

## VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR HYDROFORMYLIERUNG VON ISOBUTEN UND ZUM AUFTRENNEN DES PRODUKTGEMISCHES

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen eines Produktgemisches durch  
5 technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms und zum  
Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches, sowie eine Vorrichtung für das erfindungsgemä-  
ße Verfahren und die Verwendung einer erfindungsgemäßen Vorrichtung.

Unter Hydroformylierung wird im technischen Bereich im Allgemeinen die Umsetzung eines  
10 Olefins mit Synthesegas (hauptsächlich aus Kohlenmonoxid und Wasserstoff bestehendes  
Gasgemisch), gewöhnlich unter Druck und in Gegenwart eines Übergangsmetallkomplex-  
Katalysators, zu einem gegenüber dem Olefin um ein Kohlenstoff-Atom verlängerten Aldehyd  
verstanden.

15 Grundlegende Einführungen in die Hydroformylierung bieten: Falbe, Jürgen: New Syntheses  
with Carbon Monoxide. Springer Verlag 1980, Berlin, Heidelberg, New York und Pruett, Roy L.:  
Hydroformylation. Advances in Organometallic Chemistry Vol. 17, Pages 1-60, 1979.

Allgemein dient die Hydroformylierung zur Herstellung von höheren Aldehyden. Höhere Aldehy-  
20 de, insbesondere solche mit 3 bis 25 Kohlenstoffatome, werden zum Beispiel als Synthesevor-  
stufen, zur Herstellung von Carbonsäuren und als Riechstoffe genutzt. Technisch werden sie oft  
durch katalytische Hydrierung in die entsprechenden Alkohole überführt, die wiederum für die  
Herstellung von Weichmachern und Detergentien dienen. Aufgrund der großtechnischen Be-  
deutung der Hydroformylierungsprodukte wird die Oxo-Reaktion im industriellen Maßstab  
25 durchgeführt.

Durch Hydroformylierung des C<sub>4</sub>-Olefins Isobuten entsteht Isovaleraldehyd, welches im Folgen-  
den als 3-Methylbutanal oder kurz 3MBA bezeichnet wird. 3MBA wird zur Herstellung von  
Riech- und Aromastoffen sowie als Synthesevorstufe verwendet.

30 In der großtechnischen Hydroformylierung werden heute phosphororganische Metall-  
Komplekxkatalysatoren auf Cobalt- oder Rhodiumbasis verwendet. Die Katalysatoren werden  
homogen in der flüssigen Hydroformylierungsmischung gelöst. Im Rahmen der Ausscheidung

des Zielprodukts (der Aldehyde) aus dem Hydroformylierungsgemisch ist auch der Homogenkatalysator aus dem Hydroformylierungsgemisch schonend abzutrennen, da der Komplexkatalysator vergleichsweise empfindlich auf Zustandsänderungen reagiert und seine Aktivität verlieren könnte. Traditionell wird der Katalysator destillativ aus dem Hydroformylierungsgemisch abgeschieden. Um die Gefahr der Desaktivierung zu senken und den Energieverbrauch des Prozesses zu senken gibt es in jüngerer Zeit Bestrebungen, den homogen gelösten Katalysator mit Hilfe von Membrantechnologie (Nanofiltration) aus dem Hydroformylierungsgemisch abzutrennen.

Die Grundlagen der Membrangestützten, organophilen Nanofiltration zur Abscheidung von homogen gelösten Katalysatorkomplexen aus Hydroformylierungsmischungen beschreiben Priske, M. et al.: Reaction integrated separation of homogeneous catalysts in the hydroformylation of higher olefins by means of organophilic nanofiltration. Journal of Membrane Science, Volume 360, Issues 1-2, 15 September 2010, Pages 77-83; doi:10.1016/j.memsci.2010.05.002.

Auch die EP1931472B1 beschäftigt sich allgemein mit der organophilen Nanofiltration zur Abscheidung homogen gelösten Katalysatorkomplexen aus Hydroformylierungsmischungen.

Ein Verfahren zur Herstellung von 3-Methylbutanal durch Hydroformylierung von Isobuten wird in der Patentanmeldung WO2008006633 beschrieben.

Die katalysierte Hydroformylierung von Olefinen zu den entsprechenden Aldehyden erfolgt üblicherweise in homogener, flüssiger Phase, d.h. Katalysator, Olefin und Produkte liegen in einer Phase vor, wobei der Übergangsmetallkomplex-Katalysator homogen im flüssigen Reaktionsgemisch gelöst ist, welches auch das zu hydroformylierende Olefin und Produkte der Hydroformylierung umfasst. Als Produkte der Hydroformylierung werden neben dem besagten Aldehyd als primärem Produkt 3-Methylbutanal typischerweise auch höher siedende Folgeprodukte (üblicherweise als Hochsieder bezeichnet) gebildet. Zusätzlich kann im Reaktionsgemisch ein inertes Lösungsmittel für den Übergangsmetallkomplex-Katalysator, wie beispielsweise Diocetylphthalat oder Diisononylphthalat oder Isononyl benzoate oder Mischungen daraus, vorhanden sein.

Unter „Hochsiedern“ werden hier Stoffe verstanden, die bei einer höheren Temperatur siedend und höhere Molmassen aufweisen als das primäre Hydroformylierungsprodukt (Aldehyd mit einem Kohlenstoff-Atom mehr als das eingesetzte Olefin) und der daraus durch Hydrierung erhaltene Alkohol. Hochsieder entstehen durch Folgereaktionen aus dem primären Hydroformylierungsprodukt. Zu den typischerweise bei technischen Hydroformylierungen entstehenden Hochsiedern gehören Aldolisierungsprodukte und Acetalisierungsprodukte sowie Ester, die durch Reaktion von Alkoholen und Säuren entstehen, wobei die Alkohole und Säuren insbesondere durch Disproportionierung von Aldehyden gebildet werden.

Bei der technischen Hydroformylierung von Isobuten entsteht typischerweise ein Produktgemisch, das neben dem primären Produkt 3-Methylbutanal, welches das Zielprodukt der technischen Hydroformylierung von Isobuten ist, Folgeprodukte in Form von Hochsiedern und den Übergangsmetallkomplex-Katalysator und dessen freie Liganden umfasst. Je nach Umsatzleistung der Reaktion kann das aus dem Reaktor entnommene Produktgemisch auch nicht umgesetztes Edukt enthalten, also Isobuten, Wasserstoff oder Kohlenmonoxid. Um die Reinheit des primären Produkts 3-Methylbutanal zu erhöhen und den Übergangsmetallkomplex-Katalysator zurückzugewinnen, ist es erforderlich, die Bestandteile 3MBA, Folgeprodukte und Katalysator und der gegebenenfalls nicht umgesetzten Einsatzstoffe des bei der Hydroformylierung erhaltenen Produktgemisches voneinander zu trennen.

Ein Verfahren zum Anreichern eines Homogenkatalysators aus einem Prozessstrom ist aus der WO2010097376A1 bekannt. Der Prozessstrom stammt dabei beispielsweise aus einem Verfahren zur Hydroformylierung von Olefinen, bevorzugt mit 2 bis 25 Kohlenstoffatomen, zu den entsprechenden Aldehyden, insbesondere Isononanal und Isotridecanal. Die Anreicherung des Homogenkatalysators aus dem Prozessstrom erfolgt in einer solchen Weise, dass der Prozessstrom über mindestens eine Nanofiltrationsmembran geführt wird, die ganz oder teilweise aus einem Polymer besteht, das planare Polymereinheiten aufweist, die über einen starren Linker miteinander verbunden sind, wobei der Linker in sich verdreht ist, so dass mindestens eine planare Polymereinheit über den Linker in einer nicht coplanaren Anordnung mit mindestens einer zweiten planaren Polymereinheit verbunden ist. Bei der Membranfiltration verbleibt das Katalysatorsystem im Retentat, während die Hochsieder mit dem Permeat abgetrennt werden. Vor dem Trennen durch Membranfiltration erfolgt bevorzugt eine destillative Auftrennung des Ausstrags des Hydroformylierungsreaktors in ein Destillat, das nicht umgesetzte Olefine und die

gewünschten Aldehyde enthält, und ein Sumpfprodukt, das Hochsieder und das Katalysatorsystem enthält.

Ein anderes Verfahren zur Abtrennung und teilweisen Rückführung eines Übergangsmetallkomplex-Katalysators aus einem Reaktionsgemisch, z.B. aus dem bei einer technischen Hydroformylierung erhaltenen Reaktionsgemisch, ist aus WO2010097428 bekannt. Dieses Verfahren basiert auf einer Kombination einer mindestens einstufigen Membrantrennung und einer Adsorption. Dabei wird ein katalysatorhaltiger Strom über mindestens einen einstufigen Membrantrennschritt in einen an Übergangsmetallkomplex-Katalysator angereicherten Retentatstrom und einen an Übergangsmetallkomplex-Katalysator abgereicherten Permeatstrom aufgetrennt. Der an Übergangsmetallkomplex-Katalysator angereicherte Retentatstrom wird in den Reaktor zurückgeführt. Der an Übergangsmetallkomplex-Katalysator abgereicherte Permeatstrom wird einem Adsorptionsschritt zugeführt, in welchem eine weitere Abtrennung des Übergangsmetallkomplex-Katalysators aus dem Permeatstrom erfolgt.

Diese und andere aus dem Stand der Technik bekannte Verfahren zielen darauf ab, den Übergangsmetallkomplex-Katalysator so weit wie möglich von den Hochsiedern abzutrennen, um eine möglichst vollständige Rückgewinnung des Übergangsmetallkomplex-Katalysators zu erreichen. Der abgetrennte Katalysator kann - gegebenenfalls nach erforderlicher Aufarbeitung - in den Hydroformylierungsreaktor zurückgeführt werden, so dass die Wirtschaftlichkeit des Prozesses verbessert werden kann.

