

# Werken aan scheikunde

*24 memoires van hen die de  
Nederlandse Chemie  
deze eeuw groot hebben gemaakt*

Uitgegeven door Delftse Universitaire Pers in 1993.  
(Copyright 1993 by Delft University Pers).

Met toestemming van IOS Press, Amsterdam  
op de KNCV/CHG website geplaatst.

Hoofdstuk

*J.C. Vlugter*

Eigenlijk geen scheikundige gebleven: chemisch technoloog  
(Oorspronkelijke pagina's: 63-87)

## Eigenlijk geen scheikundige gebleven: chemisch technoloog

*J.C. Vlugter*



- 7 maart 1905 geboren te Rotterdam*
- 1917-1922 2e HBS (Libanonweg) te Rotterdam*
- 1922-1927 studie Scheikundige Technologie Technische Hogeschool Delft: Ir. diploma 1927 (met lof)*
- 1927-1928 ingenieur bij gas- en waterleidingsbedrijf van Maastricht en Vaals*
- 1928-1934 medewerker van Prof.dr.ir. H.I. Waterman, Delft*
- 1932 promotie tot doctor in de Technische Wetenschap, Delft (met lof)*
- 1934-1959 dienstverband met Koninklijke/Shell. Diverse functies te Amsterdam, Den Haag, Pernis, Abadan, Stanlow, enz. Laatstelijk plaatsvervangend directeur van het KSLA*
- 1959 erelid Technologisch Gezelschap Delft*
- 1959-1963 hoogleraar Chemische Technologie, Technische Hogeschool Delft*
- 1962 voorbereiding oprichting Technische Hogeschool Twente*
- 1963-1971 hoogleraar Chemische Technologie Technische Hogeschool Twente*
- 1963-1965 voorzitter Afdeling Chemische Technologie Technische Hogeschool Twente*
- 1965 erelid Société de Chimie Industriële Parijs*
- 1965-1966 conrector Technische Hogeschool Twente*
- 1967-1971 rector Magnificus Technische Hogeschool Twente*
- 1969 erelid Alembic*
- 1970 erelid Dechema*
- 1971-1973 voorzitter Algemeen en Dagelijks Bestuur, Medische Faculteit Rotterdam*
- 1971 Ridder in de Orde van de Nederlandse Leeuw*

1971	<i>ere lid Koninklijk Instituut voor Ingenieurs</i>
1972	<i>voorzitter Koninklijke Nederlandse Chemische Vereniging</i>
1972-1974	<i>voorzitter Hoofdgroep Opleidingen, Koninklijk Instituut voor Ingenieurs</i>
1973-1974	<i>vice-voorzitter voorlopig College van Bestuur van de Erasmus</i>
	<i>Universiteit Rotterdam</i>
1974	<i>erepenning Medische Faculteit Rotterdam</i>
1977-1979	<i>voorzitter Nijverheidsorganisatie TNO</i>
1977	<i>ere lid Koninklijke Nederlandse Chemische Vereniging</i>
1979-1980	<i>adviseur Raad van Bestuur TNO</i>

*Werkterrein: petroleum- en petrochemische industrie*

## Inleiding

Toen ik in 1922 op 17-jarige leeftijd de HBS verliet wilde ik het liefst medicijnen gaan studeren, (fig. a) maar mijn ouders (mijn vader was onderwijzer) konden deze langdurige opleiding niet bekostigen: mijn 2<sup>e</sup> keuze was chemische technologie in Delft. Ook dat was een hele opgave voor mijn ouders, maar als spoorstudent (wij woonden in Rotterdam) en afstuderen binnen de programmatijd (5 jaar) zou het wel lukken.



Fig. a.

Mijn vader ging bijverdienen met avondlessen en mijn moeder keerde nog meer dan voorheen elk dubbeltje om voordat zij het uitgaf. Van een studiebeurs was in die tijd geen sprake. Mijn leraar voor scheikunde leerde me experimenten. Thuis deed ik tamelijk gevaarlijke proefjes (knaalgas) en verzilverde ik ballen voor de kerstboom. Maar verder vond ik het een moeilijk vak. Van grammoleculen en het getal van Avogrado snapte ik niets. Ik haalde amper een 7, ook op mijn eindexamenlijst. Ik wist helemaal niets van het ingenieurs beroep. Voorlichting was er toen nog niet. Mijn prestaties op het gebied van wiskunde en natuurkunde waren ook maar matig. Wat ging ik eigenlijk beginnen? Ik trof het met mijn hoogleraren. Geen van hen hadden in een industrie gewerkt of elders technologische evaring opgedaan, maar zij konden goed experimenteren. Dagelijks waren ze aanwezig in de laboratoriumzalen, spraken met elke student en deden proefjes voor, wanneer de student daar mede zat te stuntelen. Uit de eerste periode in Delft herinner ik mij nog levendig Prof. ter Meulen. Prof. Böeseken en vooral Prof. Scheffer. Het waren stuk voor stuk uitstekende docenten. Verder wil ik nog noemen Prof. M. de Haas die ons de thermodynamica (1<sup>e</sup> en 2<sup>e</sup> hoofdwet, entropie) trachtte bij te brengen. Prof. ter Meulen was een eerste klas analyticus. Bekendheid verwierf hij met zijn aanpak van de elementair analyse. Kwantitatief bepaalde hij koolstof, waterstof, zwavel, stikstof en zuurstof met zijn hoofdassistent Heslinga. Verder bepaalde hij molybdeen, cadmium en koper in menselijk en dierlijk bloed. Het analyseren heb ik van hem grondig geleerd en is mij later bij Prof. Waterman en mijn eerste Shell periode goed van pas gekomen. Prof. Scheffer doceerde anorganische chemie met belangstelling voor de fysische chemie. Van al mijn Delftse hoogleraren was hij de meest wetenschappelijke. Van chemische thermo had hij ook geen verstand tot Dr. van Laar hem op het spoor bracht. Aan het einde van mijn studie in Delft heb ik de beginsels van de chemische thermo van hem geleerd. Evenwichten, omkeerbare reacties, orde van de reacties en reactie kinetica etc. Hij stimuleerde de studenten in hoge mate, met zijn hulp richtten ouderejaars studenten een chemisch dispuut op; ik behoorde daartoe. De studentenvereniging 'Technologisch Gezelschap' hield zich hoofdzakelijk bezig met het organiseren van excursies naar vooral binnenlandse bedrijven: gasfabrieken, bierbrouwerijen, Van den Berg margarinefabriek, zwavelzuurfabriek van Ketjen, suikerfabrieken. spinnerijen en weverijen. De meesten hielden zich bezig met raffinage van natuurlijke grondstoffen: de chemische synthese zou na mijn afstuderen in 1927 met de oprichting van industriële chemische laboratoria pas op gang komen. Niemand heeft mij gestimuleerd om chemische technologie te gaan studeren. Integendeel twijfelde mijn natuurkundeleraar Van Nunen aan het welslagen in Delft. Alleen mijn ouders hadden vertrouwen in mij en dat wilde ik niet beschamen. In feite heb ik het welslagen in Delft en mijn industriële loopbaan te danken aan mijn wilskracht en doorzettingsvermogen. Mijn eigen chemische research periode is van relatieve korte duur geweest. Van 1928 tot 1934 bij Prof. Waterman en in mijn eerste KSLA periode van 1934 tot 1937. Daarna ben ik meer en meer als leider gaan optreden.

