute Ausnutzung des Reaktionsvolumens, d. h. höhere Durchsätze an Kohlenstoff als bisher möglich. Man kann zur Herstellung des kohlenstoffhaltigen Gemisches neben den genannten Ölen auch noch Anteile von niedriger siedenden Kohlenwasserstoffen, z. B. aus dem Benzinbereich, zusetzen. Dadurch kann die zugeführte Kohlenstoffmenge erhöht werden, da diese Kohlenwasserstoffe zumindest teilweise aus dem Reaktor mit dem Kreislaufgasstrom entfernt werden, so dass sie die Reaktionszone nicht wesentlich belasten.

Der für das erfindungsgemässe Verfahren benutzte Reaktor soll zumindest in den oben und unten im Reaktionsgefäss befindlichen Wärmeaustauschzonen Vorrichtungen besitzen, die eine gute Durchmischung der Reaktionsteilnehmer gewährleisten, aber auch dafür sorgen, dass nach der Durchmischung eine möglichst gute Trennung der flüssigen und gasförmigen Produkte erfolgt. Für diese Zwecke ist besonders der Einbau von Böden in den Reaktionsraum geeignet, während der von Füllkörpern sich nicht so gut bewährt hat. In einer bevorzugten Ausführungsform sollen die Böden abwechselnd sich gegenüberliegende, an der Wandung des Reaktors befindliche

Aussparungen besitzen und können zusätzlich noch in der verschiedensten Weise gelocht sein. Sie werden entweder waagrecht oder zur Aussparung hin schräg nach unten weisend angeordnet. In einer besonders vorteilhaften Ausführungsform erhalten sie an den Aussparungen nach unten gebogene Kanten, die zur Erhöhung der Durchmischung durchbrochen sein können, z. B. gezähnt sind. Es muss eine ausreichende Anzahl solcher Böden vorgesehen werden, insbesondere in den genannten Reaktionsräumen, in denen jeweils der Wärmeaustausch zwischen ab- und zugeführten Produkten stattfindet. Mit Vorteil kann man auch die Böden in der Hydrierzone, über diese verteilt oder in bestimmten Abschnitten, anbringen.

In den Aussparungen der Böden werden Gas und Flüssigkeit unter kräftiger Durchwirbelung gemischt und strömen dann an den Bodenflächen in z. B. horizontaler Gegenrichtung aneinander vorbei, um sich danach wieder zu trennen. Durch die nach unten gebogenen, gegebenenfalls durchbrochenen Kanten an den Aussparungen bilden sich unter den Böden Gasräume, die den beschriebenen Vorgang begünstigen. In einer besonders vorteilhaften Ausführungsform werden die Böden, insbesondere bei Reaktor-Durchmessern bis z. B. 1500 mm, in Gruppen, z. B. jeweils vier Böden oder mehr, angeordnet. Auf diese Weise wird bei guter Ausnutzung des Reaktionsraums eine praktisch vollständige Trennung von Gas und Flüssigkeit nach deren Durchmischung erreicht und ein Zurückströmen der Flüssigkeit vermieden. Bei grösseren Reaktor-Durchmessern genügen gegebenenfalls weniger Böden. Es kann vorteilhaft sein, das oberste Schikanenblech einer jeden Gruppe in der Hydrierzone mit mehreren Perforationen zu versehen, durch die das Gas austreten und zu der nächsten Schikanenblechgruppe aufsteigen kann. Durch die Anordnung der Böden in Gruppen wird der Reaktionsraum in Abschnitte unterteilt, in denen sich sprunghaft der Wasserstoffpartialdruck ändert, wodurch die Umsetzungen vorteilhaft beeinflusst werden.

Die Reaktoren können im übrigen die üblichen Vorrichtungen, z. B. zur Zu- und Abführung der Produkte, zur Temperaturmessung und -regelung, besitzen und auch aus den üblichen Werkstoffen gebaut sein. Während man sich bei der Durchführung der spaltenden Druckhydrierung nach den bekannten Verfahren im allgemeinen auf innere Reaktordurchmesser bis zu etwa 1500 mm beschränken muss, da andernfalls die Durchmischung nicht ausreichend war, können bei dem erfindungsgemässen Verfahren Reaktoren mit inneren Durchmessern von 3000 mm und mehr zum Einsatz kommen, da die erfindungsgemäss anzubringenden Einrichtungen auch bei diesen Abmessungen eine gute Durchmischung bewirken. Die Zuführung des Kreislaufgasstromes und der Kaltgase kann in bekannter Weise erfolgen.