Die Bildung von Hochsiedern vermindert die Ausbeute der Hydroformylierung in Bezug auf das primäre Produkt 3-Methylbutanal und beeinträchtigt daher die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens. Im Interesse einer verbesserten Ausnutzung der eingesetzten Rohstoffe (Isobuten; Synthesegas) und des eingesetzten Übergangsmetallkomplex-Katalysators ist es daher wünschenswert, den Anteil an Hochsiedern im Produktgemisch möglichst gering zu halten.

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung besteht somit darin, ein Verfahren und eine Vorrichtung zum Herstellen eines Produktgemisches durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches anzugeben, die es ermöglichen, den Anteil an Hochsiedern im Produktgemisch möglichst gering zu halten und damit die Ausbeute der Reaktion zu steigern.

Diese Aufgabe wird gelöst durch ein erfindungsgemäßes Verfahren zum Herstellen eines Produktgemisches durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches, mit folgenden Schritten:

a) Hydroformylieren des Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms in einem Hydroformylierungsreaktor in Gegenwart eines Übergangsmetallkomplex-Katalysators, so dass ein Produktgemisch erhalten wird, das zumindest 3-Methylbutanal, Folgeprodukte in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure, sowie den Übergangsmetallkomplex-Katalysator nebst dessen freie Liganden umfasst,

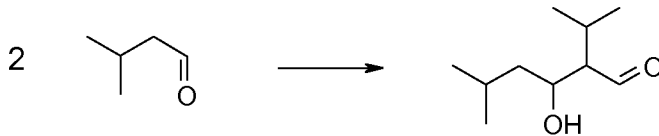
b) Trennen des Produktgemisches mittels einer eine oder mehrere Membrantrennstufen umfassenden Nanofiltrationseinrichtung, sodass im resultierenden Retentat der Nanofiltrationseinrichtung der Übergangsmetallkomplex-Katalysator und dessen freie Liganden gegenüber 3-Methylbutanal und 3-Methylbutansäure angereichert sind, und so dass im resultierenden Permeat der Nanofiltrationseinrichtung 3-Methylbutanal und 3-Methylbutansäure jeweils gegenüber dem Übergangsmetallkomplex-Katalysator angereichert sind, wobei im resultierendem Retentat die Konzentration der 3-Methylbutansäure geringer ist als im Permeat,

c) Trennen des resultierenden Permeats der Nanofiltrationseinrichtung mittels einer eine oder mehrere Trennstufen umfassenden thermischen Trenneinrichtung in zumindest eine erste Fraktion und eine zweite Fraktion, wobei die erste Fraktion eine höhere Konzentration an 3-Methylbutanal als die zweite Fraktion und eine geringere Konzentration an Folgeprodukten in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure als die zweite Fraktion enthält,

d) Rückführen zumindest eines Teilstroms des resultierenden Retentats der Nanofiltrationseinrichtung in den Hydroformylierungsreaktor.

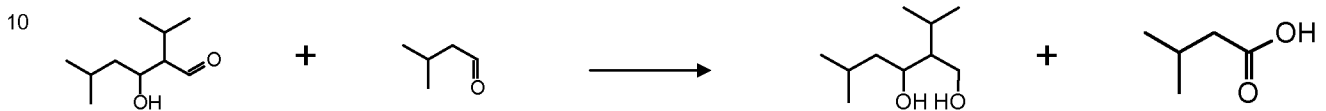
Zur Lösung der gestellten Aufgabe war es zunächst erforderlich, die einzelnen an der Bildung der Hochsieder beteiligten Spezies zu identifizieren und die Kinetik der involvierten Reaktionen aufzuklären. In eigenen Untersuchungen zur Aufklärung der Kinetik der Bildung von Hochsie-

dem bei der Hydroformylierung von Isobuten zu 3-Methylbutanal wurde überraschenderweise festgestellt, dass als Oxidationsprodukt des 3-Methylbutanals gebildete 3-Methylbutansäure eine kritische Rolle bei der Bildung von Hochsiedern spielt. Die Bildung von Hochsiedern beginnt mit der Aldolkondensation von 3-Methylbutanal:

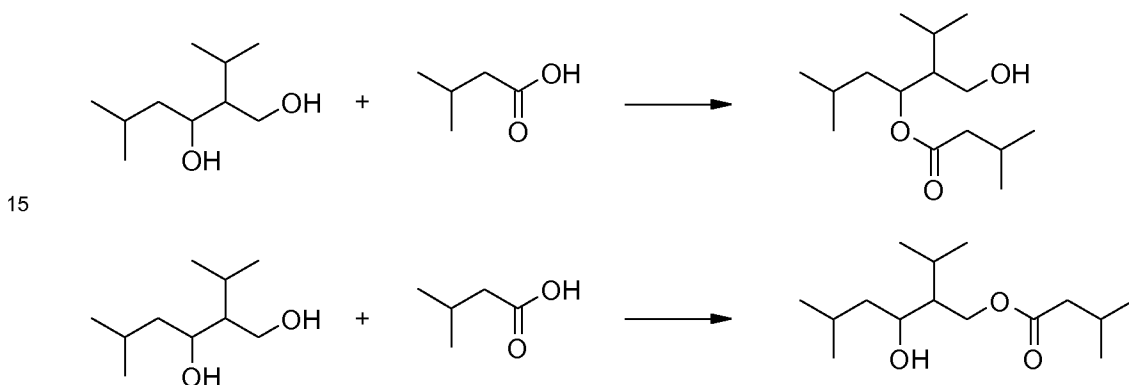


5

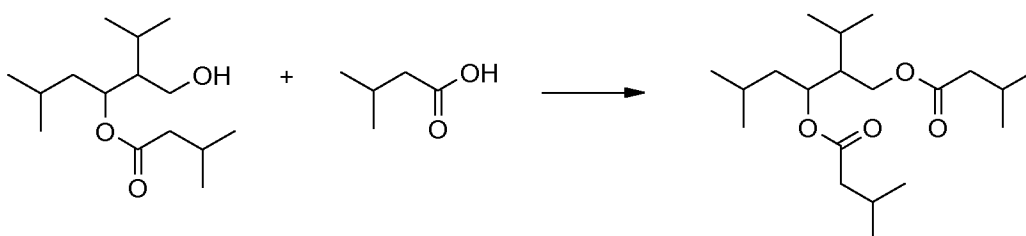
Das Aldolkondensat kann durch Reaktion mit dem primären Produkt 3-Methylbutanal zu einem zweiwertigen C<sub>10</sub>-Alkohol reduziert werden, wobei das primäre Produkt 3-Methylbutanal zur 3-Methylbutansäure oxidiert wird:



Durch Veresterung des C<sub>10</sub>-Alkohols mit 3-Methylbutansäure entsteht dann in einer Tischtschenko-Reaktion C<sub>15</sub>-Hochsieder:



Durch weitere Veresterung des C<sub>15</sub>-Hochsieders mit 3-Methylbutansäure kann schließlich auch ein C<sub>20</sub>-Hochsieder entstehen:



20

Die Bildung der C<sub>15</sub>- und C<sub>20</sub>-Hochsieder erfolgt also in entscheidendem Maße weitgehend über Reaktionen unter Beteiligung von 3-Methylbutansäure. 3-Methylbutansäure wird im Folgenden gelegentlich mit 3MBS abgekürzt.

- 5 Diese Erkenntnis ist die Grundlage der vorliegenden Erfindung: Die erfindungsgemäße Lösung der oben erwähnten Aufgabe, den Anteil an Hochsiedern im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung möglichst gering zu halten, besteht primär darin, 3-Methylbutansäure möglichst weitgehend von dem in den Hydroformylierungsreaktor zurückzuführenden Übergangsmetallkomplex-Katalysator abzutrennen. Dies lässt sich erreichen, indem bei dem Schritt des
- 10 Trennens des resultierenden Produktgemisches der Hydroformylierung der in den Hydroformylierungsreaktor zurückzuführende Übergangsmetallkomplex-Katalysator im resultierenden Retentat der Nanofiltrationseinrichtung angereichert wird, während die Folgeprodukte der Hydroformylierungsreaktion, insbesondere 3MBS, im resultierenden Permeat der Nanofiltrationseinrichtung angereichert werden. Überraschenderweise wurde festgestellt, dass sich mittels
- 15 Nanofiltration, d. h. Trennung des resultierenden Produktgemisches der Hydroformylierung unter Einsatz einer oder mehrerer Nanofiltrationsmembranen, eine weitgehende Abtrennung der 3-Methylbutansäure vom Übergangsmetallkomplex-Katalysator erreichen lässt. Dazu wird für den Nanofiltrations-Trennschritt des erfindungsgemäßen Verfahrens eine Nanofiltrationseinrichtung eingesetzt, die eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen enthält, die sich
- 20 durch einen besonders niedrigen Rückhalt für 3-Methylbutansäure auszeichnen. Bevorzugt ist der Rückhalt der Nanofiltrationsmembran für 3-Methylbutansäure -1 oder kleiner, besonders bevorzugt -5 oder kleiner, und insbesondere bevorzugt -10 oder kleiner. Die Definition des Rückhalts einer Membran findet sich weiter unten.
- 25 Durch ihre Abtrennung vom in den Hydroformylierungsreaktor zurückzuführenden Übergangsmetallkomplex-Katalysator steht die mit dem Permeat der Nanofiltrationseinrichtung ausgeschleuste 3-Methylbutansäure im Reaktor nicht mehr als Reaktionspartner für die Hochsiederbildung zur Verfügung, so dass wichtige an der Hochsiederbildung beteiligte Reaktionen nicht mehr oder nur noch in geringerem Maße ablaufen. Dadurch wird bezogen auf das primäre
- 30 Produkt 3-Methylbutanal der Verlust reduziert.