## Curriculum vitae van J.C. Vlugter

Zoals ik reeds aan het einde van mijn inleiding schreef ben ik na een relatief korte researchperiode op chemisch gebied als Delfts ingenieur en als leider van kleine tot zeer grote groepen van ongeschoolde tot geschoolde mensen; plaatsvervangend directeur van KSLA; Rector Magnificus van de TH Twente, voorzitter van het Bestuur van de Medische Faculteit van Rotterdam gevolgd door het vicevoorzitterschap van het College van Bestuur van de Erasmus Universiteit, voorzitter van de KNCV, eindigend als voorzitter van de Nijverheidsorganisatie TNO. Zoals ik in de inleiding ook al opmerkte zijn mijn chemische opleiding en ervaring me vrijwel overal goed van pas gekomen, maar daarnaast spelen natuurlijk andere eigenschappen als maatschappelijk cultureel inzicht en vooral het snel inwerken in nieuwe taken een belangrijke rol.

Als leider hanteerde ik de volgende principes:

- a. delegeren, waar mogelijk bevoegdheden en verantwoordelijkheden vooral op bestuurlijk en organisatorisch gebied.
  - b. stimuleer samenwerking in teams, vooral van interdisciplinaire aard. Alle technische en maatschappelijke problemen zijn en worden steeds meer multidisciplinair. Als voorbeeld noem ik biomedische technologie.
  - c. vertrouwen schenken in medewerkers die zelf met creatieve initiatieven komen.
- Lees met deze achtergrond bijgaande opsomming van functies en waarderingen.

## Mijn scheikundig technologische studie aan de TH Delft (1922-1927)

Zoals ik in de inleiding schreef moest ik binnen 5 jaar scheikundig ingenieur zijn om de offers die mijn ouders voor mij maakten te belonen. Zo is het ook gegaan. Ik volgde trouw de colleges, deed op tijd de vereiste tentamens en rondde op tijd (dikwijls daarbinnen) de opeenvolgende laboratoria af. Ik beschreef ook reeds hoeveel ik te danken had aan Prof. ter Meulen, Prof. Böeseke en Prof. Scheffer. Vanaf het 3<sup>e</sup> jaar ook aan Prof. Waterman.

## De aanloop van een succesvolle ingenieurs loopbaan

Na mijn afstudeerjaar (1926-1927) bij de steenkool expert Prof. Ir. G.A. Brender à Brandis werd ik meteen geconfronteerd met ongekende werkloosheid, ook van academici zelfs van scheikundige ingenieurs. Goed dat ik Brender à Brandis als afstudeerhoogleraar gekozen had, want hij had direct een interessante opdracht voor me. Veenders uit Drente hadden B à B benaderd met het volgende probleem. Een rietsuiker-employé van Ned. Oost Indië had de veenders een proces aangeboden, waarbij uit laag- en/of hoog-veen het water bij ca 10 atm. geperst kon worden, door aan het veen een kleine hoeveelheid sulfiet afvalloog (ligninehoudend) van de papierindustrie toe te voegen. De celwanden werden daardoor poreus gemaakt. Zonder dit middel moesten de Duitsers een mammoet pers gebruiken die

bij minstens 100 atm. druk hetzelfde kon bereiken. Mij werd gevraagd het procestechnisch en economisch te evalueren, waarvoor ik één maand de tijd kreeg. Onze opleiding in Delft was dominerend chemisch. Van economie hadden we geen ‘Ahnung’. Ik ging ter plaatse (Vriezenveen) kijken, sprak met de uitvinder en nam een paar turfbriketten mee. Deze bleken dezelfde verbrandingswaarde te hebben als bruinkoolbriketten, terwijl de turfbrieket veel minder as achter liet bij verbranding. Op mijn manier maakte ik een fabrieksschema, schatte de investerings-kosten en de ‘utilities’ (benodigde hoeveelheden gas, elektriciteit en water) en kwam tot de slotsom, dat een behoorlijke winst op de turfbrieket gemaakt kon worden, indien de briketten per schip naar de randstad vervoerd zouden worden en compost van het huisvuil als retourvracht zou dienen. Binnen een maand bracht ik het rapport uit aan Prof. Brender à Brandis die zich met de inhoud kon verenigen. De veenders trachtten met Prof. B à B de Gemeentebesturen van Amsterdam, Rotterdam en Den Haag ervan te overtuigen dat hun voorstel *de* oplossing zou zijn voor hun problemen, namelijk verlost te worden van het huisvuil en over een goedkope, as- en zwavelarme brandstof voor hun centrales te beschikken. Geen van de 3 Gemeenten gingen accoord, omdat zij het transport van het huisvuil niet aan particulieren wilden toevertrouwen en het transport per schip in verband met ijsgang in de winter onaanvaardbaar vonden.

Kort daarop starten Amsterdam en Rotterdam met vuilverbranding en Den Haag met het railtransport naar Wijster, waar het vuil werd en nog wordt gescheiden en circa 50% dient als compost. Jammer dat de overheid het niet eens kon worden met particulieren en dat privatiseren taboe was. Den Haag heeft nog de beste weg gekozen. Nu nog speelt Wijster een belangrijke rol in de opvang en verwerking van huisvuil.

Alleen ik had bij deze affaire gewonnen. Ik kreeg f100,-- honorarium en was op 22-jarige leeftijd ineens *ingenieur* geworden. Vandaag worstelen overheden meer dan ooit met afvalproblemen. Had men toen B à B’s voorstel naar gehonoreerd.

Prof. Brender à Brandis zorgde er voor dat ik als ingenieur werd aangesteld bij de Gasfabrieken van Maastricht en Vaals en daarbij ook verantwoordelijk was voor de kwaliteit van het drinkwater. Daarbij kwam goed van pas dat ik in Delft een cursus van de Medische hoogleraar Van Sleswijk ‘technische hygiëne’ had gevolgd.

Omdat in 1927 al vast stond, dat de Staatsmijnen de gasleverancier in het gehele zuiden van ons land zou worden kon ik als creatief ingenieur weinig doen. Na een half jaar kon ik bij Prof. Waterman voor de BPM geplaatst worden.

## De ‘Watermanperiode’ (1928-1934)

Na de economische inzinking (1925-1927), waarin een Delftse ingenieur blij moest zijn met een jaarsalaris van f1500,-- trad plotseling een helaas van korte duur zijnde opleving op. De grote firma’s boden aankomende ingenieurs f 3 à 4000,-- per jaar. De kunstzijde industrie zag een toekomst voor halve en volsynthetische vezels en Shell voor de productie van chemische produkten uit de gasvormige bijprodukten van de thermische ‘Dubbs’ krakers, waarvan er één in de B.P.M. raffinaderij in Pernis zou komen. Met Hoogovens (Staatsbedrijf) richtte Shell de Mekog (Maatschappij voor Exploitatie van

