

⑲



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

⑪

Veröffentlichungsnummer: **0 173 107
B1**

⑫

EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

④⑤

Veröffentlichungstag der Patentschrift:
01.02.89

⑤①

Int. Cl.⁴: **C10G 1/06**

②①

Anmeldenummer: **85109669.3**

②②

Anmeldetag: **01.08.85**

⑤④

Verfahren zur Herstellung von Reformerfeed und Heizöl oder Diesel aus Kohle.

③⑩

Priorität: **04.08.84 DE 3428783**
04.05.85 DE 3516084

④③

Veröffentlichungstag der Anmeldung:
05.03.86 Patentblatt 86/10

④⑤

Bekanntmachung des Hinweises auf die Patenterteilung:
01.02.89 Patentblatt 89/5

⑧④

Benannte Vertragsstaaten:
BE DE FR GB NL

⑤⑥

Entgegenhaltungen:
US-A- 4 045 328
US-A- 4 048 054
US-A- 4 222 844

⑦③

Patentinhaber: **VEBA OEL Entwicklungs-Gesellschaft
mbH, Alexander-von-Humboldt-Strasse,
D-4650 Gelsenkirchen 2(DE)**

⑦②

Erfinder: **Döhler, Werner, Dr., Im Giesenfeld 8,
D-4370 Marl(DE)**
Erfinder: **Merz, Ludwig, Dr., Klausener Strasse 18,
D-4350 Recklinghausen(DE)**
Erfinder: **Frohnert, Heinz, Horster Strasse 532,
D-4250 Bottrop(DE)**
Erfinder: **Uckermann, Bernd, Silberhecke 13,
D-4600 Dortmund(DE)**
Erfinder: **Graeser, Ulrich, Dr.,
Friedrich-Ludwig-Jahn-Strasse 5, D-4358 Haltern(DE)**
Erfinder: **Jankowski, Alfons, Dr., Rüttelskamp 12,
D-4300 Essen 1(DE)**
Erfinder: **Wolowski, Eckard, Dr., Kettwiger Strasse 11,
D-4330 Mülheim-Ruhr(DE)**
Erfinder: **Tamm, Hans-Friedrich, Dürerstrasse 5,
D-4350 Recklinghausen(DE)**
Erfinder: **Wilczok, Norbert, Fischenbeck 2 A,
D-4330 Mülheim(DE)**

⑦④

Vertreter: **Lindner, Wolfgang, Dr.,
Alexander-von-Humboldt-Strasse Postfach 20 10 45,
D-4650 Gelsenkirchen(DE)**

EP 0 173 107 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).

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Reformfeed und Heizöl oder Diesel aus Kohle in einer Sumpfphasenhydrierung und einer anschließenden katalytischen Gasphasenhydrierung der im Oberbegriff des Patentanspruches 1 angegebenen Art.

In der DE-PS 900 214 wird beschrieben, wie in einem Verfahren zur Entfernung von Fremdgasen aus dem Kreislaufgas der katalytischen Höchstdruckhydrierung von Kohlen, Pech, Teeren, Ölen, Kohleextrakten oder ähnlichen Produkten, bestehend aus Sumpf- und Gasphasesystem, ohne Zuhilfenahme einer besonderen Waschanlage, das flüssige Reaktionsprodukt der Gasphasekammern unmittelbar im Gasphase-Kammersystem als Waschflüssigkeit für den durch gasförmige Kohlenwasserstoffe, Stickstoff und Kohlenmonoxid verunreinigten Gaskreislauf der Sumpfphasekammersysteme benutzt wird, wobei der Sumpf- und Gasphasekreislauf druck- und saugseitig über ein Umlaufpumpensystem verbunden sind und der gesamte Wasserstoff in den gemeinsamen Kreislauf gegeben wird. In einer besonderen Ausgestaltung dieses Verfahrens wird der gesamte Wasserstoff den Gasphasekammern zugeführt und die Differenz zwischen dem gesamten Gasbedarf der Gasphasekammern und dem zugegebenen Wasserstoff der Druckseite des gemeinsamen Kreislaufes entnommen und somit in der Gasphase von den Verunreinigungen gewaschen.

Dieses Verfahren spart zwar eine zusätzliche Waschanlage zur Auswaschung der Kreislaufgasverunreinigung ein, kann aber wegen des Arbeitens mit Anteilen des Kreislaufwasserstoffgases aus der Sumpfphasenhydrierung in der Gasphasenhydrierung keine optimale Selektivität der raffinierenden Hydrierung erreichen und bedingt sehr hohe Wasserstoffdrucke und einen hohen Wasserstoffverbrauch.

Aufgabe der Erfindung ist es, gegenüber dem bekannten Verfahren, das bei Wasserstoffpartialdrucken von über 300 bar in der Gasphasenhydrierung arbeitet, eine Senkung der in der Gasphasenhydrierung erforderlichen Betriebsdrücke auf etwa 50–200 bar zu ermöglichen und den Wasserstoffverbrauch deutlich zu vermindern.

Gemäß der Erfindung wird diese Aufgabe dadurch gelöst, daß bei dem Verfahren der eingangs angegebenen Art die in dem Kennzeichen des Patentanspruches 1 angegebenen Merkmale verwirklicht sind.