Ein wichtiger Aspekt der erfindungsgemäßen Lehre besteht also in der Verwendung einer Nanofiltrationseinrichtung zum Abtrennen des Katalysatorkomplexes aus dem Produktgemisch, welche eine besonders hohe Durchlässigkeit für 3-Methylbutansäure aufweist.

5 Unter Nanofiltrationseinrichtung ist im Sinne dieser Erfindung ein Trennapparat zu verstehen, der seine Trennaufgabe ausschließlich mit Hilfe von Membranen bewerkstelligt, wobei mindestens eine der Membranen eine Nanofiltrationsmembran darstellt. Die Nanofiltrationseinrichtung kann eine oder mehrere Membrantrennstufen umfassen, dementsprechend kann die Nanofiltrationseinrichtung ein oder mehrstufig arbeiten. Jede Membrantrennstufe weist dabei drei An-  
10 schlüsse auf, einen Zulauf (Feed) und zwei Abläufe, nämlich Retentat und Permeat. Im Permeat reichern sich die Bestandteile des Zulaufes an, welche die Membran überwinden, währenddessen sich im Retentat die Stoffe anreichern, welche von der Membran zurückgehalten werden. Unter dem resultierenden Permeat bzw. dem resultierenden Retentat sind die beiden Abläufe der Nanofiltrationseinrichtung an ihren Schnittstellen zu den übrigen Komponenten der  
15 Vorrichtung zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens zu verstehen. Sofern die Nanofiltrationseinrichtung lediglich einstufig arbeitet, und mithin nur eine Membrantrennstufe aufweist, entspricht das resultierende Permeat bzw. das resultierende Retentat der Nanofiltrationseinrichtung dem Permeat bzw. dem Retentat des einzigen Membrantrennstufe.

20 Das Grundwissen des Fachmanns auf dem Gebiet der Membranfiltration beschreiben Melin / Rautenbach: Membranverfahren. Grundlagen der Modul- und Anlagenauslegung. Springer, Berlin Heidelberg 2004.

Nanofiltration ist ein druckgetriebenes Membrantrennverfahren. Die Trenngrenze (engl.: molecular weight cut-off, MWCO; vgl. Y.H. See Toh, X.X. Loh, A. Bismarck, A.G. Livingston, In  
25 search of a standard method for the characterisation of organic solvent nanofiltration membranes, J. Membr. Sci, 291(2007)120-125]) liegt im Bereich von 150g/mol bis 2000g/mol. Über diesen Wert lässt sich die Nanofiltration von anderen Membrantrennverfahren wie Mikrofiltration und Ultrafiltration abgrenzen. Die Trenngrenze ist definiert als die Molmasse eines bevorzugt  
30 inerten Indikatorsystems (z. B. Polystyrolstandards oder Alkanstandards bei Toh, Loh, Bismarck und Livingston), bei der eine Membran einen Rückhalt von 90% aufweist. Die genaue Trenngrenze einer Nanofiltrationsmembran ist von der eingesetzten Membran und dem jeweiligen Lösemittel sowie durch die Prozessbedingungen wie Druck und Temperatur bestimmt. Bei der

Nanofiltration werden dichte oder poröse Membranen eingesetzt. Nanofiltrationsmembranen zeichnen sich durch einen geringen Rückhalt für niedermolekulare organische Stoffe aus.

Der Rückhalt  $R$  einer Membran ist über die örtlichen Konzentrationen einer Komponente  $i$  des nicht permeierenden Stroms (Retentat) sowie des durch die Membran permeierenden Stroms (Permeat) bestimmt. Sind Retentat und Permeat entlang der Membran ideal durchmischt, so entsprechen die örtlichen Retentat- und Permeatkonzentrationen den jeweiligen Konzentration des im Summe anfallenden Retentats bzw. Permeats. Der Rückhalt  $R$  einer Membran für eine im zugeführten Stoffstrom enthaltene Komponente  $i$  ist wie folgt definiert:

$$R = 1 - c_{Pi}/c_{Ri}$$

Dabei ist  $c_{Pi}$  die Konzentration der Komponente  $i$  im Permeat  $P$  und  $c_{Ri}$  die Konzentration der Komponente  $i$  im Retentat  $R$ . Im Grenzfall eines vollständigen Rückhalts der Komponente  $i$  durch die Membran ist  $c_{Pi} = 0$  und  $R = 1$ . Im Fall einer bevorzugten Permeation der Komponente  $i$  ist  $c_{Pi} > c_{Ri}$ , und  $R < 0$ .

Bevorzugt umfasst die bei dem erfindungsgemäßen Verfahren einzusetzende Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen einem Rückhalt für 3-Methylbutansäure von -1 oder kleiner, besonders bevorzugt -5 oder kleiner, und insbesondere -10 oder kleiner aufweist. So lässt sich eine weitgehende Ausschleusung der 3-Methylbutansäure aus dem resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung erreichen, das der Nanofiltrationseinrichtung als Zulauf zugeführt wird.

Für die Trennaufgabe geeignet erscheinen Membranen, die eine trennaktive Schicht aus einem Material, ausgewählt aus Celluloseacetat, Cellulosetriacetat, Cellulosenitrat, regenerierter Cellulose, Polyimiden, Polyamiden, Polyetheretherketonen, sulfonierten Polyetheretherketonen, aromatischen Polyamiden, Polyamidimiden, Polybenzimidazolen, Polybenzimidazolone, Polyacrylnitril, Polyarylethersulfone, Polyester, Polycarbonaten, Polytetrafluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Polypropylen, Polydimethylsiloxan, Silicone, Polyphosphazene, Polyphenylsulfide, Polybenzimidazole, 6.6 Nylon, Polysulfone, Polyaniline, Polyurethane, Acrylonitril/Glycidylmethacrylat (PANGMA), Polytrimethylsilylpropyne, Polymethylpentyne, Polyvinyltrimethylsilan, alpha-Aluminiumoxide, Titaniumoxide, gamma-Aluminiumoxide, Polyphenyle-

noxid, Siliciumoxide, Zirconiumoxide, mit Silanen hydrophobisierte keramische Membranen, wie sie in DE10308111 beschrieben sind, Polymere mit intrinsischer Mikroporosität (PIM) wie PIM-1 und anderen, wie sie z. B. in EP0781166 und in „Membranes“ von I. Cabasso, Encyclopedia of Polymer Science and Technology, John Wiley and Sons, New York, 1987, beschrieben werden, aufweisen. Die oben genannten Stoffe können insbesondere in der trennaktiven Schicht ggf. durch Zugabe von Hilfsstoffen vernetzt vorliegen oder als so genannte Mixed Matrix Membranes mit Füllstoffen wie z. B. Carbon Nano Tubes, Metal Organic Frameworks oder Hollow Spheres sowie Partikel von anorganischen Oxiden oder anorganische Fasern, wie z. B. Keramik- oder Glasfasern versehen sein.

Bevorzugt werden Membranen eingesetzt, die als trennaktive Schicht eine Polymerschicht aus Polydimethylsiloxan, Polyimid, Polyamidimid, Acrylonitril/Glycidylmethacrylat (PANGMA), Polyamid oder Polyetheretherketon aufweisen, die aus Polymeren mit intrinsischer Mikroporosität (PIM) wie PIM-1 aufgebaut sind, oder wobei die trennaktive Schicht über eine hydrophobierte keramische Membran aufgebaut ist. Ganz besonders bevorzugt werden Membranen aus Silikonen oder Polyamidimid eingesetzt. Solche Membranen sind kommerziell erhältlich.

In eigenen Untersuchungen wurde festgestellt, dass sich Nanofiltrationsmembranen umfassend ein oder mehrere Imidgruppen enthaltende Polymere oder bestehend aus einem oder mehreren Imidgruppen enthaltenden Polymeren besonders für die Ausschleusung der 3-Methylbutansäure aus dem Produktgemisch der Hydroformylierung eignen, das der Nanofiltrationseinrichtung als Zulauf zugeführt wird. Vertreter dieser Membranklasse sind insbesondere Membranen aus Polyimid oder Polyamidimid. Beispielsweise lässt sich das thermoplastische Polyimid einsetzen, was unter dem Markennamen Matrimid® bei der Firma Huntsman Advanced Materials GmbH, Basel (Schweiz) erhältlich ist. Nanofiltrationsmembranen aus Polyimid oder Polyamidimid zeichnen sich durch einen besonders geringen Rückhalt für 3-Methylbutansäure aus. Bevorzugt werden daher in der Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen umfassend oder bestehend aus einem oder mehreren Imidgruppen enthaltenden Polymeren eingesetzt, wobei das oder die Imidgruppen enthaltenden Polymere so ausgewählt sind, das der Rückhalt der Nanofiltrationsmembran für 3-Methylbutansäure -1 oder kleiner, bevorzugt -5 oder kleiner und besonders bevorzugt -10 oder kleiner ist. Nanofiltrationsmembranen enthaltend Imid-Gruppen sind im Handel erhältlich, z. B. unter den Produktnamen STARMEM® 122 und 240 von W. R. Grace & Co.-Conn. 7500 Grace

Drive Columbia, Md 21044 US oder Membranen der Produktfamilien Puramem® und Duramem® erhältlich von Evonik Industries AG, Essen (Deutschland). Puramem® und Duramem® enthalten Polyimide wie P84 und/oder Matrimid 5218.