Kokes-Oven Gas) op en nam het initiatief om in de USA (Emmeryville) en Nederland (KSLA) speciale laboratoria in te richten voor de bereiding van nieuwe chemicaliën op basis van aardolie; het begin van de 'petrochemie'. Daarbij kwam nog, dat de B.A.S.F. (Badische Aniline und Soda Fabrik) van de I.G. Farbenindustrie te Ludwigshafen onder leiding van Dr. Matthias Pier zwavel-immune hydrogeneerkatalysatoren - bestaande uit oxiden en sulfiden van de 6e groep van het periodiek systeem - had uitgevonden en geïmplementeerd rond 1926-1927. Daardoor werd voor Duitsland en Engeland door gebrek aan eigen aardolie-bronnen het zogenaamde 'Kohleverflüssigung' ineens veel belangrijker. Maar ook Shell en de Standard Oil of New Jersey waren in de omzetting van zware hoog-moleculaire residu's door middel van destructieve hoge druk hydrogenering in laagkokende producten als dieselolie, huisbrandolie, gasolie, petroleum, terpentijn en benzine geïnteresseerd. Met z'n vieren stichtten zij de 'International Hydrogenation Pool' met de I.H.E.C. (Int. Hydr. Engineering Company) als werkmatschappij met vestiging Den Haag. Omdat Prof. Waterman rond zijn benoeming in 1919 als hoogleraar voor scheikundige technologie te Delft geïnteresseerd was in de omzetting van steenkool door middel van destructieve hydrogenering onder druk en daarvoor roterende hogedruk autoclaven had aangeschaft\* sloot de BPM in 1927 een contract met hem voor de bestudering van de nieuwe katalysatoren van BASF. Hij mocht ook een aantal academici in dienst nemen. Begin 1928 bood Waterman mij zo'n assistentschap aan à raison van f 3000,- per jaar. Ik ging als persoonlijk medewerker van Prof. Waterman voor de BPM werken. De resultaten van het onderzoek mochten zonder meer niet gepubliceerd worden en waren eigendom van de BPM; wat we nu contractresearch noemen.

Reeds werkten Dr.ir. J.N.J. Perquin en Ir. J.S. Doting voor dit doel bij Waterman. Perquin ging spoedig na mijn komst over in Shell dienst, terwijl Doting kort daarna er ook de voorkeur aan gaf om met pensioenrechten in Shell dienst te gaan werken. De inmiddels bij Waterman gepromoveerde Dr.ir. H.A. van Westen werd in 1931 aan mij toegevoegd. Samen hebben wij toen gedurende 3 jaar bijzonder veel en goed onderzoek verricht; mogelijk de mooiste research periode van mijn gehele carrière.

Maar laat ik beginnen bij 1928, mijn terugkeer naar TH Delft, nu als wetenschappelijk medewerker. In die dagen was er nog geen sprake van een samenwerking met BASF en moesten Doting en ik de octrooien van de I.G. toetsen en proberen betere katalysatoren te vinden. Wij gingen uit van Duitse bruinkool waarvan we de hogedruk 2l autoclaven met enkele procenten katalysator voor ongeveer een derde vulden. De autoclaaf was voorzien van een manometer, bestand tegen een druk van 250 atm.

---

\* In het ter gelegenheid van Watermans aftreden als hoogleraar in 1959 heeft Dr. D.W. van Krevelen onder de titel 'Waterman en de steenkoolchemie' een uitstekend artikel geschreven in het boekwerk 'De Oogst'.

Na sluiting werd uit cylinders waterstof toegelaten tot een druk van 100 atm., de autoclaaf in rotatie gebracht en op veilige door een muur met kijkaten beschermde afstand door gasbranders opgewarmd een gedurende 30 minuten op 450°C gehouden.

Tijdens opwarmen, op 450°C houden en afkoelen werden temperatuur en druk regelmatig genoteerd. De drukval was een maat voor de activiteit van de katalysator (fig. 1). De gasvormige, vloeibare en vaste reactieproducten werden quantitatief geanalyseerd. Door onze prima analytisch getinte opleiding waren we daartoe in staat.

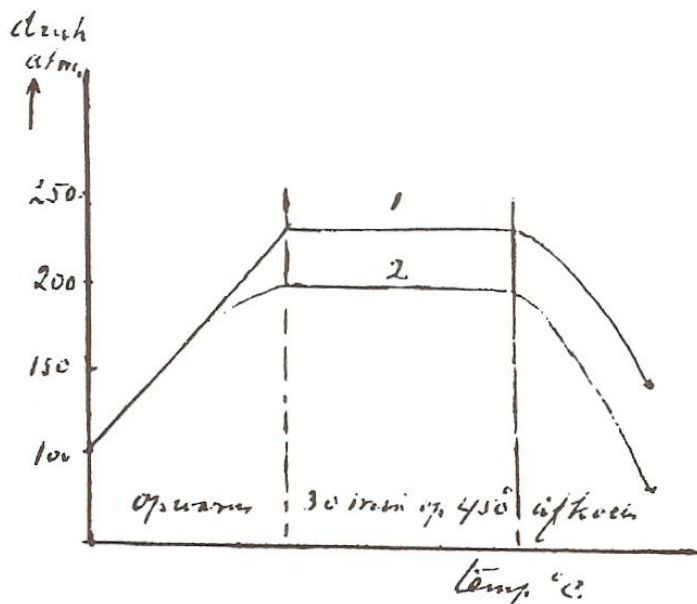
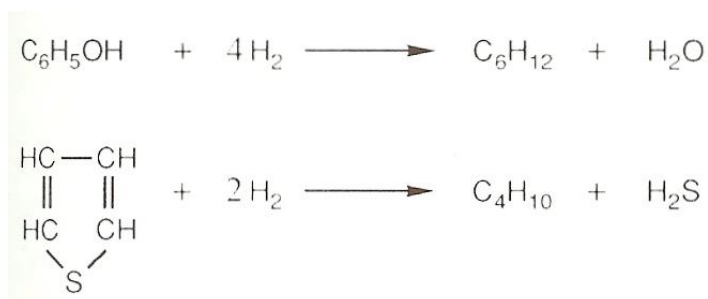


Fig. 1. 1. Geen hydrogeneren: alleen kalking; slechte katalysator. 2. Reeds hydrogenering tijdens opwarm periode: lage druk na volledige afkoeling; goede katalysator.

Omdat ik tijdens mijn afstudeerperiode (1926-1927) een scriptie voor Prof. Waterman had gemaakt over 'de chemische structuur van kolen' wist ik voor die tijd veel over het inkolingsproces (hout-turf-bruinkool-vette kool-gaskool-magere kool-anthraciet) en daardoor over de ingewikkelde zwavel, stikstof, zuurstof en koolstof bevattende verbindingen. Zowel van de door ons als grondstof gebruikte bruinkool als van de reactieproducten maakte ik een volledige C, H, O, S en N analyse. Zodoende kon ik de waterstofopname (die met de drukval moest overeenkomen) analytisch meten en ook hoeveel gebonden -S was omgezet in  $H_2S$ , -O in  $H_2O$  en -N in  $NH_3$ . Uit deze analyse bleek zonneklaar, dat de vloeibare en vaste reactieproducten bij gebruik van een goede katalysator vrijwel geen zwavel en zuurstof meer bevatten, maar wel stikstof verbindingen. Dit geconstateerd hebbende zette ik in modelproeven heel vlot met  $MoO_3$

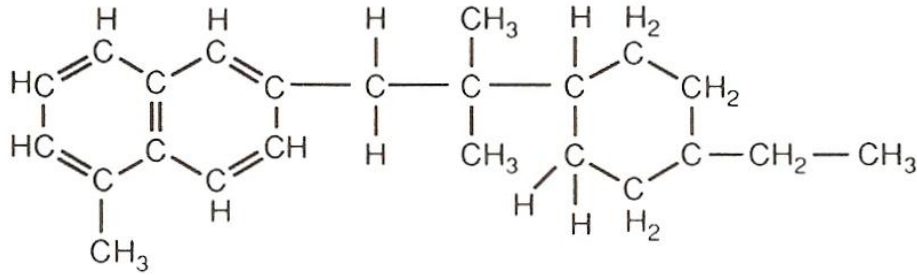


als katalysator en met waterstof onder druk rond 400°C, phenol om in cyclohexaan en water, en thiofeen in butaan en H<sub>2</sub>S dus:



Het ontzwavelingsproces, dat later zo'n belangrijke rol zou gaan spelen in de aardolie en petrochemische industrie was geboren! Dr. Ir. H. Hoog heeft kort na de 2e wereldoorlog het 'Shell-trickle-phase' proces op grote schaal ingevoerd. Met zijn zeer selectieve cobalt-molybdeen katalysator een lage werkdruk en gasomloop was zijn proces economisch verantwoord.

