

19



Octrooi­centrum
Nederland

11 2000386

12 C OCTROOI²⁰

21 Aanvraag om octrooi: 2000386

51 Int.Cl.:
C07D301/10 (2006.01) C07D303/04 (2006.01)
B01J19/00 (2006.01) B01J19/24 (2006.01)

22 Ingediend: 20.12.2006

30 Voorrang:
22.12.2005 US 60/75297441 Ingeschreven:
25.06.2007 I.E. 2007/0947 Dagtekening:
24.10.200745 Uitgegeven:
03.12.2007 I.E. 2007/1273 Octrooi­houder(s):
SHELL INTERNATIONALE RESEARCH
MAATSCHAPPIJ B.V. te Den Haag.

72 Uitvinder(s):
Jeroen Willem Bolk te Amsterdam.
Alouisius Nicolaas Renee Bos te
Amsterdam.
Wayne Errol Evans te Richmond,
Texas (US).
John Robert Lockemeyer te Sugar Land,
Texas (US).
Paul Michael McAllister te Houston,
Texas (US).
Bernardus Franciscus Josef Ramakers te
Amsterdam.
Dominicus Maria Rekers te Amsterdam.
Mathias Jozef Paul Slapak te Amsterdam.

74 Gemachtigde:
Ir. A.W.J. Zeestraten c.s. te 2501 CJ
Den Haag.

54 Methode ter bereiding van een epoxideringskatalysator, epoxideringskatalysator, werkwijze ter bereiding van een olefineoxide of een chemisch product dat van een olefineoxide kan worden afgeleid en reactor die voor een dergelijke werkwijze geschikt is.

57 De onderhavige uitvinding heeft betrekking op een verbeterde epoxideringswerkwijze en een verbeterde epoxideringsreactor. De onderhavige uitvinding maakt gebruik van een reactor die een aantal microkanalen omvat. Dergelijke procesmicrokanalen kunnen zodanig worden ingericht dat de epoxidatie en eventueel andere processen in de microkanalen kunnen plaatsvinden en dat zij in warmtewisselingsrelatie staan met kanalen die zijn ingericht om een warmtewisselingsfluidum te bevatten. Een reactor die dergelijke procesmicrokanalen omvat, wordt een "microkanaalreactor" genoemd. De uitvinding verschaft een methode ter bereiding van een epoxideringskatalysator. De uitvinding verschaft tevens een epoxideringskatalysator. De uitvinding verschaft tevens een bepaalde werkwijze voor de epoxidering van een olefine en een werkwijze ter bereiding van een chemisch product dat van een olefineoxide kan worden afgeleid. De uitvinding verschaft tevens een microkanaalreactor.

NL C 2000386

De inhoud van dit octrooi komt overeen met de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).
Octrooi­centrum Nederland is het Bureau voor de Industriële Eigendom, een agentschap van het ministerie van Economische Zaken

METHODE TER BEREIDING VAN EEN EPOXIDERINGSKATALYSATOR,
EPOXIDERINGSKATALYSATOR, WERKWIJZE TER BEREIDING VAN EEN
OLEFINEOXIDE OF EEN CHEMISCH PRODUCT DAT VAN EEN
OLEFINEOXIDE KAN WORDEN AFGELEID EN REACTOR DIE VOOR EEN
DERGELIJKE WERKWIJZE GESCHIKT IS

Terrein van de uitvinding

De uitvinding heeft betrekking op een methode ter bereiding van een epoxideringskatalysator. De uitvinding heeft tevens betrekking op een epoxideringskatalysator. De uitvinding heeft tevens betrekking op een werkwijze voor de epoxidering van een olefine. De uitvinding heeft tevens betrekking op een werkwijze ter bereiding van een chemisch product dat van een olefineoxide kan worden afgeleid. In het bijzonder kan een dergelijk chemisch product een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine zijn. De uitvinding heeft tevens betrekking op een reactor die geschikt is voor gebruik bij een dergelijke werkwijze.

Achtergrond van de uitvinding

Etheenoxide en andere olefineoxiden zijn belangrijke industriechemicaliën die als voeding worden gebruikt voor het maken van chemische producten zoals ethyleenglycol, propyleenglycol, ethyleenglycolethers, ethyleencarbonaat, ethanolaminen en detergents. Een methode ter vervaardiging van een olefineoxide is door middel van olefine-epoxidering, zijnde gekatalyseerde gedeeltelijke oxidatie van de olefine met zuurstof, zodat het olefineoxide wordt verkregen. Het aldus vervaardigde olefineoxide kan in reactie worden gebracht met water, een alcohol, kooldioxide of een amine teneinde een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine te produceren. Deze productie van een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine wordt in het algemeen afzonderlijk van de vervaardiging van het olefineoxide uitgevoerd en in ieder geval worden de twee processen normaliter in aparte reactoren uitgevoerd.

Bij olefine-epoxidatie wordt een voeding die de olefine en zuurstof bevat over een katalysatorbed gevoerd dat in een reactiezone zit die op bepaalde reactieomstandigheden wordt gehouden. Een commerciële epoxideringsreactor is over het algemeen in de vorm van een mantel-en-buiswarmtewisselaar waarin een aantal in hoofdzaak evenwijdige, langwerpige, relatief nauwe buizen is gevuld met

vormgegeven katalysatordeeltjes teneinde een gepakt bed te vormen en waarin de mantel een koelmiddel bevat. Ongeacht het type epoxideringskatalysator dat wordt gebruikt, ligt bij commercieel bedrijf de inwendige buisdiameter dikwijls in het gebied van 20 tot 40 mm en kan het aantal buizen per reactor in de duizenden lopen, 5 bijvoorbeeld tot wel 12.000.

Olefine-epoxidatie wordt in het algemeen uitgevoerd met een relatief lage olefineomzetting en zuurstofomzetting. Normaliter wordt hercirculering van niet-omgezette olefine en zuurstof toegepast om het rendement van het proces te verhogen. In het algemeen omvat de voeding tevens een grote hoeveelheid zogeheten ballastgas om bedrijf buiten de explosiegrenzen te vergemakkelijken. Ballastgas omvat onder 10 meer verzadigde koolwaterstoffen, met name methaan en ethaan. Als gevolg daarvan behelst hercirculering in het algemeen het behandelen van grote hoeveelheden processtromen, die onder meer de niet-omgezette olefine, niet-omgezette zuurstof en het ballastgas omvatten. De verwerking van de hercirculeringsstroom zoals die 15 normaal in een olefine-epoxideringsinstallatie wordt toegepast, is eveneens tamelijk complex omdat die terugwinning van olefineoxide, kooldioxideverwijdering, waterverwijdering en weer op druk brengen behelst. Het gebruik van ballastgas verhoogt niet alleen de verwerkingskosten maar verlaagt tevens de epoxidatiereactiesnelheid.

20 De epoxideringskatalysator bevat in het algemeen de katalytisch werkzame verbinding, meestal een metaal uit Groep 11 (met name zilver) en versnellercomponenten, op een vormgegeven dragermateriaal. Vormgegeven dragermaterialen worden in het algemeen zorgvuldig geselecteerd om te voldoen aan eisen qua bijvoorbeeld sterkte en schuringsweerstand, oppervlakgrootte en porositeit. 25 De vormgegeven dragermaterialen worden in het algemeen vervaardigd door geselecteerde anorganische materialen in zodanige mate te sinteren dat zij de gewenste eigenschappen hebben.

Tijdens het epoxideren is de katalysator onderhevig aan een prestatiedaling die tot uiting komt in verlies van werkzaamheid en selectiviteit van de katalysator bij de 30 vorming van het gewenste olefineoxide. Naar aanleiding van het werkzaamheidsverlies kan de temperatuur van de epoxidatiereactie zodanig worden verhoogd dat de productiesnelheid van het olefineoxide in stand wordt gehouden. Het bedrijf van commerciële reactoren is normaliter ten aanzien van de reactietemperatuur

begrensd en wanneer de desbetreffende temperatuurlimiet is bereikt, moet de productie van het olefineoxide worden onderbroken om de bestaande lading epoxideringskatalysator door een verse te vervangen.

Het zou van grote waarde zijn indien verbeterde epoxideringswerkwijzen en verbeterde epoxideringsreactoren beschikbaar zouden komen.

