

# ANGEWANDTE CHEMIE

88. Jahrgang 1976  
Heft 11  
Seite 347–388

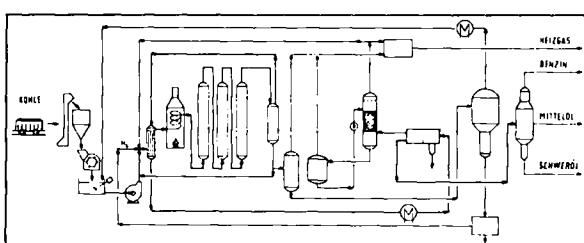
Dieses Heft erscheint zur 18. Ausstellungs-Tagung für chemisches Apparatewesen (ACHEMA 76). Die Themen der Fortschrittsberichte, der Umfang der Rubrik „Neue Geräte und Chemikalien“ (mit Karten zum Informations-Abruf) und nicht zuletzt die Gestaltung des Umschlages sind auf diesen Anlaß abgestimmt. Die Bilder auf dem Umschlag zeigen ein Stückchen Kohle sowie das Fließdiagramm einer Anlage zur Verflüssigung dieses Rohstoffs. Über Probleme der Kohleöl-Herstellung unterrichtet der Beitrag von K. F. Schlupp und H. Wien auf Seite 348. Ihm liegt eine Studie zugrunde, die gemeinsam von der Ruhrkohle AG und der STEAG AG unter Mitwirkung der Bergbauforschung GmbH im Auftrag des Ministers für Wirtschaft, Mittelstand und Verkehr des Landes Nordrhein-Westfalen erarbeitet wurde. Photographie und Zeichnung: RAG/STEAG.

Erstes Juni-Heft 1976      D 1331 DX

# ANGEWANDTE CHEMIE

mit Nachrichten  
aus Chemie  
und Technik

Herausgegeben von der Gesellschaft Deutscher Chemiker



Dieses Heft erscheint zur ACHEMA 76

Es enthält Karten für den Informations-Abruf



Heft 11/1976 · ANGEWANDTE CHEMIE 88 (11) 347–388 (1976) · ISSN 0044–8249

# Herstellung von Öl durch Hydrierung von Steinkohle

Von K. F. Schlupp und H. Wien<sup>[\*]</sup>

Eine Bestandsaufnahme der Verfahren zur Kohlehydrierung ergab: Trotz der umfangreichen Erfahrungen, die in Deutschland bis 1945 auf dem Gebiet der Kohlehydrierung gesammelt und die teilweise in den USA aufgegriffen und weiterentwickelt wurden, gibt es derzeit weltweit kein ausgereiftes Verfahren, das zur kommerziellen Kohleöl-Erzeugung herangezogen werden könnte. Als geeignete Verfahrensrichtungen für die Weiterentwicklung empfehlen sich die nicht-katalytische einstufige Kurzhydrierung und die katalytische Hydrierung. Unter günstigsten Voraussetzungen kann ab Anfang oder Mitte der achtziger Jahre die Produktion von Kohleöl technisch realisiert werden. Unter Berücksichtigung der Preise für schweres Heizöl sind die kommerziellen Voraussetzungen für die Kohleöl-Produktion derzeit nur in Ländern mit niedrigen Kohlepriisen gegeben.

## 1. Einleitung

Die Energiekrise hat gezeigt, daß die Industrieländer durch ihre große Abhängigkeit von Mineralölimporten einem Versorgungsrisiko ausgesetzt sind und zudem in Zukunft mit weiter erhöhten Ausgaben für die Mineralölbeschaffung rechnen müssen. Der verstärkte Rückgriff auf Kohlevorräte und die Verflüssigung dieser Kohle zu Produkten, mit denen sich Erdölprodukte substituieren lassen, könnte die bedrohliche Importabhängigkeit verringern und damit zu einer Entspannung der Situation beitragen.

Die Kohleverflüssigung bietet zudem die Möglichkeit, einen Beitrag zur Verringerung der Umweltbelastung zu leisten, da die bei der Verflüssigung erzeugten Produkte weitgehend asche- und schwefelfrei sind.

Aus diesen Gründen gewinnt die Kohleverflüssigung in Ländern, die über Kohlereserven verfügen, zunehmend an Interesse. Gezielte Anstrengungen im größeren Maßstab sind jedoch notwendig, um die Technologien für eine Verflüssigung der Steinkohle zur Produktionsreife zu entwickeln.

## 2. Marktuntersuchungen

Die Einsatzmöglichkeiten des Kohleöls werden durch die Wasserstoffmenge bestimmt, die man mit dem jeweils gewählten technologischen Verfahren an die Kohle anlagernt.

Bei geringer Wasserstoffanlagerung lassen sich Extrakte gewinnen, die schweres Heizöl substituieren können. Kohleöl könnte auch als Rohstoff für Produkte dienen, die üblicherweise aus Teer oder Teerpech gewonnen werden, z. B. Elektroden und Bindemittel.

Stärkere Wasserstoffanlagerung kann zur Erzeugung von Leicht- und Mitteldestillaten führen, die sich mit ihren aromatischen, naphthenischen und aliphatischen Komponenten als Chemierohstoffe eignen.

Auf dem Brennstoffsektor könnte Kohleöl schweres und leichtes Heizöl substituieren. Die größten Verbrauchergruppen für schweres Heizöl sind in der Bundesrepublik Deutschland die Grundstoff- und Produktionsgüterindustrie (58 %) sowie die Kraftwerke (24 %).

