(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
10. Dezember 2009 (10.12.2009)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2009/146812 A2

(51) Internationale Patentklassifikation:
*C07C 51/265* (2006.01) *C07C 63/16* (2006.01)
*C07C 51/31* (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2009/003717

(22) Internationales Anmeldedatum:
26. Mai 2009 (26.05.2009)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10 2008 025 843.1 29. Mai 2008 (29.05.2008) 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)*: **HIZALER HOFFMANN, Evin** [TR/DE]; Em Parkveedel 23c, 50733 Köln (DE). **MLECZKO, Leslaw** [PL/DE]; Quittenweg 1, 41542 Dormagen (DE). **SCHELLEN, Ralph** [DE/DE]; Hardenbergstr. 9, 41539 Dormagen (DE). **SCHUBERT, Stephan** [DE/DE]; Von-Diergardt-Str. 29, 51375 Leverkusen (DE). **HOFFMANN, André** [DE/DE]; Saarlandstr. 97, 44139 Dortmund (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: **BAYER TECHNOLOGY SERVICES GMBH** et al.; 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, 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, 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.

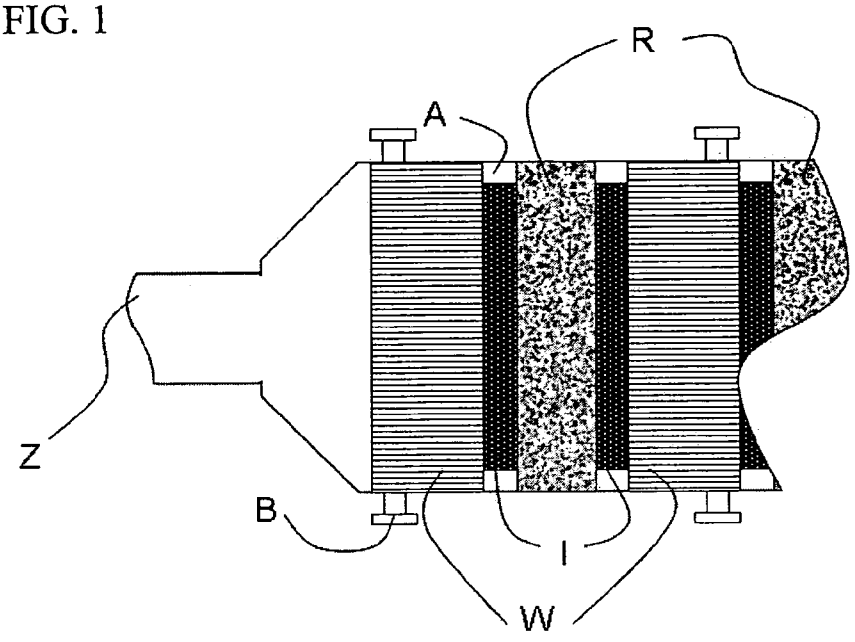
(84) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart)*: ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI,

*[Fortsetzung auf der nächsten Seite]*

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING PHTHALIC ACID ANHYDRIDE

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON PHTHALSÄUREANHYDRID

FIG. 1




(57) Abstract: The present invention relates to a method for the production of phthalic acid anhydride by catalytic gas phase oxidation of o-xylol with oxygen, wherein the reaction is carried out in 5 to 60 serially arranged reaction zones under adiabatic conditions, and a reactor system for carrying out said method

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid durch katalytische Gasphasenoxidation von O-Xylol mit Sauerstoff, worin die Umsetzung in 5 bis 60 hintereinander geschalteten Reaktionszonen unter adiabaten Bedingungen durchgeführt wird, sowie ein Reaktorsystem zur Durchführung des Verfahrens.

WO 2009/146812 A2

SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

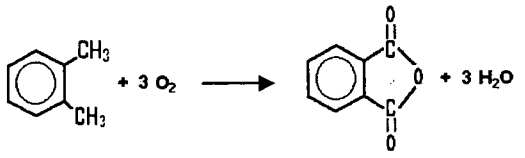
**Veröffentlicht**:

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

**Verfahren zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid**

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid durch katalytische Gasphasenoxidation von O-Xylol mit Sauerstoff, worin die Umsetzung in 5 bis 60 hintereinander geschalteten Reaktionszonen unter adiabaten Bedingungen durchgeführt wird, sowie ein Reaktorsystem zur Durchführung des Verfahrens.

Phthalsäureanhydrid wird allgemein unter katalytischem Einfluss von Metalloxid-katalysatoren z.B. Vanadiumpentoxid aus gasförmigen O-Xylol und Sauerstoff in einer exothermen, katalytischen Reaktion gemäß Formel (I) hergestellt:




; $\Delta H$= -1108,7 kJ/mol (I)

Das mittels der Reaktion nach Formel (I) hergestellte Phthalsäureanhydrid wird häufig als Ausgangsstoff für die Herstellung von Weichmachern (zumeist Phthalsäureester) oder als Rohstoff zur Herstellung von Kunstharzen für die Oberflächenbeschichtungen von Holz eingesetzt. Darüber hinaus ist es ein Rohstoff bei der Herstellung von Farbstoffen oder Farbpigmenten auf Basis der Phthalocyanine. Eine weitere technisch wichtige Umsetzung von Phthalsäureanhydrid ist die zum Anthrachinon.

Die Abfuhr und Verwendung der Reaktionswärme ist wichtig bei der Durchführung der Phthalsäureanhydrid-Synthese. Ein unkontrollierter Temperaturanstieg, kann zu einer dauerhaften Schädigung des Katalysators führen. Außerdem existiert bei hohen Temperaturen die Möglichkeit von Nebenreaktionen unter Bildung mehr oder weniger großer Mengen an Maleinsäureanhydrid, sowie Kohlenmonoxid und Kohlendioxid. 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 und/oder Katalysatorinaktivierung ermöglicht.

