

(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
21. September 2000 (21.09.2000)

PCT

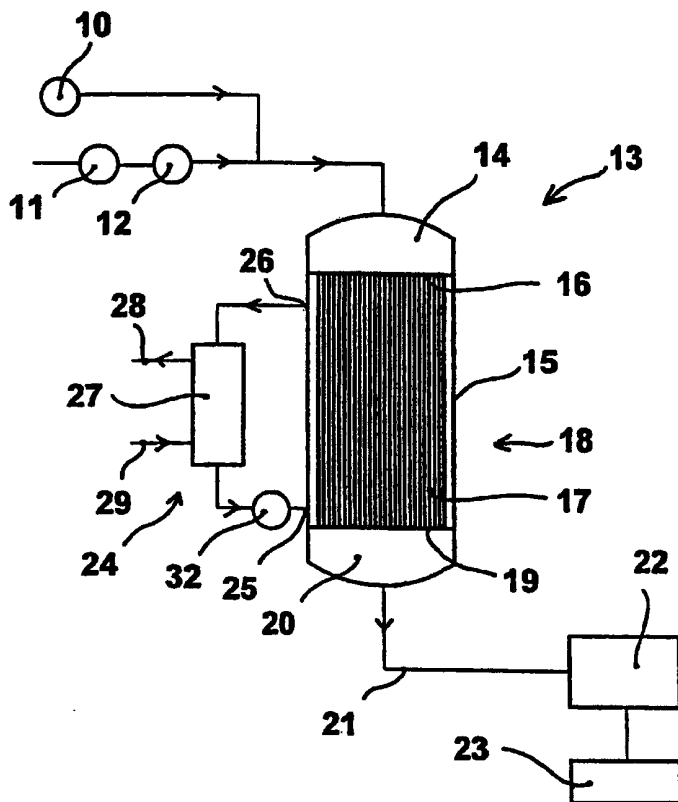
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 00/54877 A3

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: **B01J 8/06**, 199 56 329.2 23. November 1999 (23.11.1999) DE
19/24, 19/00
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/02304
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **BASF AKTIENGESellschaft** [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE).
- (22) Internationales Anmeldedatum: 15. März 2000 (15.03.2000)
- (72) Erfinder; und
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **OLBERT, Gerhard** [DE/DE]; Frankenweg 11, D-69221 Dossenheim (DE). **CORR, Franz** [DE/DE]; Königsbacher Str. 108, D-67067 Ludwigshafen (DE). **REUTER, Peter** [DE/DE]; Karl-Marx-Str. 43, D-68199 Mannheim (DE). **WAMBACH, Ludwig** [DE/DE]; Marstallstr. 49b, D-68723 Schwetzingen (DE). **HAMMON, Ulrich** [DE/DE]; Nietzschestr. 30, D-68165 Mannheim (DE).
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität: 199 12 735.2 16. März 1999 (16.03.1999) DE

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: MULTI-TUBE FIXED-BED REACTOR, ESPECIALLY FOR CATALYTIC GAS PHASE REACTIONS

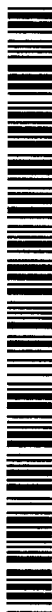
(54) Bezeichnung: ROHRBÜNDELREAKTOR, INSBESONDERE FÜR KATALYTISCHE GASPHASENREAKTIONEN



(57) Abstract: The invention relates to a multi-tube fixed-bed reactor and to the use of a reactor of this type for carrying out catalytic gas phase reactions, especially for carrying out exothermic or endothermic catalytic gas phase reactions such as producing phthalic anhydride (PSA), acrylic acid (AA), methacrylic acid (MAA), acrolein, maleic anhydride (MSA), glyoxal, phosgene, hydrogen cyanide or vinyl formamide (VFA). According to the invention, in the case of larger reactors where a considerable reaction heat is produced or required and must be dissipated as a result of the numerous reaction tubes (17), the ratio of tube distribution t to tube outer diameter d_a is made dependant on the reactor diameter or the tube bundle diameter d_{RBA} . If the outer diameter of the reaction tube bundle (18) is more than 4 metres, a ratio of tube distribution t to tube outer diameter d_a of at least 1.3 is preferred.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft einen Rohrbündelreaktor und die Verwendung eines derartigen Reaktors zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen, insbesondere zur Durchführung von exothermen oder endothermen katalytischen Gasphasenreaktionen, wie der Herstellung von Phthalsäureanhydrid (PSA), Acrylsäure (AA),

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



WO 00/54877 A3



(74) **Anwälte:** KINZEBACH, Werner usw.; Reitstötter, Kinzebach & Partner, Sternwartstr. 4, 81633 München (DE).

europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(81) **Bestimmungsstaaten** (*national*): AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

Veröffentlicht:

— Mit internationalem Recherchenbericht.