Aus technologischen Gründen kann Kohleöl erst zu Beginn der achtziger Jahre kommerziell erzeugt werden. Wie Prognosen zeigen, ist zu dieser Zeit in der Bundesrepublik ein weitgehend konstanter Heizölmarkt von etwa 30 Mio t/a vorhanden. Um diesen Markt spürbar zu beeinflussen, müßten große Kohleöl-Produktionsanlagen etwa 6 bis 10 Mio t/a erzeugen, die etwa 12 bis 20 Mio t/a Steinkohle verarbeiten würden.

Über die Inhaltsstoffe des Kohleöls lassen sich derzeit noch keine genauen Aussagen machen. Man kann jedoch davon ausgehen, daß aus Kohleöl wichtige Rohstoffe für die chemische Industrie erzeugt werden können.

Das unter milden Bedingungen hydrierte Kohleöl wird etwa zur Hälfte aus einer Substanz bestehen, die dem Steinkohleterpech ähnelt und zur Hälfte aus Ölfraktionen verschiedener Siedelagen.

Der dem Steinkohleterpech ähnliche schwere Anteil des Kohleöls wäre ein geeignetes Material zur Herstellung hochwertiger Kohlenstoffprodukte wie Graphit, Binderpeche oder Spezialkokks. Binderpeche werden heute schon überwiegend aus kohlestämmigen Produkten hergestellt, während zur Dekkung des Pechbedarfs für die Herstellung von Spezialkokks zu fast 80 % petrostämmige Produkte dienen.

Die Ölfraktionen des Kohleöls enthalten aromatische, naphthenische und aliphatische Komponenten. Besonders interessant sind die Gehalte an Cyclohexan, Benzol, Toluol und Xylol, aber auch an kondensierten Aromaten wie Naphthalin und Anthracen zur Gewinnung wichtiger Primärchemikalien. Daneben sind Anteile an Teersäuren und Teerbasen sowie solche Fraktionen von wirtschaftlicher Bedeutung, die als Rußöl in Betracht kommen.

Der heutige Beitrag der Kohlechemie für die Rohstoffversorgung der Chemie ist gering. Er liegt bei etwa 10 % der petrochemisch erzeugten Produkte. Berücksichtigt man den erwarteten Zuwachs an Chemierohstoffen, so kann für die Mitte der achtziger Jahre mit einer zusätzlichen Absatzmöglichkeit für Kohleöl im Chemiebereich von etwa 1 Mio t/a gerechnet werden.

## 3. Produktdefinition

Die Produktdefinition für die Kohleverflüssigung entwickelt sich aus der Forderung, aus Steinkohle asche- und schwefelarme Produkte herzustellen, die vom schweren Heizöl bis zu Mittel- und Leichtdestillaten reichen und zudem lagerstabil sind.

[\*] Dipl.-Ing. K. F. Schlupp [+] und Dr. H. Wien  
STEAG AG  
In der Hagenbeck 64, 4300 Essen  
[+] Korrespondenzautor.

Beim Einsatz von Kohleöl anstelle von schwerem Heizöl sollen keine größeren Umrüstungen im Anlagenbereich notwendig werden.

Tabelle 1. Gewünschte Kohleöl-Eigenschaften.

Brennwert	etwa	10000 kcal/kg
Dichte (15°C)	etwa	1.0 kg/dm <sup>3</sup>
Flammpunkt		> 65 °C
Viskosität bei 100°C	max.	40 cSt
Schwefelgehalt	max.	0.6 Gew.-%
Aschegehalt	max.	0.1 Gew.-%

Die angestrebten Eigenschaften des Kohleöls sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Sie entsprechen weitgehend den Eigenschaften des schweren Heizöls. Die Werte für den Schwefel- und Aschegehalt sind niedriger.

## 4. Übersicht über den Stand der Verfahren

### 4.1. Herstellung von flüssigen Produkten aus Kohle

Die Herstellung von flüssigen Produkten aus Kohle gelang lange Zeit nur durch thermische Behandlung. Die so gewonnenen Braunkohlen- und Steinkohlenteere bildeten den wichtigsten Rohstoff für die chemische Industrie. Heute haben die Produkte der Mineralölindustrie die Teer-Derivate weitgehend verdrängt.

Tabelle 2. Molgewichte und Wasserstoffgehalte verschiedener Kohlenwasserstoffe.

	g H <sub>2</sub> /100 g C	Molgewicht
Steinkohle	6	> 5000
Braunkohle	8	> 5000
Erdöl	14	400
Leichtes Heizöl	16	200
Benzin	17	100
Methan	33	16

Um Kohle mit hoher Ausbeute in flüssige Produkte zu überführen, muß – wie Tabelle 2 zeigt – die hochmolekulare Kohle abgebaut und zusätzlich Wasserstoff angelagert werden. Verzichtet man auf die Wasserstoffanlagerung, wie es bei den thermischen Kohleveredelungsverfahren geschieht, so sind die Ausbeuten an flüssigen Produkten mit 5 bis 25 % bezogen auf die eingesetzte Kohle verhältnismäßig gering.

Abbildung 1 zeigt die Verfahren zur Herstellung von flüssigen Produkten aus Kohle. Nur die Schwelverfahren und die Fischer-Tropsch-Synthese werden heute noch großtechnisch betrieben. Die Herstellung von Methanol ist in der Übersicht mit aufgeführt, da in der letzten Zeit verstärkte Bemühungen festzustellen sind, Methanol als Kraftstoff und auch als Brennstoff (methyl fuel) einzusetzen.

### 4.2. Historische Entwicklung

Die ersten Versuche zur Hydrierung von Kohle führte *Berthelot*<sup>[1]</sup> bereits 1869 durch. Sie hatten keine technische Bedeutung, zeigten jedoch die prinzipielle Möglichkeit, Kohle unter Zuführung von Wasserstoff in flüssige Produkte zu verwandeln.

