

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
24. Juni 2010 (24.06.2010)

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2010/069487 A2

- (51) Internationale Patentklassifikation:
C10G 35/04 (2006.01) *C07C 5/32* (2006.01)
C07C 15/02 (2006.01) *C07C 5/41* (2006.01)
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2009/008672
- (22) Internationales Anmeldedatum:
4. Dezember 2009 (04.12.2009)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:
10 2008 064 276.2
20. Dezember 2008 (20.12.2008) DE
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **BAYER TECHNOLOGY SERVICES GMBH** [DE/DE]; 51368 Leverkusen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **SCHELLEN, Ralph** [DE/DE]; Hardenbergstr. 9, 41539 Dormagen (DE). **HIZALER HOFFMANN, Evin** [TR/DE]; Em Parkveedel 23c, 50733 Köln (DE). **MLECZKO, Leslaw** [PL/DE]; Quittenweg 1, 41542 Dormagen (DE). **SCHUBERT, Stephan** [DE/US]; 8500 West Bay Road 45, Baytown, TX 77520-8727 (US). **MARWAHA, Bharat** [IN/US]; 419 Sabal Palm Lane, Pearland, TX 77584 (US).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: **BAYER TECHNOLOGY SERVICES GMBH**; Law and Patents, Patents and Licensing, 51368 Leverkusen (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts (Regel 48 Absatz 2 Buchstabe g)



WO 2010/069487 A2

(54) Title: PROCESS FOR PREPARING BENZENE

(54) Bezeichnung : VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON BENZOL

(57) Abstract: The present invention relates to a process for the endothermic, catalytic gas-phase reaction of naphtha with hydrogen to form benzene, in which the reaction is carried out under adiabatic conditions in from 5 to 12 reaction zones connected in series.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren für die endotherme, katalytische Gasphasenreaktion von Naphtha mit Wasserstoff zu Benzol, worin die Umsetzung in 5 bis 12 hintereinander geschalteten Reaktionszonen unter adiabaten Bedingungen durchgeführt wird.

Verfahren zur Herstellung von Benzol

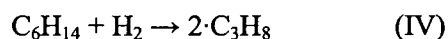
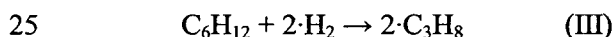
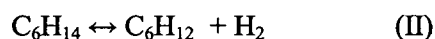
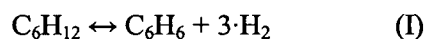
Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren für die endotherme, katalytische Gasphasenreaktion von Naphta mit Wasserstoff zu Benzol, worin die Umsetzung in 5 bis 12 hintereinander geschalteten Reaktionszonen unter adiabaten Bedingungen durchgeführt wird.

- 5 Naphta ist ein unbehandeltes Erdöldestillat aus der Raffination von Erdöl oder Erdgas, aus dem üblicherweise unter anderem auch Benzol gewonnen wird. Benzol wiederum ist ein wesentlicher Ausgangsstoff für viele weitere petrochemische Erzeugnisse.

So wird Benzol in der Chemischen Industrie für die Synthese vieler Verbindungen gebraucht, wie zum Beispiel Anilin, Styrol, Nylon, Synthekautschuk, Kunststoffe, waschaktive Stoffe, 10 Insektizide, Farbstoffe und viele weitere Stoffe. Des Weiteren werden durch Substitution viele Aromaten wie zum Beispiel Phenol, Nitrobenzol, Anilin, Chlorbenzol, Hydrochinon und Pikrinsäure gewonnen.

Ein weiteres Erzeugnis, welches aus Umweltgesichtspunkten jedoch mittlerweile in den Hintergrund getreten ist, ist die Verwendung des Benzol als Treibstoff für Verbrennungskraftmaschinen 15 nach dem Otto-Zyklus.

Die im Zusammenhang mit der Herstellung von Benzol aus Naphta wesentlichen Reaktionen sind in den nachfolgenden Formeln (I bis IV) dargestellt. Die Formel (I) bezieht sich auf den Umsatz von Cyclohexan als Anteil des Naphta zu Benzol, welcher sehr endotherm ist und die Formel (II) bezieht sich auf den Umsatz von Hexan zu Cyclohexan, welches wiederum gemäß Formel (I) zu 20 Benzol umgebildet werden kann. Die Nebenreaktionen gemäß der Formeln (III und IV), die ebenfalls während der Herstellung von Benzol stattfinden können, sind mit angegeben und sind insbesondere exotherme Reaktionen.



Die Reaktion gemäß Formel (I) ist, wie auch jene gemäß der Formel (II) gleichgewichtslimitiert.

Das aus der Reaktion gemäß Formel (I) erhaltene Benzol bildet ein wesentliches Ausgangsprodukt für die weitere Umsetzung zum Beispiel zu den vorgenannten Produkten.

Die kontrollierte Zufuhr von Wärme in Verfahren zur Gewinnung von Benzol ist wichtig, da die Lage des Gleichgewichts der vorgenannten Reaktion gemäß der Formel (I) stark abhängig von der Temperatur der Reaktionszone ist und somit die Ausbeuten und/oder Selektivitäten bezüglich Benzol hierdurch gesteuert werden kann. Insbesondere können somit die unerwünschten Nebenreaktionen gemäß der Formeln (III-IV) zumindest teilweise unterdrückt werden.

Ein unkontrollierter Temperaturabfall durch die endotherme Reaktion gemäß der Formel (I) kann somit die Bildung mehr oder weniger großer Mengen an Cyclohexan (gemäß Formel I durch Rückreaktion) und/oder Propan (gemäß Formel III) und/oder Hexan (gemäß Formel II durch Rückreaktion) befördern, was für die weitere Verwendung des Benzols nachteilig ist, da solche Nebenbestandteile zunächst abgetrennt werden müssen.

Es ist daher vorteilhaft, die Temperatur der Reaktionszonen im Laufe des Verfahrens kontrolliert auf einem Niveau zu halten, das einen schnellen Umsatz unter Minimierung der Nebenreaktionen ermöglicht.