Es wurde erkannt, daß das in der Gasphasenhydrierung abgearbeitete Hydriergas ein für die Sumpfphasenhydrierung in quantitativer als auch qualitativer Hinsicht geeignetes Hydriergas darstellt, welches insbesondere von den Verunreinigungen Kohlenmonoxid, Kohlendioxid, aber auch Schwefelwasserstoff und Ammoniak weitgehend frei ist. Die hierdurch zur Verfügung gestellte Wasserstoffmenge reicht aus, um den theoretisch notwendigen Wasserstoffverbrauch in der Sumpfphasenhydrierung zu decken.

Gemäß Patentanspruch 2 wird das erfindungsgemäße Verfahren dadurch weiter ausgestaltet, daß der Gesamtdruck in der Gasphasenhydrierung niedriger ausgelegt ist als der Druck in der Sumpfphasenhydrierung.

Eine weitere Aufgabe der Erfindung ist es, bei einem Verfahren nach dem Oberbegriff des Patentanspruches 1 die Schaltung der Gaskreisläufe so zu gestalten, daß eine Regelung der Temperatur im Gasphasereaktor möglich ist.

Gemäß der Erfindung wird diese weitere Aufgabe dadurch gelöst, daß der Gesamtfrischwasserstoffstrom aufgeteilt wird in eine Teilmenge, die dem Gasphasen-Feed vor Eintritt in die Gasphasenhydrierung zugeführt und die restliche Teilmenge, die als Quenchgas zur Temperaturregelung in die Gasphasenhydrierung geführt wird (Patentanspruch 3).

Bei höheren Qualitätsanforderungen an die Produkte, die mit einem höheren Wasserstoffumsatz und damit größerer Exothermie in der Gasphasenhydrierung verbunden sind, kann gemäß den Patentansprüchen 4 und 5

a) zusätzlich aus dem Sumpfphasekreislauf Quenchgas in den Gasphasereaktor eingespeist und

b) zwecks Rückführung eines Teils des abgearbeiteten Hydriergases und Einspeisung als Quenchgas in den Gasphasereaktor bzw. Zuführung zum Gasphasefeed die Gasphase mit einem eigenen Gaskreislauf ausgestattet werden.

Nach den Patentansprüchen 6 und 7 liegt der Druck in der Gasphase wenigstens um etwa 50 bar niedriger als der in der Sumpfphase angewandte Druck bzw. wird die Sumpfphase bei einem Druck von 100 bis 400 bar und die Gasphase bei einem Druck von 50 bis 200 bar betrieben.

Die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Verfügung gestellte integrierte Kohleölraffination zeichnet sich insbesondere durch eine spezielle Schaltung der Gaskreisläufe für Gasphase und Sumpfphase aus, indem ein Kreislaufgassystem nur noch in der Sumpfphase bzw. zusätzlich in der Gasphase, aber getrennt von der Sumpfphase vorgesehen und Frischwasserstoff nur der Gasphasenhydrierung zugeführt wird, darüber hinaus durch eine wesentliche Verminderung des erforderlichen Druckes in der Gasphasenhydrierung gegenüber dem bekannten Verfahren.

Für die Herstellung und Verarbeitung von 1 t Kohleöl werden je nach Kohlesorte beispielsweise 2500 m³ Wasserstoff benötigt. Bei einem Mengenverhältnis von Wasserstoff zu Öl von 2500 m³/t Kohleöl in der Gasphase und einem chemischen Wasserstoffverbrauch von beispielsweise 500 m³/t Kohleöl können somit 2000 m³ Wasserstoff, der von den Verunreinigungen Kohlenmonoxid und Kohlendioxid, aber auch Schwefelwasserstoff, Ammoniak und dergleichen weitgehend frei ist, zur Sumpfphasenhydrierung abgegeben werden, so daß hierdurch eine Wasserstoffmenge zur Verfügung gestellt wird, die noch über dem theoretisch notwendigen Wasserstoffverbrauch der Sumpfphasenhydrierung liegt.

Der in das erfindungsgemäße Verfahren eingesetzte reine Hochdruckwasserstoff, der die bei der

gekoppelten Weiterverarbeitung des Kohleöls enthaltenen Störkomponenten H_2O , NH_3 , H_2S , CO , CO_2 und die ebenfalls den Wasserstoffpartialdruck reduzierenden C_1 - bis C_4 -Gase nicht enthält, bewirkt, daß der Katalysator in der Gasphasenhydrierung wesentlich selektiver arbeiten kann. Die erfindungsgemäß in der Stufe der Gasphasenhydrierung ermöglichte Druckreduzierung im Vergleich zu dem Verfahren der Weiterverarbeitung des Kohleöls nach dem Stand der Technik hat günstige Auswirkungen auf den erforderlichen technischen Aufwand und somit auf den Investitionskostenbedarf. Der erniedrigte Druck führt auch zu einer geringeren Durchhydrierung des Kohleöls. Die Abwesenheit der Störkomponenten CO und CO_2 bedingt einen verringerten Wasserstoffverbrauch, da diese zu Kohlenwasserstoffen hydriert würden.

Das nach dem erfindungsgemäßen Verfahren erhaltene Leichtöl hat die Reformfeedqualität erreicht und besitzt nach Reformierung hervorragende motorische Eigenschaften wie z. B. eine hohe Research Oktanzahl sowie eine hohe Motoroktanzahl. Das Mittelöl hat die Qualität eines Heizöls oder Dieselmotortreibstoffes erfüllt.