Samenvatting van de uitvinding

De onderhavige uitvinding verschaft dergelijke verbeterde epoxideringswerkwijzen en verbeterde epoxideringsreactoren. Uitvoeringsvormen van de onderhavige uitvinding maken gebruik van een reactor die een veelvoud van microkanalen (hierna "procesmicrokanalen") omvat. De procesmicrokanalen kunnen zodanig worden ingericht dat de epoxidering en eventueel ook andere processen in de microkanalen kunnen plaatsvinden en dat zij in warmtewisselingsrelatie staan met kanalen die zijn ingericht om een warmtewisselingsfluidum te bevatten (hierna "warmtewisselingskanalen"). Een reactor die procesmicrokanalen omvat, wordt hier met de term "microkanaalreactor" aangeduid. Zoals hier gebezigd, heeft de term "Groep 11" betrekking op Groep 11 van het Periodiek Systeem der Elementen.

In een bepaalde uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een uit deeltjes bestaande epoxideringskatalysator, welke katalysator een metaal uit Groep 11 en een of meer versnellercomponenten omvat die zijn afgezet op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal met een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 µm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

In een andere uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een werkwijze voor de epoxidering van een olefine, die omvat: in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van een in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor geïnstalleerde epoxideringskatalysator, welke epoxideringskatalysator een metaal uit Groep 11 en een of meer versnellercomponenten omvat die zijn afgezet op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal met een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 µm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

In een andere uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een werkwijze ter bereiding van een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine, welke werkwijze omvat

- in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van een in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor geïnstalleerde epoxideringskatalysator, teneinde een olifineoxide te produceren, welke epoxideringskatalysator een metaal uit Groep 11 en een of meer versnellercomponenten
5 omvat die zijn afgezet op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal met een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen, en
- omzetten van het olefineoxide met water, een alcohol, kooldioxide of een amine teneinde het 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine te vormen.

10 In een andere uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een reactor die geschikt is voor de epoxidering van een olefine, welke reactor een microkanaalreactor is die een of meer procesmicrokanalen omvat waarin een epoxideringskatalysator is geïnstalleerd, welke epoxideringskatalysator een metaal uit Groep 11 en een of meer versnellercomponenten omvat die zijn afgezet op een uit deeltjes bestaand
15 dragermateriaal met een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

Beschrijving van de tekeningen

FIG. 1 is een schematische afbeelding van een microkanaalreactor en de
20 belangrijkste onderdelen daarvan.

FIG. 2 is een schematische afbeelding van een typisch voorbeeld van een repeterende eenheid die procesmicrokanalen en warmtewisselingskanalen omvat, alsmede van de werking daarvan bij gebruik bij de uitvoering van de uitvinding. Een microkanaalreactor volgens deze uitvinding kan een aantal van dergelijke repeterende
25 eenheden omvatten.

Gedetailleerde beschrijving van de uitvinding

Het gebruik van een epoxideringskatalysator in een microkanaalreactor volgens deze uitvinding leidt tot een of meer van de volgende voordelen:

- de epoxideringskatalysator behelst niet het gebruik van een vormgegeven drager,
30 hetgeen de noodzaak van een productiestap voor een vormgegeven drager kan wegnemen.
- afschrikken van het olefineoxide in het procesmicrokanaal maakt bedrijf mogelijk onder omstandigheden die binnen explosiegrenzen kunnen liggen wanneer dergelijke

omstandigheden in een conventionele mantel-en-buiswarmtewisselaarreactor zouden worden toegepast. Dergelijke omstandigheden kunnen worden bereikt door een zuurstofrijke voedingscomponent in de procesmicrokanalen in aanraking te brengen met een olefinenrijke voedingscomponent, welke zuurstofrijke voedingscomponent en
5 olefinenrijke voedingscomponent normaliter buiten de explosiegrenzen liggen. Afschrikken in de procesmicrokanalen vermindert tevens de vorming van nevenproducten zoals aldehyden en carbonzuren.

- de epoxidering in de procesmicrokanalen kan met voordeel worden uitgevoerd onder omstandigheden van hoge totale concentratie van de olefine, de zuurstof en het
10 olefineoxide, hetgeen tot een hogere epoxidatiesnelheid en/of lagere temperatuur van de epoxidatiereactie kan leiden. Verlaging van de temperatuur van de epoxidatiereactie kan tot verbeterde selectiviteit en verbeterde levensduur van de katalysator leiden. Toepassing van omstandigheden van hoge totale concentratie van de olefine, de zuurstof en het olefineoxide kan tevens de noodzaak van het gebruik
15 van een ballastgas wegnemen, wat efficiëntere verwerking en verlaging van de hercirculeringskosten oplevert.

- de in procesmicrokanalen uitgevoerde epoxidering kan worden bedreven bij een hoog omzettingniveau van zuurstof of het olefineoxide. Vooral wanneer de werkwijze bij een hoog olefineomzettingniveau wordt uitgevoerd, heeft het
20 voordelen om de epoxideringswerkwijze als procédé met één passage te bedrijven, wat inhoudt dat geen hercirculeringsstroom wordt toegepast. Bovendien is het voordeel dat in een dergelijk geval lucht aan de procesmicrokanalen kan worden toegevoerd in plaats van zuurstof die van lucht is afgesplitst, hetgeen de noodzaak van een luchtscheidingseenheid kan wegnemen.

- uitvoeren van de olefine-epoxidatie in de procesmicrokanalen biedt de mogelijkheid tot omzetten in die procesmicrokanalen van het gevormde olefineoxide tot 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine. Dit kan de noodzaak van additionele
25 reactoren voor die verdere omzetting wegnemen. Ook kan het de noodzaak van een terugwinningseenheid voor olefineoxide en/of een kooldioxideverwijderingseenheid
30 wegnemen en de noodzaak van warmtewisselingsapparatuur verminderen. Het kan derhalve de complexiteit van de conventioneel in een vervaardigingsinstallatie toegepaste, additionele verwerking, bijvoorbeeld ten behoeve van productterugwinning, verminderen. Omzetting van het olefineoxide in de

procesmicrokanalen vermindert tevens de vorming van nevenproducten zoals aldehyden en carbonzuren.

Voor gebruik bij deze uitvinding geschikte microkanaalreactoren en hun bedrijf worden beschreven in WO-A-2004/099113, WO-A-01/12312, WO-01/54812, 5 US-A-6440895, US-A-6284217, US-A-6451864, US-A-6491880, US-A-6666909, US-6811829, US-A-6851171, US-A-6494614, US-A-6228434 en US-A-6192596, die door verwijzing hierin zijn opgenomen. Methodes waarmee de microkanaalreactor kan worden vervaardigd, met katalysator worden geladen en worden bedreven, zoals die in deze literatuur worden beschreven, kunnen in het algemeen toepasbaar zijn bij 10 de uitvoering van de onderhavige uitvinding.

Onder verwijzing naar FIG. 1 kan microkanaalreactor 100 een procesingang 102, een veelvoud van procesmicrokanalen 104 en een procesuitgang 108 omvatten. De procesingang 102 verschaft een doorgang waardoor fluïdum de procesmicrokanalen 104 kan instromen. De procesuitgang 108 verschaft een doorgang 15 waardoor fluïdum de procesmicrokanalen 104 kan uitstromen.

Het aantal procesmicrokanalen dat in een microkanaalreactor zit, kan zeer groot zijn. Het aantal kan bijvoorbeeld wel 10^5 of zelfs 10^6 of 2×10^6 zijn. Normaal gesproken kan het aantal procesmicrokanalen ten minste 10 of ten minste 100 of zelfs ten minste 1000 zijn.

20 De procesmicrokanalen zijn meestal evenwijdig opgesteld - zij kunnen bijvoorbeeld een reeks in een vlak liggende microkanalen vormen. De procesmicrokanalen kunnen ten minste een inwendige hoogte- of breedtedimensie van ten hoogste 15 mm hebben, bijvoorbeeld 0,05 tot 10 mm, in het bijzonder 0,1 tot 5 mm, meer in het bijzonder 0,5 tot 2 mm. De andere inwendige hoogte- of 25 breedtedimensie kan bijvoorbeeld 0,1 tot 100 cm, in het bijzonder 0,2 tot 75 cm, meer in het bijzonder 0,3 tot 50 cm zijn. De lengte van de procesmicrokanalen kan bijvoorbeeld 1 tot 500 cm, in het bijzonder 2 tot 300 cm, meer in het bijzonder 3 tot 200 cm of 5 tot 100 cm zijn.

De microkanaalreactor 100 omvat daarnaast warmtewisselingskanalen (niet 30 afgebeeld in FIG. 1) die in warmtewisselingscontact met de procesmicrokanalen 104 staan. De warmtewisselingskanalen kunnen eveneens microkanalen zijn. De microkanaalreactor is zodanig ingericht dat warmtewisselingsfluidum vanuit warmtewisselingsingang 110 door de warmtewisselingskanalen naar

warmtewisselingsuitgang 112 kan stromen. De warmtewisselingskanalen kunnen worden uitgelijnd teneinde een stroming in gelijkstroomse, tegenstroomse of, bij voorkeur, dwarsstroomrichting ten opzichte van een stroming in de procesmicrokanalen 104 te verschaffen. De dwarsstroomrichting is zoals aangegeven door pijlen 114 en 116.