Met mijn modelproeven moest ik helaas constateren dat aniline en pyridine vrijwel geen stikstof in de vorm van NH<sub>3</sub> afstoten; daarvoor waren veel hogere reactietemperaturen nodig. Met Hein van Westen heb ik het zoeken naar octrooieerbare katalysatoren nog een tijdje voortgezet. We hadden succes met koper- en chroomhoudende katalysatoren. BPM nam er octrooi op. Toen in 1931-1932 samenwerking met BASF middels de IHP en IHEC tot stand kwam, hadden onze autoclaaf proeven geen zin meer. Shell kon de nodige informatie rechtstreeks van de I.G. krijgen, KSLA ging een pilotplant opzetten om residuale aardoliefracties volgens het 'Sumpffase' proces in 'middeldestillates' en benzine om te zetten. Van Westen en ik waren beiden geïnteresseerd in de chemische samenstelling van de hoogmoleculaire minerale olie, Van Westen vanuit zijn proefschrift (het waterstofgetal en eenige toepassingen, 1931) en ik vanuit mijn scriptie voor Waterman en de bovengenoemde analyse van bruinkool. Het had geen zin de samenstelling van individuele componenten in residuale aardolie te identificeren, omdat zelfs een benzine kokend tussen 40 en 220°C al een dusdanig ingewikkeld mengsel van alifatische, aromatische en naftenische koolwaterstoffen is, dat het ondoenlijk is de afzonderlijke componenten door gefractioneerde destillatie en/of extractie in handen te krijgen. Wij kwamen op de gedachte de samenstelling van hoogkokende aardolie fracties te determineren met percentage koolstof in aromaatringstructuur, in nafteenringstructuur en in paraffinestructuur, bijvoorbeeld:



Dit is een koolwaterstof met 23 koolstofatomen, waarvan er 10 voorkomen in ‘aromaatringstructuur’, 6 in ‘nafteenringstructuur’ en 7 als ‘paraffinische ketens’.

Dus is:

% C<sub>A</sub> (% C in aromaatringstructuur) 43,5

% C<sub>N</sub> (% C in nafteenringstructuur) 26,1

% C<sub>P</sub> (% C in paraffinestructuur) 30,4

Door van een oliefractie de waterstof-opname bij volledige hydrogenering te bepalen, waardoor het % C<sub>A</sub> kan worden vastgesteld en middels de bepaling van de moleculaire refractie van Lorentz-Lorenz

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \cdot \frac{M}{d}$$

van de volledig gehydrogeneerde oliefractie te meten kon % C<sub>N</sub> en % C<sub>P</sub> berekend worden. In de Lorentz-Lorenz formule is n de berekeningsindex, d de dichtheid of het soortelijk gewicht en M het moleculair gewicht.

Grafisch zetten we de specifieke refractie tegen het moleculair gewicht aldus uit (fig. 2):

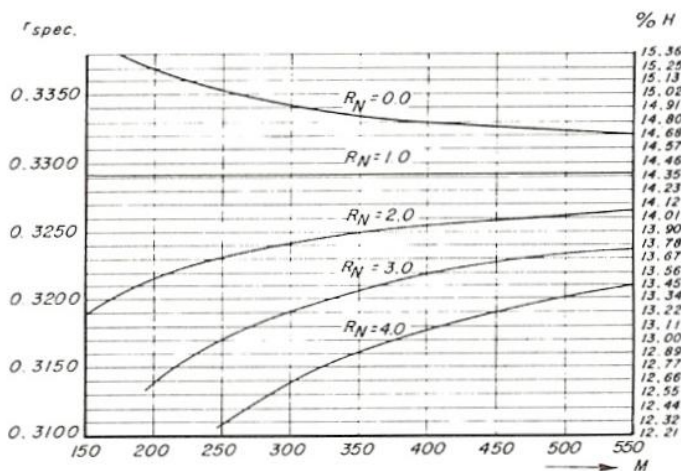


Fig. 2. Eerste ‘ringanalyse’ diagram volgens Flugter, Waterman en Van Westen.

In dit diagram staat met een x het boven beschreven molecuul met 3 ringen (2 aromatisch en 1 naftenisch) afgebeeld. De spec. refractie was 0,3320 en het molecuulgewicht is 307. Na volledige hydrogenering was de spec. refractie 0,3194. Later hebben we de voor het % C<sub>A</sub> omslachtige meting van de waterstofopname vervangen door de verandering van het anilinepunt. Om nog meer te weten te komen over de aard van de ringen (5 of 6 ring), over de binding van de ringen en vertakkingen van ketens zijn we meer fysische constanten gaan meten. Onze eerste publicatie verscheen in het *Chemisch Weekblad*, **29**, pg 226-232 in 1932 en werd kort daarop gevolgd door mijn dissertatie (10 november 1932).

### **Publicaties van chemisch technologisch onderzoek tussen 1928 en 1934**

[als wetenschappelijk medewerker van Prof. dr. Ir. H.J. Waterman ten behoeve van de Bataafse Petroleum Maatschappij (BPM)].

1. J.C. Vlugter, H. I. Waterman, H.A. van Westen, Verbeterde methoden voor het onderzoek van Minerale oliën, in het bijzonder van de hoogkokende bestanddeelen, *Chemisch Weekblad*, **29**, Nr. 15 (1932), 226-232.
2. J.C. Vlugter, H.I. Waterman, H.A. van Westen, Improved Methods of Examining Mineral Oils, Especially the High Boiling Components of Non-Aromatic Character, *Journal of the Institution of Petroleum Technologists*, **18** (1932), 735/750 (Engelse vertaling van 1.)
3. J.C. Vlugter, *Over de chemische samenstelling van hoogmoleculaire Minerale oliën*, dissertatie Technische Hogeschool Delft, 10 november 1932.
4. J.C. Vlugter, H.I. Waterman, H.A. van Westen, Improved Methods of Examining Mineral Oils, Especially the High Boiling Components, *J. Inst. Petr. Techn.*, **21** (1935), 661/676.
5. J.C. Vlugter, H.I. Waterman, H.A. van Westen, The analyses of hydrocarbon oils, *J. Inst. Petr. Techn.*, **19** (1933), 1035.
6. J.C. Vlugter, H.I. Waterman, H.A. van Westen, Przemyslu Naftoweg, *Zeszyt*, **18** (1936), 2.
7. J.C. Vlugter, H.I. Waterman, H.A. van Westen, Improved Method of Examining Mineral Oils, Especially the High Boiling Compounds II. The specific Dispersion as a means for the Detection of Aromatic Rings and Other Unsaturated Compounds in Hydrocarbon Mixtures, *J. Inst. Petr. Techn.*, **21** (August 1935), 701-708.
8. J.C. Vlugter, H.I. Waterman, H.A. van Westen, The Application of Graphical and Statistical Methods of Hydrocarbon Analysis to Diesel Fuels, *J. Inst. Petr. Techn.*, **25** (1939), 678/683.
9. J.J. Leendertse, J.C. Vlugter, H.I. Waterman, H.A. van Westen, Enige graphisch-statistische Methodes, gericht op de bepaling van de chemische samenstelling van Natuurlijke Koolwaterstofmengsels, *Chem. Weekblad*, **39**, nr. 22 (1942), 282/288.