5 Besonders bevorzugt umfasst die bei dem erfindungsgemäßen Verfahren einzusetzende Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen einer Trenngrenze im Bereich von 150 bis 2000 g/mol, bevorzugt 200 bis 600 g/mol besonders bevorzugt 350 bis 500 aufweist. Da bei dem erfindungsgemäßen Verfahren ein Rückhalt von 3-Methylbutansäure nicht gewünscht ist, wird erfindungsgemäß vorzugsweise eine Nanofiltrationsmembran eingesetzt, deren Trenngrenze höher  
10 ist als die Molmasse von 3-Methylbutansäure (102 g/mol). Da auch die Hochsieder nicht im Retentat zurückgehalten werden sollen, liegt die Trenngrenze bevorzugt oberhalb der Molmasse der Hochsieder (200 bis 350 g/mol) jedoch unterhalb des Katalysators (500 bis 1000g/mol).

15 Ganz besonders bevorzugt werden in einer in dem erfindungsgemäßen Verfahren einzusetzende Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen umfassend oder bestehend aus einem oder mehreren Imidgruppen enthaltenden Polymeren eingesetzt, wobei das oder die Imidgruppen enthaltenden Polymere so ausgewählt sind, dass die Trenngrenze der Nanofiltrationsmembran im Bereich von 150 bis 2000 g/mol liegt.

20 Weitere für den Erfolg des Trennschritts in der Nanofiltrationseinrichtung relevante Parameter sind die Temperatur, der transmembrane Druck, die Reynolds-Zahl bei der Überströmung der Nanofiltrationsmembran, und der Partialdruck von Kohlenmonoxid und/oder Wasserstoff. Bevorzugt wird der Schritt des Trennens des durch Hydroformylieren des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms erhaltenen Produktgemisches in der Nanofiltrationseinrichtung  
25

- bei einer Temperatur im Bereich von 10 bis 150 °C und/oder
- bei einem transmembranen Druck im Bereich von 0,5 bis 6 MPa und/oder  
30
- bei einer Reynoldszahl zwischen 55 und 13500, bevorzugt zwischen 100 und 3500 und ganz besonders bevorzugt zwischen 170 und 900,

und/oder

- in Gegenwart von Kohlenmonoxid und/oder Wasserstoff, bevorzugt bei einem Kohlenmonoxid-Partialdruck von mindestens 200 kPa im Zulauf, im Retentat und im Permeat durchgeführt.

5

Vor dem Eintritt in die Nanofiltrationseinrichtung wird das aus dem Hydroformylierungsreaktor austretende resultierende Reaktionsgemisch vorzugsweise zunächst abgekühlt, sofern dies aus Gründen der Membranstabilität oder für die Einstellung der Trenngrenze notwendig ist, und entspannt, vorzugsweise auf einen Druck von über 200 kPa. Hierbei werden flüchtige Bestand-  
10 teile wie nicht umgesetztes Isobuten oder Wasserstoff und Kohlenstoffmonoxid teilweise abgetrennt und ggf. zurückgeführt. Mit dem unter dem Entspannungsdruck verbliebenen Synthesegas wird das Produktgemisch umfassend das primäre Produkt 3-Methylbutanal, Folgeprodukte in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure und den Übergangsmetallkomplex-Katalysator und dessen freie Liganden und gegebenenfalls unumgesetztes Produkt, einer  
15 Hochdruckpumpe zugeführt, die den für den Nanofiltrationsprozess nötigen transmembranen Druck erzeugt. Optional kann der Hochdruckpumpe ein Vorfiltersystem vorgeschaltet sein.

Unter dem transmembranen Druck wird die Druckdifferenz zwischen der Zulaufseite und der Permeatseite der Nanofiltrationsmembran pro Trennstufe verstanden. Diese Druckdifferenz ist  
20 die primäre Triebkraft der Membranfiltration.

Um eine Konzentrationsüberhöhung (Konzentrationspolarisation) oder auch die Bildung von Ablagerungen auf der Nanofiltrationsmembran (Membran-Fouling) zu vermeiden, sind beim Trennen in der Nanofiltrationseinrichtung gewisse Strömungsverhältnisse einzuhalten. Es hat  
25 sich gezeigt, dass die Konzentrationsüberhöhung sowie die Bildung von Ablagerungen aus einer eine Nanofiltrationsmembran überströmenden Strömung von deren Turbulenz und damit von ihrer Reynolds-Zahl abhängig ist. So ist unabhängig von der Bauart des Membranmoduls darauf zu achten, dass die Reynoldszahl zwischen 55 und 13500, bevorzugt zwischen 100 und 3500 und ganz besonders bevorzugt zwischen 170 und 900 liegt. Dies gilt insbesondere für  
30 Stoffsysteme mit einer kinematischen Viskosität kleiner als 10 mPas. Bei diesen Strömungsverhältnissen werden Konzentrationsüberhöhung und Ablagerungen auf ein sinnvolles Maß reduziert.

Die dimensionslose Reynolds-Zahl  $Re$  ist definiert als  $Re = w d_h / \nu$ , wobei  $\nu$  die kinematische Viskosität,  $w$  die mittlere Überstromgeschwindigkeit der Membran und  $d_h$  den hydraulischen Durchmesser als charakteristische Länge des Membranmoduls beschreibt.

- 5 Die Nanofiltrationseinrichtung kann eine Vielzahl von Trennstufen in Form (seriell oder parallel geschalteter) Membranmodule umfassen, wobei nach jeder Trennstufe das jeweilige erhaltene Permeat als Zulauf der nächsten Trennstufe zugeführt wird, und das Permeat aus der letzten Trennstufe der thermischen Trennung zugeführt wird. Jede Trennstufe umfasst mindestens ein Membranmodul, wobei jedes Membranmodul eine einzelne oder mehrere Nanofiltrations-
- 10 membranen umfasst. Unter einem Membranmodul versteht der Fachmann eine praktisch handhabbare anwendungsspezifische Anordnung der Membran in einer Baugruppe.

Der im erfindungsgemäßen Verfahren auf den Schritt des Trennens in einer Nanofiltrationsanlage folgende Schritt der thermischen Trennung des Permeats umfasst typischerweise eine

15 Destillation oder Dünnschichtverdampfer oder Fallfilmverdampfer oder deren Kombination, bei der die erste Fraktion als Kopfprodukt erhalten wird und die zweite Fraktion als Sumpfprodukt. Vorzugsweise ist nach dem Schritt der thermischen Trennung eine weitere Trennung der zweiten Fraktion der thermischen Trennung mittels einer Nanofiltrationseinrichtung nicht erforderlich. Eine weitere Trennung der als Sumpfprodukt erhaltenen zweiten Fraktion ist insbesondere dann

20 entbehrlich, wenn bereits bei der vorausgehenden Trennung des bei der Hydroformylierung resultierenden Produktgemisches in der Nanofiltrationseinrichtung der Übergangsmetallkomplex-Katalysator in so hohem Maße im Retentat zurückgehalten wird, dass im Permeat nur eine so geringe Menge an Katalysator vorhanden ist, dass der Aufwand einer Rückgewinnung aus der hochsiedenden (zweiten) Fraktion der thermischen Trennung sich wirtschaftlich nicht lohnt.

25 Um die oben genannte Aufgabe zu lösen, ist es zudem vorteilhaft, die technische Hydroformylierung so zu führen, dass die Folgereaktionen, welche zur Bildung von 3-Methylbutansäure und Hochsiedern führen, möglichst nur in geringem Maße ablaufen. Dies lässt sich durch geeignete Einstellung eines oder mehrerer Verfahrensparameter erreichen, insbesondere aus der Gruppe

30 bestehend aus Druck, Temperatur, mittlere Verweilzeit des Reaktionsgemischs im Hydroformylierungsreaktor, Zusammensetzung des Synthesegases, Konzentration des Übergangsmetalls und Übergangsmetall-Ligand-Verhältnis des Übergangsmetallkomplex-Katalysators.

Unter Reaktionsgemisch wird dabei das gesamte im Hydroformylierungsreaktor vorliegende Gemisch umfassend die Edukte (Isobuten und Synthesegas), das primäre Produkt der Hydroformylierung (3-Methylbutanal), daraus gebildete Folgeprodukte (3-Methylbutansäure und Hochsieder) sowie den Übergangsmetallkomplex-Katalysator verstanden. Aus diesem Reaktionsgemisch wird durch Hydroformylierung des Edukts Isobuten, gegebenenfalls nach Abtrennung nicht umgesetzten Isobutens, das resultierende und durch Nanofiltration zu trennende Produktgemisch erhalten, umfassend zumindest 3-Methylbutanal, Folgeprodukte in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure und den Übergangsmetallkomplex-Katalysator und dessen freie Liganden. Sofern nicht umgesetzte Edukte (Isobuten, Wasserstoff, Kohlenmonoxid) nicht vor der Nanofiltrationseinrichtung aus dem Reaktorausstrag abgeschieden werden, sind diese Teil des in den Feed der Nanofiltrationseinrichtung gefahrenen Produktgemisches. Grundsätzlich ist ein vollständiger Umsatz des Isobutens gewünscht, lässt sich aber in der industriellen Praxis nicht immer erreichen. Übliche Umsatzraten liegen über 95 Gew%. Nicht umgesetztes Isobuten wird entweder unmittelbar vor der Nanofiltrationseinrichtung abgetrennt, damit ihr Feed nahezu Isobuten-frei ist. Alternativ ist es möglich, verbleibendes Isobuten durch die Membranen permeieren zu lassen und es im Rahmen der ohnehin erforderlichen thermischen Abtrennung des Zielprodukts 3MBA zu entfernen und in den Hydroformylierungsreaktor zurückzufahren. Diese Variante ist bevorzugt, da thermische Trennverfahren den Katalysatorkomplex schädigen. Das Edukt Kohlenmonoxid sollte indes vorzugsweise auch im Feed, Permeat und Retentat der Nanofiltrationseinrichtung enthalten sein, um den Katalysatorkomplex zu stabilisieren.