De warmtewisselingskanalen kunnen ten minste een inwendige hoogte- of breedtedimensie van ten hoogste 15 mm hebben, bijvoorbeeld 0,05 tot 10 mm, in het bijzonder 0,1 tot 5 mm, meer in het bijzonder 0,5 tot 2 mm. De andere inwendige hoogte- of breedtedimensie kan bijvoorbeeld 0,1 tot 100 cm, in het bijzonder 0,2 tot 75 cm, meer in het bijzonder 0,3 tot 50 cm zijn. De lengte van de warmtewisselingskanalen kan bijvoorbeeld 1 tot 500 cm, in het bijzonder 2 tot 300 cm, meer in het bijzonder 3 tot 200 cm of 5 tot 100 cm zijn.

De tussenruimte tussen een procesmicrokanaal 104 en het naast aanliggende warmtewisselingskanaal kan in het gebied van 0,05 mm tot 5 mm, in het bijzonder 0,2 tot 2 mm liggen.

In sommige uitvoeringsvormen van deze uitvinding worden eerste warmtewisselingskanalen en tweede warmtewisselingskanalen of eerste warmtewisselingskanalen, tweede warmtewisselingskanalen en derde warmtewisselingskanalen of zelfs tot vijfde warmtewisselingskanalen of nog meer warmtewisselingskanalen verschaft. In dergelijke gevallen is er dus een aantal stellen warmtewisselingskanalen en kan er dienovereenkomstig een aantal warmtewisselingsingangen 110 en warmtewisselingsuitgangen 112 zijn, waarbij de stellen warmtewisselingskanalen kunnen zijn ingericht op het ontvangen van warmtewisselingsfluidum uit een warmtewisselingsingang 110 en het afstaan van warmtewisselingsfluidum aan een warmtewisselingsuitgang 112.

Procesingang 102, procesuitgang 108, warmtewisselingsingang 110, warmtewisselingsuitgang 112, procesmicrokanalen 104 en warmtewisselingskanalen kunnen onafhankelijk van elkaar van elk constructiemateriaal zijn gemaakt dat voldoende sterkte, dimensionale stabiliteit en warmteoverdrachtseigenschappen verschaft om bedrijf van de werkwijzen volgens deze uitvinding mogelijk te maken. Geschikte constructiematerialen zijn bijvoorbeeld staal (bijvoorbeeld roestvrij staal en koolstofstaal), monel, titaan, koper, glas en polymeercomposities. Het soort warmtewisselingsfluidum is niet essentieel voor de onderhavige uitvinding en het

warmtewisselingsfluidum kan uit een grote verscheidenheid worden geselecteerd. Geschikte warmtewisselingsfluida zijn onder meer stoom, water, lucht en oliën. In uitvoeringsvormen van de uitvinding die onder meer een aantal stellen warmtewisselingskanalen omvatten, kunnen dergelijke stellen

5 warmtewisselingskanalen met verschillende warmtewisselingsfluida of met warmtewisselingsfluida van verschillende temperaturen werken.

Een microkanaalreactor volgens de uitvinding kan een veelvoud van repeterende eenheden omvatten die een of meer procesmicrokanalen en een of meer warmtewisselingskanalen omvatten. Thans wordt verwezen naar FIG. 2, waarin een
10 typische repeterende eenheid en de werking daarvan worden afgebeeld.

Procesmicrokanalen 210 hebben een stroomopwaarts uiteinde 220 en een stroomafwaarts uiteinde 230 en kunnen een eerste sectie 240 omvatten die een katalysator (niet in de tekening opgenomen), bijvoorbeeld een epoxideringskatalysator, kan bevatten. Eerste sectie 240 kan in
15 warmtewisselingscontact met eerste warmtewisselingskanaal 250 staan, waardoor warmtewisseling tussen eerste sectie 240 van procesmicrokanaal 210 en eerste warmtewisselingskanaal 250 mogelijk is. De repeterende eenheid kan eerste voedingskanaal 260 omvatten dat door een of meer eerste openingen 280 uitkomt in eerste sectie 240. Meestal kunnen een of meer eerste openingen 280 stroomafwaarts
20 ten opzichte van een andere eerste opening 280 worden geplaatst. Tijdens bedrijf kan voeding die de olefine en zuurstof omvat eerste sectie 240 van procesmicrokanaal 210 ingaan door een opening in stroomopwaarts uiteinde 220 en/of door eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280.

Procesmicrokanalen 210 kunnen een tweede sectie 340 omvatten die al dan
25 niet is ingericht om een katalysator te bevatten. Tweede sectie 340 kan al dan niet een katalysator zoals hierin beschreven, bevatten. Tweede sectie 340 is stroomafwaarts van eerste sectie 240 geplaatst. Tweede sectie 340 kan in warmtewisselingscontact met tweede warmtewisselingskanaal 350 staan, waardoor warmtewisseling tussen tweede sectie 340 van procesmicrokanaal 210 en tweede warmtewisselingskanaal 350
30 mogelijk is. In sommige uitvoeringsvormen is tweede sectie 340 ingericht voor het afschrikken door warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum in tweede warmtewisselingskanaal 350 van in eerste sectie 240 verkregen en daaruit ontvangen olefineoxide. Afschrikken kan in een of meer fasen worden bereikt door de

aanwezigheid van een aantal tweede warmtewisselingskanalen 350, bijvoorbeeld twee of drie of vier. Een dergelijk aantal tweede warmtewisselingskanalen 350 kan zijn ingericht om warmtewisselingsfluida van verschillende temperaturen te bevatten, in het bijzonder zodanig dat in stroomafwaartse richting van tweede sectie 340

5 warmtewisseling plaatsvindt met een tweede warmtewisselingskanaal 350 dat een warmtewisselingsfluidum met een lagere temperatuur bevat. De repeterende eenheid kan tweede voedingskanaal 360 omvatten dat door een of meer tweede openingen 380 uitkomt in tweede sectie 340. Tijdens bedrijf kan van stroomopwaarts afkomstige voeding in procesmicrokanaal 210 en door tweede voedingskanaal 360 en een of meer

10 tweede openingen 380 tweede sectie 340 binnentreden. Meestal kunnen een of meer tweede openingen 380 stroomafwaarts ten opzichte van een andere tweede opening 380 worden geplaatst. In uitvoeringsvormen waarin tweede sectie 340 is ingericht om daarin omzetting van olefineoxide in 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine te laten plaatsvinden, kan voeding die tijdens bedrijf door tweede

15 voedingskanaal 360 en een of meer tweede openingen 380 binnenkomt, water, de alcohol, kooldioxide of de amine omvatten. Ook kan katalysator door tweede voedingskanaal 360 en een of meer tweede openingen 380 worden toegevoerd. Desgewenst kan een afzonderlijk stel van tweede voedingskanalen (niet in de tekening opgenomen) met een of meer tweede openingen (niet in de tekening

20 opgenomen) aanwezig zijn om afzonderlijke toevoer van voeding en katalysator mogelijk te maken.

De eerste en tweede voedingskanalen 260 of 360, in combinatie met eerste en tweede openingen 280 of 380, waarbij een of meer eerste of tweede openingen 280 of 380 stroomafwaarts zijn geplaatst van een andere eerste of tweede opening 280 of

25 respectievelijk 380, maken bijvullen van een reactiestof mogelijk. Bijvullen van een reactiestof is een kenmerk van sommige uitvoeringsvormen van deze uitvinding.

Procesmicrokanalen 210 kunnen een tussensectie 440 omvatten, die stroomafwaarts van eerste sectie 240 en stroomopwaarts van tweede sectie 340 is geplaatst. Tussensectie 440 kan in warmtewisselingscontact met derde

30 warmtewisselingskanaal 450 staan, waardoor warmtewisseling tussen tussensectie 440 van procesmicrokanaal 210 en derde warmtewisselingskanaal 450 mogelijk is. In sommige uitvoeringsvormen, bijvoorbeeld in uitvoeringsvormen waarin tweede sectie 340 is ingericht om daarin omzetting van olefineoxide in 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-

carbonaat of alkanolamine te laten plaatsvinden, is tussensectie 440 ingericht voor het afschrikken door warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum in derde warmtewisselingskanaal 450 van in eerste sectie 240 verkregen en daaruit ontvangen olefineoxide. Afschrikken kan door de aanwezigheid van een aantal derde
5 warmtewisselingskanalen 450 in fasen worden bereikt, bijvoorbeeld twee of drie of vier. Een dergelijk aantal derde warmtewisselingskanalen 450 kan zijn ingericht om warmtewisselingsfluida van verschillende temperaturen te bevatten, in het bijzonder zodanig dat in stroomafwaartse richting van tussensectie 440 warmtewisseling plaatsvindt met een derde warmtewisselingskanaal 450 dat een
10 warmtewisselingsfluidum met een lagere temperatuur bevat.