Das Mengenverhältnis von Wasserstoff zu Kohleöl bei der Zugabe des in die Gasphasenhydrierung eingesetzten Frischwasserstoffes liegt bei 1000 bis 5000, vorzugsweise bei 1500 bis 3000 m^3/t Kohleöl (Patentanspruch 8).

Der Abstrom der Gasphasenhydrierung wird gemäß Patentanspruch 9 energie günstig durch Wärmetausch mit dem entgegenkommenden der Gasphasenhydrierung unterworfenen Kohleöl abgekühlt, wobei eine entsprechende Aufheizung des einzusetzenden Kohleöls stattfindet.

Die Betriebstemperatur kann auch durch eine teilweise anderweitige Abführung der Hydrierwärme und eine Regulierung der Aufheizung des Frischwasserstoffes und des Kohleöls konstant gehalten werden.

Nach Patentanspruch 10 liegt eine weitere vorteilhafte Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens darin, den Abstrom der Sumpfpasenhydrierung nach Ausschleusung der rückstandshaltigen Fraktion durch Wärmetausch mit der eingesetzten Maische abzukühlen, nach Abtrennung der als Anmaischöl dienenden Fraktion weiter abzukühlen, wobei die Ausschleusung eines insbesondere Ammoniak und Schwefelwasserstoff enthaltenden Abwassers vorgenommen wird und das neben hauptsächlich Wasserstoff im wesentlichen Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und flüchtige Kohlenwasserstoffe enthaltende Kreislaufgas bei etwa $50^\circ C$ bis Raumtemperatur unter Systemdruck oder auch nach Entspannen einer Ölwäsche zu unterziehen.

Um gelöste Gase aus dem Kohleöl noch weitergehend zu entfernen, kann nach Anspruch 11 die als Kohleöl anfallende flüssige Fraktion vor Zuführung in die Gasphasenhydrierung weiter entspannt und von den anfallenden gasförmigen Bestandteilen getrennt werden, wonach sie ggf. wieder auf den für die Gasphasenhydrierung erforderlichen Druck gebracht wird.

Das Kreislaufgas der Sumpfpfase wird nach Patentanspruch 12 in einer energie günstigen Fahrweise zusammen mit der Maische durch Wärmetausch mit dem nach Ausschleusung der rückstandshaltigen Fraktion erhaltenen Abstrom aus der Sumpfpasenhydrierung vorgeheizt.

Dadurch, daß die Gasphasenhydrierung mit Frischwasserstoff betrieben wird, ist eine erhebliche Absenkung des Verfahrensdruckes ermöglicht worden. Das sogenannte Abgas aus der Gasphasenhydrierung deckt den gesamten Wasserstoffbedarf der Sumpfpasenhydrierung.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird anhand eines Beispiels und unter Bezugnahme auf die Figur 1 der Zeichnung weiter erläutert.

0,50 t des im Prozeß erzeugten Kohleöls werden über Leitung 1 nach Erhitzen durch Wärmetausch in Wärmetauscher 2 mit 1250 m^3 Frischwasserstoff über einen Spitzenerhitzer 4 und über Leitung 5 über den im Gasphasenreaktor 6 fest angeordneten Gasphasenkatalysator geleitet. Der Gasphasenkatalysator ist ein handelsüblicher Raffinationskontakt auf Basis Ni-Mo-Aluminiumoxid.

Der Abstrom der Gasphasenhydrierung von Gasphasereaktor 6 wird über Leitung 3 in Wärmetauscher 2 abgekühlt. In einem Hochdruckabscheider 7 werden 0,49 t eines über eine Entspannungs Vorrichtung sowie Leitung 8 abgeführten Raffinats, das destillativ weiter in ein Leichtöl, das als Reformfeed, Leitung 9, dient und ein Heizöl oder in Diesel, Leitung 10, aufgetrennt wird, abgezogen. Über Leitung 11 wird ein Abwasser ausgeschleust und es werden 1000 m^3 eines über Leitung 12 geführten gasförmig verbleibenden Anteils abgetrennt, der nach Aufkomprimieren in Kompressor 13 einem in Leitung 14 geführten Kreislaufgasstrom zugegeben wird.

Das Kreislaufgas wird über eine entsprechende Kompressionsstufe, Kompressor 15, der Sumpfpasenhydrierung zugeführt.

Die aus gemahlener Kohle mit einer aus dem Abstrom der Sumpfpasenhydrierung abgezweigten Fraktion hergestellte Maische wird nach Kompression mittels Hochdruckpumpe 16, und nach Vereinigung mit dem aufkomprimierten Kreislaufgas über Leitung 17 und Wärmetauscher 18 im Wärmetausch mit dem rückstandsfreien Abstrom der Sumpfpasenhydrierung in einem Ofen 19 weiter erhitzt und der Sumpfpasenhydrierung in Reaktor 20 zugeführt. Anschließend durchläuft das den Sumpfpasereaktor 20 verlassende Produkt einen Heißabscheider 21, aus dem ein feststoffhaltiger Strom über Leitung 22 ausgeschleust wird, der weiter aufgearbeitet wird. Aus den über Kopf im Heißabscheider 21 abgehenden feststofffreien Produkten wird nach Abkühlung in Wärmetauscher 18 durch die zugeführte Maische aus einem Zwischenabscheider 23 die als Anmaischöl dienende Fraktion, Leitung 24, ausgeschleust. Über einen Kühler 25 wird weiter auf etwa $50^\circ C$ bis Raumtemperatur abgekühlt und in einer Trennvorrichtung 26 in ein Abwasser, Leitung 27, einen gasförmigen Strom, Leitung 28, der über einen Gaswäscher 29 unter Ausschleusung eines Abgases, Leitung 30, zum Kreislaufgas, Strom 14, gegeben wird und erzeugtes Kohleöl aufgetrennt, das nach partieller Entspannung über ein

Drosselventil und Leitung 1, wie oben angegeben, der Gasphasenhydrierung zugeführt wird.

