



SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT
BUNDESAMT FÜR GEISTIGES EIGENTUM

⑤ Int. Cl.: C 07 C 103/375
C 07 C 76/02



Erfindungspatent für die Schweiz und Liechtenstein

Schweizerisch-liechtensteinischer Patentschutzvertrag vom 22. Dezember 1978

⑫ **PATENTSCHRIFT** A5

⑪

632 485

⑳ Gesuchsnummer:	5472/78	㉗ Inhaber:	Hoechst Aktiengesellschaft, Frankfurt a.M. 80 (DE)
㉑ Anmeldungsdatum:	19.05.1978		
㉓ Priorität(en):	24.05.1977 DE 2723247	㉘ Erfinder:	Dr. Max Schneider, Kelkheim (DE) Lothar Schmitt, Bad Soden/Taunus (DE) Dr. Hartmut Heise, Bad Soden/Taunus (DE)
㉔ Patent erteilt:	15.10.1982		
㉕ Patentschrift veröffentlicht:	15.10.1982	㉙ Vertreter:	Brühwiler & Co., Zürich

⑤④ **Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von 3-Nitro-4-acetyl-aminotoluol und hierfür geeignete Vorrichtung.**

⑤⑦ 3-Nitro-4-acetamino-toluol wird durch kontinuierliches Eindosieren einer schwefelsauren Lösung von 4-Acetaminotoluol und anschliessend von 40-65 %iger wässriger Salpetersäure in die im Kreislauf geführte Reaktionsmischung erhalten. Eine hierfür geeignete Vorrichtung besteht aus einer Kreislaufapparatur (1) mit in Strömungsrichtung nacheinander angeordneten Eindosierungsvorrichtungen (2) und (3), einem Kühler (4) und einem Auslauf (5).

PATENTANSPRÜCHE

1. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von 3-Nitro-4-acetamino-toluol durch Nitrieren einer Lösung von 4-Acetaminotoluol in Schwefelsäure unter Kühlen bei Raumtemperatur oder leicht erhöhter Temperatur unter guter Durchmischung, dadurch gekennzeichnet, dass man in die im Kreislauf geführte Reaktionsmischung zunächst die Lösung des 4-Acetaminotoluols in Schwefelsäure und dann 40 bis 65%ige wässrige Salpetersäure eindosiert.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man ca. 50%ige wässrige Salpetersäure eindosiert.

3. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1 und 2, gekennzeichnet durch eine Kreislaufapparatur (1) mit in Strömungsrichtung nacheinander angeordneten Eindosierungsvorrichtungen (2) und (3), einen Kühler (4) und einen Auslauf (5).

Aus der JP-AS 4812/65 ist es bereits bekannt, 4-Acetaminotoluol als 25%ige Lösung in Schwefelsäure unter Kühlung mit einer 66% Salpetersäure enthaltenden Mischsäure bei etwa Raumtemperatur unter guter Durchmischung kontinuierlich zu nitrieren. Hierbei werden beide Flüssigkeitsströme in die erste von zwei unmittelbar verbundenen Reaktionskammern eindosiert. Das so erhaltene Produkt enthält jedoch einen unvertretbar hohen Anteil von Nebenprodukten, insbesondere Isomeren und Oxidationsprodukten.

Es wurde nun ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von 3-Nitro-4-acetamino-toluol durch Nitrieren einer Lösung von 4-Acetaminotoluol in Schwefelsäure unter Kühlen bei Raumtemperatur oder leicht erhöhter Temperatur und unter guter Durchmischung gefunden, das dadurch gekennzeichnet ist, dass man in die im Kreislauf geführte Reaktionsmischung zunächst die Lösung des 4-Acetaminotoluols in Schwefelsäure und dann eine 40 bis 65%ige, vorzugsweise 50%ige wässrige Salpetersäure eindosiert.

Gegenstand der Erfindung ist weiterhin eine Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens, die durch eine Kreislaufapparatur (1) gekennzeichnet ist, in welche in Strömungsrichtung nacheinander angeordnet eine Eindosierungsvorrichtung (2) für die 4-Acetaminotoluollösung und (3) für die wässrige Salpetersäure, ein Kühler (4) und eine Auslaufvorrichtung (5) für das Produkt eingebaut sind (Figur 1).