Prof. Waterman liep warm voor de grafisch statistische aanpak; liet een 20-tal studenten erop afstuderen, om nieuwe verbeteringen te publiceren en hield doorlopend over de ringanalyse in binnen- en buitenland lezingen. Verder gingen velen van zijn medewerkers het grafisch statistisch systeem toepassen op andere produkten als vetzuren esters, polymeren, zwavel bevattende mengsels en glazen. Zij wilden meer te weten komen over vertakkingen, binding van aromaatring en isomerisatie etc. Zij voerden een aantal fysische constanten in. Ik noem daarvan de spec. parachor (oppervlakte spanning/dichtheid relatie, de magneto-optische rotatie (Faraday effect), de geluidssnelheid en de kinematische viscositeit. Een aantal van Waterman's studenten en wetenschappelijke medewerkers zijn er op afgestudeerd en/of gepromoveerd. Van de laatste groep noem ik Leendertse (1934) C. Boelhouwer (1952) H. Geelen (1956) Cornelissen (1957) en nadat ik de leerstoel van Waterman had overgenomen F.C. Eversteijn (1960) en Gouw Tan Hok (1962).

Als afscheidspresent publiceerde H.I. Waterman met C. Boelhouwer en J. Cornelissen bij Elsevier Amsterdam in 1958, het boek 'Correlation between physical constants and chemical structure'. Het enthousiasme sloeg ook over naar het Centraal Laboratorium van de Staatsmijnen (nu DSM) waar Dr. D.W. van Krevelen de inkoling van hout via vele tussen produkten in zijn  $\frac{H-O}{C-C}$  diagram vastlegde (fig. 3).

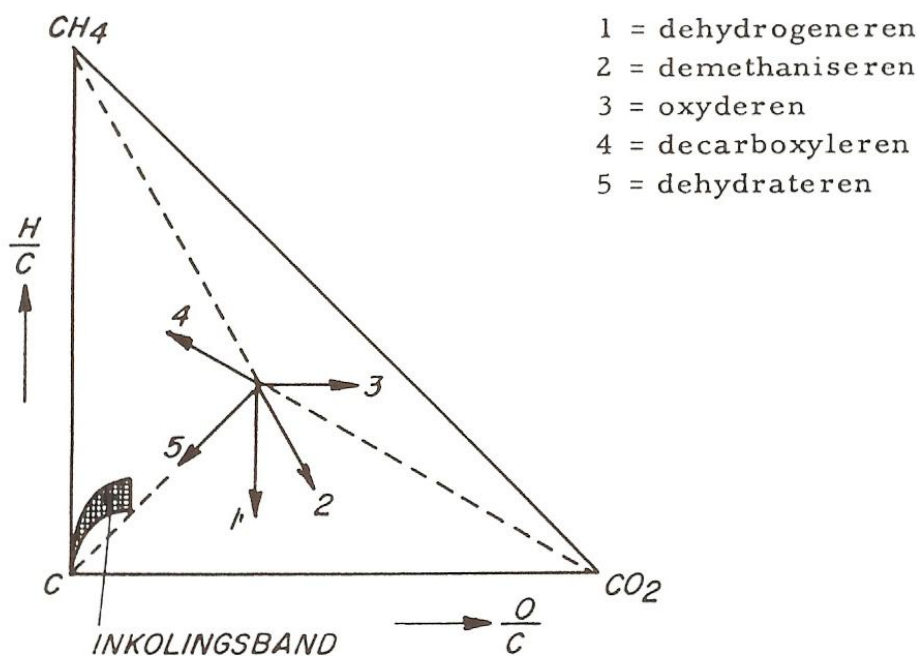


Fig. 3. Het  $\frac{H-O}{C-C}$  diagram volgens Van Krevelen in 'Coal', *Typology, Chemistry,*

*Physics and Contributions, Elsevier, Amsterdam 1961.*

In het Shell Laboratorium te Amsterdam werd een afdeling opgericht om de n.d.M-methode - zoals de ringanalyse daar genoemd werd - verder uit te diepen. De leiding was in handen van Dr. H.J. Tadema en medewerkers waren Dr.ir. J. Smittenberg en Dr. K. van Nes.

Zij zetten de spec. refractie uit tegen

$$\frac{1}{\text{m.g}}$$

waardoor alle lijnen recht werden. Verder gingen zij de ingewikkelde fracties door gefractioneerde destillatie, selectieve adsorptie en thermofusie eerst scheiden in karakteristieke concentraten alvorens er de n.d.M -methode op los te laten. Van Westen en ik vonden, dat we genoeg analytisch werk hadden verricht en gingen onze analytische aanpak toepassen op processen en produkten. We kregen daar ook opdrachten voor van onze 'bazen' in Den Haag. We leefden in de tijd dat de auto-fabrikanten van de oliemaatschappijen een smeerolie eisten met een hoge Viscosity Index (H.V.I. oils). H.V.I. betekende een hoog mol. gewicht (zeg 500) met een redelijk lage viscositeit bij kamertemperatuur en een voldoende hoge viscositeit bij de hoge temperatuur van de motor in bedrijf. Een bepaalde Pennsylvanische olie kreeg het stempel H.V.I. 100. Een lage L.V.I. olie was vrijwel stijf bij kamertemperatuur (men sprak van vogeltjeslijm) had een mol. gewicht van ca. 350) en had een lage viscositeit in de draaiende motor. Een bepaalde Borneo olie kreeg het stempel L.V.I. = 0.

Aan ons de vraag of we in staat waren van zo'n Borneo smeerolie een H.V.I. olie te maken, die vergelijkbaar was met een Pennsylvanische smeerolie.

We pasten de ring analyse toe op beide smeerolieën.

	<b>Pennsylvanische Olie</b>	<b>Borneo Olie</b>
mol. gewicht	525	349
$n_d^{20}$	1,4806	1,5420
$d^{20/4}$	0,8809	0,9690
$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \cdot \frac{1}{d}$	0,3280	0,3248
% C in aromaat ring	9	30
% C in naftalen ring	17	31
% C als paraffine rest	74	39

Aan de spec. refracties zien we niet veel; wel aan het enorm hoge soortelijke gewicht en aan het lage mol. gewicht van de Borneo olie.

Wat zijn de mogelijke wegen om de samenstelling van de H.V.I. olie te bereiken?

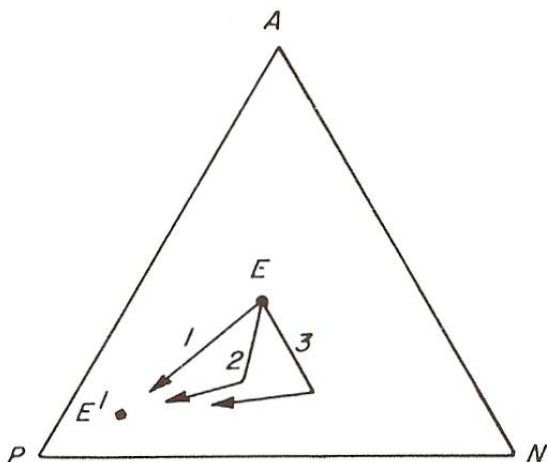


Fig. 4. De omzetting van een produkt in een paraffine rijker produkt.