Eine schematische Darstellung einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit

31 – Quenchgasleitung vom Sumpfpfasegas-Kreislauf zum Gasphasereaktor

32 – Rückführleitung des abgearbeiteten Hydriergases der Gasphase

33 – Kompressor des Gaskreislaufes der Gasphase

34 – Quenchgasleitung Gasphase

35 – Frischwasserstoff zur Gasphasenhydrierung

ist in Figur 2 der Zeichnung gegeben. Die Beschreibung der in der Figur 2 dargestellten Verfahrensführung entspricht der Beschreibung von Figur 1 mit Ausnahme der angegebenen zusätzlichen Elemente mit den Bezugszeichen 31, 32, 33, 34 und 35.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Reformfeed und Heizöl oder Diesel aus Kohle bei erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur bestehend aus einer Sumpfpasenhydrierung (20) und einer angekoppelten Gasphasenhydrierung (6), wobei gemahlene Kohle, ggf. unter Zusatz von katalytisch wirksamen Substanzen, mit einem Anmaischöl angemaischt und zunächst der Sumpfpasenhydrierung (20) unterzogen wird und aus dem Abstrom der Sumpfpasenhydrierung (20) eine feststoffhaltige Rückstandsfraktion (22) ausgeschleust wird, die rückstandsfreien flüchtigen Produkte abgekühlt, ggf. von einer als Anmaischöl dienenden Fraktion (24) abgetrennt und der Gasphasenhydrierung (6) unterzogen werden, dadurch gekennzeichnet, daß der Gesamtwasserstoffbedarf von Sumpf- und Gasphasenhydrierung zunächst in die Gasphasenhydrierung (6) als Frischwasserstoff (5), der weitgehend frei von den in einem Kreislaufgassystem der Kohlehydrierung enthaltenen Störkomponenten H_2O , NH_3 , H_2S , CO , CO_2 und C_1 - bis C_4 -Gase ist, eingesetzt wird und daß das hauptsächlich nichtumgesetzten Wasserstoff enthaltende Abgas (12) in das Kreislaufgassystem (14) der Sumpfpasenhydrierung (20) gegeben wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Frischwasserstoff (5), zusammen mit einer als Kohleöl in der Sumpfpasenhydrierung angefallenen Fraktion (1) erhitzt, in die Gasphasenhydrierung (6), bei einem Mengenverhältnis von Wasserstoff zu Kohleöl von mindestens entsprechend dem Gesamtwasserstoffbedarf in Sumpf- und Gasphase, wobei der Gesamtdruck in der Gasphasenhydrierung (6) niedriger als der Druck in der Sumpfpasenhydrierung (20) ist, eingesetzt wird, der Abstrom der Gasphasenhydrierung (6) unter Druck abgekühlt wird, ein Raffinat (8), das weiter, beispielsweise destillativ, in Reformfeed (9) und Heizöl oder Diesel (10) aufgetrennt wird, sowie ein Abwasser (11) abgetrennt werden und der gasförmig

verbleibende Anteil nach Zwischenkomprimieren auf das Druckniveau der Sumpfpasenhydrierung (20) zu dem Kreislaufgas der Sumpfpasenhydrierung (20) gegeben wird, welches nach Ausschleusen eines für die Aufrechterhaltung eines ausreichenden Wasserstoffpartialdruckes genügenden Abgasanteils (30), ggf. zusammen mit der Maische, weiter erhitzt und der Sumpfpasenhydrierung (20) zugeführt wird und daß nach weiterer Abkühlung des rückstandsfreien Sumpfpasenproduktes auf etwa 50°C bis Raumtemperatur unter Ausschleusung eines u. a. Ammoniak und Schwefelwasserstoff enthaltenden Abwassers (27) die als Kohleöl anfallende flüssige Fraktion (1), ggf. nach partieller Entspannung, und nach Erhitzen mit dem Frischwasserstoff (5) in die Gasphasenhydrierung (6) geführt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Gesamt-Frischwasserstoffstrom aufgeteilt wird in eine Teilmenge, die dem Gasphasen-Feed vor Eintritt in die Gasphasenhydrierung (6) zugeführt und die restliche Teilmenge, die als Quenchgas (34) zur Temperaturregelung in die Gasphasenhydrierung (6) geführt wird.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich aus dem Kreislaufgas der Sumpfpasenhydrierung Quenchgas (31) in die Gasphasenhydrierung (6) eingespeist wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß zur Rückführung eines Teils des abgearbeiteten Hydriergases und Einspeisung als Quenchgas (32) in die Gasphasenhydrierung (6) bzw. Zuführung zum Gasphasen-Feed die Gasphasenhydrierung (6) mit einem eigenen Gaskreislauf ausgestattet wird.