In einer vorteilhaften Weiterentwicklung des erfindungsgemäßen Verfahrens werden bei dem Schritt des Hydroformylierens des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms ein oder mehrere Verfahrensparameter so eingestellt, dass die Gesamtkonzentration an Folgeprodukten in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure, gewichtsmäßig bezogen auf das Produktgemisch, also den Reaktorausstrag, 30 Gewichts-% oder kleiner ist, wobei der oder die einzustellenden Parameter bevorzugt ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus Druck, Temperatur, mittlere Verweilzeit des Reaktionsgemischs im Hydroformylierungsreaktor, Zusammensetzung des Synthesegases, Konzentration des Übergangsmetalls und Übergangsmetall-Ligand-Verhältnis des Übergangsmetallkomplex-Katalysators.

Durch eine Verminderung der mittleren Verweilzeit des Reaktionsgemisches im Hydroformylierungsreaktor lässt sich die für die unerwünschten Folgereaktionen zur Verfügung stehende Zeit vermindern, wobei die mittlere Verweilzeit jedoch andererseits ausreichend hoch sein muss, um einen wirtschaftlich sinnvollen Umsetzungsgrad der Edukte zu erlauben. Die mittlere Verweilzeit  
5 kann beispielsweise durch die Auslegung der Länge des Reaktors beeinflusst werden.

Durch eine Verminderung der Temperatur im Hydroformylierungsreaktor lässt sich die Geschwindigkeit der unerwünschten Folgereaktionen vermindern, wobei die Temperatur jedoch andererseits ausreichend hoch sein muss, um einen wirtschaftlich sinnvollen Umsetzungsgrad  
10 der Edukte zu erlauben.

Bevorzugt werden bei dem Schritt des Hydroformylierens des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms ein oder mehrere Verfahrensparameter, insbesondere die Temperatur und/oder die mittlere Verweilzeit so eingestellt, dass die Konzentration der 3-Methylbutansäure im der Nano-  
15 filtrationseinrichtung zuzuführenden Produktgemisch im Bereich zwischen 0.004 und 0.1 Gew-% liegt, vorzugsweise im Bereich zwischen 0.004 und 0.03 Gew-%.

Die Konzentration des Katalysatorkomplexes im resultierenden Permeat beträgt bevorzugt 0.03 Gew-% oder weniger.  
20

Erfindungsgemäß wird der Schritt des Hydroformylierens des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms bevorzugt

- bei einem Druck im Bereich von 0,2 bis 8,0 MPa,  
25 und/oder
- bei einer Temperatur im Bereich von 70 bis 130°C  
und/oder
- mit einer mittleren Verweilzeit des Reaktionsgemischs im Hydroformylierungsreaktor im Bereich von 1 bis 4 Stunden  
30 und/oder
- einer Synthesegaszusammensetzung (CO:H<sub>2</sub>) von 1:3 bis 3:1  
und/oder

- einer Übergangsmetallkonzentration im Bereich von 10 bis 100 ppm im Hydroformylierungsreaktor
- und/oder
- einem Übergangsmetall-Ligand-Verhältnis im Bereich von 1:4 bis 1:50

5

durchgeführt.

Im Hydroformylierungsschritt des erfindungsgemäßen Verfahrens wird bevorzugt ein Übergangsmetallkomplex-Katalysator eingesetzt, dessen Übergangsmetall Rhodium ist und/oder  
10 dessen Ligand bzw. dessen Liganden ausgewählt sind aus der Gruppe der Organophosphor-Liganden. Möglich ist auch der Einsatz eines Übergangsmetallkomplex-Katalysators, dessen Übergangsmetall Cobalt ist.

In eigenen Untersuchungen wurde festgestellt, dass bei Temperaturen ab 130°C im Hydroformylierungsreaktor die Bildung von 3-Methylbutansäure und daraus entstehenden Hochsiedern  
15 deutlich zunimmt. Daher ist es erfindungsgemäß bevorzugt, dass die Temperatur im Hydroformylierungsreaktor 130°C nicht überschreitet. Bevorzugt wird die Hydroformylierung bei einer Temperatur im Bereich von 80 bis 110 °C durchgeführt. Unabhängig davon können einzelne oder alle weiteren oben genannten Verfahrensparameter dahingehend optimiert werden, dass  
20 die Bildung von 3-Methylbutansäure und Hochsiedern begrenzt wird.

Bevorzugt werden in einem erfindungsgemäßen Verfahren zum Herstellen eines Produktgemisches durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches einzelne oder alle Merkmale der  
25 oben als besonders bevorzugt hervorgehobenen Varianten miteinander kombiniert, um eine optimale Abtrennung der 3-Methylbutansäure vom in den Reaktor zurückzuführenden Übergangsmetallkomplex-Katalysator, verbunden mit einer geringen Bildung von 3-Methylbutansäure und Hochsiedern bei der Hydroformylierung, zu erreichen. Daher umfasst ein bevorzugtes erfindungsgemäßes Verfahren die Schritte

30

- Hydroformylieren eines isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms in Gegenwart eines Rhodiumkomplex-Katalysators mit einem oder mehreren Organophosphorliganden bei einem Druck im Bereich von 0.2 bis 8 MPa und einer Temperatur im Bereich

von 70 bis 130 °C mit einer mittleren Verweilzeit im Bereich von 1 bis 4 h einer Synthesegaszusammensetzung CO:H<sub>2</sub> von 1:3 bis 3:1, einer Rhodiumkonzentration im Reaktor im Bereich von 10 bis 100ppm und einem Rhodium-Ligand-Verhältnis im Bereich von 1:4 bis 1:50;

- 5        - Trennen des resultierenden Produktgemisches der Hydroformylierung mittels einer Nanofiltrationseinrichtung bei einer Temperatur im Bereich von 10 bis 150 °C, einem transmembranen Druck im Bereich von 0.5 bis 6 MPa, bei einer Reynoldszahl zwischen 170 und 900, und einem Kohlenmonoxid-Partialdruck von größer 0.2 MPa in Zulauf, Retentat und Permeat jeder Membrantrennstufe;
- 10       - thermisches Trennen des resultierenden Permeats der Nanofiltrationseinrichtung mittels Destillation in eine erste Fraktion und eine zweite Fraktion, wobei die erste Fraktion eine höhere Konzentration an 3-Methylbutanal als die zweite Fraktion und eine geringere Konzentration an Hochsiedern als die zweite Fraktion enthält,
- 15       - Rückführen zumindest eines Teilstroms des resultierenden Retentats der Nanofiltrationseinrichtung in den Hydroformylierungsreaktor.

Um die oben genannte Aufgabe zu lösen, ist es zudem vorteilhaft, in einem oder mehreren Stoffströmen (insbesondere im Zulaufstrom, Permeatstrom und Retentatstrom) des erfindungsgemäßen Verfahrens die Konzentration der gebildeten 3-Methylbutansäure zu überwachen, und  
20 bei Überschreiten festgelegter Höchstwerte geeignete Gegenmaßnahmen zu ergreifen.

Eine vorteilhafte Weiterentwicklung des erfindungsgemäßen Verfahrens umfasst daher den Schritt

- 25       - Überwachen der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung, und vorzugsweise auch im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung und/oder im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung und/oder im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung.

30 Geeignete Methoden zur Überwachung der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung, und vorzugsweise auch im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung und/oder im Zulauf und/oder im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung

umfassen eine Messung der Konzentration der 3-Methylbutansäure in dem jeweiligen Prozessstrom mit einer Messmethode ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Gaschromatographie. Durch Überwachen der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung lässt sich kontrollieren, wie hoch die Menge an 3-Methylbutansäure ist, die mit dem  
5 im Retentat der Nanofiltration angereicherten Übergangsmetallkomplex-Katalysator in den Hydroformylierungsreaktor zurückgeführt wird. Ein Anstieg der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung könnte auf eine Blockade der Nanofiltrationsmembran durch Ablagerungen (Membrane fouling) hinweisen. In einer bevorzugten Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens wird beim Überschreiten eines festgelegten  
10 Höchstwerts der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung das Rückführen des Retentats in den Hydroformylierungsreaktor unterbrochen. Dadurch lässt sich verhindern, dass im Hydroformylierungsreaktor die Konzentration an 3-Methylbutansäure ansteigt, und so die unerwünschte Bildung von Hochsiedern begünstigt wird.

15 In einer besonders bevorzugten Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens wird beim Überschreiten eines festgelegten Höchstwerts der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung zusätzlich eine Kontrolle der Funktion der Nanofiltrationseinrichtung und, falls erforderlich, ein Austausch oder eine Regeneration einer oder mehrerer Nanofiltrationsmembranen veranlasst. Eine solche Maßnahme könnte insbesondere dann  
20 angezeigt sein, wenn gleichzeitig die ebenfalls überwachte Konzentration der 3-Methylbutansäure im Permeat unter einen bestimmten Mindestwert absinkt (siehe weiter unten).

Durch Überwachen der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung bzw. im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung lässt sich kontrollieren,  
25 wie hoch die Menge an 3-Methylbutansäure in dem durch Hydroformylieren des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms erhaltenen Produktgemisch ist, das - vorzugsweise nach Entspannung unter Abtrennung nicht umgesetzten Isobutens und optional noch Vorfiltration - der Nanofiltrationseinrichtung als Zulauf zugeführt wird. Eine übermäßig hohe Konzentration an 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung ist ein Hinweis auf bezüglich der  
30 Vermeidung der Bildung von Hochsiedern nicht optimal eingestellte Verfahrensparameter der technischen Hydroformylierung im Hydroformylierungsreaktor. Ein plötzliches Ansteigen der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung könnte sogar ein

Hinweis auf ein Versagen oder Außer-Kontrolle-Geraten der Regelung eines oder mehrerer Verfahrensparameter der Hydroformylierung sein. Somit kann diese beschriebene Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens zur sicheren Kontrolle der Verfahrensparameter der Hydroformylierung beitragen, und gegebenenfalls sogar zur Vermeidung von Fehlproduktionen und Betriebsstörungen.