Selbstverständlich kann man die erfindungsgemässen Gegenstrom-Reaktoren mit den bekannten, üblichen Gleichstrom-Reaktoren kombinieren oder auch mehrere Gegenstrom-Reaktoren hintereinander schalten. Dann wird man den Gegenstrom zwischen dem oberen Teil des ersten Reaktors und dem unteren Teil des letzten Reaktors erzeugen. Dies dürfte aber nur in Ausnahmefällen erforderlich werden, da die erfindungsgemäss betriebenen Reaktoren wegen der Möglichkeit, sie mit grösserem Durchmesser zu betreiben als die bisher verwendeten Reaktoren, wesentlich höhere Durchsätze zulassen, zumal der Druckabfall in dem Reaktor gering ist.

Ein ganz wesentlicher Vorteil des erfindungsgemässen Verfahrens ist es, dass der apparative Aufwand erheblich geringer ist als bei der in üblicher Weise benutzten Sumpphaseapparat. Diese umfasst getrennte Einrichtungen zum Vorheizen der Einsatzstoffe, zur Durchführung der Hydrierreaktion und zum Kühlen der erhaltenen Produkte. Dabei ist z. B. der Vorheizer besonders anfällig gegen Verschmutzungen, Korrosion und Erosion, wie dies auch die zwischen den Apparaturen befindlichen heissen Leitungen sind. Diese aufwendigen und störanfälligen Einrichtungen entfallen bei dem erfindungsgemässen Verfahren, da hier die Wärmeaustauscher und die Hydrierzone in einem Apparat zusammen-

gefasst sind. Dementsprechend ist z. B. der Aufwand für Montage und Reparatur verringert.

Weitere Vorteile sind eine verbesserte Ausnutzung des Reaktionsraums sowie erhebliche Einsparungen an Energie bei der Durchführung des erfindungsgemässen Verfahrens, da die sonst erforderliche aufwendige Vorheizung der Einsatzstoffe entfällt und auch die Wärme des Abschlamms, d. h. des am unteren Ende des Reaktionsgefässes abgeführten Produktgemisches, optimal genutzt wird. Hinzu kommt, dass wegen der Möglichkeit, gemäss der Erfindung den Hydrierreaktor sehr gross bauen zu können, an die Zusammenfassung mehrerer üblicher Sumpffasekammern gedacht werden kann, wodurch erhebliche wirtschaftliche Vorteile erzielt werden.

**Ausführungsbeispiel:**

In der Figur ist das erfindungsgemässe Verfahren beispielsweise im Prinzip dargestellt, wobei der Einfachheit halber auf die Darstellung der erforderlichen und üblichen Nebengeräte, z. B. Pumpen, Kompressoren, Wäschen, verzichtet wurde. Als Einsatzstoff wurde Kohle gewählt.

In den Reaktionsraum 1, der unter erhöhtem Druck steht, wird über Leitung 5 feingemahlene, nur noch geringe Wasseranteile enthaltende Kohle, zusammen mit feinverteiltem Katalysator in einer Schwerölfraction gemischt, mit relativ niedriger Temperatur eingeführt. Der Reaktionsraum ist mit Gruppen von waagrecht angeordneten Böden 2 ausgestattet, die abwechselnd an den sich gegenüberliegenden Wandungen Aussparungen 3 besitzen, die mit nach unten gebogenen Kanten 4 mit sägezahnartigen Aussparungen versehen sind. Dabei umfassen die obere und untere Gruppe mehr Böden als die im mittleren Reaktionsraum. Nach Wärmeaustausch in der oberen Gruppe, bei dem das kohlehaltige Gemisch durch im Gegenstrom geführtes heisses wasserstoffhaltiges Gas auf die Reaktions-

temperatur gebracht wird, strömt das Gemisch nach unten durch die der Durchmischung dienenden Bödengruppen, wobei die Hydrierung der Kohle stattfindet. Durch die Leitungen 9 wird kaltes, wasserstoffhaltiges Gas eingeführt, mit dessen Hilfe die Wärme, die bei der exothermen Hydrierreaktion entsteht, soweit abgeführt wird, dass die gewünschte Reaktionstemperatur im mittleren Reaktionsraum eingehalten wird. Die in diesen eingeführten wasserstoffhaltigen Gase, d. h. die Kaltgase sowie das über Leitung 7 am unteren Teil des Reaktionsraumes eingeleitete Kreislaufgas, verlassen den Reaktionsraum über Leitung 8. Am Kopf des Reaktionsgefäßes wird ein von flüssigen Produkten freier Raum 14 eingestellt. Aus der Hydrierzone tritt das den Hauptteil der Hydrierprodukte enthaltende Gemisch in die unterste Boden- gruppe, die ebenfalls als Wärmeaustauscher dient. Hier wird die Wärme des auf Reaktionstemperatur befindlichen Gemischs auf das über Leitung 7 zugeführte wasserstoffhaltige Kreislaufgas übertragen, das vorher im indirekten Wärmeaus- tausch in dem Wärmeaustauscher 10 vorgewärmt wurde. Nach entsprechender Abkühlung wird das Gemisch über Leitung 6 aus dem Reaktionsraum abgezogen und einer (nicht gezeigten) Aufarbeitung zugeführt. Die über Leitung 8 am oberen Ende des Reaktionsraums abgezogenen Gase, die in der oberen Boden- gruppe auf eine niedrige Temperatur gebracht wurden und Koh- lenwasserstoffdämpfe mit sich führen, gelangen nach Durch- laufen des Wärmeaustauschers 10, in dem sie ihre Wärme in- direkt auf das Kreislaufgas abgeben, in den Abscheider 11, aus dem die kondensierten Kohlenwasserstoffe über Leitung 12 abgezogen werden. Über Leitungen 13 oder 13a kann dem über Leitung 7 geführten Kreislaufgas, gegebenenfalls nach dessen (nicht gezeigter) Wäsche, Frischwasserstoff zugesetzt werden.