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Gasphasenhydrierung (6) mit Frischwasserstoff bei einem wenigstens um 50 bar niedrigeren Druck als die Sumpfpasenhydrierung (20) abläuft.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Sumpfpasenhydrierung (20) bei einem Druck von 100 bis 400 bar und die Gasphasenhydrierung (6) bei einem Druck von 50 bis 200 bar durchgeführt wird.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß in der Gasphasenhydrierung (6) bei einem Mengenverhältnis von Wasserstoff zu Kohleöl von 1000 bis 5000, vorzugsweise 1500 bis 3000 m^3/t Kohleöl gearbeitet wird.

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß der Abstrom (3) der Gasphasenhydrierung (6) durch Wärmetausch mit dem der Gasphasenhydrierung (6) zugeführten Kohleöl (1) abgekühlt wird.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß nach Ausschleusung der rückstandshaltigen Fraktion (22) aus dem Abstrom der Sumpfpasenhydrierung (20) und Ausschleusung nach weiterer Abkühlung des insbesondere Ammoniak und Schwefelwasserstoff enthaltenden Abwassers (27), das neben hauptsächlich Wasserstoff insbesondere Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und flüchtige Kohlenwasserstoffe enthalten-

de Kreislaufgas (28) unter Systemdruck oder auch nach Entspannen einer Ölwäsche (29) unterzogen wird.

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die als Kohleöl anfallende flüssige Fraktion (1) zur Zuführung in die Gasphasenhydrierung (6) zur noch weitergehenden Entfernung gelöster Gase weiter entspannt und von den anfallenden gasförmigen Bestandteilen getrennt wird, wonach sie ggf. wieder auf den für die Gasphasenhydrierung (6) erforderlichen Druck gebracht wird.

12. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß das Kreislaufgas der Sumpffphase (14) zusammen mit der Maische durch Wärmetausch mit dem nach Ausschleusung des Rückstandes erhaltenen Abstrom aus der Sumpffphasenhydrierung aufgeheizt wird.

Claims

1. Process for the production of reformer feed and heating oil or diesel oil from coal at increased pressure and increased temperature comprising a liquid phase hydrogenation stage (20) and a connected gas-phase hydrogenation stage (6), whereby pulverised coal, possibly with addition of catalytically active substances, is slurried with a slurrying oil and is first subjected to liquid-phase hydrogenation (20) and from the discharge of the liquid-phase hydrogenation stage (20) a solids-containing residue fraction (22) is separated out, the residue-free volatile products are cooled, possibly separated from a fraction (24) serving as a slurrying oil, and subjected to gas-phase hydrogenation (6), characterised in that the total hydrogen required for liquid- and gas-phase hydrogenation is initially introduced as fresh hydrogen (5) into the gas-phase hydrogenation stage (6), said fresh hydrogen being largely free of the contaminants H_2O , NH_3 , H_2S , CO , CO_2 and C_1 to C_4 gases contained in a circulating gas system for coal hydrogenation, and in that the waste-gas (12) containing mainly non-converted hydrogen is fed to the circulating gas system (14) of the liquid-phase hydrogenation system (20).

2. Process according to claim 1, characterised in that the fresh hydrogen (5) is heated together with a fraction (1) obtained as coal-oil during liquid-phase hydrogenation, fed to the gas phase hydrogenation stage (6) at a ratio of hydrogen to coal-oil at least corresponding to the total hydrogen required in the liquid- and gas-phase, whereby the total pressure in gas-phase hydrogenation stage (6) is lower than the pressure in liquid-phase hydrogenation stage (20), the discharge from gas-phase hydrogenation (6) is cooled subject to pressure, a raffinate (8), which is further separated, for example by distillation, into reformer feed (9) and heating oil or diesel oil (10), as well as an effluent (11) are separated, and the gaseous residue is, after intermediate compression to the pressure level of liquid-phase hydrogenation (20), introduced into the circulating gas of the liquid-phase hydrogenation (20), said gas being further heated, after separating out a waste-gas portion (30) sufficient for maintaining an adequate hy-

drogen partial pressure, possibly together with the slurry, and fed to the liquid-phase hydrogenation stage (20), and in that after further cooling of the residue-free liquid-phase product to about $50^\circ C$ to room temperature, while separating out an effluent (27) containing, inter alia, ammonia and hydrogen sulfide, the liquid fraction (1) obtained as coal-oil is, possibly after partial pressure reduction and after heating with the aid of fresh hydrogen (5), introduced into the gas-phase hydrogenation stage (6).

3. Process according to claim 1 or 2, characterised in that the total fresh hydrogen flow is separated into a partial amount introduced into the gas-phase feed prior to entry into the gas-phase hydrogenation stage (6), and the residual partial amount fed as quench gas (34) into the gas-phase hydrogenation stage (6) with a view to regulating the temperature.

4. Process according to any of claims 1 to 3, characterised in that quench gas (31) from the circulating gas of the liquid-phase hydrogenation system is, additionally, fed to gas-phase hydrogenation stage (6).

5. Process according to any of claims 1 to 4, characterised in that, with a view to recycling a part of the waste hydrogenation gas and feeding it as quench gas (32) to gas-phase hydrogenation stage (6) or introducing it into the gas-phase feed, gas-phase hydrogenation system (6) is provided with its own gas circuit.

6. Process according to any of claims 1 to 5, characterised in that gas-phase hydrogenation (6) is effected using fresh hydrogen and a pressure at least 50 bars lower than liquid-phase hydrogenation (20).