In einer bevorzugten Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens werden beim Überschreiten eines festgelegten Höchstwerts der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung ein oder mehrere Verfahrensparameter des Schrittes des Hydroformylierens des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms im Hydroformylierungsreaktor so modifiziert, dass die Konzentration der 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung auf oder unter den festgelegten Höchstwert abgesenkt wird. Vorzugsweise erfolgt die geeignete Einstellung eines oder mehrerer Verfahrensparameter der Hydroformylierung wie oben beschrieben, wobei die einzustellenden Parameter insbesondere ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus Druck, Temperatur, mittlere Verweilzeit des Reaktionsgemischs im Hydroformylierungsreaktor, Zusammensetzung des Synthesegases, Konzentration des Übergangsmetalls und Übergangsmetall-Ligand-Verhältnis des Übergangsmetallkomplex-Katalysators.

Durch Überwachen der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung lässt sich kontrollieren, wie hoch die Menge an 3-Methylbutansäure ist, die durch die eine oder mehreren Nanofiltrationsmembranen der Nanofiltrationsanlage permeiert. Dadurch lässt sich der ordnungsgemäße Betrieb der Nanofiltrationseinrichtung überwachen. Ein Abfall der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung könnte auf eine Blockade der Nanofiltrationsmembran durch Ablagerungen (Membranfouling) hinweisen. In einer bevorzugten Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens wird daher beim Unterschreiten eines festgelegten Mindestwerts der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung eine Kontrolle der Funktion der Nanofiltrationseinrichtung und, falls erforderlich, ein Austausch oder eine Regeneration einer oder mehrere Nanofiltrationsmembranen veranlasst.

Bevorzugt werden in einem erfindungsgemäßen Verfahren zum Herstellen eines Produktgemisches durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches einzelne oder alle Merkmale der

oben als besonders bevorzugt hervorgehobenen Weiterentwicklungen und Varianten miteinander kombiniert, um eine optimale Abtrennung der 3-Methylbutansäure vom in den Reaktor zurückzuführenden Übergangsmetallkomplex-Katalysator sowie eine geringe Bildung von 3-Methylbutansäure und Hochsiedern bei der Hydroformylierung und eine umfassende Überwachung der Konzentration der 3-Methylbutansäure in allen relevanten Stoffströmen des erfindungsgemäßen Verfahrens zu erreichen.

Die vorliegende Erfindung betrifft zudem eine Vorrichtung für die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens, insbesondere für die oben beschriebenen bevorzugten Varianten des erfindungsgemäßen Verfahrens. Eine Vorrichtung zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens umfasst:

- einen Hydroformylierungsreaktor (R) zum Hydroformylieren eines isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms (1) in Gegenwart eines Übergangsmetallkomplex-Katalysators,
- eine Nanofiltrationseinrichtung (M) umfassend eine oder mehrere Membrantrennstufen zum Trennen des im Hydroformylierungsreaktor (R) gebildeten Produktgemisches (2), so dass im resultierenden Retentat (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M) der Übergangsmetallkomplex-Katalysator und dessen freie Liganden gegenüber dem 3-Methylbutanal und der 3-Methylbutansäure angereichert sind, und im resultierenden Permeat der Nanofiltrationseinrichtung (M) 3-Methylbutanal und 3-Methylbutansäure gegenüber dem Übergangsmetallkomplex-Katalysator angereichert sind, dergestalt, dass die Konzentration der 3-Methylbutansäure im resultierenden Retentat (3) geringer ist als im resultierenden Permeat (4), wobei die Nanofiltrationseinrichtung (M) eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen umfasst, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen einen Rückhalt für 3-Methylbutansäure von  $-1$  oder kleiner, besonders bevorzugt  $-5$  oder kleiner, und insbesondere  $-10$  oder kleiner aufweist,
- mindestens eine thermische Trenneinrichtung (D) zum thermischen Trennen des resultierenden Permeats (4) der Nanofiltrationseinrichtung (M) in eine erste Fraktion (5) und eine zweite Fraktion (6), wobei die erste Fraktion (5) eine höhere Konzentration an 3-Methylbutanal als die zweite Fraktion (6) und eine geringere Konzentration an Folgeprodukten in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure als die zweite Fraktion (6) enthält,

- Mittel zum Rückführen zumindest eines Teilstroms des resultierenden Retentats (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M) in den Hydroformylierungsreaktor (R).

Die Vorrichtung zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens kann außerdem im Stand der Technik übliche Bestandteile enthalten, z.B. Pumpen, übliche Dosier-, Mess-, Steuer- und Regelungseinrichtungen, Heiz- und Kühlvorrichtungen etc. Derartige zum Stand der Technik gehörende und in der chemischen Verfahrenstechnik übliche Bestandteile von Vorrichtungen für technische Synthese- und Trennverfahren sind dem Fachmann bekannt.

Als Hydroformylierungsreaktor wird bevorzugt ein Apparat eingesetzt aus der Gruppe bestehend aus Rührkessel, Blasensäule, Strahldüsenreaktor, Rohrreaktor und Schlaufenreaktor, wobei der Apparat mit Einbauten versehen sein kann.

Der Hydroformylierungsreaktor ist in einer besonders bevorzugten Ausführungsform als Blasensäulenreaktor ausgebildet. In dieser erfindungsgemäßen Vorrichtung ist die Längenausdehnung des Hydroformylierungsreaktors bevorzugt so gewählt, dass eine Verweilzeit des Reaktionsgemisches im Hydroformylierungsreaktor resultiert, die zwar ausreichend ist für einen wirtschaftlich sinnvollen Grad der Umsetzung der Edukte zu dem primären Hydroformylierungsprodukt 3-Methylbutanal, jedoch keinen hohen Grad der Umsetzung des primären Hydroformylierungsprodukts 3-Methylbutanal zu Folgeprodukten in Form von 3-Methylbutansäure und Hochsiedern erlaubt.

Die Nanofiltrationseinrichtung der erfindungsgemäßen Vorrichtung umfasst vorzugsweise ein oder mehrere Membranmodule. In diesen Modulen werden die Nanofiltrationsmembranen so angeordnet, dass die Retentatseite der Nanofiltrationsmembran derart überströmt werden kann, dass der Konzentrationspolarisation der abgetrennten Komponenten, d. h. des Übergangsmetallkomplex-Katalysators, entgegengewirkt und außerdem die nötige treibende Kraft (Druck) aufgeprägt werden kann. Das Permeat wird im Permeatsammelraum auf der Permeatseite der Nanofiltrationsmembranen zusammengeführt und aus dem Modul abgeführt. Gängige Membranmodule weisen die Nanofiltrationsmembranen in Form von Membranscheiben, Membrankissen oder Membrantaschen auf. Besonders bevorzugt sind Membranmodule mit offenkana-  
ligen Kissenmodulsystemen, bei denen die Nanofiltrationsmembranen zu Membrantaschen oder -kissen thermisch verschweißt oder verklebt sind, oder Wickelmodule, bei denen die Nanofiltrati-

onsmembranen zu Membrantaschen oder Membrankissen verklebt oder verschweißt sind und mit Feed-spacern um ein Permeatsammelrohr aufgewickelt sind.

5 Bevorzugt ist die Nanofiltrationseinrichtung der erfindungsgemäßen Vorrichtung so ausgestaltet, dass sich die oben beschriebenen bevorzugten Verfahrensparameter, insbesondere Verfahrensparameter aus der Gruppe bestehend aus Druck, Temperatur, mittlere Verweilzeit des Reaktionsgemischs im Hydroformylierungsreaktor, Zusammensetzung des Synthesegases, Konzentration des Übergangsmetalls und Übergangsmetall-Ligand-Verhältnis des Übergangsmetallkomplex-Katalysators einstellen lassen und/oder die oben beschriebenen bevorzugten  
10 Varianten der Ausführung des Schritts der Trennung des resultierenden Produktgemischs der Hydroformylierung realisieren lassen.

Die Nanofiltrationseinrichtung kann eine Vielzahl von Trennstufen umfassen, die so angeordnet sind, dass nach jeder Trennstufe das erhaltene Permeat jeweils als Zulauf der nächsten Trennstufe zugeführt wird, und das Permeat aus der letzten Trennstufe der thermischen Trennung zugeführt wird. Jede Trennstufe kann als ein Membranmodul ausgelegt sein oder mehrere  
15 parallel angeordnete Membranmodule umfassen. Jedes Membranmodul kann eine oder mehrere parallel angeordnete Nanofiltrationsmembranen umfassen.

20 Hinsichtlich der Auswahl einer oder mehrerer geeigneter Nanofiltrationsmembranen für die Nanofiltrationseinrichtung der erfindungsgemäßen Vorrichtung gelten die obigen Ausführungen zur Auswahl einer oder mehrerer geeigneter Nanofiltrationsmembranen für das erfindungsgemäße Verfahren entsprechend.

25 Bevorzugt umfasst die Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen eine Trenngrenze im Bereich von 150 bis 2000 g/mol, bevorzugt 200 bis 600g/mol und besonders bevorzugt von 350 bis 500 g/mol aufweist.

In einer bevorzugten Ausführungsform, die für eine oben beschriebene bevorzugte Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens besonders angepasst ist, umfasst die erfindungsgemäße Vorrichtung zusätzlich

- 5 - eine Vorrichtung zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung vorzugsweise zusätzlich eine Vorrichtung zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung und/oder im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung und/oder eine Vorrichtung zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung,  
10 oder
- eine Vorrichtung zur Entnahme von Proben aus dem Retentat der Nanofiltrationseinrichtung, vorzugsweise zusätzlich eine Vorrichtung zur Entnahme von Proben aus dem resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung und/oder aus dem Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung und/oder eine Vorrichtung zur Entnahme von Proben aus dem Permeat  
15 der Nanofiltrationseinrichtung.