Erfindungsanspruch:

1. Verfahren zur Umwandlung von Kohle und/oder hochsiedenden Erdöl- oder Teerrückständen durch spaltende Druckhydrierung bei Temperaturen von 400 - 500° C und unter Drücken von 80 - 700 bar, wobei man ein Gemisch aus in Kohlenwasserstofföle eingebrachter gemahlener Kohle oder hochsiedenden Erdöl- oder Teerrückständen und einem Katalysator in Gegenwart von wasserstoffhaltigem Gas durch eine Hydrierzone leitet, dadurch gekennzeichnet, dass man ein kohlenstoffhaltiges Gemisch aus feingemahlener, gegebenenfalls getrockneter Kohle in einem asphaltarmen Öl und/oder hochsiedenden Erdöl- und/oder Teerrückständen sowie einem in feinverteilter Form vorliegenden hydrieraktiven Katalysator mit einer Temperatur von 80 - 350° C am oberen Ende eines Reaktionsgefäßes zuführt,

das wasserstoffhaltige Gas teilweise mit einer Temperatur von 20 - 250° C am unteren Ende des Reaktionsgefäßes und teilweise als kaltes Gas in die auf eine Reaktionstemperatur von 400 - 500° C gehaltene in dem Reaktionsgefäß befindliche Hydrierzone zuführt und im Gegenstrom zu dem kohlenstoffhaltigen Gemisch leitet,

das kohlenstoffhaltige Gemisch nach seinem Eintritt in das Reaktionsgefäß im direkten Wärmeaustausch mit dem auf Reaktionstemperatur befindlichen, aus der Hydrierzone aufwärts strömenden wasserstoffhaltigen Gas auf die Reaktionstemperatur aufheizt und anschliessend das so gekühlte Gas am oberen Ende des Reaktionsgefäßes abzieht,

das am unteren Ende des Reaktionsgefäßes eingeführte wasserstoffhaltige Gas in direktem Wärmeaustausch mit dem auf Reaktionstemperatur befindlichen, aus der Hydrierzone kommenden feststoffhaltigen Gemisch auf die Reaktionstemperatur aufheizt und dieses Gemisch, in dem sich neben den Feststoffen die Hauptmenge der Hydrierungsprodukte befindet, am unteren Ende des Reaktionsgefäßes abzieht,

wobei man in der oberen und der unteren Zone des direkten Wärmeaustausches Böden für den Gegenstrom von Gas und Flüssigkeit in einer solchen Zahl anbringt, dass ein ausreichendes Inberührungbringen des wasserstoffhaltigen Gases mit dem flüssigen Gemisch gewährleistet ist.

2. Verfahren nach Punkt 1, dadurch gekennzeichnet, dass man die Verweilzeit des kohlenstoffhaltigen Gemisch in der Hydrierzone auf 15 bis 120, vorzugsweise 30 bis 60 Minuten einstellt.

3. Verfahren nach Punkt 1 - 2, dadurch gekennzeichnet, dass man das das Reaktionsgefäß verlassende wasserstoffhaltige Gas im indirekten Wärmeaustausch zur Aufheizung des Kreislaufgases und/oder Frischwasserstoffes nutzt.

4. Verfahren nach Punkt 1 - 3, dadurch gekennzeichnet, dass man Böden mit abwechselnd sich gegenüberliegenden, an der Wandung des Reaktionsgefäßes befindlichen Aussparungen anbringt.

5. Verfahren nach Punkt 1 - 4, dadurch gekennzeichnet, dass man an den Aussparungen der Böden nach unten gebogene durchbrochene Kanten anbringt.

6. Verfahren nach Punkt 1 - 5, dadurch gekennzeichnet, dass man durchlochte Böden anbringt.

7. Verfahren nach Punkt 1 - 6, dadurch gekennzeichnet, dass man auch in der Hydrierzone Böden anbringt.

8. Verfahren nach Punkt 1 - 7, dadurch gekennzeichnet, dass man vier oder mehr Böden in Gruppen zusammengefasst anbringt.