7. Process according to any of claims 1 to 6, characterised in that the liquid-phase hydrogenation (20) is effected at a pressure of 100 to 400 bars, and the gas-phase hydrogenation (6) at a pressure of 50 to 200 bars.

8. Process according to any of claims 1 to 7, characterised in that during gas-phase hydrogenation (6) use is made of a ratio of hydrogen to coal-oil of 1000 to 5000, preferably 1500 to 3000 m^3/t coal-oil.

9. Process according to any of claims 1 to 8, characterised in that discharge (3) of gas phase hydrogenation stage (6) is cooled by heat exchange with coal-oil (1) fed to gas-phase hydrogenation stage (6).

10. Process according to any of claims 1 to 9, characterised in that after removal of the residue-containing fraction (22) from the discharge of liquid-phase hydrogenation stage (20) and removal, after further cooling, of effluent (27), which is particular contains ammonia and hydrogen sulfide, the circulating gas (28), containing in addition to its main component hydrogen in particular carbon monoxide, carbon dioxide and volatile hydrocarbons, is subjected at system pressure or after pressure reduction to an oil scrub (29).

11. Process according to any of claims 1 to 10, characterised in that the liquid fraction (1) obtained as coal-oil is, prior to introduction into the gas-phase hydrogenation stage (6) subjected, with a view to yet more thorough removal of dissolved gases, to further pressure reduction and separat-

ed from the gaseous components present, whereupon it is possibly again brought up to the pressure required for gas-phase hydrogenation (6).

12. Process according to any of claims 1 to 11, characterised in that the circulating gas of liquid-phase (14) is heated, together with the slurry, by heat exchange with the discharge from the liquid-phase hydrogenation after separation of the residue.

Revendications

1. Procédé de production d'huile pour reformage et d'huile combustible (fuel) ou diesel à partir de charbon à une pression augmentée et à une température élevée qui se compose d'une hydrogénation en phase liquide (20) et d'une hydrogénation en phase gazeuse (6) qui lui est couplée, dans lequel du charbon broyé le cas échéant avec addition de substances actives catalytiquement est trempé avec une huile de trempe et subit en premier lieu une hydrogénation en phase liquide (20) à partir du courant d'évacuation de l'hydrogénation en phase liquide (20) et une fraction de résidu (22) contenant des substances solides est éliminée, les produits volatils débarrassés du résidu sont refroidis, séparé le cas échéant d'une fraction (24) servant d'huile de trempe et sont soumis à une hydrogénation en phase gazeuse, caractérisé en ce que le besoin total en hydrogène de l'hydrogénation en phase gazeuse et en phase liquide en premier lieu est introduit pour l'hydrogénation en phase gazeuse (6) sous forme d'hydrogène frais (5) qui est largement débarrassé des composants gênants contenus dans un système de recyclage de l'hydrogénation du charbon: H_2O , NH_3 , SH_2 , CO , CO_2 , et des gaz en C_1-C_4 et que le gaz d'échappement contenant principalement l'hydrogène qui n'a pas réagi (12) est fourni dans le système de recyclage de gaz (14) de l'hydrogénation en phase liquide (20).

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'hydrogène frais (5) ensemble avec une fraction (1) qui se produit dans l'hydrogénation en phase liquide en tant qu'huile de charbon, est chauffé et est mis en œuvre dans l'hydrogénation en phase gazeuse (6) dans un rapport quantitatif d'hydrogène à l'huile de charbon d'au moins la quantité correspondante au besoin total en hydrogène dans la phase gazeuse et dans la phase liquide pour laquelle la pression totale dans l'hydrogénation en phase gazeuse (6) est plus faible que la pression dans l'hydrogénation en phase liquide (20); le courant d'évacuation de l'hydrogénation en phase gazeuse (6) est refroidi sous pression, un produit de raffinage (8), qui ultérieurement est séparé par distillation par exemple en huile pour reformage (9) et en huile combustible ou pour Diesel (10) ainsi qu'un effluent (11) sont séparés et la fraction restante gazeuse est fournie, après compression intermédiaire au niveau de pression de l'hydrogénation en phase liquide (20), au gaz de recyclage de l'hydrogénation en phase liquide (20) lequel après évacuation d'une fraction de gaz d'échappement (30) qui suffisent pour le maintien d'une pression partielle d'hydrogène suffi-

sante, le cas échéant ensemble avec la trempe, est chauffé à nouveau et est amené à l'hydrogénation en phase liquide (20) et en ce que, après un nouveau refroidissement du produit de la phase liquide débarrassé de résidu à environ 50°C jusqu'à la température ordinaire avec évacuation d'un effluent (27) contenant entre autres de l'ammoniac et de l'hydrogène sulfuré le cas échéant après détente partielle, et après chauffage avec l'hydrogène frais (5) la fraction liquide qui se forme comme huile de charbon (1) est conduite à l'hydrogénation en phase gazeuse (6).

3. Procédé selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que le courant d'hydrogène frais total est séparé en une fraction partielle qui est amenée à l'huile de phase gazeuse avant l'entrée dans l'hydrogénation en phase gazeuse (6) et la fraction restante qui sert comme gaz de refroidissement (34) pour la régulation de la température est conduite à l'hydrogénation en phase gazeuse (6).

4. Procédé selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que du gaz de refroidissement additionnellement à partir du gaz de recyclage de l'hydrogénation en phase liquide est amené pour alimentation dans l'hydrogénation en phase gazeuse (6).