In figuur 4 staat A voor 100% aromaat ring, N als 100% nafteen ring en P als 100% paraffine. De Borneo olie is aangeduid met E en de Pennsylvanische olie met E'. Door een katalytische destructieve hydrogenering onder hoge druk zou men de gewenste samenstelling (pijl 1) kunnen bereiken. Het rendement is echter laag en het H<sub>2</sub>-verbruik hoog, omdat aromaat ringen worden gehydrogeneerd, geopend en gedestruueerd. Men zou de aromaat ringen eerst selectief kunnen hydrogeneren om vervolgens een groot gedeelte van de nafteen ringen selectief te openen (pijl 3). Is het hoge waterstof verbruik te duur, dan zou men kunnen overwegen door een selectieve vloeistof/vloeistof extractie de meest aromatische molekulen te verwijderen en de rest destructief te hydrogeneren (pijl 2).

In ieder geval zal men na deze bewerkingen een groot deel door destillatie moeten verwijderen, om als residu een smeerolie met mol. gewicht van ruim 500 over te houden.

Met onze kennis van genoemde fysische en chemische processen konden we zonder enig proceswerk berekenen dat het rendement max. 1 % zou zijn.

Op smeeroliegebied is Van Westen paraffine-wax gaan alkyleren met benzeen, naftaleen en tetraline om met succes smeerolieën van het Pennsylvanische type te maken.

In die tijd dacht men, dat deze H.V.I. olie uitsluitend bestond uit isoparaffinen. Gelukkig niet, want dan zou die in een hete motor sneller afbreken.

Mijn werk bij Waterman liep ten einde. In 1934 kwam ik in dienst van K.S.L.A. en werd een echte Shell man. Enkele van onze vindingen op het gebied van de destructieve hydrogenering van bruinkool werden door Shell vastgelegd in octrooien. De karakterisering van de structuur van aardolie fracties en residus, met de toepasbaarheid daarvan werd door K. van Nes en H.A. van Westen met een inleiding van mij en voorwoord van Prof. Waterman in het door Elsevier in 1951 uitgegeven boek 'Aspects of the Constitution of Mineral oils' weergegeven. Dit boek is daarna vertaald in het Russisch en Pools. Ter gelegenheid van het afscheid van Prof. Waterman in 1959 werden de 'Grafisch Statistische Identificatie Methodes' vastgelegd in 'De Oogst' door J.C. Vlugter, H.A. van Westen en J.J. Leendertse.

## De eerste K.S.L.A. periode (1934-1937)

Na 6 jaar Prof. Waterman gediend te hebben voor de B.P.M. te Delft, verhuisde ik in 1934 naar Amsterdam, om in K.S.L.A. bij de in 1927 opgerichte 'Afdeling Chemie' onder Ir. A.J. van Peski te gaan werken. Ik viel met mijn neus in de boter, omdat de grote pilot plant van de I.G. Farben industrie voor de zogenaamde Sumpffase Hydrierung door Perquin met hulp van Duitse vaklieden in elkaar was getimmerd en Ir. Doting tevergeefs trachtte de installatie aan de praat te krijgen. Doting werd spoedig overgeplaatst om een uit de USA verscheepte Dubbs-Kraker-pilot plant op te tuigen en bedrijfsklaar te maken. Ik stond toen met een drietal MTS'ers als 'headoperator' in mijn eentje voor de 'Sumpffase Hydrierings' klus. Daar moet je in eerste instantie een Delftse *ingenieur* voor zijn met een geringe voorkeur voor *scheikundig* ingenieur.

Waar de Duitsers de destructieve hydrogenering onder waterstof drukken van 2 à 300 kg/cm<sup>2</sup> van een zeer fijn gemalen bruinkool-brei, waarin een kleine hoeveelheid pasta van MoO<sub>3</sub> op 'Grude' (actieve charcoal) gedispergeerd was bij temperaturen van 470 à 475 °C uitvoerden, moesten wij hetzelfde doen met zware 'straight-run' of gekraakte aardolie residu's.

Als reactor dienden 2 lege achter elkaar geschakelde pijpen, waar doorheen de voorgewarmde slurry van asfalten rijke olie en katalysator van onder naar boven getranspoort werd door circulerende waterstof onder een druk van 270 kg/cm<sup>2</sup>. De bedoeling hierbij was de asfaltenen om te zetten in maltenen en deze licht te kraken tot zogenaamde 'middel destillates' (gasolie). Er mocht niet te veel lichte benzine componenten en methaan gemaakt worden, omdat dat teveel dure waterstof kostte en er mocht maar weinig onomgezet residu met de daarin gesuspendeerde katalysator als 'Abschlamm' continu afgevoerd worden.

De reactietemperatuur was uiterst belangrijk. Indien deze lager was dan 470 °C vlokten de asfalten uit en verstopten de reactor in korte tijd. Indien de temperatuur boven 475 °C kwam te liggen verdampten zelfs de zwaarste oliecomponenten en werd de katalysator als stof uit de reactor geblazen en verstopte dan de koelers. We moesten dus nauwgezet tussen 470 en 475 °C werken in een zogenaamde 'dense-phase', hetgeen in de dertiger jaren heel moeilijk was omdat de benodigde meet- en regelinstrumenten in Nederland nog niet beschikbaar waren. Het is ons niettemin gelukt Venezolaanse residu's en zelfs een zeer moeilijk om te zetten gekraakt Irak residu bevredigend destructief te hydrogeneren. Ik wil mijn verslag hiermede besluiten en verwijzen naar bijgaande publicaties van E.L. Masthoff (mijn chef in het Hoofdkantoor Den Haag) en J.C. Vlugter, getiteld 'Hydrogenation des résidus de raffinerie' in *Science et Industrie*, (1936), 81-83. Voor beschrijving van apparatuur en omzetten van een Venezolaans residu en een bijdrage voor het 2de Wereld Petroleum Congres in 1937 te Parijs van J.C. Vlugter, getiteld 'Hydrogenation de résidus, notamment de résidus du cracking en carburants et en essence d'aviation'. In dit artikel wordt niet alleen de 'Sumpffase Hydrierung' maar tevens de omzetting van het 'middel distillate' in de gasfase over een vastopgestelde katalysator in

vliegtuig en motorbenzine (carburant).

Ik kom dan nu te spreken over deze tweede bewerking. Het middeldistillate, kokend tussen 160 en 400 °C werd onder een druk van 200 kg/cm<sup>2</sup> van boven naar beneden gedruppeld (met de hand geregeld en te zien door een hogedruk kijkglas) op een bed van chamotte steentjes, waar alle component met behulp van circulerende waterstof in een van buiten elektrisch verwarmde reactor op 400 à 420 °C gasvormig gemaakt. Onder de steentjes bevond zich de katalysator in de vorm van samengeperste cilindertjes van 3 bij 3 mm.

*Tot zo ver kwam Vlugter met het schrijven van zijn memoires. Naar aanleiding van zijn dood zijn er verschillende artikelen\* geschreven over zijn leven en werk. Deze zijn gecoördineerd door zijn leerling en medewerker Dr. Frans Goudriaan. Hij schreef tevens een inleidend artikel in het februarinummer 1992 (blz. 68-70) van het Chemisch Magazine. Hieronder nemen we dit aandenken aan Vlugter in zijn geheel over.*

\* Vlugter en het Technisch Wetenschappelijk Onderwijs, door Prof. dr. P.J. Gellings in: *De Ingenieur*, nr.2 (1992), 35-37.

Prof. Vlugter: strijdbaar tot het laatst, door F. Goudriaan in: *Proces Technologie*, (februari 1992), 38-39.

Vlugter bezorgde KSLA vooraanstaande plaats, door H. Hoog in: *Idem*, 40-43.