*Bergius*<sup>[2]</sup> unternahm 1910 die ersten Untersuchungen mit technischer Zielsetzung. Es gelang ihm, erdölähnliche Produkte bei 400 bis 450°C und 150 bar herzustellen. Mit den Erfahrungen der BASF in Ludwigshafen auf dem Gebiet der Ammoniak- und Methanol-Synthese (Hochdrucktechnik und Katalysatorherstellung)<sup>[3]</sup> konnte das Bergius-Verfahren bis zur technischen Reife entwickelt werden<sup>[4]</sup>. Die erste Großversuchsanlage zur Erzeugung von 100000 t/a Benzin aus Kohle wurde 1926 in Leuna errichtet. Bis 1945 entstanden weitere zwölf Anlagen zur Hydrierung von Teer, Braunkohle und Steinkohle, davon vier Anlagen auf dem Gebiet der heutigen Bundesrepublik (Scholven, Gelsenberg, Welheim und Wesseling). Insgesamt erzeugte man bis 1945 auf Basis des Bergius-Verfahrens

sten Rohstoff für die chemische Industrie. Heute haben die Produkte der Mineralölindustrie die Teer-Derivate weitgehend verdrängt.

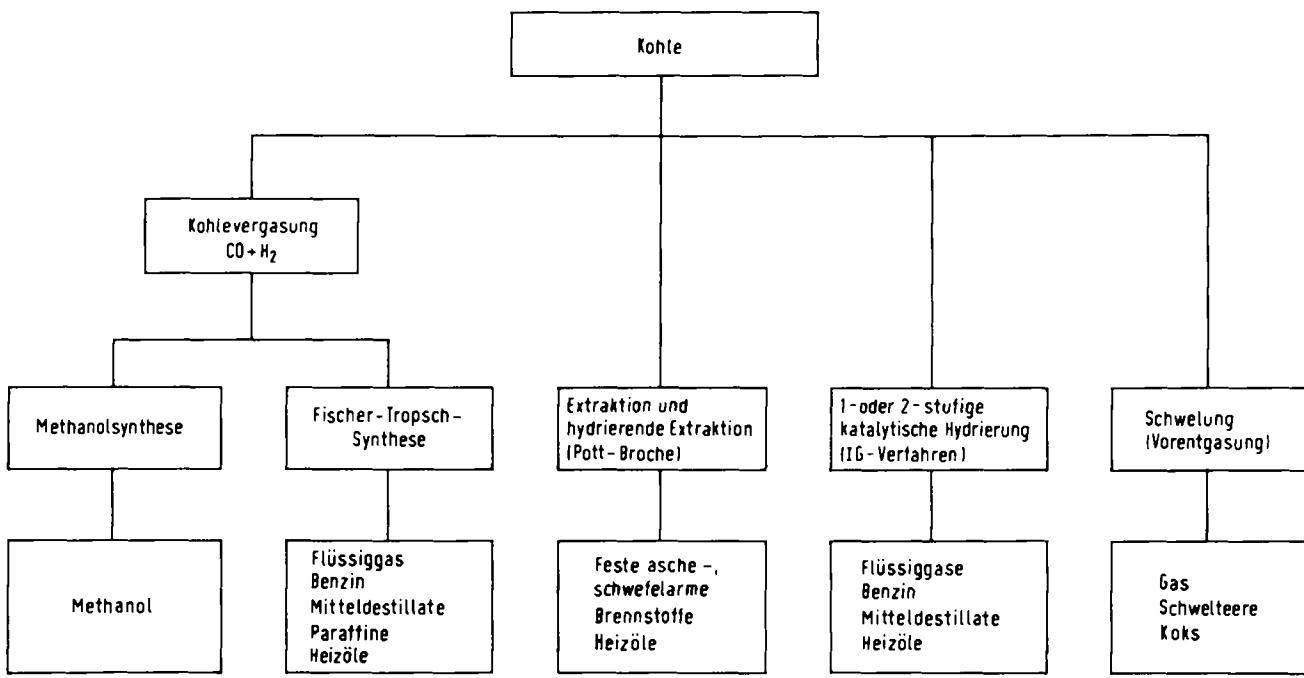


Abb. 1. Verfahren zur Verflüssigung von Kohle.

etwa 15 Mio t flüssige Kraftstoffe. Die Anlagen wurden nach 1945 stillgelegt oder auf die Hydrierung von Erdölrückständen umgestellt.

Etwa ab 1930 versuchte die Gewerkschaft Mathias Stinnes, durch Extraktionen von Steinkohlen mit geeigneten Lösungsmitteln aschearme, feste Extrakte zu gewinnen<sup>15)</sup>. Diese Extrakte lassen sich jedoch nur mit großen Schwierigkeiten zu leichten, flüssigen Produkten abbauen. Sie eignen sich hervorragend zur Herstellung von Elektroden. Eine großtechnische Anlage zur Erzeugung von 30000 t/a Extrakt wurde von 1938 bis 1944 bei der RUHRÖL in Bottrop betrieben. Diese Anlage wurde im Krieg zerstört und nicht wieder aufgebaut.

Beim Pott-Broche-Verfahren dient nur das Lösungsmittel als Wasserstoffüberträger. Durch ein begrenztes, direktes Wasserstoffangebot versuchten zunächst UHDE und später auch IG-Farben Extrakte zu erzeugen, die sich mit weniger Schwierigkeiten zu flüssigen Kohlenwasserstoffen abbauen lassen. Diese UHDE-IG-Kurzhydrierung konnte jedoch nicht mehr bis zur technischen Reife entwickelt werden.