In der US 6,380,399 B1 wird ein Verfahren zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid aus O-Xylol oder Naphta offenbart, bei dem in mindestens drei Katalysatorstufen, die zu einer Reaktionszone zusammengefasst sein können, in einem Festbettreaktor der Umsatz bei Temperaturen zwischen 300°C und 400°C durchgeführt wird. Der Anteil an Sauerstoff an

den Prozessgasen eingangs des Verfahrens liegt zwischen 10 und 21 Vol.-%. Hierauf bezogen, liegt die Konzentration des O-Xylol oder Naphta bei mindestens 70 g/Nm$^3$. Der Katalysator in dessen Gegenwart der Umsatz ausgeführt wird, umfasst bevorzugt Vanadium- und Titanoxid. Es wird weiter offenbart, dass die Reaktionszonen gekühlt werden. Es werden keine getrennten Wärmeaustauschzonen offenbart.

Das in der US 6,380,399 B1 offenbarte Verfahren ist nachteilig, weil die Reaktionszonen aktiv gekühlt werden und versucht wird über das Einstellen der Katalysatoraktivität mittels Verdünnung mit nicht katalytisch aktivem Material die Überhitzung der Reaktionszonen zu verhindern. Die Tatsache, dass die Reaktionszonen direkt gekühlt werden, führt dazu, dass vorgegeben durch Geometrie der Reaktionsvorrichtung und dem verwendeten Wärmeaustauschmittel nur eine maximale Wärmeaustauschrate erzielbar ist, die nicht im Betrieb des Verfahrens in einfacher Weise verändert werden kann. Hieraus wiederum resultiert, dass es, z.B. durch Einspeisung von zuviel Edukt im Rahmen einer Ventilfehlstellung, zu Betriebszuständen kommen kann, in denen eine Überhitzung des Verfahrens in den „Hot-Spots" nicht mehr abgefangen werden kann. Dies führt mindestens zu einer Einbuße des Zielproduktes, kann aber auch zu Verlust an Katalysatoraktivität und damit zur Notwendigkeit dessen Erneuerung, oder auch zu einer Zerstörung der Vorrichtung, in der sich die Reaktionszone befindet, führen.

In der US 6,774,246 B2 wird ein zu der Offenbarung der US 6,380,399 B1 ähnliches Verfahren offenbart, bei dem aus O-Xylol oder Naphta Phthalsäureanhydrid in zwei Reaktionszonen hergestellt wird, wobei die Reaktionszonen Festbetten umfassen, die gekühlt werden. Der Gesamtdruck des Verfahrens kann zwischen 0,1 und 2,5 bar liegen, während die Temperaturen, unter denen die Prozessgase in das Verfahren eintreten zwischen 300°C und 450°C liegen können. Das Prozessgas kann 1 bis 100 mol-% Sauerstoff umfassen und eine Konzentration an O-Xylol oder Naphta zwischen 60 und 120 g/Nm$^3$ haben. Es werden wie auch in der US 6,380,399 B1 keine von den Reaktionszonen getrennten Wärmeaustauschzonen offenbart.

Demzufolge ist das in der US 6,774,246 B2 offenbarte Verfahren aus denselben Gründen nachteilig, wie das in der US 6,380,399 B1 offenbarte Verfahren. Außerdem erlaubt die Verwendung von maximal zwei Reaktionszonen eine noch schlechtere Temperaturkontrolle.

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 Synthese von Phthalsäureanhydrid aus gasförmigem Sauerstoff und O-Xylol 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 durchgerührt werden soll. 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 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 dahingehend nachteilig, als das eine genaue Temperaturkontrolle der Prozessgase der Reaktion nicht möglich ist.

Ausgehend vom Stand der Technik wäre es daher vorteilhaft, ein Verfahren bereitzustellen, das in einfachen Reaktionsvorrichtungen durchgeführt werden kann und das eine genaue, einfache Temperaturkontrolle ermöglicht, so dass es hohe Umsätze bei möglichst hohen Reinheiten des Produktes erlaubt. Solche einfachen Reaktionsvorrichtungen wären leicht in einen technischen Maßstab zu übertragen und sind in allen Größen preiswert und robust.

Für die katalytische Gasphasenoxidation von O-Xylol mit Sauerstoff zu Phthalsäureanhydrid wurden wie gerade dargestellt bisher weder geeignete Reaktoren beschrieben, noch werden geeignete Verfahren aufgezeigt, die diese erlauben.

Es besteht daher die Aufgabe, ein Verfahren zur katalytischen Gasphasenoxidation von O-Xylol und Sauerstoff zu Phthalsäureanhydrid bereitzustellen, das unter genauer Temperaturkontrolle in einfachen Reaktionsvorrichtungen durchführbar ist und das hierdurch hohe Umsätze bei hohen Reinheiten des Produktes erlaubt, wobei die Reaktionswärme entweder zu Gunsten der Reaktion oder in anderer Weise genutzt werden kann.

Es wurde überraschend gefunden, dass ein Verfahren zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid aus O-Xylol und Sauerstoff in Gegenwart heterogener Katalysatoren, **dadurch gekennzeichnet**, dass es 5 bis 60 hintereinander geschaltete Reaktionszonen mit adiabaten Bedingungen umfasst, diese Aufgabe zu lösen vermag.

O-Xylol bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung ein Prozessgas, das in das erfindungsgemäße Verfahren eingeführt wird und das O-Xylol umfasst. Üblicherweise liegt der Anteil an O-Xylol an den dem Verfahren zugeführten Prozessgasen zwischen 0,8 und 10 mol-%, bevorzugt zwischen 1 und 7 mol-%.

Sauerstoff bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung ein Prozessgas, das in das erfindungsgemäße Verfahren eingeführt wird und das im Wesentlichen Sauerstoff umfasst. Bevorzugt ist Sauerstoff Umgebungsluft und umfasst daher einen Anteil von etwa 20 Vol.-% Sauerstoff.

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

Allgemein werden im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung Prozessgase als Gasgemische verstanden, die Sauerstoff und/oder O-Xylol und/oder Phthalsäureanhydrid und/oder Nebenkomponenten umfassen.

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 Wärmezu- oder Abfuhr nur durch vollständige Evakuierung unter Ausschluss der Möglichkeit des Wärmeübergangs durch Strahlung möglich ist. Daher bezeichnet adiabat im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung, dass keine Maßnahmen zur Wärmezu- oder Abfuhr ergriffen werden.