De voedingskanalen kunnen microkanalen zijn. Zij kunnen ten minste een inwendige hoogte- of breedtedimensie van ten hoogste 15 mm hebben, bijvoorbeeld 0,05 tot 10 mm, in het bijzonder 0,1 tot 5 mm, meer in het bijzonder 0,5 tot 2 mm. De andere inwendige hoogte- of breedtedimensie kan bijvoorbeeld 0,1 tot 100 cm zijn, in
15 het bijzonder 0,2 tot 75 cm, meer in het bijzonder 0,3 tot 50 cm. De lengte van de voedingskanalen kan bijvoorbeeld 1 tot 250 cm zijn, in het bijzonder 2 tot 150 cm en meer in het bijzonder 3 tot 100 cm of 5 tot 50 cm.

De lengte van de secties van de procesmicrokanalen kan onafhankelijk van elkaar worden geselecteerd, bijvoorbeeld naar benodigde warmtewisselingscapaciteit
20 of de hoeveelheid katalysator die de sectie mag bevatten. De lengte van de secties is bij voorkeur ten minste 1 cm of ten minste 2 cm of ten minste 5 cm. De lengte van de secties is bij voorkeur ten hoogste 250 cm of ten hoogste 150 cm of ten hoogste 100 cm of ten hoogste 50 cm. Andere afmetingen van de secties worden bepaald door de corresponderende afmetingen van procesmicrokanaal 210.

25 De microkanaalreactor volgens deze uitvinding kan met gebruikmaking van bekende technieken worden vervaardigd, bijvoorbeeld conventioneel verspanen, lasersnijden, gieten, stampen en etsen en combinaties daarvan. De microkanaalreactor volgens deze uitvinding kan worden vervaardigd door platen te vormen waaruit
30 stukken zijn verwijderd die doorgangen mogelijk maken. Van dergelijke platen kan een stapel worden samengesteld om met gebruikmaking van bekende technieken, bijvoorbeeld diffusiehechten, laserlassen, koud lassen, diffusiesolderen en combinaties daarvan, een geïntegreerde inrichting te vormen. De microkanaalreactor volgens deze uitvinding omvat toepasselijke ingangen, uitgangen, afsluiters, leidingen

en andere kenmerken om invoer van reactiestoffen, uitvoer van product en stroming van warmtewisselingsfluida te regelen. Deze zijn niet in de tekeningen opgenomen maar kunnen eenvoudig door deskundigen worden verschaft. Tevens kan er verdere warmtewisselingsapparatuur (niet afgebeeld in de tekeningen) zijn voor de

5 temperatuurregeling van voeding, in het bijzonder om voeding of voedingscomponenten te verhitten alvorens die de procesmicrokanalen ingaan of voor de temperatuurregeling van product, in het bijzonder om product af te schrikken nadat het de procesmicrokanalen heeft verlaten. Dergelijke verdere warmtewisselingsapparatuur kan met de microkanaalreactor worden geïntegreerd

10 maar zal vaker afzonderlijke apparatuur zijn. Deze is niet in de tekeningen opgenomen maar kan eenvoudig door deskundigen worden verschaft. Warmte-integratie kan worden toegepast, bijvoorbeeld door gebruik te maken van reactiewarmte van de epoxideringswerkwijze voor het verhitten van voedingscomponenten of voor andere verhittingsdoeleinden.

15 De epoxideringskatalysatoren zijn vaste katalysatoren onder de omstandigheden van de epoxidatiereactie. Dergelijke epoxideringskatalysatoren en, in voorkomende gevallen, eventuele andere vaste katalysatoren, kunnen met elke bekende techniek in de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen worden geïnstalleerd. De katalysatoren kunnen een gepakt bed in de daartoe aangewezen

20 sectie van het procesmicrokanaal vormen en/of zij kunnen een deklaag op ten minste een deel van de wand van de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen vormen. Deskundigen zullen inzien dat de deklaag op de binnenwand van de procesmicrokanalen wordt aangebracht. Als alternatief of daarnaast kunnen een of meer van de katalysatoren in de vorm zijn van een deklaag op inbrengstukken die in

25 de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen kunnen worden geplaatst.

De epoxideringskatalysator is meestal een katalysator die een of meer metalen uit Groep 11 omvat. De metalen uit Groep 11 kunnen worden gekozen uit de groep bestaande uit zilver en goud. Bij voorkeur omvat het metaal uit Groep 11 zilver. In het bijzonder omvat het metaal uit Groep 11 zilver in een hoeveelheid van ten minste

30 90 gew.%, meer in het bijzonder ten minste 95 gew.%, bijvoorbeeld ten minste 99 gew.% of ten minste 99,5 gew.%, berekend als het gewicht van zilvermetaal ten opzichte van het totale gewicht van het metaal uit Groep 11, als metaal. Meestal omvat de epoxideringskatalysator daarnaast een of meer versnellercomponenten.

Vaker omvat de epoxideringskatalysator het metaal uit Groep 11, een of meer versnellercomponenten en tevens een of meer componenten die een of meer verdere elementen omvatten. In sommige uitvoeringsvormen kan de epoxideringskatalysator een dragermateriaal omvatten waarop het metaal uit Groep 11, eventuele

5 versnellercomponenten en eventuele, een of meer verdere elementen omvattende componenten kunnen worden afgezet. Geschikte versnellercomponenten en geschikte, een of meer verdere elementen omvattende componenten en geschikte dragermaterialen kunnen zijn zoals hierna beschreven.

In sommige uitvoeringsvormen worden de wanden van de procesmicrokanalen waarop metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent kan worden
10 afgezet ten minste gedeeltelijk opgeruwd of geribbeld. Opruwen of ribbelen kan groeven en verheffingen verschaffen, zodat het opgeruwde of geribbelde wandoppervlak in feite wordt vergroot, bijvoorbeeld met een factor 0,5 tot 10 of 1 tot 5, ten opzichte van de oppervlaktgrootte van het opgeruwde of geribbelde
15 wandoppervlak zoals gedefinieerd door zijn buitenmaten. Dit kan de adhesie van de op de wand afgezette epoxideringskatalysator verhogen en maakt dat meer epoxideringskatalysatoroppervlak kan bijdragen bij het katalyseren van de epoxidatiereactie. Opruwen en ribbelen kunnen met in de techniek bekende methoden worden bereikt, bijvoorbeeld etsen of uitoefenen van schuurkracht.

20 In een bepaalde uitvoeringsvorm omvat een methode voor het installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor het in de een of meer procesmicrokanalen inbrengen van een dispersie van de epoxideringskatalysator, gedispergeerd in een in hoofdzaak niet-waterig verdunningsmiddel, en verwijderen van het verdunningsmiddel.

25 Het in hoofdzaak niet-waterige verdunningsmiddel kan een vloeistof zijn of het kan gasvormig zijn. Wat betreft vloeibare verdunningsmiddelen, betekent "in hoofdzaak niet-waterig", zoals hier gebezigd, dat het watergehalte van het verdunningsmiddel ten hoogste 20 gew.%, in het bijzonder ten hoogste 10 gew.%, meer in het bijzonder ten hoogste 5 gew.%, bijvoorbeeld ten hoogste 2 gew.% of zelfs ten hoogste 1 gew.% of ten
30 hoogste 0,5 gew.% ten opzichte van het gewicht van het verdunningsmiddel is. In het bijzonder voor gasvormige verdunningsmiddelen betekent "in hoofdzaak niet-waterig" dat het verdunningsmiddel zoals in de procesmicrokanalen aanwezig, boven het dauwpunt is. Door de vrijwel volledige of volledige afwezigheid van vloeibaar water in

het verdunningsmiddel kan de katalysator zijn integriteit qua een of meer van zijn morfologie, samenstelling en eigenschappen tijdens installatie beter in stand houden dan wanneer een waterig verdunningsmiddel wordt toegepast. Geschikte, in hoofdzaak niet-waterige vloeibare verdunningsmiddelen zijn onder meer organische

5 verdunningsmiddelen, bijvoorbeeld koolwaterstoffen, gehalogeneerde koolwaterstoffen, alcoholen, ketons, ethers en esters. Geschikte alcoholen zijn bijvoorbeeld methanol en ethanol. De hoeveelheid katalysator die in het vloeibare verdunningsmiddel aanwezig kan zijn, kan in het gebied van 1 tot 50 gew.%, in het bijzonder 2 tot 30 gew.%, ten opzichte van het gewicht van het totaal van de katalysator en het vloeibare verdunningsmiddel
10 liggen.