5. Procédé selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que pour le retour d'une partie du gaz d'hydrogénation épuisé et alimentation comme gaz d'amortissement (32) dans l'hydrogénation en phase gazeuse (6) on a amené comme huile en phase gazeuse, l'hydrogénation en phase gazeuse (6) est équipée de son propre circuit de gaz.

6. Procédé selon l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que l'hydrogénation en phase gazeuse (6) s'écoule avec l'hydrogène frais à une pression inférieure d'au moins 50 bars à celle de l'hydrogénation en phase liquide (20).

7. Procédé selon l'une des revendications 1 à 6, caractérisé en ce que l'hydrogénation en phase liquide (20) est effectuée à une pression de 100 à 400 bars et que l'hydrogénation en phase gazeuse (6) à une pression de 50 à 200 bars.

8. Procédé selon l'une des revendications 1 à 7, caractérisé en ce que l'on travaille dans la phase d'hydrogénation en phase gazeuse (6) avec un rapport quantitatif d'hydrogène à l'huile de charbon de 1000 à 5000, de préférence de 1500 à 3000 m^3/t d'huile de charbon.

9. Procédé selon l'une des revendications 1 à 8, caractérisé en ce que le courant d'évacuation (3) de l'hydrogénation en phase gazeuse (6) est refroidi par échange de chaleur avec l'huile de charbon (1) amenée à l'hydrogénation en phase gazeuse (6).

10. Procédé selon l'une des revendications 1 à 9, caractérisé en ce que, après évacuation d'une fraction (22) contenant un résidu à partir d'un courant d'évacuation de l'hydrogénation en phase liquide (20) et évacuation après un nouveau refroidissement d'un effluent (27) contenant en particulier de l'ammoniac et de l'hydrogène sulfuré, le gaz de recyclage (28) qui contient à côté d'hydrogène principalement, en particulier de l'oxyde de carbone, du gaz carbonique et des hydrocarbures volatils, est soumis sous pression systématique ou aussi après détente, à un lavage par l'huile (29).

11. Procédé selon l'une des revendications 1 à 10, caractérisé en ce que la fraction liquide (1) qui s'est formée comme huile de charbon est à nouveau détendue avant l'amenée à l'hydrogénation en phase gazeuse (6) en vue de l'élimination encore plus extensive des gaz dessous et est séparée des constituants gazeux qui surviennent, après quoi elle est amenée, le cas échéant, à nouveau à la pression requise pour l'hydrogénation en phase gazeuse (6).

5

12. Procédé selon l'une des revendications 1 à 11, caractérisé en ce que le gaz de recyclage de la phase liquide (14) est chauffée ensemble avec le produit de trempe par échange de chaleur avec le courant d'évacuation obtenu après élimination du résidu à partir de l'hydrogénation en phase liquide.