So offenbart die EP 0 601 398 A1, dass zur Herstellung von BTX-Aromaten (Benzol, Toluol und Xylol) das Temperaturniveau und der verwendete Katalysator einen wesentlichen Einfluss auf Ausbeute und Umsatz an Zielprodukt haben. Gemäß der Offenbarung der EP 0 601 398 A1 ist das Temperaturniveau, auf dem die Reaktion ausgeführt werden sollte, im Wesentlichen bestimmt durch die Art und Zusammensetzung des verwendeten Naphta, welches üblicherweise durch seinen Siedepunkt charakterisiert wird. Dies unterstreicht die Wichtigkeit einer exakten Temperaturkontrolle in solchen Verfahren.

Die EP 0 601 398 A1 offenbart auch, dass es mittlerweile üblich ist, Verfahren zur katalytischen Reformation in mehreren in Reihe geschalteten Reaktoren auszuführen, in denen Katalysatoren in Form eines Festbettes vorliegen.

In der EP 0 601 398 A1 wird eine isotherme Verfahrensweise unter Verwendung eines Salzbad offenbart, mittels dessen die im Verfahren offenbarten Temperaturen von etwa 500°C in der Reaktionszone eingestellt werden. Eine adiabte Betriebsweise wird nicht offenbart. Der im Verfahren nach der Offenbarung der EP 0 601 398 A1 verwendete Katalysator besteht aus einem Trägermaterial, welches bevorzugt Aluminiumoxid ist, auf welchem sich eine Schicht eines Platingruppen-Metalls mit einem Promotor Metall aus der Gruppe IVB des Periodensystems der Elemente befindet.

Das Verfahren gemäß der Offenbarung der EP 0 601 398 A1 ist nachteilig, da die offenbarte, isotherme Verfahrensweise überaus aufwändig und damit sehr teuer ist. Insbesondere bei der Herstellung von Grundchemikalien, zu denen das Benzol zu zählen ist, wirken sich aber bereits

geringe Verfahrensnachteile gravierend auf die wirtschaftliche Verwertbarkeit des Gesamtverfahrens aus, was auch die EP 0 601 398 A1 offenbart.

Die Möglichkeit einer adiabaten Betriebsweise offenbaren J. Ancheyta-Juarez et al. in „Modeling and simulation of four catalytic reactors in series for naphta reforming“ in Energy & Fuels (2001) 15: 887-893.

So offenbaren J. Ancheyta-Juarez et al., dass es vorteilhaft sein kann, die Reaktion von Naphta zu (unter anderem) Benzol in drei bis vier, speziell vier in Reihe geschalteten Reaktionszonen auszuführen, wobei zwischen den vorgenannten Reaktionszonen eine Zwischenkühlung vorgesehen werden kann.

Die mittels des in der Offenbarung von J. Ancheyta-Juarez et al. vorgestellten Verfahrens erzielbaren Ausbeuten an Benzol (A_6) sind mit einem Anteil von nur etwa 4 mol-% am Reaktionsprodukt sehr gering, was das Verfahren nachteilig macht.

In EP 1 251 951 (B1) wird eine Vorrichtung und die Möglichkeit der Durchführung chemischer Reaktionen in der Vorrichtung offenbart, wobei die Vorrichtung durch eine Kaskade aus miteinander in Kontakt stehenden Reaktionszonen und Wärmetauschervorrichtungen gekennzeichnet ist, die stoffschlüssig miteinander im Verbund angeordnet sind. Das hierin durchzuführende Verfahren ist also gekennzeichnet durch den Kontakt der verschiedenen Reaktionszonen mit einer jeweiligen Wärmetauschervorrichtung in Form einer Kaskade. Eine Offenbarung hinsichtlich der Verwendbarkeit der Vorrichtung und des Verfahrens zur Herstellung von Benzol findet nicht statt.

Es bleibt also unklar, wie ausgehend von der Offenbarung der EP 1 251 951 (B1), eine solche Reaktion mittels der Vorrichtung und des darin ausgeführten Verfahrens durchgeführt werden soll. Insbesondere wird kein Verfahren umfassend endotherme Reaktionen offenbart.

Weiter muss aus Gründen der Einheitlichkeit davon ausgegangen werden, dass das in der EP 1 251 951 (B1) offenbarte Verfahren in einer Vorrichtung gleich oder ähnlich der Offenbarung bezüglich der Vorrichtung ausgeführt wird. Hieraus resultiert, dass durch den offenbarungsgemäßen großflächigen Kontakt der Wärmeaustauschzonen mit den Reaktionszonen eine signifikante Menge an Wärme durch Wärmeleitung zwischen den Reaktionszonen und den benachbarten Wärmeaustauschzonen stattfindet.

Die Offenbarung hinsichtlich des oszillierenden Temperaturprofils kann also nur so verstanden werden, dass die hier festgestellten Temperaturspitzen stärker ausfallen würden, wenn dieser Kontakt nicht bestehen würde. Ein weiteres Indiz hierfür ist der exponentielle Anstieg der offenbarten Temperaturprofile zwischen den einzelnen Temperaturspitzen. Diese deuten an, dass eine gewisse Wärmesenke mit merklicher, aber begrenzter Kapazität in jeder Reaktionszone

vorhanden ist, die den Temperaturanstieg in derselben reduzieren kann. Es kann nie ausgeschlossen werden, dass eine gewisse Abfuhr von Wärme (z.B. durch Strahlung) stattfindet; allerdings würde sich bei einer Reduktion der möglichen Wärmeabfuhr aus der Reaktionszone ein linearer oder in seiner Steigung degressiver Temperaturverlauf andeuten, da keine Nachdosierung
5 von Edukten vorgesehen ist und somit nach exothermer Abreaktion die Reaktion immer langsamer und sich somit die erzeugte Wärmetönung verringern würde.

Somit offenbart die EP 1 251 951 (B1) mehrstufige Verfahren in Kaskaden von Reaktionszonen, aus denen Wärme in undefinierter Menge durch Wärmeleitung abgeführt wird. Demnach ist das offenbarte Verfahren nicht adiabat und dahingehend nachteilig, als dass eine genaue Temperatur-
10 kontrolle der Reaktion nicht möglich ist. Dies gilt insbesondere für die nicht offenbarte Möglichkeit einer endothermen Reaktion in den Reaktionszonen.