Geschikte, in hoofdzaak niet-waterige verdunningsmiddelen in de gasvormige fase zijn bijvoorbeeld lucht, stikstof, argon en kooldioxide. De hoeveelheid katalysator die in het gasvormige verdunningsmiddel aanwezig kan zijn, kan in het gebied van 10 tot 500 g/l, in het bijzonder 22 tot 300 g/l, berekend als het gewicht van de katalysator ten
15 opzichte van het volume van het verdunningsmiddel in de gasvormige fase, liggen.

De deeltjesgrootte van de in de dispersie aanwezige katalysator is meestal zodanig dat d_{50} in het gebied van 0,1 tot 100 μm , in het bijzonder 0,5 tot 50 μm ligt. Zoals hier
gebezigd, is de gemiddelde deeltjesgrootte, hier aangeduid als " d_{50} ", zoals gemeten met
een Horiba LA900 deeltjesgrootteanalysestoestel en vertegenwoordigt zij een
20 deeltjesdiameter waarbij er gelijke bolvormige equivalentvolumes zijn van deeltjes die groter en deeltjes die kleiner zijn dan de opgegeven gemiddelde deeltjesgrootte. De meetmethode omvat onder meer het dispergeren van de deeltjes door middel van ultrasone behandeling, waardoor secundaire deeltjes tot primaire deeltjes worden opgebroken. Deze sonificeringsbehandeling wordt voortgezet tot geen verdere
25 verandering in de d_{50} -waarde wordt waargenomen, wat bij gebruik van het Horiba LA900 deeltjesgrootteanalysestoestel meestal 5 minuten sonificering vergt. Bij voorkeur omvat de epoxideringskatalysator deeltjes van zodanige afmetingen dat zij door een zeef met openingen ter grootte van ten hoogste 50%, in het bijzonder ten hoogste 30% van de kleinste dimensie van het procesmicrokanaal kunnen.

30 De in de dispersie aanwezige epoxideringskatalysator wordt volgens de uitvinding bereid. Als alternatief kan een deel van de in de dispersie aanwezige epoxideringskatalysator worden verkregen door een conventionele, vormgegeven

katalysator te vergruizen, eventueel gevolgd door zeven. Dit heeft in het algemeen echter niet de voorkeur.

De dispersie van de katalysator kan zodanig worden ingebracht dat een gepakt katalysatorbed wordt gevormd in de daartoe aangewezen sectie van een of meer van de procesmicrokanalen of anders zodanig dat ten minste een deel van de wanden van
5 genoemde secties met de katalysator wordt bedekt. In het eerste geval kan, voorafgaand aan het inbrengen van de dispersie van de katalysator, een draaginrichting, bijvoorbeeld een zeef of een uit deeltjes van een bepaalde grootte bestaand materiaal, in het stroomafwaartse deel van de daartoe aangewezen sectie van de een of meer van de
10 procesmicrokanalen zijn geplaatst om de katalysator te ondersteunen en te voorkomen dat hij zich verder stroomafwaarts verplaatst. In het laatste geval kan de katalysator voorafgaand aan of na het assembleren van de procesmicrokanalen op de wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet of kan de katalysator aanwezig zijn op in de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen geplaatste inbrengstukken.

15 De totale in de eerste sectie van de procesmicrokanalen aanwezige hoeveelheid metaal uit Groep 11 is voor de uitvinding niet essentieel en kan binnen brede grenzen worden geselecteerd. Meestal kan de totale hoeveelheid metaal uit Groep 11 in het gebied van 10 tot 500 kg/m³ liggen, vaker 50 tot 400 kg/m³, in het bijzonder 100 tot 300 kg/m³ reactorvolume, waarbij reactorvolume het totale volume
20 is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de procesmicrokanalen, door de aanwezigheid van een gepakt bed en/of door de aanwezigheid van de epoxideringskatalysator op de wand. Voor alle duidelijkheid: het aldus gedefinieerde reactorvolume omvat niet delen van het procesmicrokanaal die geen
25 epoxideringskatalysator omvatten. In uitvoeringsvormen van de uitvinding waarbij de voeding de olefine en de zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 50 mol% omvat, kan de totale hoeveelheid metaal uit Groep 11 in het gebied van 5 tot 250 kg/m³ liggen, vaker 20 tot 200 kg/m³, in het bijzonder 50 tot 150 kg/m³ reactorvolume, zoals in het voorgaande beschreven.

30 In een bepaalde uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een methode ter bereiding van een uit deeltjes bestaande epoxideringskatalysator, welke methode het afzetten omvat van metaal uit Groep 11 en een of meer versnellercomponenten op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal met een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met

een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

De dragermaterialen voor gebruik bij deze uitvinding kunnen natuurlijke of kunstmatige anorganische materialen zijn en kunnen onder meer hittebestendige materialen, siliciumcarbide, kleisoorten, zeolieten, houtskool en aardalkalimetaalcarbonaten, bijvoorbeeld calciumcarbonaat omvatten. De voorkeur hebben hittebestendige materialen zoals alumina, magnesia, zirconia en silica. Het materiaal dat de meeste voorkeur heeft, is α -alumina. Meestal omvat het dragermateriaal ten minste 85 gew.%, vaker ten minste 90 gew.%, in het bijzonder ten minste 95 gew.% α -alumina, vaak tot 99,9 gew.% α -alumina, ten opzichte van het gewicht van de drager. Andere componenten van het α -alumina kunnen bijvoorbeeld silica, alkalimetaalcomponenten, bijvoorbeeld natrium- en/of kaliumcomponenten, en/of aardalkalimetaalcomponenten, bijvoorbeeld calcium- en/of magnesiumcomponenten, omvatten.

De oppervlakgrootte van het dragermateriaal kan op geschikte wijze ten minste 0,1 m^2/g zijn, bij voorkeur ten minste 0,3 m^2/g , met meer voorkeur ten minste 0,5 m^2/g en in het bijzonder ten minste 0,6 m^2/g ten opzichte van het gewicht van de drager; en de oppervlakgrootte kan op geschikte wijze ten hoogste 10 m^2/g zijn, bij voorkeur ten hoogste 5 m^2/g en in het bijzonder ten hoogste 3 m^2/g ten opzichte van het gewicht van de drager. "Oppervlakgrootte" zoals hier gebezigd, wordt geacht betrekking te hebben op de oppervlakgrootte zoals bepaald met de B.E.T.-methode (Brunauer, Emmett en Teller), zoals beschreven in Journal of the American Chemical Society 60 (1938) pp. 309-316. Dragermaterialen met hoge oppervlakgrootte, in het bijzonder als zij een α -alumina zijn dat naar keuze tevens silica, alkalimetaal en/of aardalkalimetaalcomponenten omvat, verschaffen verbeterde bedrijfsprestaties en -stabiliteit.

De waterabsorptie van het dragermateriaal ligt meestal in het gebied van 0,2 tot 0,8 g/g, bij voorkeur in het gebied van 0,3 tot 0,7 g/g. Een hogere waterabsorptie kan gunstig zijn met het oog op een efficiëntere afzetting van metaal uit Groep 11, versnellercomponenten en componenten die een of meer elementen omvatten. Zoals hier gebezigd, is waterabsorptie zoals conform ASTM C20 gemeten en wordt waterabsorptie uitgedrukt als het gewicht van het water dat in de poriën van de drager kan worden geabsorbeerd ten opzichte van het gewicht van de drager.

Het uit deeltjes bestaande dragermateriaal kan een zodanige poriegrootteverdeling hebben dat poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen. Een dergelijke relatief smalle poriegrootteverdeling kan bijdragen aan een of meer van de werkzaamheid, de selectiviteit en de levensduur van de katalysator. Levensduur kan ten aanzien van instandhouding van de katalysatorwerkzaamheid en/of instandhouding van de selectiviteit zijn. Zoals hier gebezigd, zijn poriegrootteverdeling en porievolumes zoals gemeten door middel van kwikintrusie tot een druk van $3,0 \times 10^8$ Pa met gebruikmaking van een Micromeritics Autopore 9200 model (130° contacthoek, kwik met een oppervlaktespanning van 0,473 N/m en onder toepassing van correctie voor kwikcompressie).