In Deutschland fand die Entwicklung der Kohleverflüssigung 1945 ein Ende. Gründe waren zunächst die Verbote der Militärregierung, später die fehlende Wirtschaftlichkeit

zu nutzen. Diese zunächst intensiven Bemühungen stellte man in den fünfziger Jahren ein, da die Mineralölindustrie in zunehmendem Maße Rohöl zu niedrigen Preisen lieferte. In den sechziger Jahren wurden sie von kohlefördernden Gesellschaften erneut intensiviert. Vor allem plante man die Überführung schwefelreicher US-Kohle in schwefel- und aschearme Produkte, um Brennstoffe und auch Kraftstoffe zu gewinnen. Die Arbeiten wurden vom Office of Coal Research mit erheblichen Mitteln unterstützt und führten zur Errichtung halbtechnischer Versuchsanlagen. Versuche im Labormaßstab waren darauf gerichtet, Kohle direkt am Festbettkontakt in flüssige Produkte umzuwandeln. In größeren Versuchsanlagen wurde auch versucht, Schwelverfahren zur Erzeugung von erdölähnlichen Produkten einzusetzen.

### 4.3. Einzelne Verfahren<sup>16)</sup>

#### 4.3.1. Das Pott-Broche-Verfahren

Beim Pott-Broche-Verfahren wird feingemahlene und getrocknete Steinkohle bei 425 bis 440°C und 150 bar mit einem Lösungsmittel extrahiert. Asche und nicht umgesetzte Kohle werden abfiltriert. Der Extrakt hat einen Erweichungspunkt

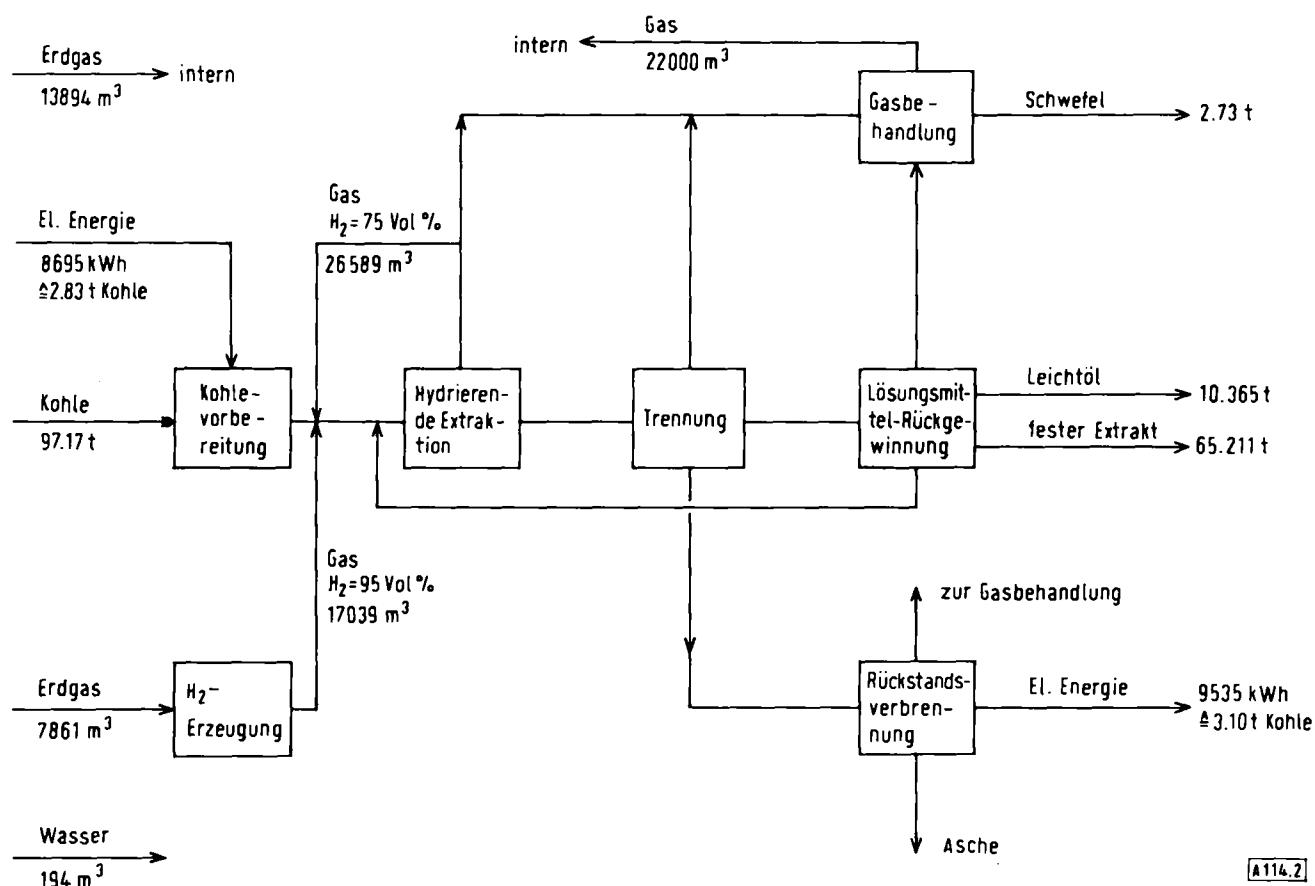


Abb. 2. Blockdiagramm des GULF-SRC-I-Verfahrens.

der erzeugten Produkte. Die noch vorhandenen Hochdruckanlagen wurden bis etwa 1963 zur Hydrierung von Erdölrückständen verwendet.

Hingegen wurden die Arbeiten zur Kohleverflüssigung vor allem in den USA und in der letzten Zeit auch in Südafrika, Polen und England weitergeführt. Gestützt auf die deutschen Erfahrungen begannen die USA nach 1945, die Kohleverflüssigung für die Erzeugung von Treib- und Chemierohstoffen

von etwa 220°C und einen Aschegehalt von <0.2 Gew.-%. Als Lösungsmittel diente ursprünglich ein Tetralin-Kresol-Gemisch. Da es nach seiner Rückgewinnung wieder hydriert werden mußte, wurde später mit ähnlichem Ergebnis eine Mittelölfraction der Pechhydrierung verwendet. Da sich die Extrakte nur sehr schwer zu leichteren Produkten weiterverarbeiten lassen, benutzte man sie zur Herstellung von Elektrodenkoks.