Vlugters aandeel in hoge druk hydrogenering, door S.T. Sie: in *Idem*, 44-50.

Van Delft via Twente naar Boston en Delaware, door Frans Goudriaan in: *Chemisch Magazine*, 71-73.

Vlugters ideaal getoetst aan de Rochow synthese, door Ruud Voorhoeve in: *Idem*, 74-75.

De hoogleraar die doceert vanuit de praktijk, door Kees Baas in: *Idem*, 75-76.

Vlugters suikerchemie nog steeds actueel, door Gerrit van Ling in: *Idem*, 76-79.

## Onder de bezielende leiding van Vlugter

Vlugter was een procestechnoloog met uitzonderlijk brede vakkennis en ervaring. Hij was een wetenschapper op hoog niveau, doorkneed in de industriële toepassingen en met oog voor de proceseconomie. Hij is waarschijnlijk één van de laatsten geweest met zo'n breed overzicht over het hele veld van de chemische technologie.

Op 2 juli 1991 overleed Prof.dr.ir. Johannes Cornelis Vlugter, erelid van het KIVI en de KNCV. Vlugter was een groot stimulator bij de opbouw van de Nederlandse petrochemische industrie. Daarnaast leidde hij een groot aantal chemisch technologen op en gaf vorm aan een stuk van het Nederlandse technisch-wetenschappelijke onderwijs. De manier waarop groepjes van vier 3<sup>e</sup> en 4<sup>e</sup> jaars- baccalaureaatsstudenten vanaf 1966 hun opdracht 'industriële processen en producten' uitvoerden was projectonderwijs avant la lettre. Vlugter was bij medewerkers en studenten geliefd om zijn enthousiasme en



bezieling, om zijn humor en om zijn aandacht voor mensen. Ieder kende zijn schaterende lach, tijdens een feestje of midden in een bijna vastlopende vergadering.

### *Vele functies en erelidmaatschappen*

Vlugter vervulde vele functies. Zo was hij in 1948 mede oprichter en eerste voorzitter van de Afdeling Chemische Techniek van het KIVI. Hij was bestuurslid en voorzitter van de KNCV. In 1955 werd hij lid van het comité van de European Federation of Chemical Engineering en in 1957 zat hij het eerste European Symposium on Chemical Reaction Engineering voor.

In 1971 werd Vlugter benoemd tot Ridder in de Orde van de Nederlandse Leeuw. Voorts had hij verscheidene erelidmaatschappen: van de Société de Chimie Industrielle (Parijs 1965), de Dechema (Frankfurt a. M. 1970), KIVI (1971), KNCV (1977) en van de studieverenigingen Technologisch Gezelschap (1959) en Alembic (1969). Hij was drager van de erepenning van de Medische Faculteit, Rotterdam (1974).

### *In de aardoliechemie*

Vlugters vroege wetenschappelijke werk lag op het terrein van de aardoliechemie. In de groep van professor Waterman aan de TH Delft werd in navolging van Bergius, gewerkt aan de hydrogenering onder hogedruk van steenkool en zware oliefracties met het doel vloeibare koolwaterstoffen te bereiden. De verkregen producten waren zo ingewikkeld van samenstelling dat bepaling van afzonderlijke componenten onmogelijk was. Samen met Waterman en H.A. van Westen ontwikkelde Vlugter de 'ring-analyse'. Dit leidde tot zijn proefschrift 'Over de chemische samenstelling van hoogmoleculaire olie' Later is hieruit de welbekende n-d-M methode ontstaan voor het bepalen van de constitutie van minerale olie. Deze is gebruikt over de gehele wereld totdat de moderne spectroscopische technieken opkwamen.

In 1934 trad Vlugter in dienst van het Koninklijke/Shell Laboratorium Amsterdam. Hier voerde hij semi-technische processtudies uit op het gebied van het hydrogeneren van zware aardolieresiduen. Hij bouwde daarbij voort op het werk van Bergius en Pier. Het proces verliep in twee stappen: de 'Sumpffase' stap en de gasfase stap. Dit type werk bracht een aantal processen voort die heden ten dage op grote schaal worden toegepast. Bekende voorbeelden zijn het katalytisch ontzwellen en hydrogeneren van o.a. gasolie en het hydrogeneren omzetten van residuen en destillaten. Meer hierover is te lezen in Proces Technologie van deze maand in het artikel aan de hand van Sie, Vlugters (en Watermans) oud-medewerker.

### *Straatje van Vlugter*

In de oorlog ging het er om de werknemers van KSLA aan het werk te houden zonder voor de bezetter te werken. Dit voorkwam tewerkstelling in Duitsland. Vlugter had toen mede de leiding over het uitvoeren van 'externe opdrachten', zoals de semi-technische bereiding van sorbitol, de grondstof voor vitamine C.

Na de oorlog was Vlugter vooral betrokken bij het ontwerpen en in bedrijf stellen van nieuwe petrochemische procesinstallaties. Ook zette hij zich in voor het bouwen van vele

proeffabrieken op het KSLA. Oudere medewerkers herinneren zich nog de benaming ‘het straatje van Vlugter’ tussen de huidige proefhallen 6 en 7 (fig. 5).

Vlugter vervulde bij Shell vele functies, vooral in Den Haag en Amsterdam. Over Vlugters ‘Shell-tijd’ en de opbouw van een stuk petrochemische industrie in die periode gaat het artikel van Hoog in *Proces Technologie* van deze maand. Hoog was destijds ook werkzaam bij Shell.

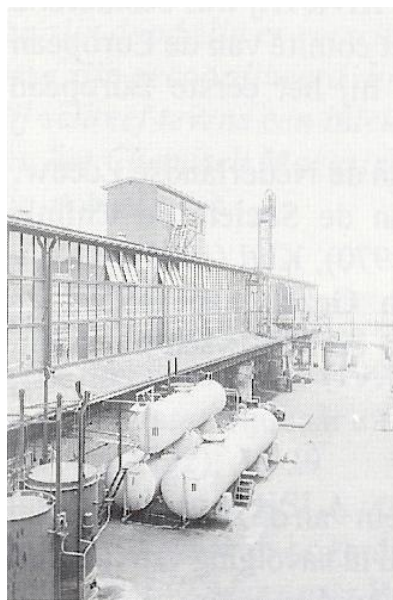


Fig. 5. 1946- Het ‘straatje van Vlugter’ gelegen tussen de huidige proefhallen 6 en 7 van het KSLA. Vlugter zette zich na de oorlog in voor de bouw van vele proeffabrieken op het KSLA, waardoor zijn naam al snel werd verbonden aan het gebied ertussen.

#### *Inspirerend onderzoek aan de Technische Hogeschool Delft*

In 1959 werd Vlugter hoogleraar in de Chemische Technologie aan de TH Delft als opvolger van Professor Waterman. Onder Vlugters leiding zijn in Delft en Twente ruim honderd ingenieurs afgestudeerd en vonden ruim twintig promoties plaats. Zijn studenten en medewerkers leerden hem kennen als een man met grote inzet en energie. Zijn grote kracht was het enthousiast maken van zijn mensen voor het vak van procestechnoloog. Hij was een typische integrator die liet zien hoe verschillende vakgebieden door samenwerking meer bereiken dan elk afzonderlijk. Dit blijkt ook uit de verscheidenheid van onderwerpen die Vlugter en zijn medewerkers in Delft en later in Twente bestudeerden. In dit *Chemisch Magazine* schrijft een viertal ex-promovendi van Vlugter over hun onderzoek van destijds: Baas over de bereiding van isopreen, Voorhoeve over silanen, Van Ling over de semitechnische omzettingen van suikers en Goudriaan over hydrogenerende stikstofverwijdering.