Ausgehend vom Stand der Technik wäre es daher vorteilhaft, ein Verfahren zur Herstellung von Benzol bereitzustellen, das in einfachen Reaktionsvorrichtungen durchgeführt werden kann und das eine genaue, einfache Temperaturkontrolle des endothermen Verfahrens ermöglicht, so dass es
15 hohe Umsätze bei möglichst hohen Reinheiten des Produktes unter Einhaltung erwünschter Ausbeuten und/oder Selektivitäten erlaubt. Solche einfachen Reaktionsvorrichtungen wären leicht in einen technischen Maßstab zu übertragen und sind in allen Größen preiswert und robust.

Für die endotherme, katalytische Gasphasenreaktion von Naphta zu Benzol wurden, wie gerade dargestellt, bisher noch keine geeigneten Verfahren aufgezeigt, die dies erlauben.

20 Es besteht daher die Aufgabe, ein Verfahren zur endothermen, katalytischen Gasphasenreaktion von Naphta zu Benzol bereitzustellen, das unter genauer Temperaturkontrolle in einfachen Reaktionsvorrichtungen durchführbar ist und das hierdurch hohe Umsätze bei hohen Reinheiten des Produktes erlaubt.

Es wurde überraschend gefunden, dass ein Verfahren zur Herstellung von Benzol aus Naphta in
25 Gegenwart von Wasserstoff in einer endothermen, heterogen katalytischen Gasphasenreaktion, **dadurch gekennzeichnet**, dass es 5 bis 12 hintereinander geschaltete Reaktionszonen mit adiabaten Bedingungen umfasst, diese Aufgabe zu lösen vermag.

Benzol bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung ein Prozessgas, welches im Wesentlichen Benzol umfasst. Das Benzol kann auch Anteile an Wasserstoff und weiteren
30 Kohlenwasserstoffen umfassen.

Weitere Kohlenwasserstoffe bezeichnen im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung Stoffe vorliegend als Prozessgas bestehend aus Kohlenstoff, Wasserstoff und gegebenenfalls Sauerstoff. Im Wesentlichen bestehen solche Kohlenwasserstoffe jedoch aus Kohlenstoff und Wasserstoff.

Solche Kohlenwasserstoffe sind üblicherweise jene, welche entweder als weitere Bestandteile des Naphta in das erfindungsgemäße Verfahren eingeführt werden, oder solche, welche durch Nebenreaktionen im Zuge des erfindungsgemäßen Verfahrens etwa nach den Reaktionen gemäß der Formeln (III und IV) gebildet werden.

- 5 Nicht abschließende Beispiele für Kohlenwasserstoffe, welche als weitere Bestandteile des Naphta in das erfindungsgemäße Verfahren eingeführt werden, sind etwa Naphtalin, Isopentan und Toluol.

Nicht abschließende Beispiele für Kohlenwasserstoffe, welche durch Nebenreaktionen im Zuge des erfindungsgemäßen Verfahrens etwa nach den Reaktionen gemäß der Formeln (III und IV) gebildet werden, sind etwa Hexan, Cyclohexan und Propan.

- 10 Naphta bezeichnet ein Gemisch von Kohlenwasserstoffen als Prozessgas, wie es dem Fachmann allgemein bekannt ist. Bevorzugt ist im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren Naphta ein Gemisch von Kohlenwasserstoffen, das im Wesentlichen Cyclohexan umfasst.

Wasserstoff bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung ein Prozessgas, welches im Wesentlichen Wasserstoff umfasst. Dieser Wasserstoff kann etwa durch die Reaktionen gemäß der Formeln (I und II) gebildet werden oder auch dem Verfahren als Prozessgas zugeführt werden.

Ein Zuführen von Wasserstoff als Prozessgas in das erfindungsgemäße Verfahren ist bevorzugt. Besonders bevorzugt wird vorgewärmter Wasserstoff als Prozessgas dem Verfahren zugeführt.

- 20 Ein solches Zuführen von insbesondere Wasserstoff ist vorteilhaft, weil hierdurch der Wasserstoff als Wärmeträgermedium im Verfahren zur Kontrolle der Temperatur verwendet werden kann. Weiter verhindert der Wasserstoff Ablagerungen von Kohlenstoffprodukten an den Katalysatoroberflächen der in den Reaktionszonen befindlichen Katalysatoren (Verkokung).

Die Bezeichnung im Wesentlichen bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung einen Massenanteil und/oder einer Molanteil von mindestens 80 %.

- 25 Das im erfindungsgemäßen Verfahren verwendete Naphta, dessen Bestandteile, der Wasserstoff, das Benzol als auch die Produkte des erfindungsgemäßen Verfahrens, werden im Folgenden auch gemeinsam als Prozessgase bezeichnet.

Hieraus folgt, dass das gesamte erfindungsgemäße Verfahren in der Gasphase ausgeführt wird. Sollten im Verfahren verwendete Stoffe, wie etwa die Kohlenwasserstoffe bei Raumtemperatur (23°C) und Umgebungsdruck (1013 hPa) nicht gasförmig vorliegen, so ist im Folgenden davon auszugehen, dass solche Stoffe vor oder während ihrer Verwendung im erfindungsgemäßen

Verfahren durch Erhöhen der Temperatur und/oder Verringerung des Drucks in die Gasphase überführt werden.

Neben den wesentlichen Komponenten der Prozessgase, können diese auch noch Nebenkomponenten umfassen. Nicht abschließende Beispiele für Nebenkomponenten, die in den
5 Prozessgasen enthalten sein können, sind etwa Argon, Stickstoff und/oder Kohlendioxid.

Erfindungsgemäß bedeutet die Durchführung des Verfahrens unter adiabaten Bedingungen, dass der Reaktionszone von Außen im Wesentlichen weder aktiv Wärme zugeführt noch Wärme entzogen wird. Es ist allgemein bekannt, dass eine vollständige Isolation gegen Wärmezufuhr- oder Abfuhr nur durch vollständige Evakuierung unter Ausschluss der Möglichkeit des
10 Wärmeübergangs durch Strahlung möglich ist. Daher bezeichnet adiabat im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung, dass keine Maßnahmen zur Wärmezufuhr- oder Abfuhr ergriffen werden.

In einer alternativen Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens kann aber z.B. durch Isolation mittels allgemein bekannter Isolationsmittel, wie z.B. Polystyrolämmstoffen, oder auch durch genügend große Abstände zu Wärmesenken oder Wärmequellen, wobei das Isolationsmittel
15 Luft ist, ein Wärmeübergang vermindert werden.