#### 4.3.2. Das UHDE-IG-Verfahren<sup>[4]</sup>

Das UHDE-IG-Verfahren ist eine hydrierende Extraktion unter Verwendung von Katalysatoren. Der bei etwa 450°C und 300 bar hergestellte Extrakt besitzt einen Erweichungspunkt von 60 bis 120°C und einen Aschegehalt von <0.2 Gew.-%. Asche und nicht umgesetzte Kohle werden durch Filtration abgetrennt. Der Extrakt lässt sich in einem Hydrocracker zu leichten Destillaten verarbeiten. Das Verfahren wurde bisher nur im Technikumsmaßstab geprüft.

#### 4.3.3. Das Bergius-IG-Verfahren

Beim Bergius-IG-Verfahren wird Kohle durch spaltende Hydrierung in Anwesenheit von Katalysatoren vorwiegend in Destillate im Benzinsiedebereich umgewandelt. Das Verfahren wird zweistufig durchgeführt. In der ersten Stufe (Sumpfphase, ca. 490°C, bis zu 700 bar) wird die mit einem Lösungsmittel angemaischte Kohle in Gegenwart von feinverteiltem Katalysator und Wasserstoff in flüssige Produkte übergeführt. Das unterhalb 325°C siedende Flüssigprodukt wird in der zweiten Stufe (Gasphase, ca. 400°C, 300 bar) in Anwesenheit von Wasserstoff an fest angeordneten Katalysatoren in leichte Destillate umgewandelt. Das zum Anmaischen der Kohle notwendige Lösungsmittel wird in der Sumpfphase erzeugt und in den Prozeß zurückgeführt.

Nach diesem Verfahren wurden bis 1945 etwa 15 Mio t flüssige Kraftstoffe erzeugt. Die Kapazität der Anlagen betrug in den Jahren 1943 bis 1944 etwa 4 Mio t/a.

#### 4.3.4. Das GULF-SRC-Verfahren<sup>[7]</sup>

Dieses Verfahren arbeitet ähnlich wie das UHDE-IG-Verfahren. Beim SRC-I-Verfahren wird durch hydrierende Extraktion ein fester, schwefel- und aschearmer Extrakt erzeugt. Die Asche und die nicht umgesetzte Kohle werden mit Hilfe von Anschwemmmfiltern (Trommelfiltern) abgetrennt. Der Erweichungspunkt des Extraktes liegt zwischen 160 und 200°C.

Bei einer Variante, dem SRC-II-Verfahren, werden durch hydrierende Extraktion und hydrierende Spaltung flüssige Produkte erzeugt. Hauptprodukt ist ein asche- und schwefelarmes, schweres Heizöl. Die Herstellung des festen Extraktes erfolgt bei 450°C und etwa 80 bar, die der flüssigen Produkte bei 450°C und 140 bar.

Abbildung 2 zeigt ein Blockdiagramm des SRC-I-Verfahrens sowie seine Stoff- und Energiebilanz.

In einer 50 t/d-Pilotanlage (Tacoma, Washington, USA) wurde das SRC-I-Verfahren zur Herstellung von festen Extrakten getestet. Die Anlage wurde inzwischen für die Erprobung des SRC-II-Verfahrens umgerüstet, mit der 1976 begonnen werden soll.

#### 4.3.5. Das Consol-Synthetic-Fuel-Verfahren (CSF)<sup>[8]</sup>

Das CSF-Verfahren der Consolidation Coal Company wurde auf Basis des Pott-Broche-Verfahrens entwickelt. Es ist ein zweistufiges Verfahren.

In der ersten Stufe wird die Kohle mit einem aus dem Prozeß stammenden Lösungsmittel angemaischt und bei etwa 400°C und 20 bar extrahiert. Nach Abtrennung der Asche und der nichtumgesetzten Kohle wird der feste Extrakt in der zweiten Stufe einer hydrierenden Spaltung unterworfen. Dabei entsteht ein rohölähnliches Produkt.

Eine nach diesem Verfahren gebaute Pilotanlage mit einem Kohledurchsatz von 18 t/d war in Cresap, West Virginia, USA, in Betrieb, wurde aber wegen Schwierigkeiten bei der Feststoffabtrennung 1970 stillgesetzt.

#### 4.3.6. Das H-Coal-Verfahren<sup>[9]</sup>

Beim H-Coal-Verfahren der Hydrocarbon Research Inc. wird die Kohle einstufig durch hydrierende Spaltung in Anwesenheit eines Cobalt-Molybdän-Katalysators in flüssige Produkte umgewandelt. Der Katalysator wird im Reaktor ständig in Bewegung gehalten (Prinzip des „ebullated bed“-Reaktors). Um seine Hydrieraktivität zu erhalten, wird verbrauchter Katalysator ständig aus dem Reaktor entfernt und durch frischen ersetzt. Das Verfahren arbeitet bei maximal 460°C und 200 bar. Je nach Reaktionsbedingung können vorwiegend leichte Destillate oder Heizöle hergestellt werden. Abbildung 3 zeigt die Stoff- und Energiebilanz.

Das Verfahren ist bisher in einer Technikumsanlage mit einem Kohledurchsatz von 3 t/d geprüft worden. Mit Unterstützung der Energy Research and Development Agency (ERDA) und einiger US-Firmen projektiert Hydrocarbon derzeit eine Pilotanlage für einen Kohledurchsatz von 600 t/d.