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

Ein Vorteil der erfindungsgemäßen adiabaten Fahrweise der 5 bis 60 hintereinander geschalteten Reaktionszonen gegenüber einer nicht adiabaten Fahrweise besteht darin, dass in den Reaktionszonen keine Mittel zur Wärmeabfuhr bereitgestellt werden müssen, was eine erhebliche Vereinfachung der Konstruktion mit sich bringt. Dadurch ergeben sich insbesondere Vereinfachungen bei der Fertigung des Reaktors sowie bei der Skalierbarkeit des Verfahrens und eine Steigerung der Reaktionsumsätze. Außerdem kann die Wärme, die im Zuge des exothermen Reaktionsfortschrittes erzeugt wird in der einzelnen Reaktionszone zur Steigerung des Umsatzes in kontrollierter Weise genutzt werden.

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 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 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 gemischte Oxide von Vanadium, sowie Oxide und/oder Salze der Elemente ausgewählt aus der Liste der Elemente enthaltend Nb, Sb, P, K, Na, Cs, Rb und Mo umfassen. Bevorzugt sind es Katalysatoren, die gemischte Oxide von Vanadium mit P und Rb umfassen. Diese Katalysatoren können auf Trägermaterialien aufgebracht sein. Solche Trägermaterialien umfassen üblicherweise Aluminiumoxid, Siliziumdioxid und/oder Titandioxid. Bevorzugt sind Trägermaterialien aus Titandioxid.

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

Eine hohe spezifische Oberfläche ist eine spezifische Oberfläche von mindestens 10 $m^2/g$, bevorzugt von mindestens 20 $m^2/g$.

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

Bevorzugt sind die Erscheinungsformen Festbett und Fließbett.

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 4 bis 7 mm vor.

Ebenfalls bevorzugt liegt der Katalysator bei Festbettanordnung in monolithischer Form vor. Besonders bevorzugt ist bei Festbettanordnung ein monolithischer Katalysator, der auf Titandioxid geträgerte Mischoxide von Vanadium mit Phosphor umfasst.

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.

Ein monolithischer Katalysator mit Kanälen der angegeben Durchmesser ist besonders vorteilhaft, da hierdurch ein Explosionsschutz gewährleistet werden kann. Dies geschieht durch die Aufnahme der Enthalpie durch die Wandung des Monolithen, womit die Ausbreitung von Flammen unterdrückt wird.

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 beschreiben worden sind.

Schüttungen von solchen Partikeln sind vorteilhaft, weil die Größe der Partikel eine hohe spezifische Oberfläche des Katalysatormaterials gegenüber den Prozessgasen Sauerstoff und O-Xylol besitzen und damit 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 erreichbaren Umsatz aus der Reaktion gemäß Formel (I) 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 bis 30, besonders bevorzugt 7 bis 20 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 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 die erste Reaktionszone eintretenden Prozessgases von 10 bis 490°C, bevorzugt von 150 bis 480°C, besonders bevorzugt von 300 bis 470°C.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens beträgt der absolute Druck am Eingang der ersten Reaktionszone zwischen 1 und 10 bar, bevorzugt zwischen 1,1 und 3 bar, besonders bevorzugt zwischen 1,2 und 1,5 bar.

In noch einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens beträgt die Verweilzeit des Prozessgases in allen Reaktionszonen zusammen zwischen 0,05 und 25 s, bevorzugt zwischen 0,1 und 10 s, besonders bevorzugt zwischen 0,15 und 3 s.

Das O-Xylol und der Sauerstoff werden bevorzugt nur vor der ersten Reaktionszone zugeführt. Dies hat den Vorteil, dass das gesamte Prozessgas für die Aufnahme und Abfuhr der Reaktionswärme in allen Reaktionszonen genutzt werden kann. Außerdem kann durch eine solche Verfahrensweise die Raum-Zeit-Ausbeute gesteigert werden, bzw. die notwendige Katalysatormasse verringert werden. Es ist aber auch möglich vor einer oder mehreren der nach der ersten Reaktionszone folgenden Reaktionszonen nach Bedarf O-Xylol und/oder Sauerstoff in das Prozessgas einzudosieren. Über die Zufuhr von Gas zwischen den Reaktionszonen kann zusätzlich die Temperatur des Umsatzes gesteuert werden.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird das Prozessgas nach mindestens einer der verwendeten Reaktionszonen, besonders bevorzugt

nach jeder Reaktionszone abgekühlt. 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.

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.

In einer besonderen Ausführungsform des Verfahrens wird beim Abkühlen des Prozessgases in den Wärmeaustauschzonen durch den Wärmetauscher Dampf erzeugt.

Innerhalb dieser besonderen Ausführungsform ist es bevorzugt in den Wärmetauschern, die die Wärmeaustauschzonen beinhalten, auf der Seite des Kühlmediums eine Verdampfung, bevorzugt Teilverdampfung auszuführen.

Teilverdampfung bezeichnet im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung eine Verdampfung, bei der ein Gas-/Flüssigkeitsgemisch eines Stoffes als Kühlmedium verwendet wird und bei der auch nach Wärmeübergang in dem Wärmetauscher noch ein Gas-/Flüssigkeitsgemisch eines Stoffes vorliegt.

Das Ausführen einer Verdampfung ist besonders vorteilhaft, weil hierdurch der erzielbare Wärmeübergangskoeffizient von/zu Prozessgasen auf/von Kühl-/Heizmedium besonders hoch wird und somit eine effiziente Kühlung erreicht werden kann.

Das Ausführen einer Teilverdampfung ist besonders vorteilhaft, weil die Aufnahme / Abgabe von Wärme durch das Kühlmedium hierdurch nicht mehr in einer Temperaturänderung des Kühlmediums resultiert, sondern lediglich das Gas-/Flüssig Gleichgewicht verschoben wird. Das hat zur Folge, dass über die gesamte Wärmeaustauschzone das Prozessgas gegenüber einer konstanten Temperatur gekühlt wird. Dies wiederum verhindert sicher das Auftreten von 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 Temperaturprofile verhindert wird.