(88) **Veröffentlichungsdatum des internationalen
Recherchenberichts:**

5. April 2001

(84) **Bestimmungsstaaten** (*regional*): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Methacrylsäure (MAA), Acrolein, Maleinsäureanhydrid (MSA), Glyoxal, Phosgen, Blausäure oder Vinylformamid (VFA). Erfindungsgemäss wird vorgeschlagen, bei grösseren Reaktoren, bei denen aufgrund der zahlreichen Reaktionsrohre (17) eine hohe abzuführende Reaktionswärme anfällt oder benötigt wird, das Verhältnis von Rohrteilung zu Rohraussendurchmesser d_a vom Reaktordurchmesser bzw. vom Rohrbündelaussendurchmesser d_{RbA} abhängig zu machen. Bei einem Aussendurchmesser des Reaktionsrohrbündels (18) von mehr als 4 Metern ist ein Verhältnis von Rohrteilung t zu Rohraussendurchmesser d_a von wenigstens 1,3 bevorzugt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 Inte Int Application No
 PCT/EP 00/02304

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 IPC 7 B01J8/06 B01J19/24 B01J19/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 398 595 A (SMALL WILLIAM M) 16 August 1983 (1983-08-16) example 1 ---	1,2,6,7
X	US 4 505 879 A (LHONORE PIERRE ET AL) 19 March 1985 (1985-03-19) example 1 ---	1,2,6
A	US 5 821 390 A (HAMMON ULRICH ET AL) 13 October 1998 (1998-10-13) abstract; example 1 ---	1-11
A	DE 28 30 765 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 31 January 1980 (1980-01-31) figure 1; examples 1-5 ---	1-11
	--- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 August 2000

Date of mailing of the international search report

12/09/2000

Name and mailing address of the ISA

 European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Willsher, C

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/02304

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 3 566 961 A (BETTERMANN DIETER ET AL) 2 March 1971 (1971-03-02) figures 3,4 -----	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/02304

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4398595 A	16-08-1983	US 4311187 A	19-01-1982
		AU 523547 B	05-08-1982
		AU 6427680 A	04-06-1981
		CA 1135684 A	16-11-1982
		DE 3066319 D	01-03-1984
		EP 0030012 A	10-06-1981
		ES 497254 D	01-05-1982
		ES 8204157 A	16-07-1982
		GB 2064093 A,B	10-06-1981
		JP 1514667 C	24-08-1989
		JP 56094195 A	30-07-1981
		JP 63060314 B	24-11-1988
		MX 153823 A	19-01-1987
		US 4413394 A	08-11-1983
US 4505879 A	19-03-1985	FR 2452315 A	24-10-1980
		EP 0017559 A	15-10-1980
		ES 489853 A	16-09-1980
		JP 1246801 C	16-01-1985
		JP 55130941 A	11-10-1980
		JP 59021859 B	22-05-1984
		US 4518811 A	21-05-1985
US 5821390 A	13-10-1998	DE 4431957 A	16-03-1995
		CA 2157631 A	09-03-1996
		CN 1132735 A	09-10-1996
		CZ 9502293 A	17-04-1996
		DE 59500906 D	04-12-1997
		EP 0700714 A	13-03-1996
		ES 2107887 T	01-12-1997
		JP 8092147 A	09-04-1996
DE 2830765 A	31-01-1980	NONE	
US 3566961 A	02-03-1971	BE 720496 A	06-03-1969
		CH 493811 A	15-07-1970
		CS 154594 B	30-04-1974
		DE 1601162 A	29-10-1970
		FR 1577926 A	08-08-1969
		GB 1241703 A	04-08-1971
		NL 6812591 A	10-03-1969
		RO 59253 A	15-02-1976
		ES 357893 A	01-04-1970

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 B01J8/06 B01J19/24 B01J19/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 398 595 A (SMALL WILLIAM M) 16. August 1983 (1983-08-16) Beispiel 1 ----	1,2,6,7
X	US 4 505 879 A (LHONORE PIERRE ET AL) 19. März 1985 (1985-03-19) Beispiel 1 ----	1,2,6
A	US 5 821 390 A (HAMMON ULRICH ET AL) 13. Oktober 1998 (1998-10-13) Zusammenfassung; Beispiel 1 ----	1-11
A	DE 28 30 765 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 31. Januar 1980 (1980-01-31) Abbildung 1; Beispiele 1-5 ----- -/--	1-11



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. August 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

12/09/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Willsher, C

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 3 566 961 A (BETTERMANN DIETER ET AL) 2. März 1971 (1971-03-02) Abbildungen 3,4 -----	1-11

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02304

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4398595 A	16-08-1983	US 4311187 A	19-01-1982
		AU 523547 B	05-08-1982
		AU 6427680 A	04-06-1981
		CA 1135684 A	16-11-1982
		DE 3066319 D	01-03-1984
		EP 0030012 A	10-06-1981
		ES 497254 D	01-05-1982
		ES 8204157 A	16-07-1982
		GB 2064093 A,B	10-06-1981
		JP 1514667 C	24-08-1989
		JP 56094195 A	30-07-1981
		JP 63060314 B	24-11-1988
		MX 153823 A	19-01-1987
		US 4413394 A	08-11-1983
US 4505879 A	19-03-1985	FR 2452315 A	24-10-1980
		EP 0017559 A	15-10-1980
		ES 489853 A	16-09-1980
		JP 1246801 C	16-01-1985
		JP 55130941 A	11-10-1980
		JP 59021859 B	22-05-1984
		US 4518811 A	21-05-1985
US 5821390 A	13-10-1998	DE 4431957 A	16-03-1995
		CA 2157631 A	09-03-1996
		CN 1132735 A	09-10-1996
		CZ 9502293 A	17-04-1996
		DE 59500906 D	04-12-1997
		EP 0700714 A	13-03-1996
		ES 2107887 T	01-12-1997
		JP 8092147 A	09-04-1996
DE 2830765 A	31-01-1980	KEINE	
US 3566961 A	02-03-1971	BE 720496 A	06-03-1969
		CH 493811 A	15-07-1970
		CS 154594 B	30-04-1974
		DE 1601162 A	29-10-1970
		FR 1577926 A	08-08-1969
		GB 1241703 A	04-08-1971
		NL 6812591 A	10-03-1969
		RO 59253 A	15-02-1976
		ES 357893 A	01-04-1970