#### 4.3.7. Das Clean-Fuel-From-Coal-Verfahren (CFFC)

Beim CFFC-Verfahren von LUMMUS wird die Kohle in Anwesenheit eines Cobalt-Molybdän-Katalysators in einer Stufe hydrierend gespalten. Der Katalysator bleibt ständig im Reaktor. Das Verfahren arbeitet bei etwa 440°C und 200 bar.

Asche und ungelöste Kohle werden in Absetzbehältern durch Sedimentation unter Zugabe eines Ausflockungsmittels (Kerosin) abgetrennt<sup>[10]</sup>. Es können vorwiegend leichte Produkte oder Heizöle hergestellt werden.

Das Verfahren wird in einer Technikumsanlage mit einem Kohledurchsatz von 1 t/d geprüft.

#### 4.3.8. Das SYNTHOIL-Verfahren<sup>[11]</sup>

Beim SYNTHOIL-Verfahren des Bureau of Mines erfolgt die hydrierende Spaltung der mit Lösungsmittel angemaischten Kohle an einem fest angeordneten Katalysator bei 425 bis 450°C und 140 bis 280 bar.

Das Verfahren soll geeignet sein, flüssige, schwefel- und aschearme Brennstoffe für den Kraftwerksbetrieb zu erzeugen. Die technische Anwendbarkeit des Verfahrens wurde in einer Pilotanlage mit einem Kohledurchsatz von 500 kg/d getestet. Eine Pilotanlage mit einem Kohledurchsatz von 8 t/d ist geplant.

#### 4.3.9. Das DONOR-Solvent-Verfahren (EDS)

Das von EXXON entwickelte nichtkatalytische Verfahren erzeugt leichte Destillate bis schwere Heizöle. Der notwendige Wasserstoff wird durch das Lösungsmittel und molekularem Wasserstoff zugeführt. Das Lösungsmittel wird in einer separaten Verfahrensstufe katalytisch wieder aufhydriert. Die EXXON beabsichtigt, eine Pilotanlage mit einem Kohledurchsatz von 250 t/d zu errichten.

#### 4.3.10. Weitere Aktivitäten<sup>[12]</sup>

Neben den Bestrebungen, durch Extraktion oder direkte Hydrierung aus Kohle flüssige Produkte zu erzeugen, wird

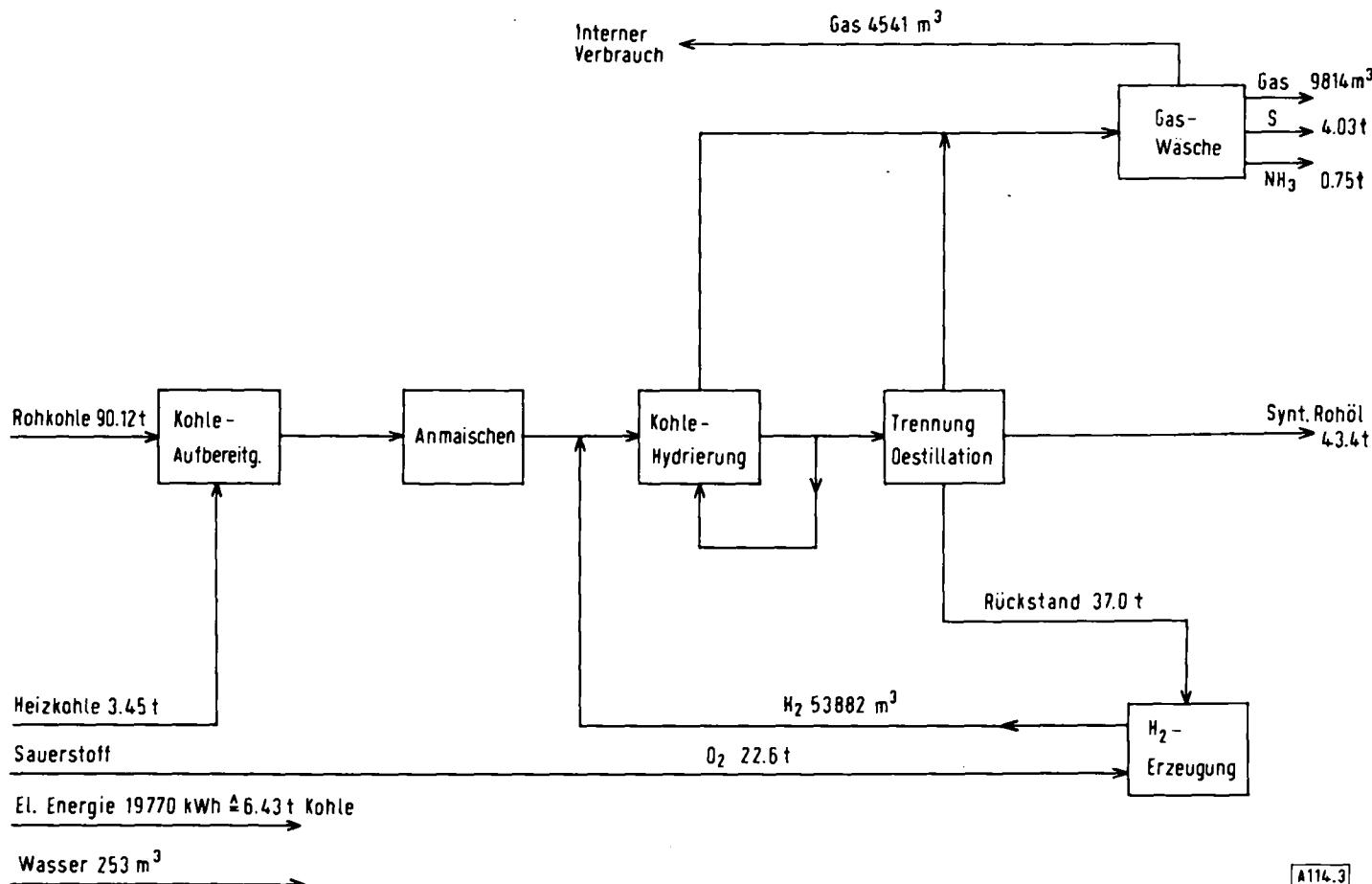


Abb. 3. Blockdiagramm des H-Coal-Versfahrens.