Ein Vorteil der erfindungsgemäßen adiabaten Fahrweise der 5 bis 12 hintereinander geschalteten Reaktionszonen gegenüber einer nicht adiabaten Fahrweise besteht darin, dass in den Reaktionszonen keine Mittel zur Wärmezufuhr bereitgestellt werden müssen, was eine erhebliche Vereinfachung der Konstruktion mit sich bringt. Dadurch ergeben sich insbesondere
20 Vereinfachungen bei der Fertigung des Reaktors sowie bei der Skalierbarkeit des Verfahrens und eine Steigerung der Reaktionsumsätze.

Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens ist die Möglichkeit der sehr genauen Temperaturkontrolle, durch die enge Staffelung von adiabaten Reaktionszonen. Es kann somit in jeder Reaktionszone eine im Reaktionsfortschritt vorteilhafte Temperatur eingestellt und
25 kontrolliert werden.

Die im erfindungsgemäßen Verfahren verwendeten Katalysatoren sind üblicherweise Katalysatoren, die aus einem Material bestehen, das neben seiner katalytischen Aktivität für die Reaktion gemäß der Formel (I) durch ausreichende chemische Resistenz unter den Bedingungen des Verfahrens, sowie durch eine hohe spezifische Oberfläche gekennzeichnet sind.

Katalysatormaterialien, die durch eine solche chemische Resistenz unter den Bedingungen des Verfahrens gekennzeichnet sind, sind zum Beispiel Katalysatoren, die Platin und/oder Rhenium umfassen.

Bevorzugte Katalysatormaterialien bestehen zu gleichen Gewichtsanteilen aus Rhenium und Platin.

Diese Katalysatoren können auf Trägermaterialien aufgebracht sein. Solche Trägermaterialien umfassen üblicherweise Aluminiumoxid und/oder Titandioxid. Bevorzugt sind Trägermaterialien aus Aluminiumoxid.

Besonders bevorzugte Katalysatoren bestehen aus Rhenium und Platin, die zu gleichem Gewichtsanteil auf einem Aluminiumoxidträger aufgebracht sind. Methoden, um solche Katalysatoren herzustellen, sind dem Fachmann allgemein etwa aus der EP 0 601 398 A1 bekannt.

Spezifische Oberfläche bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung die Fläche des Katalysatormaterials, die vom Prozessgas erreicht werden kann, bezogen auf die eingesetzte Masse an Katalysatormaterial.

Eine hohe spezifische Oberfläche ist eine spezifische Oberfläche von mindestens $1 \text{ m}^2/\text{g}$, bevorzugt von mindestens $10 \text{ m}^2/\text{g}$.

Die erfindungsgemäßen Katalysatoren befinden sich jeweils in den Reaktionszonen und können in allen an sich bekannten Erscheinungsformen, z.B. Festbett, Wanderbett, vorliegen.

Bevorzugt ist die Erscheinungsform Festbett.

Die Festbettanordnung umfasst eine Katalysatorschüttung im eigentlichen Sinn, d. h. losen, geträgerten oder ungeträgerten Katalysator in beliebiger Form sowie in Form von geeigneten Packungen. Der Begriff der Katalysatorschüttung, wie er hier verwendet wird, umfasst auch zusammenhängende Bereiche geeigneter Packungen auf einem Trägermaterial oder strukturierte Katalysatorträger. Dies wären z.B. zu beschichtende keramische Wabenträger mit vergleichsweise hohen geometrischen Oberflächen oder gewellte Schichten aus Metalldrahtgewebe, auf denen beispielsweise Katalysatorgranulat immobilisiert ist. Als eine Sonderform der Packung wird im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung das Vorliegen des Katalysators in monolithischer Form betrachtet.

Wird eine Festbettanordnung des Katalysators verwendet, so liegt der Katalysator bevorzugt in Schüttungen von Partikeln mit mittleren Partikelgrößen von 1 bis 10 mm, bevorzugt 2 bis 8 mm, besonders bevorzugt von 3 bis 7 mm vor.

Ebenfalls bevorzugt liegt der Katalysator bei Festbettanordnung in monolithischer Form vor. Besonders bevorzugt ist bei Festbettanordnung ein monolithischer Katalysator, der die vorgenannten Metalle Rhenium und Platin zu gleichen Gewichtsanteilen auf einem Aluminiumoxidträger enthält.

Ebenfalls besonders bevorzugt ist eine Festbettanordnung mit Schüttungen von Partikeln mit mittleren Partikelgrößen von 1 bis 10 mm, bevorzugt 2 bis 8 mm, besonders bevorzugt von 3 bis 7 mm, wobei die Partikel Aluminiumoxidpartikel sind, auf die die vorgenannten Metalle Rhenium und Platin zu gleichen Gewichtsanteilen aufgetragen sind.

- 5 Wird ein Katalysator in monolithischer Form in den Reaktionszonen verwendet, so ist in einer bevorzugten Weiterentwicklung der Erfindung der in monolithischer Form vorliegende Katalysator mit Kanälen versehen, durch die die Prozessgase strömen. Üblicherweise haben die Kanäle einen Durchmesser von 0,1 bis 3 mm, bevorzugt einen Durchmesser von 0,2 bis 2 mm, besonders bevorzugt von 0,5 bis 1,5 mm.
- 10 Wird eine Fließbettanordnung des Katalysators verwendet, so liegt der Katalysator bevorzugt in losen Schüttungen von Partikeln vor, wie sie im Zusammenhang mit der Festbettanordnung bereits beschrieben worden sind.

Schüttungen von solchen Partikeln sind vorteilhaft, weil die Größe der Partikel eine hohe spezifische Oberfläche des Katalysatormaterials gegenüber den Prozessgasen besitzen und damit
15 eine hohe Umsatzrate erreicht werden kann. Es kann also die Stofftransportlimitierung der Reaktion durch Diffusion gering gehalten werden. Zugleich sind die Partikel damit aber noch nicht so klein, dass es zu überproportional erhöhten Druckverlusten bei Durchströmung des Festbettes kommt. Die Bereiche der in der bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens, umfassend eine Reaktion in einem Festbett, angegebenen Partikelgrößen sind somit ein Optimum zwischen dem
20 erreichbaren Umsatz aus den Reaktionen gemäß der Formeln (I und II) und dem erzeugten Druckverlust bei Durchführung des Verfahrens. Druckverlust ist in direkter Weise mit der notwendigen Energie in Form von Kompressorleistung gekoppelt, so dass eine überproportionale Erhöhung desselben in einer unwirtschaftlichen Betriebsweise des Verfahrens resultieren würde.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt der Umsatz in 6
25 bis 10, besonders bevorzugt 6 bis 8 hintereinander geschalteten Reaktionszonen.