In einer alternativen Ausführungsform kann anstelle einer Verdampfung/Teilverdampfung auch eine Mischzone vor dem Eingang einer Reaktionszone vorgesehen werden, um die gegebenenfalls bei der Abkühlung entstehenden 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. 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 Produktgas (Phthalsäureanhydrid), aus denen sich auch die einzusetzenden Prozessgasmengen ergeben, liegen üblicherweise zwischen 0,01 und 35 t/h, bevorzugt zwischen 0,1 und 20 t/h, besonders bevorzugt zwischen 1 und 15 t/h.

Die maximale Austrittstemperatur des Prozessgases aus den Reaktionszonen liegt üblicherweise in einem Bereich von 400°C bis 520°C, bevorzugt von 420°C bis 510°C, besonders bevorzugt von 430°C bis 500°C. Die Steuerung der Temperatur in den Reaktionszonen erfolgt bevorzugt durch mindestens eine der folgenden Maßnahmen: Dimensionierung der adiabaten Reaktionszone, Steuerung der Wärmeabfuhr zwischen den Reaktionszonen, Zusatz von Gas zwischen den Reaktionszonen, molares Verhältnis der Edukte / Überschuss an verwendetem Sauerstoff, Zusatz von Inertgasen, insbesondere Stickstoff, Kohlendioxid, vor und/oder zwischen den Reaktionszonen.

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. 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 bzw. Trägermaterial erfolgen. Ebenfalls vorteilhaft ist die Verwendung eines Katalysators in der ersten und/oder zweiten Reaktionszone, der besonders stabil gegen eine Desaktivierung bei den Temperaturen des Verfahrens in diesen Reaktionszonen ist.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren können pro 1 kg Katalysator 0,01 kg/h bis 1 kg/h, bevorzugt 0,02 kg/h bis 0,75 kg/h, besonders bevorzugt 0,03 kg/h bis 0,4 kg/h Phthalsäureanhydrid hergestellt werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren zeichnet sich somit durch hohe Raumzeitausbeuten aus, verbunden mit einer Verringerung der Apparategrößen sowie einer Vereinfachung der Apparaturen 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 Verringerung der gebildeten Nebenprodukte, wie etwa Maleinsäureanhydrid und $CO_2$.

Weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Reaktorsystem zur Umsetzung von O-Xylol und Sauerstoff zu Phthalsäureanhydrid, dadurch gekennzeichnet, dass es Zuleitungen (Z) für ein Prozessgas umfassend O-Xylol und Sauerstoff oder für mindestens zwei Prozessgase, von denen mindestens eines O-Xylol und mindestens eines Sauerstoff umfasst und 5 bis 60 hintereinander geschaltete Reaktionszonen (R) in Form von Festbetten eines heterogenen Katalysators umfasst, wobei sich zwischen den Reaktionszonen Wärmeisolationszonen (I) in Form von Isolationsmaterial und zwischen diesen Wärmeaustauschzonen (W) in Form von Plattenwärmetauschern befinden, die mit den Reaktionszonen über Zu- und

Ableitungen für die Prozessgase verbunden sind und die Zu- und Ableitungen für ein Kühlmedium umfassen.

Das Reaktorsystem kann auch 6 bis 30, bevorzugt 7 bis 20 Reaktionszonen in Form von Festbetten umfassen.

Das Isolationsmaterial der Wärmeisolationszonen ist bevorzugt ein Material mit einem Wärmeleitkoeffizient $\lambda$ kleiner oder gleich 0,08 $\left[\frac{W}{m \cdot K}\right]$. Besonders bevorzugt sind etwa Polystyrol, Polyurethane, Glaswolle oder Luft.

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

FIG. 1 zeigt eine schematische Darstellung einer Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktorsystems, wobei in der Abbildungen die folgenden Bezugszeichen verwendet werden:

Z: Zuleitung(en)
R: Reaktionszone(n)
I: Wärmeisolationszone(n)
W: Wärmeaustauschzone(n)

FIG 2 zeigt Reaktortemperatur (T), O-Xylol-Umsatz (U) und Phthalsäureanhydrid-Selektivität (Y) über einer Anzahl von 8 Reaktionszonen (S) mit nachgeschalteten Wärmeaustauschzonen (gemäß Beispiel 1).

FIG 3 zeigt Reaktortemperatur (T), O-Xylol-Umsatz (U) und Phthalsäureanhydrid-Selektivität (Y) über einer Anzahl von 12 Reaktionszonen (S) mit nachgeschalteten Wärmeaustauschzonen (gemäß Beispiel 2).

FIG 4 zeigt Reaktortemperatur (T), O-Xylol-Umsatz (U) und Phthalsäureanhydrid-Selektivität (Y) über einer Anzahl von 18 Reaktionszonen (S) mit nachgeschalteten Wärmeaustauschzonen (gemäß Beispiel 3).

Die vorliegende Erfindung wird weiterhin anhand der nachfolgenden Beispiele 1 bis 3 näher erläutert, ohne sie hierauf zu beschränken.

**Beispiele**

**Beispiel 1:**

In diesem Beispiel strömt das Prozessgas über insgesamt 8 Katalysatorfestbetten aus Titandioxid beschichtet mit Vanadiumpentoxid, also durch 8 Reaktionszonen. Jeweils nach einer Reaktionszone befindet sich eine Wärmeaustauschzone, in der das Prozessgas gekühlt wurde, bevor es in die nächste Reaktionszone eintritt. Das eingangs der ersten Reaktionszone verwendete Prozessgas enthält 0,94 mol-% O-Xylol, 20,79 mol-% Sauerstoff, und 78,27 mol-% Inertgase (Stickstoff, $CO_2$, Argon). Mit dem Anteil von 0,94 mol-% O-Xylol, liegt der Anteil unter der Grenze zur Erhaltung eines potentiell zündfähigen Gemisches (1 mol-% mit Luft), so dass auf die Überschreitung einer potentiellen Zündtemperatur nicht geachtet werden muss. Der absolute Eingangsdruck des Prozessgases direkt vor der ersten Reaktionszone beträgt 1,5 bar. Die Länge der Katalysatorfestbetten, also der Reaktionszonen, beträgt stets 0,1 m, bis auf die letzte Reaktionszone, deren Länge 0,14 m beträgt. Die Aktivität des verwendeten Katalysators ist über die Reaktionszonen nicht veränderlich. Es erfolgt keine Zudosierung von Gas vor den einzelnen Reaktionszonen. Die Verweilzeit in der Anlage insgesamt beträgt 0,2 Sekunden.