daran gearbeitet, durch Schwelen die Kohle teilweise in flüssige Produkte umzuwandeln. Der primär entstehende Schwelteer muß jedoch vor seiner Weiterverwendung hydrierend behandelt werden. Zu dieser Verfahrensentwicklung gehören das COED-Verfahren (Char-Oil-Energy-Development)<sup>[13]</sup> der Food Machinery Company (FMC), das TOSCOAL-Verfahren<sup>[14]</sup> der Oil Shale Corporation und das Hydrocarbonisation-Verfahren der COALCON COMPANY. Beim letzteren wird hydrierend geschwelt, um die Ausbeute an Flüssigprodukt zu erhöhen. Nach dem COALCON-Verfahren wird mit Unterstützung der ERDA eine Pilotanlage errichtet, deren Kosten mit etwa 240 Mio \$ angegeben werden.

Erwähnenswert ist ferner eine von der Utah University<sup>[15]</sup> im Labormaßstab durchgeführte trockene Hydrierung von Kohle bei 515°C und 140 bar, bei der Zinnchlorid als Katalysator dient. Dabei entstehen 35 % flüssige Produkte (Benzin, Dieselöl), 35 % Gas (davon 84 % Methan) und 30 % Koks. Die Versuche wurden diskontinuierlich durchgeführt.

## 5. Technische Probleme

### 5.1. Auslegungsunsicherheiten

Die Erfahrung hat gezeigt, daß die Auslegung von Anlagen, Teilsystemen und Komponenten für die Extraktion und Hydrierung von Kohle auf der Grundlage von Analysenwerten sehr unzuverlässig ist. Die Folge sind hohe Risiken für Produktqualität, Funktionsfähigkeit und Kapazität. Da die technische Basis unsicher ist, sind es auch die Kostenaussagen.

Die Ursache der Unsicherheiten liegt darin, daß jede Kohle anders ist. Ihr Einfluß auf die Vorgänge bei Extraktion, Hydrierung und Filtration kann deshalb quantitativ nicht zuverlässig vorausgesagt werden.

### 5.2. Feststoffabtrennung

Die Abtrennung der Feststoffe (Mineralstoffe, ungelöste Kohle) aus der Suspension nach der Extraktion oder Hydrierung ist problematisch, weil die Feststoffteilchen sehr klein und die Unterschiede im spezifischen Gewicht von Feststoff und Flüssigkeit gering sind. Außerdem sind die Adhäsion zwischen Flüssigkeit und Feststoffteilchen sowie die Viskosität der Flüssigkeit hoch.

Die Filtration kann zusätzlich dadurch erschwert werden, daß die primären Umwandlungsprodukte der Kohle bei der Hydrierung quellen und eine Art Gel bilden.

Für die Filtration verwendet man vornehmlich AnschwemmfILTER, deren Trommel mit einer Kieselgur-Suspension beschichtet ist. Die bei der Filtration entstehende Feststoffschicht wird durch ein kontinuierlich arbeitendes Schabmesser von der Trommel entfernt.

Wirksamkeit und Standzeit der Filter haben bisher nicht befriedigt. Es müssen Filter entwickelt werden, die eine hohe Filtrationsgeschwindigkeit besitzen sowie funktionstüchtig und bedienungsfreundlich sind.

Die Feststoffabtrennung durch Sedimentation hat den Vorteil geringen Energieverbrauchs. Sie erfordert jedoch viel Platz. Zur Verringerung der Verweilzeit in den großen Absetzbehäl-

tern werden Flockungsmittel zugeführt. Hier besteht die Entwicklungsaufgabe darin, für Großanlagen die den Sedimentationsvorgang bestimmenden Parameter der jeweils verwendeten Kohle zu ermitteln. Außerdem muß die Lagerstabilität des Produktes untersucht werden. Es gibt Hinweise dafür, daß nach Entfernung des Flockungsmittels aus dem gereinigten Produkt noch längere Zeit Asphalte ausfallen.

Bei Anwendung der Destillation zur Feststoffabtrennung kann es zur Anbackung und Verstopfung in der Destillationskolonne kommen, wodurch sich der Wärmeübergang in den Wärmeüberträgern verschlechtert. Außerdem ist der Verschleiß von Pumpen, Armaturen und anderen Anlageteilen durch den angereicherten Feststoff zu befürchten.

### 5.3. Rückstandsverwertung

Bei der Feststoffabtrennung fällt ein schwefelhaltiger Rückstand aus einer Mischung von Öl, nicht umgesetzter Kohle und Mineralbestandteilen an. Die Weiterverarbeitung dieses Rückstandes ist problematisch, da Ablagerung oder Verbrennung aus Gründen der Wirkungsgradverschlechterung oder Umweltbeeinträchtigung nicht in Frage kommen.

Eine Lösung des Problems kann in der thermischen Behandlung des Rückstandes zur Abtrennung des Öls und einer anschließenden Vergasung des trockenen Rückstandes bestehen, sofern der Aschegehalt nicht zu hoch ist. Der bei der Vergasung erzeugte Wasserstoff wird zur Deckung des Wasserstoffbedarfs der Hydrierung verwendet.

### 5.4. Katalysatorverhalten

Problematisch sind der Abrieb des Katalysators durch die im Hydrierreaktor herrschende Turbulenz sowie die Desaktivierung durch Feststoffe, die sich auf der Katalysatoroberfläche absetzen.