Eine bevorzugte weitere Ausführungsform des Verfahrens ist dadurch gekennzeichnet, dass das aus mindestens einer Reaktionszone austretende Prozessgas anschließend durch wenigstens eine dieser Reaktionszone nachgeschalteten Wärmeaustauschzone geleitet wird.

In einer besonders bevorzugten weiteren Ausführungsform des Verfahrens befindet sich nach jeder
30 Reaktionszone wenigstens eine, bevorzugt genau eine Wärmeaustauschzone, durch die das aus der Reaktionszone austretende Prozessgas geleitet wird.

Die Reaktionszonen können dabei entweder in einem Reaktor angeordnet oder in mehreren Reaktoren aufgeteilt angeordnet werden. Die Anordnung der Reaktionszonen in einem Reaktor führt zu einer Verringerung der Anzahl der verwendeten Apparaturen.

Die einzelnen Reaktionszonen und Wärmeaustauschzonen können auch zusammen in einem Reaktor oder in beliebigen Kombinationen von jeweils Reaktionszonen mit Wärmeaustauschzonen in mehreren Reaktoren aufgeteilt angeordnet werden.

Liegen Reaktionszonen und Wärmeaustauschzonen in einem Reaktor vor, so befindet sich in einer alternativen Ausführungsform der Erfindung zwischen diesen eine Wärmeisolationszone, um den adiabaten Betrieb der Reaktionszone erhalten zu können.

Zusätzlich können einzelne der in Reihe geschalteten Reaktionszonen unabhängig voneinander auch durch eine oder mehrere parallel geschaltete Reaktionszonen ersetzt oder ergänzt werden. Die Verwendung von parallel geschalteten Reaktionszonen erlaubt insbesondere deren Austausch bzw. Ergänzung bei laufendem kontinuierlichen Gesamtbetrieb des Verfahrens.

Parallele und hintereinander geschaltete Reaktionszonen können insbesondere auch miteinander kombiniert sein. Besonders bevorzugt weist das erfindungsgemäße Verfahren aber ausschließlich hintereinander geschaltete Reaktionszonen auf.

Die im erfindungsgemäßen Verfahren bevorzugt verwendeten Reaktoren können aus einfachen Behältern mit einer oder mehreren Reaktionszonen bestehen, wie sie z.B. in Ullmanns Encyclopedia of Industrial Chemistry (Fifth, Completely Revised Edition, Vol B4, Seite 95-104, Seite 210-216) beschrieben werden, wobei jeweils zwischen den einzelnen Reaktionszonen und/oder Wärmeaustauschzonen Wärmeisolationszonen zusätzlich vorgesehen sein können.

In einer alternativen Ausführungsform des Verfahrens befindet sich also zwischen einer Reaktionszone und einer Wärmeaustauschzone mindestens eine Wärmeisolationszone. Bevorzugt befindet sich um jede Reaktionszone eine Wärmeisolationszone.

Die Katalysatoren bzw. die Festbetten daraus werden in an sich bekannter Weise auf oder zwischen gasdurchlässigen Wandungen umfassend die Reaktionszone des Reaktors angebracht. Insbesondere bei dünnen Festbetten können in Strömungsrichtung vor den Katalysatorbetten technische Vorrichtungen zur gleichmäßigen Gasverteilung angebracht werden. Dies können Lochplatten, Glockenböden, Ventilböden oder andere Einbauten sein, die durch Erzeugung eines geringen, aber gleichmäßigen Druckverlusts einen gleichförmigen Eintritt des Prozessgases in das Festbett bewirken.

In einer bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens beträgt die Eingangstemperatur des in eine Reaktionszone eintretenden Prozessgases von 740 bis 790 K, bevorzugt von 750 bis 780 K, besonders bevorzugt von 755 bis 775 K.

5 In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens beträgt der absolute Druck am Eingang der ersten Reaktionszone zwischen 10 und 40 bar, bevorzugt zwischen 15 und 35 bar, besonders bevorzugt zwischen 20 und 30 bar.

In noch einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens beträgt die Verweilzeit des Prozessgases in allen Reaktionszonen zusammen zwischen 0,5 und 30 s, bevorzugt zwischen 1 und 20 s, besonders bevorzugt zwischen 5 und 15 s.

10 Das Naphta und gegebenenfalls der Wasserstoff werden bevorzugt nur vor der ersten Reaktionszone zugeführt. Dies hat den Vorteil, dass das gesamte Prozessgas für die Aufnahme von Reaktionswärme in allen Reaktionszonen zur Verfügung steht. Außerdem kann durch eine solche Verfahrensweise die Raum-Zeit-Ausbeute gesteigert werden, bzw. die notwendige Katalysator-
15 Reaktionszone folgenden Reaktionszonen nach Bedarf Naphta und gegebenenfalls Wasserstoff in das Prozessgas einzudosieren. Über die Zufuhr dieser Prozessgase zwischen den Reaktionszonen kann zusätzlich die Temperatur des Umsatzes gesteuert werden, wenn diese vorgewärmt werden.

In bevorzugten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens wird das molare Verhältnis von Wasserstoff zu Kohlenwasserstoffen, enthalten im Naphta, in Bereichen von 3 bis
20 9, bevorzugt von 4 bis 8, besonders bevorzugt von 5 bis 7 mol Wasserstoff pro mol Kohlenwasserstoff im Naphta eingestellt.

Die Vorteile einer solchen Zuführung von Wasserstoff wurden bereits zuvor dargelegt. Diese gelten insbesondere im Zusammenhang mit der Zuführung eines Überschusses.

Dem Fachmann sind geeignete Mittel bekannt, die Molmengen an Kohlenwasserstoffen in einem
25 Prozessgas, wie Naphta, zu bestimmen. Ein nicht abschließendes Beispiel ist die quantitative Analytik mittels Gaschromatographie. Wenn die molare Zusammensetzung des Prozessgases Naphta bekannt ist, kann die Einstellung des molaren Verhältnisses an Wasserstoff hierzu durch einfache Einstellung des Volumenstromverhältnisses der Prozessgase Naphta und Wasserstoff erfolgen.