Die Ergebnisse sind in Fig.2 gezeigt. Hierbei sind auf der x-Achse die einzelnen Reaktionszonen aufgeführt, so dass ein räumlicher Verlauf der Entwicklungen im Verfahren sichtbar wird. Auf der linken y-Achse ist die Temperatur des Prozessgases angegeben. Der Temperaturverlauf über die einzelnen Reaktionszonen hinweg ist als dicke, durchgezogene Linie dargestellt. Auf der rechten y-Achse ist der Gesamtumsatz an O-Xylol, sowie die Selektivität von Phthalsäureanhydrid angegeben. Der Verlauf des Umsatzes über die einzelnen Reaktionszonen hinweg ist als dicke gestrichelte Linie dargestellt. Der Verlauf der Selektivität, als dünne durchgezogene Linie.

Man erkennt, dass die Eingangstemperatur des Prozessgases vor der ersten Reaktionszone etwa 420°C beträgt. Durch die exotherme Reaktion zu Phthalsäureanhydrid unter adiabaten Bedingungen steigt die Temperatur in der ersten Reaktionszone auf etwa 490°C, bevor das Prozessgas in der nachgeschalteten Wärmeaustauschzone wieder abgekühlt wird. Die Eingangstemperatur vor der nächsten Reaktionszone beträgt wieder etwa 420°C. Durch exotherme adiabate Reaktion steigt sie wieder auf etwa 490°C. Die Abfolge aus Erwärmung und Kühlung setzt sich weiter fort. Die Eingangstemperaturen des

Prozessgases vor den einzelnen Reaktionszonen ändert sich im Verfahrensverlauf auf einen Wert von etwa 480°C.

Es wird ein Umsatz an O-Xylol von 99 mol-% erhalten. Die Selektivität wird zu 85,4 mol-% erhalten. Die erzielte Raum-Zeit-Ausbeute bezogen auf die eingesetzte Masse Katalysator beträgt 0,19 $kg_{Phthalsäureanhydrid}/kg_{Kat}h$.

**Beispiel 2:**

In diesem Beispiel strömt das Prozessgas durch insgesamt 12 Reaktionszonen, also über 12 Katalysatorfestbetten aus Titandioxid beschichtet mit Vanadiumpentoxid. Jeweils nach einer Reaktionszone befindet sich eine Wärmeaustauschzone, in der das Prozessgas gekühlt wird und in der eine weitere Zudosierung von O-Xylol vor Reaktionszonen gemäß Tabelle 1 vorgenommen wird. Diese Zudosierung wird so geregelt, dass die zündkritische Grenze von 1 mol-% O-Xylol nicht erreicht wird, so dass auf die Überschreitung einer potentiellen Zündtemperatur nicht geachtet werden muss. Eine genaue Angabe der Anteile an O-Xylol bezogen auf die gesamt dem Verfahren zugeführte Menge gibt Tabelle 1.

**Tabelle 1: Aufteilung der Zudosierung von O-Xylol gemäß Beispiel 2**

| Bezeichnung | Zudosierung vor Reaktionszone | Anteil an Gesamtmenge O-Xylol [%] |
|---|---|---|
| Feed | 1 | 46,6 |
| Zudosierung 1 | 2 | 12,3 |
| Zudosierung 2 | 3 | 10,5 |
| Zudosierung 3 | 4 | 10,3 |
| Zudosierung 4 | 5 | 10,3 |
| Zudosierung 5 | 6 | 10 |

Das eingangs verwendete Prozessgas, wie auch der Eingangsdruck vor der ersten Reaktionszone, ist identisch zu jenem aus Beispiel 1. Bei den Zudosierungen werden Stoffströme reinen, gasförmigen O-Xylols verwendet, um die verbrauchte Menge mindestens teilweise zu ersetzen. Die Volumen und Stoffströme der Zudosierungen ergeben sich somit aus dem Anteil gemäß Tabelle 1, sowie Volumenstrom des Feed und Konzentration von O-Xylol im Feed. Die Länge der Katalysatorfestbetten, also der

Reaktionszonen, beträgt stets 0,1 m, bis auf die letzte Reaktionszone, deren Länge 0,18 m beträgt. Die Aktivität der Katalysatoren ist über die Reaktionszonen nicht veränderlich. Damit erreicht man nach den ersten 6 Reaktionszonen ein Oszillieren in einem Temperaturfenster zwischen 415°C und 490°C. Die Verweilzeit in der Anlage beträgt insgesamt 0,3 Sekunden.

Die Ergebnisse sind in Fig.3 gezeigt. Hierbei sind auf der x-Achse die einzelnen Reaktionszonen aufgeführt, so dass ein räumlicher Verlauf der Entwicklungen im Verfahren sichtbar wird. Auf der linken y-Achse ist die Temperatur des Prozessgases angegeben. Der Temperaturverlauf über die einzelnen Reaktionszonen hinweg ist als dicke, durchgezogene Linie dargestellt. Auf der rechten y-Achse ist der Gesamtumsatz an O-Xylol, sowie die Selektivität von Phthalsäureanhydrid angegeben. Der Verlauf des Umsatzes über die einzelnen Reaktionszonen hinweg ist als dicke gestrichelte Linie dargestellt. Der Verlauf der Selektivität, als dünne durchgezogene Linie.

Man erkennt, dass die Eingangstemperatur des Prozessgases vor der ersten Reaktionszone etwa 420°C beträgt. Durch die exotherme Reaktion zu Phthalsäureanhydrid unter adiabaten Bedingungen steigt die Temperatur in der ersten Reaktionszone auf etwa 490°C, bevor das Prozessgas in der nachgeschalteten Wärmeaustauschzone wieder abgekühlt wird. Das Abkühlen wird hier auch durch das bei niedrigerer Temperatur zudosierte O-Xylol erreicht. Die Eingangstemperatur vor der nächsten Reaktionszone beträgt etwa 415°C. Durch exotherme adiabate Reaktion steigt sie wieder auf etwa 490°C. Die Abfolge aus Erwärmung und Kühlung setzt sich weiter fort. Die Eingangstemperaturen des Prozessgases vor den einzelnen Reaktionszonen ändert sich signifikant ab der 7ten Reaktionszone. Hier wird ein weiteres Erwärmen auf bis zu etwa 460°C vor der letzten Reaktionszone zugelassen.