Im folgenden werden einige bevorzugte Ausgestaltungen der Erfindung näher beschrieben (Figuren 1 und 2):

Die schwefelsaure 4-Acetaminotoluol-Lösung wird in den abgekühlten Kreislaufstrom so eindosiert, dass eine gute Durchmischung gewährleistet ist. Vorzugsweise erfolgt hierzu die Eindosierung in den durch eine Umwälzpumpe (6) geförderten Produktstrom, der dann in einen Vormischer (7) eintritt. Nach guter Verteilung des 4-Acetaminotoluols wird in den Kreislaufstrom die wässrige Salpetersäure zudosiert. Die vollkommene Vermischung der Reaktionspartner erfolgt sodann in dem Reaktionsmischer (8), in dem die Nitrierungsreaktion beginnt. Die Nitrierungswärme wird im nachfolgenden Kühler (4) abgeführt. Das Reaktionsgemisch gelangt dann in ein Puffergefäß (9), in dem die Reaktion zu Ende geführt wird. Dieses Puffergefäß (9) enthält ein Entlüftungsröhr (10). Weiterhin kann der Produkt-Teilstrom über den Auslass (5) von dem Puffergefäß (9) abgezweigt werden. Durch die Dimensionierung des Puffergefäßes (9) und/oder durch die Veränderung der Füllmenge kann die der jeweiligen Durchsatzleistung entsprechende optimale Verweilzeit eingestellt werden. Weitere Regelmöglichkeiten sind

durch die Einspeisung der Komponenten, durch das Verhältnis der zugeführten Reaktionspartner zum Kreislaufstrom, durch die Kühlung und durch die Umwälzgeschwindigkeit gegeben.

5 Eine zweckmässige Ausgestaltung der erfindungsgemässen Apparatur zeigt die Figur 2. Selbstverständlich sind auch andere Anordnungen der einzelnen Elemente dieser Vorrichtung bzw. der Ersatz einzelner Elemente durch gleichwirkende Mittel möglich. So können beispielsweise die 10 Mischeinrichtungen (7) und (8) entfallen, wenn die Eindosierung der Reaktionskomponenten unter ausreichender Turbulenz erfolgt. Ausserdem kann bei ausreichender Dimensionierung der Apparatur auf das Puffergefäß (9) verzichtet werden und gegebenenfalls bei entsprechender Eindosierung der Reaktionskomponenten auch die Umwälzpumpe (6) entfallen. Selbstverständlich können auch mehrere Misch-, 15 Kühl- und Puffereinrichtungen hintereinander oder parallel geschaltet werden.

Die Erfindung bringt eine Reihe von Vorteilen mit sich: 20 Gegenüber dem aus der JP-AS bekannten Verfahren ist das erfindungsgemässe Verfahren sehr viel besser zu beherrschen und zu steuern. Durch die getrennte Dosierung der Reaktionsteilnehmer und durch die verbesserte Homogenisierung mit dem Kreisstrom werden unerwünschte lokale Überkonzentrationen der Reaktanten vermieden. Ausserdem stellt der 25 grosse Massenstrom des Kreislaufs, der ein Vielfaches der Menge der zudosierten Reaktionskomponenten beträgt, vorzugsweise das etwa 10- bis 30fache, einen variierbaren Puffer dar, mit dem unerwünscht hohe Reaktionstemperaturen und Konzentrationsspitzen abgefangen werden können. Durch 30 die Verwendung der wässrigen Salpetersäure kann man nicht nur auf die getrennte Herstellung der Mischsäure verzichten, sondern es werden dadurch auch die Bildung unerwünschter Nebenprodukte, insbesondere von Isomeren und Oxidationsprodukten zurückgedrängt. Bei der erfindungsgemässen 35 Vorrichtung ist weiterhin die Kühlkapazität sehr viel günstiger. Durch das Kreislaufverfahren können hocheffektive Wärmeaustauscherapparate, beispielsweise Röhrenkühler oder Plattenwärmeaustauscher eingesetzt werden, die wesentlich höhere Wärmedurchgangszahlen bieten als es nach dem bekannten Verfahren mit der Zweikammerapparatur möglich ist. Durch das günstige Verhältnis der verfügbaren Wärmeaustauschfläche zum Arbeitsvolumen wird auch eine raum- und materialsparende Bauweise möglich, die 40 eine hohe Raumzeitausbeute und günstige Investitionskosten mit sich bringt. Das dadurch bedingte spezifisch geringe Apparatvolumen vermindert auch entscheidend das mit Nitrierprozessen verbundene Sicherheitsrisiko.

In dem folgenden Beispiel verhalten sich Gewichtsteile zu 50 Volumenteilen wie das kg zum Liter. Prozentangaben beziehen sich auf das Gewicht, sofern nichts anderes angegeben ist.

Beispiel

55 In 1000 Volumenteilen 96%iger Schwefelsäure werden 600 Gew.-Teile 4-Acetaminotoluol gelöst. Die so erhaltene Lösung wird über den Einlass (2) in eine Kreislaufapparatur (1) aus Edelstahl gemäss Figur 2 eingespeist. Über den Einlass (3) wird 50%ige Salpetersäure so zudosiert, dass pro 60 Volumenteil 4-Acetaminotoluol-Lösung 0,3 Volumenteile Salpetersäure eingetragen werden. Umpumpgeschwindigkeit, Zudosiergeschwindigkeit und Kühlerleistung werden so gesteuert, dass die Temperatur zwischen 20 und 35°C bleibt.

Man erhält nach Fällung des ausgeschleusten Reaktions- 65 produkts mit Wasser eine Ausbeute von 89% d. Th. an 3-Nitro-4-acetamino-toluol.