30 In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird das Prozessgas nach mindestens einer der verwendeten Reaktionszonen, besonders bevorzugt nach jeder Reaktionszone erwärmt. Dazu leitet man das Prozessgas nach Austritt aus einer Reaktionszone durch eine oder mehrere der oben genannten Wärmeaustauschzonen, die sich hinter den

jeweiligen Reaktionszonen befinden. Diese können als Wärmeaustauschzonen in Form der dem Fachmann bekannten Wärmetauscher, wie z.B. Rohrbündel-, Platten-, Ringnut-, Spiral-, Rippenrohr-, Mikrowärmetauscher ausgeführt sein. Bevorzugt sind die Wärmetauscher mikrostrukturierte Wärmetauscher.

5 Mikrostrukturiert bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung, dass der Wärmetauscher zum Zweck der Wärmeübertragung Fluid-führende Kanäle umfasst, die dadurch gekennzeichnet sind, dass sie einen hydraulischen Durchmesser zwischen 50 μm und 5 mm aufweisen. Der hydraulische Durchmesser berechnet sich aus dem Vierfachen der durchströmten Querschnittsfläche des Fluid-führenden Kanals dividiert durch den Umfang des Kanals.

10 In einer besonderen Ausführungsform des Verfahrens erfolgt das Erwärmen des Prozessgases in den Wärmeaustauschzonen durch eine Kondensation eines Wärmeträgermediums.

Innerhalb dieser besonderen Ausführungsform ist es bevorzugt in den Wärmetauschern, die die Wärmeaustauschzonen beinhalten, auf der Seite des Heizmediums eine Kondensation, bevorzugt Teilkondensation auszuführen.

15 Teilkondensation bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung eine Kondensation, bei der ein Gas-/Flüssigkeitsgemisch eines Stoffes als Heizmedium verwendet wird und bei der auch nach Wärmeübergang in dem Wärmetauscher noch ein Gas-/Flüssigkeitsgemisch dieses Stoffes vorliegt.

Das Ausführen einer Kondensation ist besonders vorteilhaft, weil hierdurch der erzielbare
20 Wärmeübergangskoeffizient zu den Prozessgasen vom Heizmedium besonders hoch wird und somit eine effiziente Erwärmung erreicht werden kann.

Das Ausführen einer Teilkondensation ist besonders vorteilhaft, weil die Abgabe von Wärme durch das Heizmedium hierdurch nicht mehr in einer Temperaturänderung des Heizmediums resultiert, sondern lediglich das Gas-/Flüssig-Gleichgewicht verschoben wird. Das hat zur Folge,
25 dass über die gesamte Wärmeaustauschzone das Prozessgas gegenüber einer konstanten Temperatur erwärmt wird. Dies wiederum verhindert sicher das Auftreten von radialen Temperaturprofilen in der Strömung der Prozessgase, wodurch die Kontrolle über die Reaktionstemperaturen in den Reaktionszonen verbessert wird und insbesondere das Ausbilden von lokalen Überhitzungen durch radiale Temperaturprofile verhindert wird.

30 In einer alternativen Ausführungsform kann anstelle einer Kondensation/Teilkondensation auch eine Mischzone vor dem Eingang einer Reaktionszone vorgesehen werden, um die gegebenenfalls bei der Erwärmung entstehenden radialen Temperaturprofile in der Strömung der Prozessgase durch Vermischung quer zur hauptsächlichen Strömungsrichtung zu vereinheitlichen.

In einer bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens werden die nacheinander geschalteten Reaktionszonen bei von Reaktionszone zu Reaktionszone steigender oder sinkender Durchschnittstemperatur betrieben. Dies bedeutet, dass man innerhalb einer Folge von Reaktionszonen die Temperatur von Reaktionszone zu Reaktionszone sowohl ansteigen als auch absinken lassen kann.

5 Dies kann beispielsweise über die Steuerung der zwischen die Reaktionszone geschalteten Wärmeaustauschzonen eingestellt werden. Weitere Möglichkeiten der Einstellung der Durchschnittstemperatur werden im Folgenden beschrieben.

Die Dicke der durchströmten Reaktionszonen kann gleich oder verschieden gewählt werden und ergibt sich nach dem Fachmann allgemein bekannten Gesetzmäßigkeiten aus der oben beschriebenen Verweilzeit und den jeweils im Verfahren durchgesetzten Prozessgasmengen. Die erfindungsgemäß mit dem Verfahren durchsetzbaren Massenströme an Prozessgas bezogen auf die verwendete Katalysatormasse (auch WHSV, Weight-Hourly-Space-Velocity genannt), liegt üblicherweise zwischen 28 und 42 h⁻¹, bevorzugt zwischen 30 und 40 h⁻¹, besonders bevorzugt zwischen 33 und 38 h⁻¹.

10

Die maximale Austrittstemperatur des Prozessgases aus der ersten Reaktionszone liegt üblicherweise im Bereich der Eintrittstemperatur, da die Reaktionen gemäß der Formeln (III) und (IV) exotherme Reaktionen sind. Sie können auch, insbesondere bei Austritt aus den letzten Reaktionen, bei denen bereits eine große Menge an Benzol gebildet worden ist und daher die insbesondere endotherme Reaktion gemäß der Formel (I) an Einfluss verliert, in einem Bereich von 770 bis 820 K, bevorzugt von 775 bis 795 K, besonders bevorzugt von 780 bis 785 K liegen.

15

20

Die nachfolgenden Reaktionszonen können durch die nachfolgenden Maßnahmen hinsichtlich ihrer Eintrittstemperatur durch den Fachmann gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren frei bestimmt werden.

Die Steuerung der Temperatur in den Reaktionszonen erfolgt bevorzugt durch mindestens eine der folgenden Maßnahmen: Dimensionierung der adiabaten Reaktionszone, Steuerung der Wärmezufuhr zwischen den Reaktionszonen, Zusatz von weiterem Prozessgas zwischen den Reaktionszonen, molares Verhältnis der Edukte/Überschuss an verwendetem Wasserstoff, Zusatz von Nebenbestandteilen, insbesondere Stickstoff, Kohlendioxid, vor und/oder zwischen den Reaktionszonen.