Es wird ein Umsatz von 99 mol-% des eingesetzten O-Xylols, errechnet aus der verbleibenden Masse ausgangs der letzten Reaktionszone, erhalten. Die Selektivität beträgt bezüglich Phthalsäureanhydrid etwa 84,7 mol-%. Die erzielte Raum-Zeit-Ausbeute bezogen auf die eingesetzte Masse Katalysator beträgt 0,25 $kg_{Phthalsäureanhydrid}/kg_{Kat}h$.

**Beispiel 3:**

In diesem Beispiel strömt das Prozessgas über insgesamt 18 Katalysatorfestbetten in Form von Monolithen mit Kanaldurchmessern der Monolithe von 1 mm, die mit einem Katalysator umfassend Vanadiumpentoxid auf einem Träger aus Titandioxid beschichtet sind, also durch 18 Reaktionszonen. Jeweils nach einer Reaktionszone befindet sich eine Wärmeaustauschzone, in der das Prozessgas gekühlt wurde, bevor es in die nächste Reaktionszone eintritt. Das eingangs der ersten Reaktionszone verwendete Prozessgas enthält 2 mol-% O-Xylol, 20,56 mol-% Sauerstoff und 77,44 mol-% Inertgase (Stickstoff, $CO_2$, Argon). Mit dem Anteil von 2 mol-% O-Xylol, liegt der Anteil über der Grenze zur Erhaltung eines potentiell zündfähigen Gemisches (1 mol-% mit Luft), so dass auf die Überschreitung einer potentiellen Zündtemperatur (450°C) geachtet werden muss. Nach der siebten Reaktionszone ist bereits genug O-Xylol abgebaut worden, so dass in den weiteren Reaktionszonen auch höhere Temperaturen erlaubt werden. Der absolute Eingangsdruck des Prozessgases direkt vor der ersten Reaktionszone beträgt 1,5 bar. Die Länge der Katalysatorfestbetten, also der Reaktionszonen, beträgt stets 0,5 m, bis auf die letzte Reaktionszone mit einer Länge von 0,74 m. Die Aktivität des verwendeten Katalysators ist über die Reaktionszonen nicht veränderlich. Es erfolgt keine Zudosierung von Gas vor den einzelnen Reaktionszonen. Die Verweilzeit in der Anlage insgesamt beträgt 1,6 Sekunden.

Die Ergebnisse sind in Fig.4 gezeigt. Hierbei sind auf der x-Achse die einzelnen Reaktionszonen aufgeführt, so dass ein räumlicher Verlauf der Entwicklungen im Verfahren sichtbar wird. Auf der linken y-Achse ist die Temperatur des Prozessgases angegeben. Der Temperaturverlauf über die einzelnen Reaktionszonen hinweg ist als dicke, durchgezogene Linie dargestellt. Auf der rechten y-Achse ist der Gesamtumsatz an O-Xylol, sowie die Selektivität von Phthalsäureanhydrid angegeben. Der Verlauf des Umsatzes über die einzelnen Reaktionszonen hinweg ist als dicke gestrichelte Linie dargestellt. Der Verlauf der Selektivität, als dünne durchgezogene Linie.

Man erkennt, dass die Eingangstemperatur des Prozessgases vor der ersten Reaktionszone etwa 400°C beträgt. Durch die exotherme Reaktion zu Phthalsäureanhydrid unter adiabaten Bedingungen steigt die Temperatur in der ersten Reaktionszone auf etwa 440°C, bevor das Prozessgas in der nachgeschalteten Wärmeaustauschzone wieder abgekühlt wird. Die Eingangstemperatur vor der nächsten Reaktionszone beträgt etwa 394°C. Durch exotherme

adiabate Reaktion steigt sie wieder auf etwa 440°C. Die Abfolge aus Erwärmung und Kühlung setzt sich weiter fort bis zum Ausgang der sechsten Reaktionszone. In der hiernach folgenden Wärmeaustauschzone wird weniger gekühlt, so dass die Eintrittstemperatur der siebten Reaktionszone etwa 435°C beträgt. Durch exotherme adiabate Reaktion steigt diese auf etwa 490°C. Die Abfolge aus Erwärmung und Kühlung setzt sich weiter fort, wobei ein langsamer Anstieg der Eingangstemperaturen auf bis zu 475°C eingangs der letzten Reaktionszone toleriert wird.

Es wird ein Umsatz an O-Xylol von 99 mol-% erhalten. Die Selektivität wird zu 84,4 mol-% erhalten. Die erzielte Raum-Zeit-Ausbeute bezogen auf die eingesetzte Masse Katalysator beträgt 0,034 $kg_{Phthalsäureanhydrid}/kg_{Kat}h$.

**Patentansprüche**

1. Verfahren zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid aus O-Xylol und Sauerstoff in Gegenwart heterogener Katalysatoren, **dadurch gekennzeichnet**, dass es 5 bis 60 hintereinander geschaltete Reaktionszonen mit adiabaten Bedingungen umfasst.

2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass der Umsatz in 6 bis 30, bevorzugt 7 bis 20 hintereinander geschalteten Reaktionszonen geschieht.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Eingangstemperatur des in die erste Reaktionszone eintretenden Prozessgases 10 bis 490°C, bevorzugt von 150 bis 480°C, besonders bevorzugt von 300 bis 470°C beträgt.

4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, dass der absolute Druck am Eingang der ersten Reaktionszone zwischen 1 und 10 bar, bevorzugt zwischen 1,1 und 3 bar, besonders bevorzugt zwischen 1,2 und 1,5 bar beträgt.

5. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Verweilzeit des Prozessgases in allen Reaktionszone zwischen 0,05 und 25 s, bevorzugt zwischen 0,1 und 10 s, besonders bevorzugt zwischen 0,15 und 3 s beträgt.

6. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren gemischte Oxide von Vanadium, sowie Oxide und/oder Salze der Elemente ausgewählt aus der Liste der Elemente enthaltend Nb, Sb, P, K, Na, Cs, Rb und Mo umfassen.

7. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren in Festbettanordnung vorliegen.

8. Verfahren nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren als Monolithen vorliegen.

9. Verfahren nach Anspruch 8, **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.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren in Fließbettanordnung vorliegen.

11. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 7 oder 10, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Katalysatoren in Schüttungen von Partikeln mit mittleren Partikelgrößen von 1 bis 10 mm, bevorzugt 2 bis 8 mm, besonders bevorzugt von 4 bis 7 mm vorliegen.

12. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich nach mindestens einer Reaktionszone wenigstens eine Wärmeaustauschzone befindet, durch die das Prozessgas geleitet wird.

13. Verfahren nach Anspruch 12, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich nach jeder Reaktionszone wenigstens eine, bevorzugt eine Wärmeaustauschzone befindet, durch die das Prozessgas geleitet wird.

14. Verfahren nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich zwischen einer Reaktionszone und einer Wärmeaustauschzone mindestens eine Wärmeisolationszone befindet.

15. Verfahren nach Anspruch 14, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich um jede Reaktionszone eine Wärmeisolationszone befindet.

16. Reaktorsystem zur Durchführung eines Verfahrens nach einem der vorigen Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass es Zuleitungen (Z) für ein Prozessgas umfassend O-Xylol und Sauerstoff oder für mindestens zwei Prozessgase, von denen mindestens eines O-Xylol und mindestens eines Sauerstoff umfasst und 5 bis 60 hintereinander geschaltete Reaktionszonen (R) in Form von Festbetten eines heterogenen Katalysators umfasst, wobei sich zwischen den Reaktionszonen Wärmeisolationszonen (I) in Form von Isolationsmaterial und zwischen diesen Wärmeaustauschzonen (W) in Form von Plattenwärmetauschern befinden, die mit den Reaktionszonen über Zu- und Ableitungen für die Prozessgase verbunden sind und die Zu- und Ableitungen für ein Kühlmedium umfassen.