Die Vorrichtung zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung ist vorzugsweise ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus  
20 Gaschromatographen. Entsprechendes gilt für die optional vorgesehenen Vorrichtungen zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im Retentat und/oder Permeat der Nanofiltrationseinrichtung.

Falls eine direkte Messung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung und/oder Zulauf und/oder Retentat und/oder Permeat der Nanofiltrationseinrichtung nicht möglich oder zu aufwändig ist, können Vorrichtungen zur Entnahme von Proben aus dem im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung, dem Zulauf und/oder Retentat und/oder Permeat der Nanofiltrationseinrichtung vorgesehen werden. In den mit dieser Vorrichtung regelmäßig, d. h. zu bestimmten Zeitpunkten oder in bestimmten  
30 Intervallen, bzw. bei Bedarf aus dem Zulauf, Retentat und/oder Permeat entnommenen Proben wird beispielsweise in einem Prozesskontrolllabor die Konzentration der 3-Methylbutansäure bestimmt.

Hinsichtlich der aus der Überwachung der Konzentration der 3-Methylbutansäure im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung und/oder Zulauf, im Retentat und im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung erhältlichen Informationen und der mit dieser Überwachung erzielbaren Vorteile gelten die obigen Ausführungen betreffend erfindungsgemäßen Verfahrens umfassend den Schritt

- Überwachen der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Retentat der Nanofiltrationseinrichtung, und vorzugsweise auch im resultierenden Produktgemisch der Hydroformylierung und/oder im Zulauf und/oder im Permeat der Nanofiltrationseinrichtung.

Die vorliegende Erfindung umfasst ferner die Verwendung einer erfindungsgemäßen Vorrichtung, insbesondere in ihren bevorzugten Ausführungsformen, zum Herstellen eines Produktgemisches durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches, insbesondere nach einem Verfahren gemäß einer der bevorzugten Varianten des oben beschriebenen erfindungsgemäßen Verfahrens.

Weitere bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung ergeben sich aus den Ansprüchen.

Die Erfindung wird nachfolgend anhand eines Ausführungsbeispiels und der Figuren näher beschrieben, ohne dass diese den Schutzbereich der Patentansprüche beschränken. Es zeigen:

Fig. 1: Vorrichtung zum Herstellen eines Produktgemisches durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches nach dem erfindungsgemäßen Verfahren;

Fig. 2: Graphische Darstellung 3MBS-Konzentrationen im Feed, Retentat und Permeat der Nanofiltration;

Fig. 3 Graphische Darstellung des 3MBS-Rückhalt der Nanofiltration.

Zum Herstellen eines Produktgemisches durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms 1 und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches 2 wird eine in Figur 1 skizzierte Vorrichtung umfassend einen Hydroformylierungsreaktor R in Form einer Blasensäule, eine Nanofiltrationseinrichtung M und eine Destillationseinrichtung D eingesetzt. In der Vorrichtung sind Probeentnahmevorrichtungen P vorgesehen, die es ermöglichen, in bestimmten Intervallen aus dem den Reaktor R verlassenden Produktstrom 2 sowie dem Retentat 3 und dem Permeat 4 der Nanofiltrationseinrichtung M Proben zu entnehmen.

Die Nanofiltrationseinrichtung M umfasst ein Membranmodul in Form eines Wickelmoduls. Die Nanofiltrationsmembran ist eine Membran des Typs STARMEM 122 der Firma W. R. Grace & Co und enthält Polyimid P84.

Dem Hydroformylierungsreaktor R wird ein Kohlenwasserstoffstrom 1 umfassend Isobuten und Synthesegas zugeführt. Im Reaktor R erfolgt die Hydroformylierung des Isobutens zu 3-Methylbutanal bei einem Druck im Bereich von 0,2 bis 8,0 MPa und einer Temperatur im Bereich von 70 bis 130 °C mit einer mittleren Verweilzeit im Bereich von 1 bis 4 Stunden, einer Synthesegaszusammensetzung (CO/H<sub>2</sub>) von 1:3 bis 3:1, einer Rhodiumkonzentration im Bereich von 20 bis 100 ppm und einem Rhodium-Ligand-Verhältnis im Bereich von 1:4 bis 1:50.

Das resultierende Produktgemisch 2 der Hydroformylierung, in welchem die Konzentration der 3-Methylbutansäure im Bereich zwischen 0,01 und 0,04 Gew-% liegt, wird anschließend in einer Nanofiltrationseinrichtung M bei einer Temperatur im Bereich von 30 bis 35 °C, einem transmembranen Druck im Bereich von 3,1 bis 3,8 MPa und einem Kohlenmonoxid-Partialdruck im Bereich von 0,9 bis 1,2 MPa getrennt. Die Nanofiltrationseinrichtung M ist so ausgelegt, dass beim Überströmen der Nanofiltrationsmembran die Reynoldszahl zwischen 170 und 900 liegt.

Aus der Nanofiltrationseinrichtung M werden ein resultierendes Retentat 3 und ein resultierendes Permeat 4 entnommen. Das Verhältnis aus der Membran zugeführten Produktgemisch 2 - auch als Feed bezeichnet - und dem Permeat 4 wurde auf 0,82 eingestellt. Der Retentatstrom 3, in welchem der Übergangsmetall-Komplekxkatalysator angereichert ist, wird in den Reaktor R zurückgeführt.

Aus dem den Reaktor R verlassenden Produktgemisch 2, dem Retentat 3 und dem Permeat 4 werden in regelmäßigen Intervallen mit Probeentnahmevorrichtungen P Proben entnommen, um die Konzentration an 3-Methylbutansäure in dem jeweiligen Stoffstrom zu bestimmen.

- 5 Das resultierende Permeat 4 der Nanofiltrationseinrichtung M, in welchem das primäre Hydroformylierungsprodukt 3-Methylbutanal sowie die 3-Methylbutansäure angereicht sind, wird mittels Destillation in einer thermischen Trenneinrichtung in Gestalt einer Destillationsanlage D in eine erste Fraktion 5 und eine zweite Fraktion 6 getrennt. In der ersten Fraktion 5, die als Kopfprodukt erhalten wird, ist die Konzentration an 3-Methylbutanal höher als in der zweiten
- 10 Fraktion 6 und die Konzentration an 3-Methylbutansäure und Hochsiedern geringer als in der zweiten Fraktion.

- Figur 2 zeigt die 3MBS-Konzentration im Feed, Retentat und Permeat der Nanofiltration M über einem Zeitraum von 500 Stunden. Figur 3 zeigt deutlich negative Rückhalte der eingesetzten
- 15 Starmem 122 Membran für die 3-MBS im Nanofiltrationsschritt. Der Rückhalt ist definiert als  $1 - (\text{Konzentration Permeat}) / (\text{Konzentration Retentat})$ .

**Bezugszeichenliste**

|    |   |                             |
|----|---|-----------------------------|
|    | 1 | Kohlenwasserstoffstrom      |
|    | 2 | Produktgemisch              |
| 5  | 3 | resultierendes Retentat     |
|    | 4 | resultierendes Permeat      |
|    | 5 | erste Fraktion              |
|    | 6 | zweite Fraktion             |
|    | D | thermische Trenneinrichtung |
| 10 | R | Hydroformylierungsreaktor   |
|    | M | Nanofiltrationseinrichtung  |
|    | P | Probennahme                 |

**Patentansprüche**

1. Verfahren zum Herstellen eines Produktgemisches (2) durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms (1) und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches (2), mit folgenden Schritten:

a) Hydroformylieren des Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms (1) in einem Hydroformylierungsreaktor (R) in Gegenwart eines Übergangsmetallkomplex-Katalysators, so dass ein Produktgemisch (2) erhalten wird, das zumindest 3-Methylbutanal, Folgeprodukte in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure, sowie den Übergangsmetallkomplex-Katalysator nebst dessen freie Liganden umfasst,

b) Trennen des Produktgemisches (2) mittels einer eine oder mehrere Membrantrennstufen umfassenden Nanofiltrationseinrichtung (M), sodass im resultierenden Retentat (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M) der Übergangsmetallkomplex-Katalysator und dessen freie Liganden gegenüber 3-Methylbutanal und 3-Methylbutansäure angereichert sind, und sodass im resultierenden Permeat (4) der Nanofiltrationseinrichtung (M) 3-Methylbutanal und 3-Methylbutansäure jeweils gegenüber dem Übergangsmetallkomplex-Katalysator angereichert sind, wobei im resultierendem Retentat (3) die Konzentration der 3-Methylbutansäure geringer ist als im Permeat (4),

c) Trennen des resultierenden Permeats (4) der Nanofiltrationseinrichtung (M) mittels einer eine oder mehrere Trennstufen umfassenden thermischen Trenneinrichtung (D) in zumindest eine erste Fraktion (5) und eine zweite Fraktion (6), wobei die erste Fraktion (5) eine höhere Konzentration an 3-Methylbutanal als die zweite Fraktion (6) und eine geringere Konzentration an Folgeprodukten in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure als die zweite Fraktion (6) enthält,

d) Rückführen zumindest eines Teilstroms des resultierenden Retentats (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M) in den Hydroformylierungsreaktor (R).