10

15

20

25

30

35

40

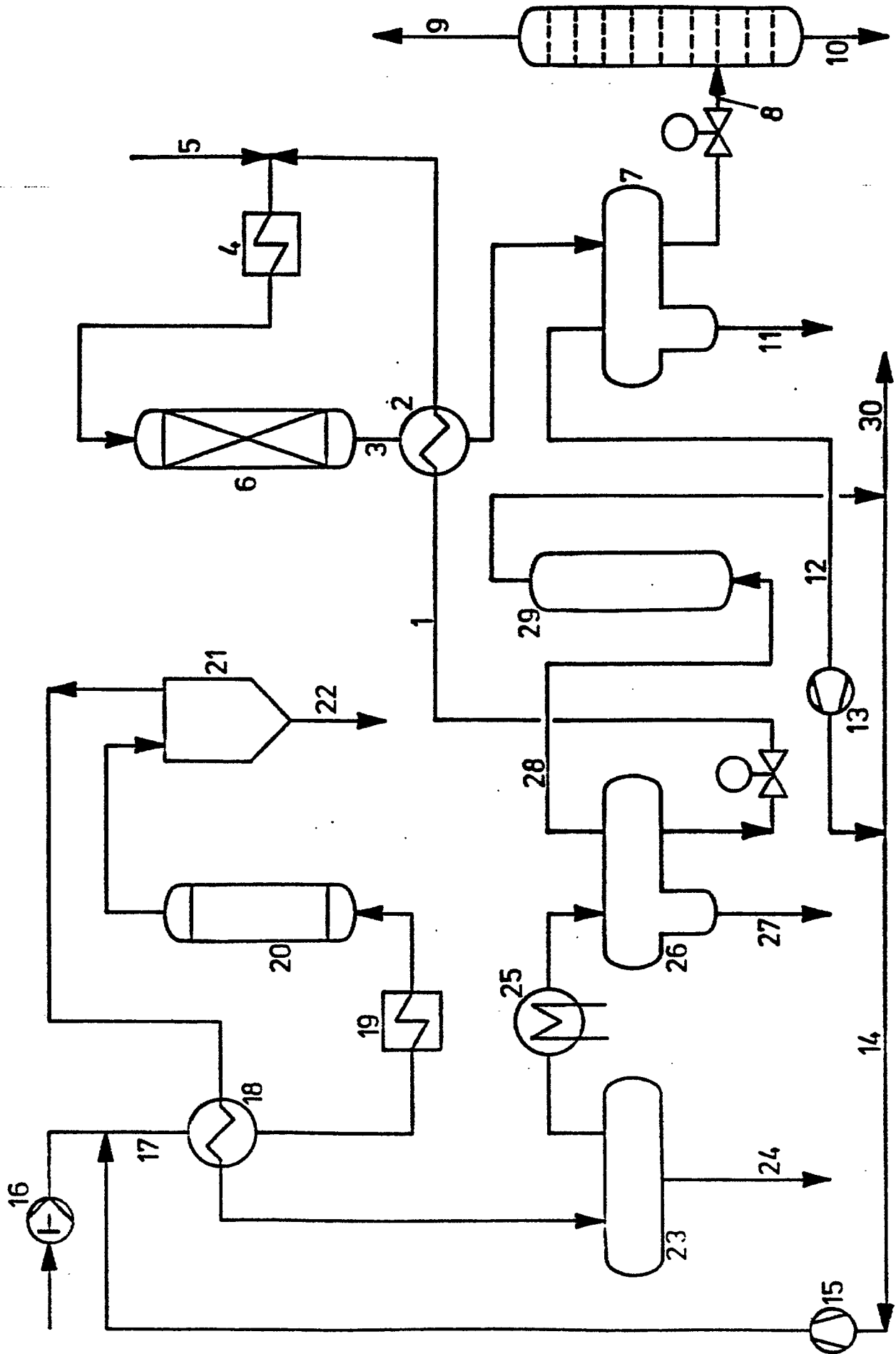
45

50

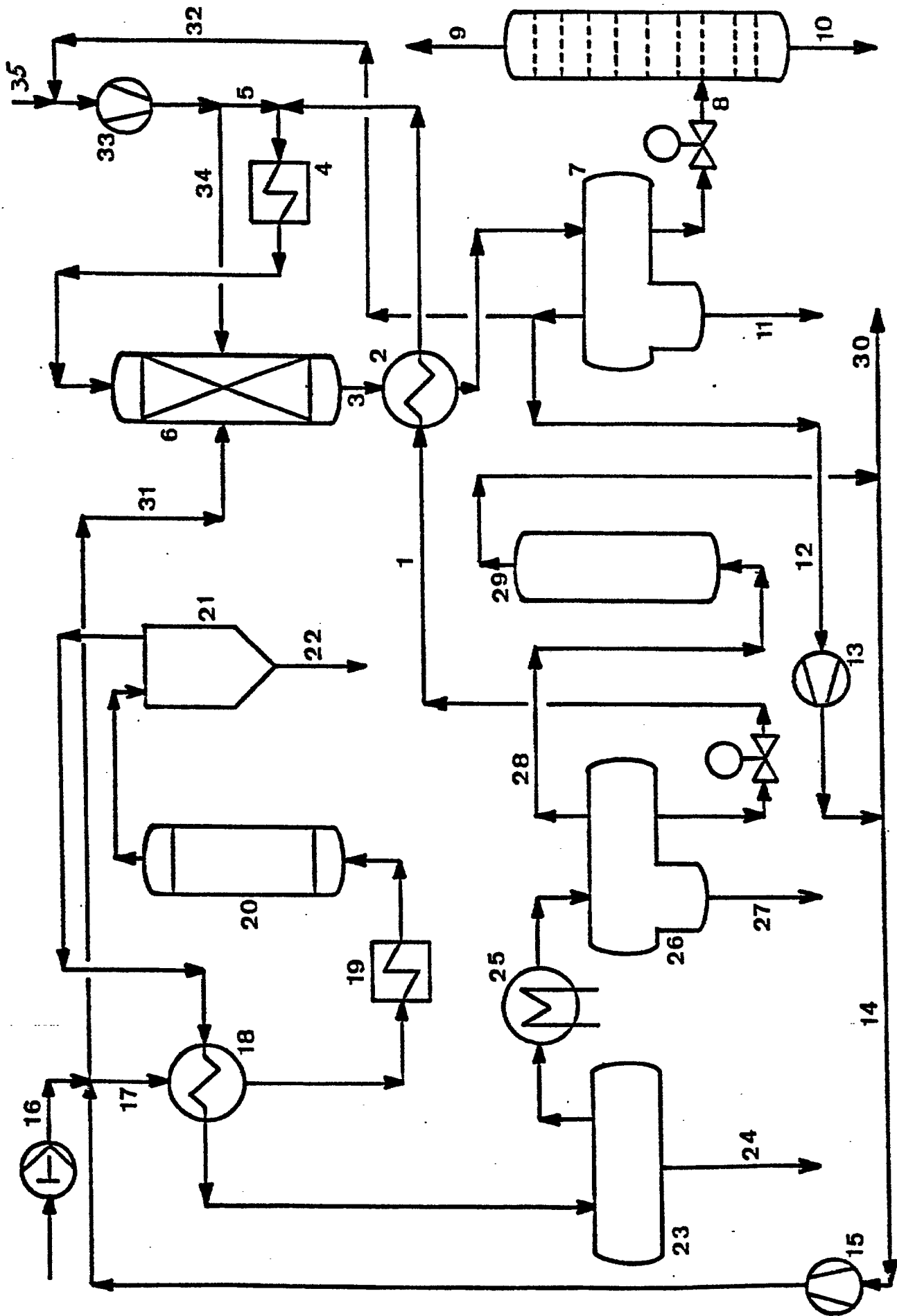
55

60

65



Figur 1



Figur 2