**Abbildungen:**

FIG. 1

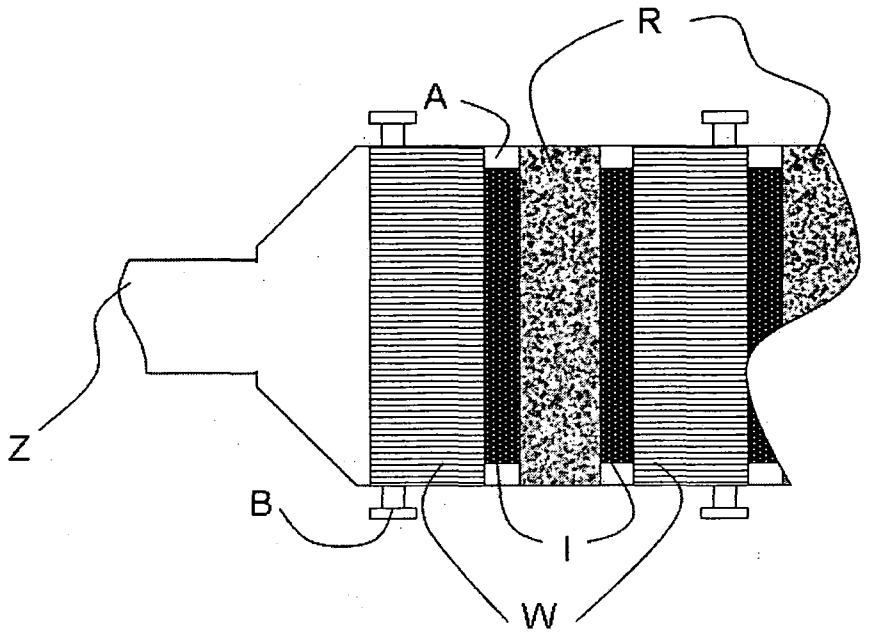



FIG. 2

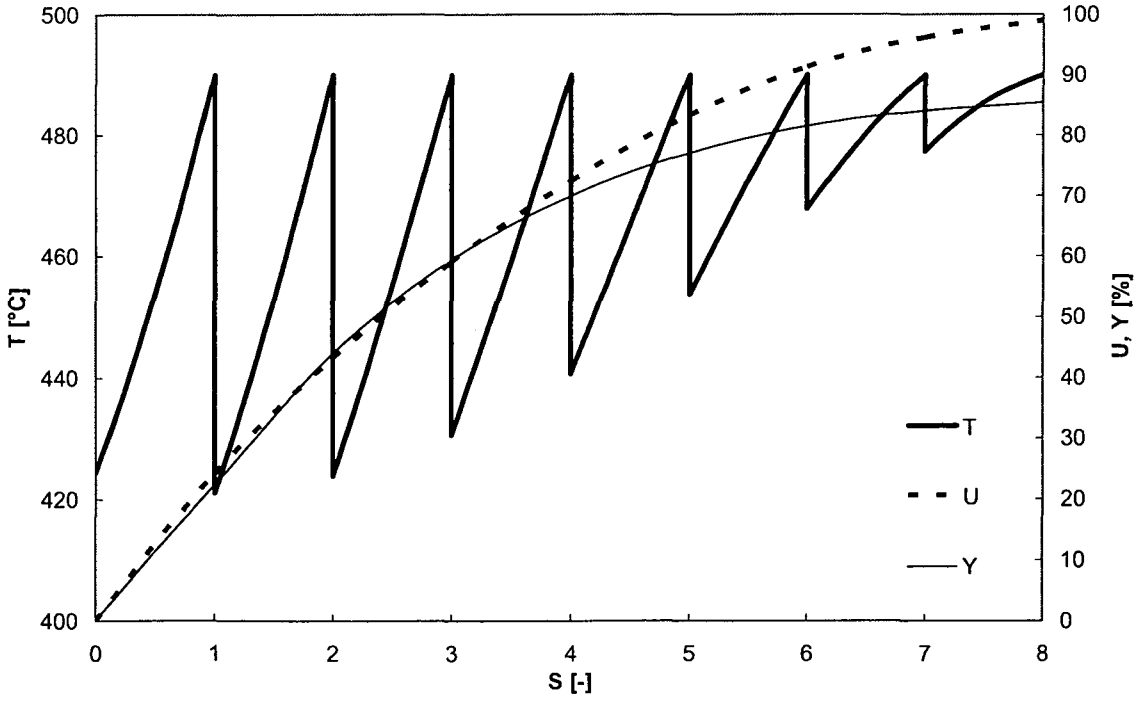


FIG. 3

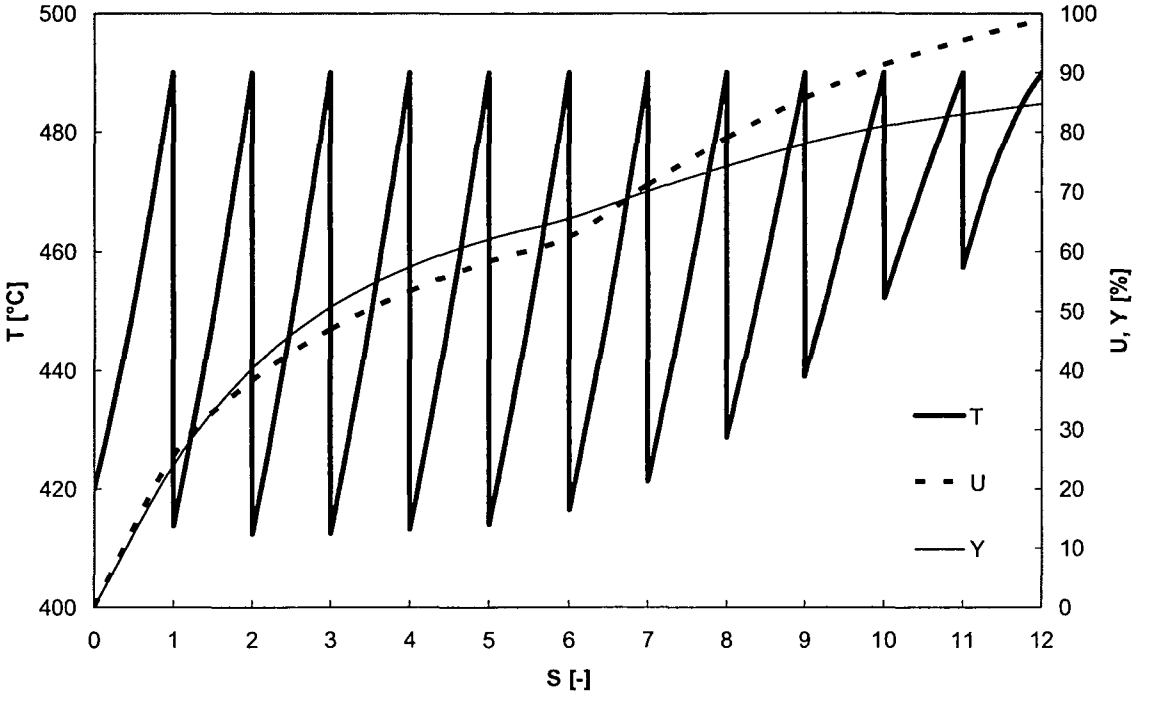
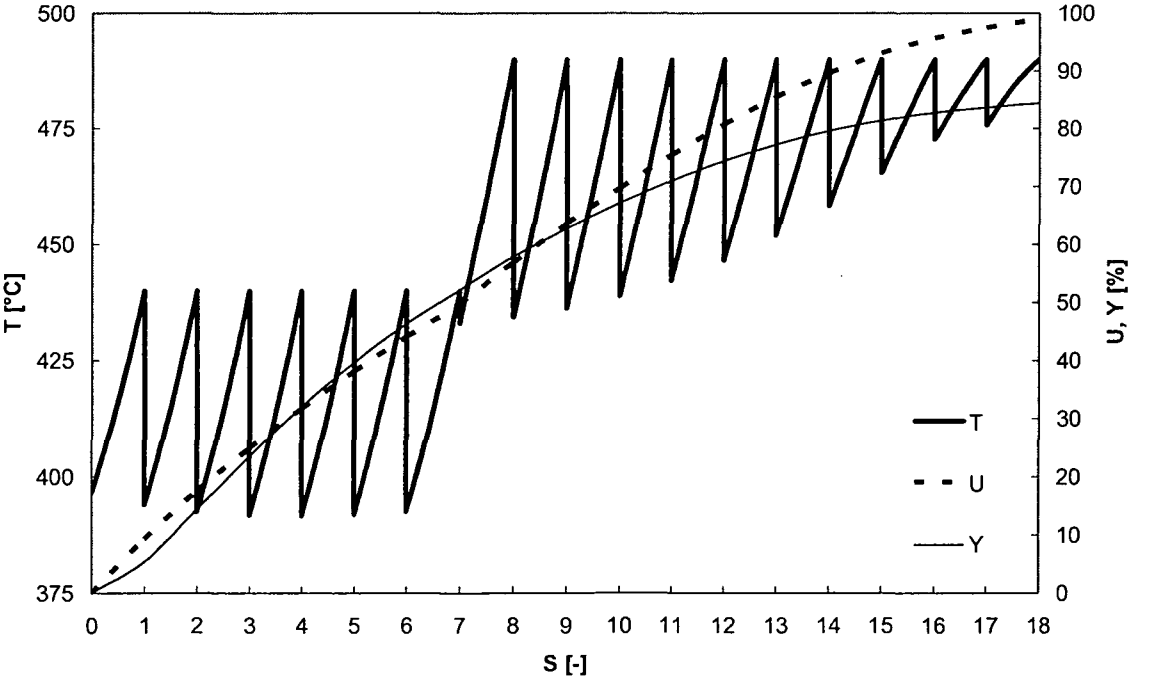

500
480
460
440
420
400
T [°C]
100
90
80
70
60
50
40
30
20
10
0
U, Y [%]
0 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12
S [-]
T
U
Y

FIG. 4


500
475
450
425
400
375
T [°C]
100
90
80
70
60
50
40
30
20
10
0
U, Y [%]
0 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18
S [-]
T
U
Y

5