25

Die Zusammensetzung der Katalysatoren in den erfindungsgemäßen Reaktionszonen kann gleich oder verschieden sein. In einer bevorzugten Ausführungsform werden in jeder Reaktionszone die gleichen Katalysatoren verwendet. Man kann aber auch vorteilhaft verschiedene Katalysatoren in den einzelnen Reaktionszonen verwenden.

30

So kann insbesondere in der ersten Reaktionszone, wenn die Konzentration der Reaktionsedukte noch hoch ist, ein weniger aktiver Katalysator verwendet werden und in den weiteren Reaktionszonen die Aktivität des Katalysators von Reaktionszone zu Reaktionszone gesteigert werden. Die Steuerung der Katalysatoraktivität kann auch durch Verdünnung mit Inertmaterialien
5 bzw. Trägermaterial erfolgen.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren können pro 1 kg Katalysator 1 kg/h bis 50 kg/h, bevorzugt 5 kg/h bis 30 kg/h, besonders bevorzugt 10 kg/h bis 20 kg/h Benzol hergestellt werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren zeichnet sich somit durch hohe Raum-Zeit-Ausbeuten aus, verbunden mit einer Verringerung der Apparategrößen sowie einer Vereinfachung der Apparaturen
10 bzw. Reaktoren. Diese überraschend hohe Raum-Zeit-Ausbeute wird durch das Zusammenspiel der erfindungsgemäßen und bevorzugten Ausführungsformen des neuen Verfahrens ermöglicht. Insbesondere das Zusammenspiel von gestaffelten, adiabaten Reaktionszonen mit dazwischen befindlichen Wärmeaustauschzonen und den definierten Verweilzeiten ermöglicht eine genaue Steuerung des Verfahrens und die daraus resultierenden hohen Raum-Zeit-Ausbeuten, sowie eine
15 Verringerung der gebildeten Nebenprodukte, wie etwa Kohlendioxid.

Die vorliegende Erfindung wird anhand der Abbildungen erläutert, ohne sie jedoch hierauf zu beschränken.

FIG 1 zeigt Reaktortemperatur (T) und Molmassenfluss an Benzol (U) über eine Länge (L) von 11 m an Reaktionszonen mit jeweils nachgeschalteten Wärmeaustauschzonen (gemäß Beispiel 1),
20 wobei die Längen der Wärmeaustauschzonen idealisiert zu Null angenommen werden, da hier kein Umsatz stattfinden soll.

Die vorliegende Erfindung wird weiterhin anhand des nachfolgenden Beispiels näher erläutert, ohne sie hierauf zu beschränken.

Beispiele

Gasförmiges Naphta und Wasserstoff werden als Prozessgase in einem molaren Verhältnis von 7,77 dem Verfahren zugeführt. Das Verfahren wird in insgesamt sechs Katalysatorfestbetten aus Rhenium und Platin mit je 0,29 Gew.-% auf einem Aluminiumoxidträger, also in sechs Reaktions-

5 zonen betrieben.

Jeweils nach einer Reaktionszone befindet sich eine Wärmeaustauschzone, in der das austretende Prozessgas wieder erwärmt wird, bevor es in die nächste Reaktionszone eintritt.

Der absolute Eingangsdruck des Prozessgases direkt vor der ersten Reaktionszone beträgt 25 bar. Die Länge der Katalysatorfestbetten, also der Reaktionszonen, variiert von Reaktionszone zu

10 Reaktionszone, beginnend von 0,15 m in der ersten Reaktionszone bis hin zu 6 m in der sechsten Reaktionszone. Die genauen Längen der Reaktionszone sind in Tabelle 1 zusammengefasst. Die Aktivität des verwendeten Katalysators ist über die Reaktionszonen nicht veränderlich. Es erfolgt keine Zudosierung von Prozessgas vor den einzelnen Reaktionszonen. Die WHSV beträgt 35 h^{-1} .

Tabelle 1: Längen der Reaktionszonen

Reaktionszone [#]	Länge [m]
1	0,15
2	0,35
3	1
4	1,5
5	2
6	6
Σ	11,0

15 Die Ergebnisse sind in Fig.1 gezeigt. Hierbei ist auf der x-Achse die fortlaufende Länge der Reaktionszonen aufgeführt, so dass ein räumlicher Verlauf der Entwicklungen im Verfahren sichtbar wird, wobei die Wärmeaustauschzonen vernachlässigt sind. Auf der linken y-Achse ist die Temperatur des Prozessgases angegeben. Der Temperaturverlauf über die einzelnen Reaktions-

20 zonen hinweg ist als dicke, durchgezogene Linie dargestellt. Durch die idealisierte Annahme der Länge der Wärmeaustauschzonen zu 0 m, ergeben sich hinsichtlich des Temperaturverlaufes Unstetigkeiten. Auf der rechten y-Achse ist der kumulierte Molenstrom an Benzol im Prozessgas

über die Reaktionsstrecke angegeben. Der Verlauf desselben über die Reaktionsstrecke ist als dünne durchgezogene Linie dargestellt.