Bij voorkeur is de poriegrootteverdeling zodanig dat de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm meer dan 75%, in het bijzonder meer dan 80%, met meer voorkeur meer dan 85%, liefst meer dan 90% van het totale porievolume vertegenwoordigen. Vaak is de poriegrootteverdeling zodanig dat de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm minder dan 99,9%, vaker minder dan 99% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

Bij voorkeur is de poriegrootteverdeling zodanig dat de poriën met een diameter in het gebied van 0,3 tot 10 μm meer dan 75%, in het bijzonder meer dan 80%, met meer voorkeur meer dan 85%, liefst meer dan 90%, in het bijzonder tot 100% van het porievolume in de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm vertegenwoordigen.

Meestal is de poriegrootteverdeling zodanig dat poriën met een diameter van minder dan 0,2 μm minder dan 10%, in het bijzonder minder dan 5% van het totale porievolume vertegenwoordigen. Dikwijls vertegenwoordigen de poriën met een diameter van minder dan 0,2 μm meer dan 0,1%, vaker meer dan 0,5% van het totale porievolume.

Meestal is de poriegrootteverdeling zodanig dat poriën met een diameter van meer dan 10 μm minder dan 20%, in het bijzonder minder dan 10%, meer in het bijzonder minder dan 5% van het totale porievolume vertegenwoordigen. Dikwijls vertegenwoordigen de poriën met een diameter van meer dan 10 μm meer dan 0,1%, in het bijzonder meer dan 0,5% van het totale porievolume.

Meestal verschaffen de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 µm een porievolume van ten minste 0,25 ml/g, in het bijzonder ten minste 0,3 ml/g, meer in het bijzonder ten minste 0,35 ml/g. Meestal verschaffen de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 µm een porievolume van ten hoogste 0,8 ml/g, vaker ten hoogste 0,7 ml/g, in het bijzonder ten hoogste 0,6 ml/g.

Het uit deeltjes bestaande dragermateriaal heeft meestal een d_{50} in het gebied van 0,1 tot 100 µm, in het bijzonder 0,5 tot 50 µm. Bij voorkeur omvat het uit deeltjes bestaande dragermateriaal deeltjes met zodanige afmetingen dat zij door een ASTM-zeef met openingen ter grootte van ten hoogste 50%, in het bijzonder 30% van de kleinste dimensie van het procesmicrokanaal kunnen.

De epoxideringskatalysator die een of meer metalen uit Groep 11 gedispergeerd op een dragermateriaal omvat, vertoont merkbare katalytische werkzaamheid wanneer het gehalte aan metaal uit Groep 11 ten opzichte van het gewicht van de katalysator ten minste 10 g/kg is. Bij voorkeur omvat de katalysator metaal uit Groep 11 in een hoeveelheid van 50 tot 500 g/kg, met meer voorkeur 100 tot 400 g/kg.

De versnellercomponent kan een of meer elementen omvatten die zijn gekozen uit renium, wolfram, molybdeen, chroom en mengsels daarvan. Bij voorkeur omvat de versnellercomponent renium als een van zijn elementen.

De versnellercomponent kan meestal in de epoxideringskatalysator aanwezig zijn in een hoeveelheid van ten minste 0,05 mmol/kg, vaker ten minste 0,5 mmol/kg en bij voorkeur ten minste 1 mmol/kg, berekend als de totale hoeveelheid van het element (dat wil zeggen, renium, wolfram, molybdeen en/of chroom) ten opzichte van het gewicht aan metaal uit Groep 11. De versnellercomponent kan in een hoeveelheid van ten hoogste 250 mmol/kg aanwezig zijn, bij voorkeur ten hoogste 50 mmol/kg, met meer voorkeur ten hoogste 25 mmol/kg, berekend als de totale hoeveelheid van het element ten opzichte van het gewicht aan metaal uit Groep 11. De vorm waarin de versnellercomponent kan worden afgezet, is voor de uitvinding niet essentieel. De versnellercomponent kan bijvoorbeeld op geschikte wijze worden verschaft als een oxide of als een oxyanion, bijvoorbeeld als een renaat, perrenaat of wolframaat in zout- of zuurvorm.

Wanneer de epoxideringskatalysator een reniumhoudende versnellercomponent omvat, kan renium meestal aanwezig zijn in een hoeveelheid

van ten minste 0,5 mmol/kg, vaker ten minste 2,5 mmol/kg en bij voorkeur ten minste 5 mmol/kg, in het bijzonder ten minste 7,5 mmol/kg, berekend als de hoeveelheid van het element ten opzichte van het gewicht aan metaal uit Groep 11. Renium is meestal aanwezig in een hoeveelheid van ten hoogste 25 mmol/kg, bij voorkeur ten hoogste 15 mmol/kg, met meer voorkeur ten hoogste 10 mmol/kg, in het bijzonder ten hoogste 7,5 mmol/kg, op dezelfde basis.

Voorts kan, wanneer de epoxideringskatalysator een reniumhoudende versnellercomponent omvat, de katalysator bij voorkeur een als verdere component op de drager afgezette reniumcoversneller omvatten. Op geschikte wijze kan de reniumcoversneller worden gekozen uit componenten die een element omvatten dat is gekozen uit wolfram, chroom, molybdeen, zwavel, fosfor, boor en mengsels daarvan. Bij voorkeur wordt de reniumcoversneller geselecteerd uit componenten die wolfram, chroom, molybdeen, zwavel en mengsels daarvan omvatten. Het heeft bijzondere voorkeur dat de reniumcoversneller wolfram als element omvat.

De reniumcoversneller kan meestal aanwezig zijn in een totale hoeveelheid van ten minste 0,05 mmol/kg, vaker ten minste 0,5 mmol/kg en bij voorkeur ten minste 2,5 mmol/kg, berekend als het element (dat wil zeggen, het totaal van wolfram, chroom, molybdeen, zwavel, fosfor en/of boor) ten opzichte van het gewicht aan metaal uit Groep 11. De reniumcoversneller kan aanwezig zijn in een totale hoeveelheid van ten hoogste 200 mmol/kg, bij voorkeur ten hoogste 50 mmol/kg, met meer voorkeur ten hoogste 25 mmol/kg, op dezelfde basis. De vorm waarin de reniumcoversneller kan worden afgezet, is voor de uitvinding niet essentieel. Hij kan bijvoorbeeld op geschikte wijze worden verschaft als een oxide of als een oxyanion, bijvoorbeeld, als een sulfaat, boraat of molybdaat in zout- of zuurvorm.

De epoxideringskatalysator omvat bij voorkeur metaal uit Groep 11, de versnellercomponent en een component die een verder element omvat. In aanmerking komende verdere elementen kunnen worden gekozen uit de groep van stikstof, fluor, alkalimetalen, aardalkalimetalen, titaan, hafnium, zirkoon, vanadium, thallium, thorium, tantaal, niobium, gallium en germanium en mengsels daarvan. Bij voorkeur worden de alkalimetalen gekozen uit lithium, kalium, rubidium en cesium. Liefst is het alkalimetaal lithium, kalium en/of cesium. De aardalkalimetalen worden bij voorkeur gekozen uit calcium en barium. Meestal is het verdere element in de

epoxideringskatalysator aanwezig in een totale hoeveelheid van 0,05 tot 2500 mmol/kg, vaker 0,25 tot 500 mmol/kg, berekend als het element ten opzichte van het gewicht aan metaal uit Groep 11. De verdere elementen kunnen in elke vorm worden verschaft. Geschikt zijn bijvoorbeeld zouten van een alkali- of een aardalkalimetaal.

5 Zoals hier gebezigd, wordt de hoeveelheid in de epoxideringskatalysator aanwezig alkalimetaal geacht de hoeveelheid te zijn voor zover die met geontioniseerd water bij 100°C uit de epoxideringskatalysator kan worden geëxtraheerd. De extractiemethode behelst het drie maal extraheren van een 10-grams monster van de katalysator door dat gedurende 5 minuten bij 100°C te verhitten in
10 delen van 20 ml geontioniseerd water en de relevante metalen in de gecombineerde extracten met gebruikmaking van een bekende methode, bijvoorbeeld atoomabsorptiespectroscopie, te bepalen.

Zoals hier gebezigd, wordt de hoeveelheid in de epoxideringskatalysator aanwezig aardalkalimetaal geacht de hoeveelheid te zijn voor zover die met 10 gew.%
15 salpeterzuur in geontioniseerd water bij 100°C uit de epoxideringskatalysator kan worden geëxtraheerd. De extractiemethode behelst het extraheren van een 10-grams monster van de katalysator door dat met een 100 ml deel van 10 gew.% salpeterzuur gedurende 30 minuten te koken (1 bar, dat wil zeggen 101,3 kPa) en de relevante metalen in de gecombineerde extracten met gebruikmaking van een bekende methode,
20 bijvoorbeeld atoomabsorptiespectroscopie, te bepalen. Er wordt verwezen naar US-A-5801259, dat hierin door verwijzing is opgenomen.