### *Experiment in het bos*

Steeds op zoek naar nieuwe uitdagingen en met grote energie greep Vlugter zijn kans toen hij in 1962 werd uitgenodigd, mee te werken aan de vormgeving en opbouw van de TH Twente. Dit ‘experiment in het bos’ met zijn campus en andere vormen van alternatief studentenleven omvatte ook een radicaal vernieuwd onderwijssysteem. Hier begon voor Vlugter wat van toen af zijn levensroeping zou worden: de vernieuwing van het technisch wetenschappelijk onderwijs.

De in Twente begonnen structuur met Algemene Propaedeuse, Baccalaureaat en Ingenieursexamen was reeds in 1964 een voorloper van het huidige tweefasen systeem, maar beter qua integratie. Tot op het laatst strijdbaar heeft Vlugter zijn visie op deze zaken in woord en geschrift naar voren gebracht. Hierover schrijft de Twentse medehoogleraar Gellings in *De Ingenieur* van deze maand.

In 1966 ijverde Vlugter voor het vestigen van de nieuw op te richten medische faculteit aan de THT. Onder het motto ‘De medicijn: Twente’ ontwikkelde de onder zijn leiding staande stuurgroep een volledige filosofie over de koppeling van medicijnen en techniek in het wetenschappelijk onderwijs (fig. 6). Uiteindelijk ging de faculteit echter - om politieke redenen - naar Maastricht.



Fig. 6. 1967- Minister Veringa op bezoek bij rector Vlugter inzake de Medische Faculteit aan de THT waarvoor Vlugter zich - zonder succes - beijverde. Soms sluit de overheid de ogen voor Vlugter's betoog. (Historisch archief van de Universiteit Twente).

### *Altijd drukbezochte reünies*

De persoonlijke band die Vlugter had met zijn oud-leerlingen en medewerkers bleek wel uit de drukbezochte reünies, die al menigmaal plaatsvonden. Daar kwamen ook de secretaresses, die voor hem werkten en de ‘Leienaren’ die in Delft een bijvak bij hem deden en nog steeds tot de ‘familie’ horen. Aan de reünies namen steeds zo’n honderd personen deel.

Hoogtepunt was die ter gelegenheid van zijn tachtigste jaar in 1985, met een rondvaart door het natuurreservaat ‘De Weerribben’ en een borrel (fig. b) op Vlugters boerderij in Ossenzijl. In 1990 vond de reünie plaats bij TNO en ieder keek al naar de volgende in 1995 waarvoor KSLA had aangeboden de gastheer te zijn. Dat heeft Vlugter niet meer mogen beleven. Het is typerend dat na zijn overlijden uit de kring van oud-leerlingen een aantal keren is gesuggereerd die geplande bijeenkomst in 1995 alsnog door te laten gaan.



Fig. b.



Fig. c. Opening Technische Hogeschool Twente.





Fig. d. Afscheid Technische Hogeschool Twente, 1971.

## Dissertaties

Ir. D.Th.A. Huibers, *Characterisation of the Selectivity of chemical Processes with Experimental Applications to Paraffin Wax Cracking*, Technische Hogeschool Delft, 11 mei 1960.

Ir. H.J. Kraayveld, *De inwerking van een gasontlading op koolwaterstoffen*, Technische Hogeschool Delft, 25 mei 1960.

Ir. W.J. Hendriks, *Dehydrogenering van Naftenen en Hydrogenering van zwavelverbindingen*, Technische Hogeschool Delft.

Ir. F.C. Eversteijn, *Bijdrage tot de Kennis van Structuur en Eigenschappen van glas*, Technische Hogeschool Delft, 26 oktober 1960.

Ir. Sie Swan Tiong, *Copolymerisatie van drogende olieën met styreen*, Technische Hogeschool Delft, 23 november 1960.

Bij bovenstaande promoties was Prof.dr.ir. H.I. Waterman eerste Promotor en Prof.dr.ir. J.C. Vlugter tweede Promotor.

Ir. D. Araten, *Potassium Bicarbonate form Potassium Chloride and Sodium Dicarbonate form Sodium Chloride*, Technische Hogeschool Delft, 21 juni 1961.

Ir. C.J. Breukink, *Chemische en Fysische Aspecten van de Inwerking van gasontladingen op vloeibare koolwaterstoffen*, Technische Hogeschool Delft, 27 september 1961.

Ir. Gouw Tan Hok, *Aspects of the Constitution of Fatty oils and Related Esters*, Technische Hogeschool Delft, 28 februari 1962.

Ir. J. Doelman, *De verwijdering van zwavel en stikstof uit Minerale Olieën door Katalytisch Hydrogeneren*, Technische Hogeschool Delft, 4 april 1962.

Ir. J. van Elk, *Relaties van Fysische grootheden van enkelvoudige stoffen*, Technische Hogeschool Delft, 30 mei 1962.

Ir. D. Korf, *Bijdrage tot de kennis van de Bereiding van Chemicaliën uit suikers*, Technische Hogeschool Delft, 16 oktober 1963.

Drs. J.J. Quarles van Ufford, *Zwavel en Bitumen*, Technische Hogeschool Delft, 23 oktober 1963.

Ir. C.J. Baas, *De Synthese van Isopreen uit Propeen*, Technische Hogeschool Delft, 20 november 1963.

Ir. W.J. van de Weerd, *A Study of some Catalytic Hydrogenation and Isomerisation Reactions of Unsaturated Hydrocarbons*, Technische Hogeschool Delft, 11 december 1963.

Ir. R.J.H. Voorhoeve, *De Synthese van Methylchlor, Silanen, Proces en Mechanisme*, Technische Hogeschool Delft, 16 januari 1964.

Ir. B. Stouthamer, *Bereiding van onverzadigde Vetalcoholen door homogeen gekatalyseerde Hydrogenering van onverzadigde vetzuren*, Technische Hogeschool Delft, 8 april 1964.

Dr. H.J. Pasman, *Omzettingen van koolwaterstoffen door middel van gasontladingen*, Technische Hogeschool Delft, 6 mei 1964.

Ir. J.J. Breen, *De landbouwkundige en industriële betekenis van de aardpeer*, Technische Hogeschool Delft, 8 juli 1964.

Ir. C.J.A. Roelands, *Correlation Aspects of the Viscosity-Temperature-Pressure Relationship of Lubricating oils*, Technische Hogeschool Delft, 27 april 1966.

Ir. F. Dijkstra, *Studies aan Experimentele reactoren met vast en gefluidiseerd katalysatorbed*, Technische Hogeschool Delft, 5 oktober 1966.

Ir. M.I. Allam, *Catalytic Aromatization and Dealkylation of Bicyclic Hydrocarbons present in Kerosene Fractions*, Technische Hogeschool Delft, 23 februari 1967.

Ir. G. van Ling, *Katalytische Hogedruk hydrogenolyse van Sachariden*, Technische Hogeschool Twente, 1 juni 1967.

Mervet M. Madkour, *Chemical studies of Nitrogenous Compounds including the Hydrodenitrogenation of Mineral Oil Fractions and Nitrogen containing Model Substances*, Cairo University, 22 december 1967.

Drs. J. Eekels, *De Ontwikkeling van Nieuwe Industriële Activiteiten*, Technische Hogeschool Twente, 22 november 1973.

Ir. F. Goudriaan, *Hydrodenitrogenation of Pyridine*, Technische Hogeschool Twente, 29 augustus 1974.