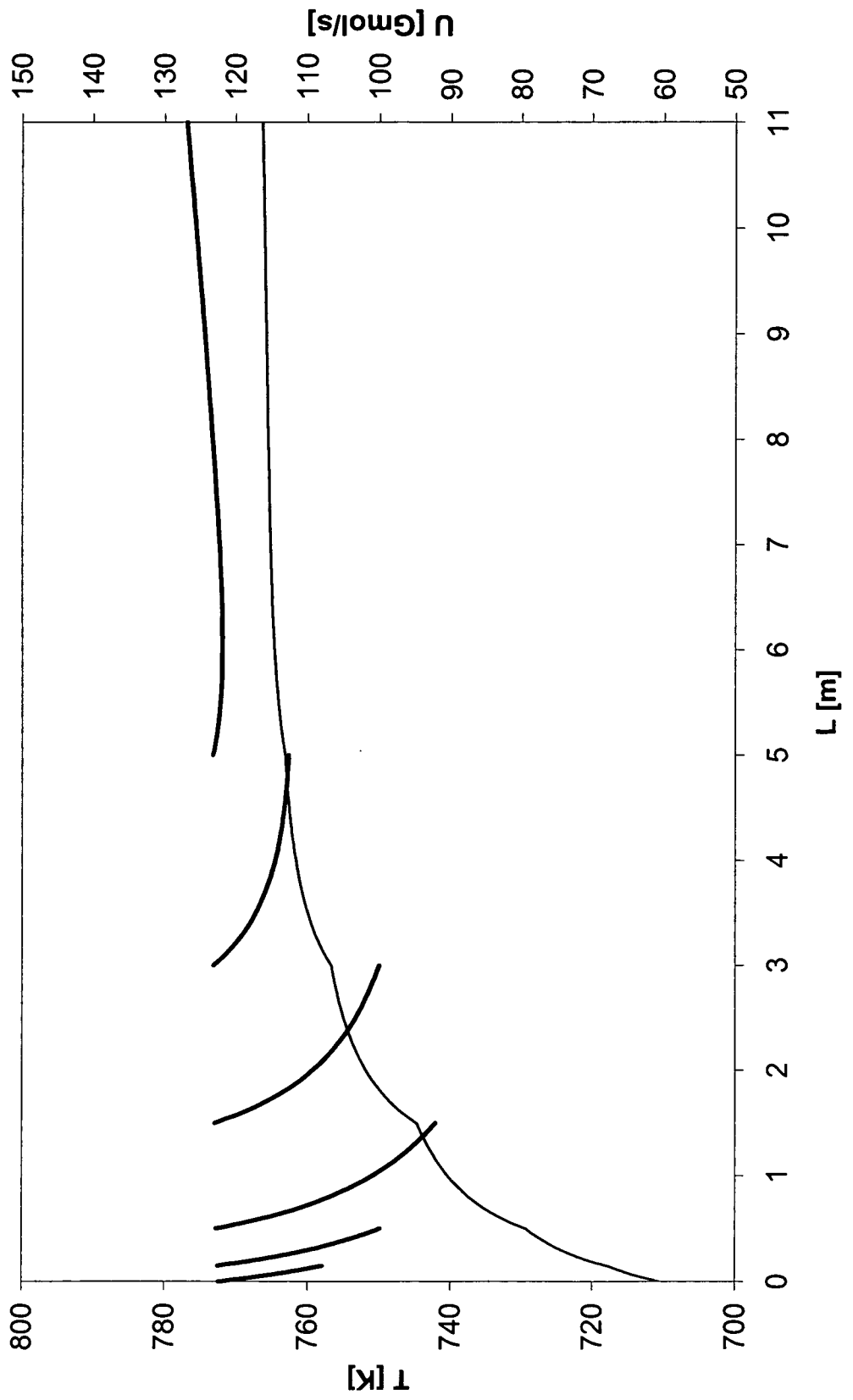
Man erkennt, dass die Eingangstemperatur des Prozessgases vor der ersten Reaktionszone etwa 775 K beträgt. Durch die im Wesentlichen endotherme Reaktion zu Benzol unter adiabaten Bedingungen sinkt die Temperatur in der ersten Reaktionszone auf etwa 760 K, bevor das Prozessgas in der nachgeschalteten Wärmeaustauschzone wieder auf die vorgenannten 775 K erwärmt wird. Durch endotherme adiabate Reaktion sinkt die Temperatur in der zweiten Reaktionszone auf etwa 750 K. Die Abfolge aus Abkühlung durch endotherme, adiabate Reaktion und Erwärmung setzt sich mit veränderten Austrittstemperaturen nach den jeweiligen Reaktionszonen weiter fort, wobei die Eintrittstemperatur jeweils in den Wärmeaustauschzonen wieder auf die gewünschten 775 K eingestellt wird.

Es wird ein Umsatz an Cyclohexan und Hexan von etwa 60 % erhalten. Die erzielte Raum-Zeit-Ausbeute, bezogen auf die eingesetzte Masse Katalysator, beträgt etwa $15 \text{ kg}_{\text{Benzol}}/\text{kg}_{\text{Kat.h}}$.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Benzol aus Naphta in Gegenwart von Wasserstoff in einer endothermen, heterogen katalytischen Gasphasenreaktion, **dadurch gekennzeichnet**, dass es 5 bis 12 hintereinander geschaltete Reaktionszonen mit adiabaten Bedingungen umfasst.
- 5 2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass der Umsatz in 6 bis 10, bevorzugt 6 bis 8 hintereinander geschalteten Reaktionszonen geschieht.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Eingangstemperatur des in die erste Reaktionszone eintretenden Prozessgases 740 bis 790 K, bevorzugt von 750 bis 780 K, besonders bevorzugt von 755 bis 775 K beträgt.
- 10 4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, dass der absolute Druck am Eingang der ersten Reaktionszone zwischen 10 und 40 bar, bevorzugt zwischen 15 und 35 bar, besonders bevorzugt zwischen 20 und 30 bar beträgt.
5. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Verweilzeit des Prozessgases in allen Reaktionszonen zwischen 0,5 und 30 s, bevorzugt
15 zwischen 1 und 20 s, besonders bevorzugt zwischen 5 und 15 s beträgt.
6. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren in Festbettanordnung vorliegen.
7. Verfahren nach Anspruch 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren als Monolithen vorliegen.
- 20 8. Verfahren nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet**, dass der Monolith Kanäle mit einem Durchmesser von 0,1 bis 3 mm, bevorzugt von 0,2 bis 2 mm, besonders bevorzugt von 0,5 bis 1,5 mm umfasst.
9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren in Schüttungen von Partikeln mit mittleren Partikelgrößen von 1 bis 10 mm, bevorzugt 2
25 bis 8 mm, besonders bevorzugt von 4 bis 7 mm vorliegen.
10. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich nach mindestens einer Reaktionszone wenigstens eine Wärmeaustauschzone befindet, durch die das Prozessgas geleitet wird.

11. Verfahren nach Anspruch 10, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich nach jeder Reaktionszone wenigstens eine, bevorzugt eine Wärmeaustauschzone befindet, durch die das Prozessgas geleitet wird.
- 5 12. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich zwischen einer Reaktionszone und einer Wärmeaustauschzone mindestens eine Wärmeisolationszone befindet.
13. Verfahren nach Anspruch 12, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich um jede Reaktionszone eine Wärmeisolationszone befindet.



Abbildungen:

Fig. 1