Methoden voor het op een dragermateriaal afzetten van metaal uit Groep 11, de een of meer versnellercomponenten en de een of meer componenten die een verder element omvatten, zijn in de techniek bekend en dergelijke methoden kunnen bij de
25 uitvoering van deze uitvinding worden toegepast. Men raadplege US-A-5380697, US-A-5739075, EP-A-266015 en US-B-6368998, die door verwijzing hierin zijn opgenomen. Op geschikte wijze omvatten de methoden onder meer impregneren van de uit deeltjes bestaande dragermaterialen met een vloeistofmengsel dat kationisch Groep 11-metaalaminecomplex en een reductiemiddel omvat.

30 In sommige uitvoeringsvormen verschaft de uitvinding werkwijzen voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijzen het in reactie brengen omvatten van een voeding die de olefine en zuurstof omvat in aanwezigheid van een

epoxideringskatalysator zoals in het voorgaande beschreven, die in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor zit.

De olefine voor gebruik bij de onderhavige uitvinding kan een aromatische olefine zijn, bijvoorbeeld styreen of een diolefine, ongeacht of die geconjugeerd is of
5 niet, bijvoorbeeld 1,9-decadien of 1,3-butadien. Er kan een mengsel van olefinen worden gebruikt. Meestal is de olefine een mono-olefine, bijvoorbeeld 2-buteen of isobuteen. Bij voorkeur is de olefine een mono- α -olefine, bijvoorbeeld 1-buteen of propeen. De olefine die de meeste voorkeur heeft, is etheen.

De voeding voor de epoxideringswerkwijze volgens deze uitvinding omvat de
10 olefine en zuurstof. Zoals hier gebezigd, wordt de voeding voor een werkwijze geacht het totaal te vertegenwoordigen van de reactiestoffen en andere componenten die aan de sectie van de procesmicrokanalen waarin de desbetreffende werkwijze plaatsvindt, worden toegevoerd. Sommige van de voedingscomponenten kunnen door een opening in stroomopwaarts uiteinde 220 van procesmicrokanalen 210 aan de
15 epoxideringswerkwijze worden toegevoerd. Sommige van de voedingscomponenten kunnen door eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280 worden toegevoerd. Bijvoorbeeld, een olefinenrijke voedingscomponent kan door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen worden toegevoerd en een zuurstofrijke voedingscomponent kan door het eerste voedingskanaal en de een of
20 meer eerste openingen worden toegevoerd. Als alternatief kan de zuurstofrijke voedingscomponent door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen worden toegevoerd en kan de olefinenrijke voedingscomponent door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd. Bepaalde voedingscomponenten kunnen door de opening in het
25 stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen en door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd. Bijvoorbeeld, de olefine kan deels door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen en deels door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd. Als ander voorbeeld kan zuurstof deels door de
30 opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen en deels door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd.

In de voeding kan als reactiemodificator een organisch halogenide aanwezig zijn om de selectiviteit te vergroten en daarbij ongewenste oxidatie van de olefine of

het olefineoxide tot kooldioxide en water te onderdrukken ten opzichte van de gewenste vorming van het olefineoxide. Het organische halogenide kan als vloeistof of als damp worden toegevoerd. Het organische halogenide kan afzonderlijk of samen met andere voedingscomponenten door een opening in stroomopwaarts uiteinde 220 van de procesmicrokanalen 210 of door eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280 worden toegevoerd. Een aspect van het toevoeren van het organische halogenide door een veelvoud van eerste openingen is dat er een toename kan zijn in het niveau van de hoeveelheid van het organische halogenide over de lengte van de epoxideringskatalysator, waardoor de werkzaamheid en/of selectiviteit van de epoxideringskatalysator volgens EP-A-352850, dat hierin door verwijzing is opgenomen, kan worden gemanipuleerd. Bijvoorbeeld, wanneer gebruik wordt gemaakt van een reniumhoudende epoxideringskatalysator, kan de werkzaamheid van de epoxideringskatalysator over de lengte van de epoxideringskatalysator worden verhoogd. Dit zou betere benutting van de epoxideringskatalysator mogelijk kunnen maken in regio's waar zuurstof of de olefine is uitgeput ten opzichte van de regio's waar zuurstof en de olefine worden toegevoerd.

Organische halogeniden zijn in het bijzonder organische bromiden en meer in het bijzonder organische chloriden. Organische halogeniden die de voorkeur hebben, zijn chloorkoolwaterstoffen of broomkoolwaterstoffen. Met meer voorkeur worden zij gekozen uit de groep van methylchloride, ethylchloride, ethyleendichloride, ethyleendibromide, vinylchloride of een mengsel daarvan. De meeste voorkeur hebben ethylchloride en ethyleendichloride.

Naast een organisch halogenide kan als reactiemodificator een organische of anorganische stikstofverbinding worden gebruikt, maar dit heeft in het algemeen minder voorkeur. Men is van oordeel dat de stikstofhoudende reactiemodificatoren onder de bedrijfsomstandigheden van de epoxideringswerkwijze precursors van nitraten of nitrieten zijn (zie bijvoorbeeld EP-A-3642 en US-A-4822900, die door verwijzing hierin zijn opgenomen). Organische stikstofverbindingen en anorganische stikstofverbindingen kunnen worden toegepast. Geschikte organische stikstofverbindingen zijn nitroverbindingen, nitrosoverbindingen, aminen, nitraten en nitrieten, bijvoorbeeld nitromethaan, 1-nitropropan of 2-nitropropan. Geschikte anorganische stikstofverbindingen zijn bijvoorbeeld stikstofoxiden, hydrazine, hydroxylamine of ammoniak. Geschikte stikstofoxiden hebben als algemene formule

NO_x, waarin x in het gebied van 1 tot 2 ligt, en omvatten bijvoorbeeld NO, N₂O₃ en N₂O₄.

De organische halogeniden en de organische of anorganische stikstofverbindingen zijn in het algemeen doeltreffend als reactiemodificator wanneer zij in lage totale concentraties worden gebruikt, bijvoorbeeld tot 0,01 mol% ten opzichte van de totale voeding. Het heeft de voorkeur dat het organische halogenide aanwezig is in een concentratie van ten hoogste 50×10^{-4} mol%, in het bijzonder ten hoogste 20×10^{-4} mol%, meer in het bijzonder ten hoogste 15×10^{-4} mol%, ten opzichte van de totale voeding, en bij voorkeur ten minste $0,2 \times 10^{-4}$ mol%, in het bijzonder ten minste $0,5 \times 10^{-4}$ mol%, meer in het bijzonder ten minste 1×10^{-4} mol%, ten opzichte van de totale voeding.

Behalve de olefine, de zuurstof en het organische halogenide kan de voeding bovendien een of meer verdere componenten omvatten, bijvoorbeeld verzadigde koolwaterstoffen als ballastgas, inerte gassen en kooldioxide. De een of meer verdere componenten kunnen afzonderlijk of samen met andere voedingscomponenten door een opening in stroomopwaarts uiteinde 220 van de procesmicrokanalen 210 of door eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280 worden toegevoerd.

De olefineconcentratie in de voeding kan binnen een breed gebied worden geselecteerd. Meestal is de olefineconcentratie in de voeding ten hoogste 80 mol% ten opzichte van de totale voeding. Bij voorkeur ligt zij in het gebied van 0,5 tot 70 mol%, in het bijzonder 1 tot 60 mol%, op dezelfde basis.

De zuurstofconcentratie in de voeding kan binnen een breed gebied worden geselecteerd. Meestal ligt de concentratie van toegepaste zuurstof in het gebied van 1 tot 15 mol%, vaker 2 tot 12 mol% van de totale voeding.

De verzadigde koolwaterstoffen omvatten bijvoorbeeld methaan en ethaan. Tenzij hier anders wordt vermeld, kunnen verzadigde koolwaterstoffen aanwezig zijn in een hoeveelheid tot 80 mol%, in het bijzonder tot 75 mol%, ten opzichte van de totale voeding, en dikwijls zijn zij aanwezig in een hoeveelheid van ten minste 30 mol%, vaker ten minste 40 mol%, op dezelfde basis.

In de voeding kan kooldioxide aanwezig zijn omdat dat wordt gevormd als een gevolg van ongewenste oxidatie van de olefine en/of het olefineoxide en het kan derhalve aanwezig zijn in voedingscomponenten die in een hercirculeringsstroom zitten. Kooldioxide heeft in het algemeen een nadelig effect op de

katalysatorwerkzaamheid. Met voordeel is de hoeveelheid kooldioxide bijvoorbeeld minder dan 2 mol%, bij voorkeur minder dan 1 mol% of ligt zij in het gebied van 0,2 tot 1 mol% van de totale voeding.