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass bei dem Schritt des Hydroformylierens des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms ein oder mehrere Verfahrensparameter so eingestellt sind, dass die Gesamtkonzentration an Folgeprodukten in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure, gewichtsmäßig bezogen auf das gesamte Produktgemisch, 30 Gew% oder kleiner ist,
- wobei der oder die einzustellenden Parameter bevorzugt ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus Druck, Temperatur, mittlere Verweilzeit, Zusammensetzung des Synthesegases, Konzentration des Übergangsmetalls und Übergangsmetall-Ligand-Verhältnis des Übergangsmetallkomplex-Katalysators.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Schritt des Hydroformylierens des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms,
- bei einem Druck im Bereich von 0.2 bis 8 MPa, und/oder
  - bei einer Temperatur im Bereich von 70 bis 130 °C und/oder
  - mit einer mittleren Verweilzeit im Bereich von 1 bis 4 h und/oder
  - einer Synthesegaszusammensetzung CO:H<sub>2</sub> von 1:3 bis 3:1 und/oder
  - einer Übergangsmetallkonzentration im Bereich von 10 bis 100 ppm und/oder
  - einem Übergangsmetall-Ligand-Verhältnis im Bereich von 1:4 bis 1:50 durchgeführt wird.
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet dass
- das Übergangsmetall des Übergangsmetallkomplex-Katalysators Rhodium ist und/oder
  - der oder die Liganden des Übergangsmetallkomplex-Katalysators ausgewählt sind aus der Gruppe der Organophosphor-Liganden.

5. Verfahren nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass ein Übergangsmetallkomplex-Katalysator ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Rhodium und Cobalt eingesetzt wird.
- 5 6. Verfahren nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass in der Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen eingesetzt werden, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen einem Rückhalt für 3-Methylbutansäure von -1 oder kleiner, besonders bevorzugt -5 oder kleiner, und insbesondere -10 oder kleiner aufweist.
- 10 7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass in der Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen umfassend oder bestehend aus einem oder mehreren Imidgruppen enthaltenden Polymeren eingesetzt werden, wobei das oder die Imidgruppen enthaltenden Polymere so ausgewählt sind, dass der Rückhalt der Nanofiltrationsmembran für 3-Methylbutansäure -1 oder kleiner, besonders bevorzugt -5 oder kleiner, und insbesondere -10 oder kleiner ist.
- 15 8. Verfahren nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass in der Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen eingesetzt werden, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen einer Trenngrenze im Bereich von 150 bis 2000 g/mol, bevorzugt 200 bis 600 g/mol und ganz besonders bevorzugt 350 bis 500 g/mol aufweist.
- 20 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass in der Nanofiltrationseinrichtung eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen umfassend oder bestehend aus einem oder mehreren Imidgruppen enthaltenden Polymeren eingesetzt werden, wobei das oder die Imidgruppen enthaltenden Polymere so ausgewählt sind, dass die Trenngrenze der Nanofiltrationsmembran im Bereich von 150 bis 2000 g/mol liegt.
- 25 10. Verfahren nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Schritt des Trennens des durch Hydroformylieren des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms erhaltenen Produktgemisches in der Nanofiltrationseinrichtung
- 30

- bei einer Temperatur im Bereich von 10 bis 150 °C  
und/oder
- bei einem transmembranen Druck im Bereich von 0,5 bis 6 MPa  
und/oder
- bei einer Reynoldszahl zwischen 55 und 13500, bevorzugt zwischen 100 und 3500  
und ganz besonders bevorzugt zwischen 170 und 900,  
und/oder
- in Gegenwart von Kohlenmonoxid und/oder Wasserstoff, bevorzugt bei einem Kohlenmonoxid-Partialdruck von mindestens 200 kPa im Zulauf, im Retentat und im Permeat jeder Membrantrennstufe  
durchgeführt wird.

11. Verfahren nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Schritt der thermischen Trennung eine Destillation umfasst, bei der die erste Fraktion als Kopfprodukt erhalten wird und die zweite Fraktion als Sumpfprodukt.

12. Verfahren nach einem der vorangehenden Ansprüche umfassend die Schritte:

- Hydroformylieren eines isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms in Gegenwart eines Rhodiumkomplex-Katalysators mit einem oder mehreren Organophosphorliganden bei einem Druck im Bereich von 0.2 bis 8 MPa und einer Temperatur im Bereich von 70 bis 130 °C mit einer mittleren Verweilzeit im Bereich von 1 bis 4 h einer Synthesegaszusammensetzung CO:H<sub>2</sub> von 1:3 bis 3:1, einer Rhodiumkonzentration im Reaktor im Bereich von 10 bis 100ppm und einem Rhodium-Ligand-Verhältnis im Bereich von 1:4 bis 1:50;
- Trennen des resultierenden Produktgemisches der Hydroformylierung mittels einer Nanofiltrationseinrichtung bei einer Temperatur im Bereich von 10 bis 150 °C, einem transmembranen Druck im Bereich von 0.5 bis 6 MPa, bei einer Reynoldszahl zwischen 170 und 900, und einem Kohlenmonoxid-Partialdruck von größer 0.2 MPa in Zulauf, Retentat und Permeat jeder Membrantrennstufe;
- thermisches Trennen des resultierenden Permeats der Nanofiltrationseinrichtung mittels Destillation in eine erste Fraktion und eine zweite Fraktion, wobei die erste

Fraktion eine höhere Konzentration an 3-Methylbutanal als die zweite Fraktion und eine geringere Konzentration an Hochsiedern als die zweite Fraktion enthält,

- Rückführen zumindest eines Teilstroms des resultierenden Retentats der Nanofiltrationseinrichtung in den Hydroformylierungsreaktor.

5

13. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, umfassend den Schritt

- Überwachen der Konzentration der 3-Methylbutansäure im resultierenden Retentat der Nanofiltrationseinrichtung, und vorzugsweise auch im Produktgemisch und/oder im resultierenden Permeat der Nanofiltrationseinrichtung.

10

14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass beim Überschreiten eines festgelegten Höchstwerts der Konzentration der 3-Methylbutansäure im resultierenden Retentat der Nanofiltrationseinrichtung das Rückführen des resultierenden Retentats in den Hydroformylierungsreaktor unterbrochen wird.

15

15. Verfahren nach Anspruch 13 oder 14, dadurch gekennzeichnet, dass beim Überschreiten eines festgelegten Höchstwerts der Konzentration der 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung ein oder mehrere Verfahrensparameter des Schrittes des Hydroformylierens des isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms im Hydroformylierungsreaktor so modifiziert werden, dass die Konzentration der 3-Methylbutansäure im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung unter den festgelegten Höchstwert abgesenkt wird.

20

16. Vorrichtung (1) zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 15, umfassend

25

- einen Hydroformylierungsreaktor (R) zum Hydroformylieren eines isobutenhaltigen Kohlenwasserstoffstroms (1) in Gegenwart eines Übergangsmetallkomplex-Katalysators,
- eine Nanofiltrationseinrichtung (M) umfassend eine oder mehrere Membrantrennstufen zum Trennen des im Hydroformylierungsreaktor (R) gebildeten Produktgemisches (2), so dass im resultierenden Retentat (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M) der Übergangsmetallkomplex-Katalysator und dessen freie Liganden gegenüber dem 3-Methylbutanal und der 3-Methylbutansäure angereichert sind, und im resultierenden Permeat der Nanofiltrationseinrichtung (M) 3-Methylbutanal und 3-

30

Methylbutansäure gegenüber dem Übergangsmetallkomplex-Katalysator angereichert sind, dergestalt, dass die Konzentration der 3-Methylbutansäure im resultierenden Retentat (3) geringer ist als im resultierenden Permeat (4), wobei die Nanofiltrationseinrichtung (M) eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen umfasst, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen einen Rückhalt für 3-Methylbutansäure von -1 oder kleiner, besonders bevorzugt -5 oder kleiner, und insbesondere -10 oder kleiner aufweist,

- mindestens eine thermische Trenneinrichtung (D) zum thermischen Trennen des resultierenden Permeats (4) der Nanofiltrationseinrichtung (M) in eine erste Fraktion (5) und eine zweite Fraktion (6), wobei die erste Fraktion (5) eine höhere Konzentration an 3-Methylbutanal als die zweite Fraktion (6) und eine geringere Konzentration an Folgeprodukten in Form von Hochsiedern und 3-Methylbutansäure als die zweite Fraktion (6) enthält,
- Mittel zum Rückführen zumindest eines Teilstroms des resultierenden Retentats (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M) in den Hydroformylierungsreaktor (R).

17. Vorrichtung nach Anspruch 16, zusätzlich umfassend

- eine Vorrichtung (P) zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im Retentat (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M), vorzugsweise zusätzlich eine Vorrichtung (P) zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im resultierenden Produktgemisch (2) der Hydroformylierung und/oder im Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung (M) und/oder eine Vorrichtung (P) zur Bestimmung der Konzentration von 3-Methylbutansäure im Permeat (4) der Nanofiltrationseinrichtung (M),

oder

- eine Vorrichtung (P) zur Entnahme von Proben aus dem Retentat (3) der Nanofiltrationseinrichtung (M), vorzugsweise zusätzlich eine Vorrichtung (P) zur Entnahme von Proben aus dem resultierenden Produktgemisch (2) der Hydroformylierung und/oder aus dem Zulauf der Nanofiltrationseinrichtung (M) und/oder eine Vorrichtung (P) zur Entnahme von Proben aus dem Permeat (4) der Nanofiltrationseinrichtung (M).

18. Vorrichtung nach Anspruch 16 oder 17, dadurch gekennzeichnet, dass die Nanofiltrationseinrichtung (M) eine oder mehrere Nanofiltrationsmembranen umfasst, wobei die oder mindestens eine der Nanofiltrationsmembranen eine Trenngrenze im Bereich von 150 bis 2000 g/mol, bevorzugt von 200 bis 600 g/mol und ganz besonders bevorzugt von 350 bis 500 g/mol aufweist.
19. Verwendung einer Vorrichtung nach einem der Ansprüche 16 bis 18 zum Herstellen eines Produktgemisches (2) durch technische Hydroformylierung eines Isobuten enthaltenden Kohlenwasserstoffstroms (1) und zum Auftrennen des erhaltenen Produktgemisches (2).