### 5.5. Verhalten von Werkstoffen und Anlageteilen

Anlagen zur Erzeugung von Kohleöl arbeiten bei Temperaturen von 450 bis 500°C und Drücken von 70 bis 300 bar. Der bei diesen Bedingungen verwendete Wasserstoff sowie die Anwesenheit von Schwefel und anderen korrosionsfördernden Stoffen stellen hohe Anforderungen an die Werkstoffe. Problematisch ist auch die Förderung der Kohle/Öl-Suspension, bei der Erosionen in Rohrleitungen, Armaturen und vor allem in den hochbelasteten Pumpen auftreten können.

## 6. Weitere Entwicklung

Die Entwicklung eines kommerziell verwendbaren Verfahrens zur Erzeugung von Kohleöl in Form eines schweren Heizöls und in Form von Mittel- und Leichtdestillaten als

Rohstoff für die chemische Industrie sollte in zwei Linien weiterverfolgt werden.

Eine Hauptlinie ist die einstufige Kurzhydrierung ohne Verwendung von Katalysatoren. Diese Verfahrensrichtung bietet nach dem heutigen Stand der Entwicklung die Möglichkeit, mit relativ einfacher Verfahrenstechnik und guter Wirtschaftlichkeit in relativ kurzer Zeit zur Erzeugung von asche- und schwefelarmen schweren Heizölen zu kommen. Durch die Umrüstung der GULF-50 t/d-Pilotanlage in Tacoma auf ein flüssiges Produkt besteht für diese Verfahrensrichtung am frühesten die Möglichkeit einer Erprobung im größeren Maßstab.

Die andere Hauptlinie ist die spaltende Hydrierung mit Katalysatoren. Diese Verfahrensrichtung besitzt eine größere Produktflexibilität (Erzeugung von schwerem Heizöl und von Mittel- bis Leichtdestillaten). Sie ist bis zum Technikumsmaßstab erprobt.

Die vorgeschlagene Doppelstrategie ist erforderlich, weil eine technische und wirtschaftliche Überlegenheit einer der genannten Verfahrensrichtungen bis heute nicht erkennbar ist. Auch kann noch nicht vorausgesagt werden, wann die Verfahren das Ziel der kommerziellen Reife erreichen werden. Es ist nicht einmal auszuschließen, daß eine der beiden Linien vor Erreichen dieses Ziels aus technischen oder finanziellen Gründen aufgegeben werden muß.

Ein eingegangen am 26. Februar 1976 [A 114]

- [1] M. P. E. Berthelot, Bull. Soc. Chim. Fr. 11, 278 (1869).
- [2] F. Bergius, DRP 301 231 (1913); World Petrol. Congr., Proc., Vol. F, S. 282ff. (1934).
- [3] M. Pier, Z. Elektrochem. 57, 456 (1953).
- [4] W. Krönig: Die katalytische Druckhydrierung von Kohlen, Teeren und Mineralölen. Springer, Berlin 1950; M. Höring u. E. E. Donath in Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie. 3. Aufl. Urban & Schwarzenberg, München 1958. Bd. 10, S. 483ff.
- [5] H. Broche, W. Reinmuth u. H. Weldmann in Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie. 3. Aufl. Urban & Schwarzenberg, München 1958. Bd. 10, S. 570ff.; G. W. Ibing: Extraktion von Steinkohle. Compendium Erdöl und Kohle, Vorträge der DGMK 1974/75. Bd. 1, S. 311ff.
- [6] G. Kölling: Kohleverflüssigung und Extraktion. Compendium Erdöl und Kohle, Vorträge der DGMK 1974/75. Bd. 1, S. 300ff.
- [7] Office of Coal Research, R & D-Report Nr. 53, Vol. I-V; W. C. Bull, C. H. Wright u. G. R. Pastor, US-Pat. 3884794 (1975); C. H. Wright u. G. R. Pastor, US-Pat. 3884795 (1975); US-Pat. 3892654 (1975).
- [8] Office of Coal Research, R & D-Report Nr. 39, Vol. I-V; R & D-Report Nr. 59; K. C. Hellwig, E. S. Johanson, C. A. Johnson, S. C. Schumann u. H. H. Stotler, Hydrocarbon Process. 45, Nr. 5, S. 165 (1966).
- [9] Office of Coal Research, R & D-Report Nr. 26; C. A. Johnson et al., Symposium Clean Fuels From Coal, Sept. 1973, Chicago; C. A. Johnson u. J. Y. Livingston, Symposium Coal Gasification and Liquefaction, Aug. 1974, Pittsburgh.
- [10] M. C. Sze u. G. J. Snell, DOS 2355539 (1973); DOS 2355606 (1973); DOS 2363064 (1973).
- [11] S. Akhtar, S. Friedmann u. P. M. Yavorski, Am. Chem. Soc., Div. Fuel Chem., Prepr. 16, 1 (1972); W. Kawa et al., ibid. 18, 192 (1974).
- [12] K. G. Goldmann: Liquid Fuels From Coal. Chemical Process Review Nr. 57, Noyes Data Corp., Park Ridge 1972; L. E. Swable, jr.: Synthetic Fuels Activities in the Western Hemisphere. Compendium Erdöl und Kohle, Vorträge der DGMK 1974/75. Bd. 1, S. 319ff.
- [13] Symposium Clean Fuels From Coal, Sept. 1973, Chicago, S. 383ff.
- [14] Symposium Clean Fuels From Coal, Sept. 1973, Chicago, S. 367ff.
- [15] S. A. Quader, R. A. Haddadin, L. L. Anderson u. G. R. Hill, Hydrocarbon Process. 48, Nr. 9, S. 147 (1969).