De inerte gassen omvatten bijvoorbeeld stikstof of argon. Tenzij hier anders
5 vermeld, kunnen de inerte gassen in de voeding aanwezig zijn in een concentratie van 30 tot 90 mol%, meestal 40 tot 80 mol%.

De epoxideringswerkwijze volgens deze uitvinding kan op basis van lucht of op basis van zuurstof zijn, zie "Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology", 3rd edition, Volume 9, 1980, pp. 445-447. Bij de werkwijze op basis van lucht wordt
10 lucht of met zuurstof verrijkte lucht als de bron van het oxideringsmiddel gebruikt, terwijl zuurstof van hoge zuiverheid (ten minste 95 mol%) bij de werkwijzen op basis van zuurstof als de bron van het oxideringsmiddel wordt gebruikt. Tegenwoordig zijn de meeste epoxideringsinstallaties op basis van zuurstof en bij de uitvoering van bepaalde uitvoeringsvormen van deze uitvinding heeft dit de voorkeur. Het is een
15 voordeel van andere uitvoeringsvormen van deze uitvinding dat lucht als de bron van het oxideringsmiddel aan het proces kan worden toegevoerd.

De epoxideringswerkwijze kan worden uitgevoerd met gebruikmaking van reactietemperaturen die uit een breed gebied zijn geselecteerd. Bij voorkeur ligt de reactietemperatuur in het gebied van 150-340°C, met meer voorkeur in het gebied van
20 180-325°C. Meestal kan de in de eerste warmtewisselingskanalen aanwezige warmteoverdrachtsvloeistof een temperatuur hebben die meestal 0,5 tot 10°C lager is dan de reactietemperatuur.

De epoxideringswerkwijze wordt bij voorkeur uitgevoerd bij een druk, zoals gemeten aan stroomopwaarts uiteinde 220 van de procesmicrokanalen 210, in het
25 gebied van 1000 tot 3500 kPa.

Het olefineoxide dat de sectie van de procesmicrokanalen die de epoxideringskatalysator bevatten, verlaat, zit in een reactiemengsel dat voorts niet in reactie getreden olefine, niet in reactie getreden zuurstof en andere reactieproducten zoals kooldioxide kan omvatten. Meestal ligt het gehalte aan olefineoxide in het
30 reactieproduct in het algemeen in het gebied van 1 tot 25 mol%, vaker 2 tot 20 mol%, in het bijzonder 2 tot 5 mol%.

De epoxideringswerkwijze kan het in reactie brengen omvatten van een voeding die de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 50 mol% ten opzichte

van de totale voeding omvat. In deze uitvoeringsvorm kunnen de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 80 mol% ten opzichte van de totale voeding in de voeding aanwezig zijn, in het bijzonder ten minste 90 mol%, meer in het bijzonder ten minste 95 mol%, en meestal tot 99,5 mol%, in het bijzonder tot 99 mol% ten opzichte van de totale voeding. De molaire verhouding van olefine tot zuurstof kan in het gebied van 3 tot 100 liggen, in het bijzonder 4 tot 50, meer in het bijzonder 5 tot 20. De verzadigde koolwaterstoffen en de inerte gassen kunnen nagenoeg afwezig zijn. Zoals hier gebezigd, betekent "nagenoeg afwezig" in deze context dat de hoeveelheid verzadigde koolwaterstoffen in de voeding ten hoogste 10 mol% is, in het bijzonder ten hoogste 5 mol%, meer in het bijzonder ten hoogste 2 mol% ten opzichte van de totale voeding en dat de hoeveelheid inerte gassen in de voeding ten hoogste 10 mol%, in het bijzonder ten hoogste 5 mol%, meer in het bijzonder ten hoogste 2 mol% ten opzichte van de totale voeding is. In deze specifieke uitvoeringsvorm kunnen zodanige procesomstandigheden worden toegepast dat de hoeveelheid olefineoxide in het epoxidatiereactiemengsel in het gebied van 4 tot 15 mol%, in het bijzonder 5 tot 12 mol%, bijvoorbeeld 6 tot 10 mol% ligt. Bij voorkeur wordt het epoxidatiereactiemengsel, waaronder het olefineoxide, afgeschrikt, zoals hierin beschreven.

De epoxideringswerkwijze kan toepassing van zodanige omstandigheden voor het in reactie brengen van de voeding omvatten dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is. De omzetting van de olefine kan ten minste 90 mol% zijn en de omzetting van zuurstof kan ten minste 90 mol% zijn. In het bijzonder kan de voeding in deze uitvoeringsvorm de olefine en zuurstof in een hoeveelheid van ten hoogste 50 mol% ten opzichte van de totale voeding omvatten en kan de voeding bovendien verzadigde koolwaterstoffen als ballastgas en inert gas omvatten. Meestal worden zodanige procesomstandigheden gebruikt dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 95 mol% is, in het bijzonder ten minste 98 mol%, meer in het bijzonder ten minste 99 mol%. Zoals hier gebezigd, is omzetting de omgezette hoeveelheid van een reactiestof ten opzichte van de hoeveelheid van de reactiestof in de voeding, uitgedrukt in mol%. Bij voorkeur is de omzetting van de olefine ten minste 95 mol%, in het bijzonder ten minste 98 mol%, meer in het bijzonder ten minste 99 mol% en kan zuurstof ten minste gedeeltelijk worden aangevuld. De aanwezigheid van een overmaat zuurstof ten opzichte van de olefine in de voeding helpt bij het bereiken van een hoge omzetting van de olefine. Bijvoorbeeld, de molaire

verhouding van zuurstof ten opzichte van de olefine in de voeding kan ten minste 1,01 zijn, meestal ten minste 1,05, in het bijzonder ten minste 1,1, meer in het bijzonder ten minste 1,2; en bijvoorbeeld ten hoogste 5, in het bijzonder ten hoogste 3, meer in het bijzonder ten hoogste 2. In deze uitvoeringsvorm wordt een relatief hoge selectiviteit bij
5 de omzetting van de olefine in het olefineoxide verkregen. Zoals hier gebezigd, is selectiviteit de hoeveelheid gevormd olefineoxide ten opzichte van de hoeveelheid omgezette olefine, uitgedrukt in mol%. Bovendien maakt een dergelijke hoge omzetting van de olefine het mogelijk dat de werkwijze economisch als een procédé met één passage kan worden uitgevoerd, wat inhoudt dat hercirculering van niet-omgezette
10 reactiestoffen niet wordt toegepast en dat lucht aan de epoxideringswerkwijze kan worden toegevoerd, wat in feite betekent dat de noodzaak van een luchtscheidingseenheid wordt weggenomen.

Bij de uitvoering van deze uitvinding kan het reactieproduct, waaronder het olefineoxide, door warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum worden
15 afgeschrikt. Het afschrikken kan in tweede sectie 340 van procesmicrokanalen 210 geschieden door warmtewisseling met warmtewisselingsfluidum dat in een of meer tweede warmtewisselingskanalen 350 aanwezig is. Meestal kan de temperatuur van het reactieproduct, waaronder het olefineoxide, worden verlaagd tot een temperatuur van ten hoogste 250°C, vaker ten hoogste 225°C, bij voorkeur in het gebied van 20 tot
20 200°C, met meer voorkeur 50 tot 190°C, in het bijzonder 80 tot 180°C. Het afschrikken kan resulteren in een temperatuurverlaging in het gebied van 50 tot 200°C, in het bijzonder 70 tot 160°C. Afschrikken maakt het mogelijk om de totale hoeveelheid van het olefineoxide en de zuurstof in de voeding van de epoxideringswerkwijze te verhogen en het ballastgas te elimineren of de hoeveelheid
25 ballastgas in de voeding van de epoxideringswerkwijze te verminderen. Ook is een gevolg van het afschrikken dat het geproduceerde olefineoxide een schoner product is, dat minder aldehyde en carbonzure onzuiverheden omvat.

In sommige uitvoeringsvormen kan de epoxideringswerkwijze omvatten
- in reactie brengen van een voeding die een olefine en zuurstof omvat in aanwezigheid
30 van een epoxideringskatalysator die in een eerste sectie 240 van een of meer procesmicrokanalen 210 van een microkanaalreactor zit teneinde daardoor een eerste mengsel te vormen dat het olefineoxide en kooldioxide omvat, zoals in het voorgaande beschreven,

- afschrikken van het eerste mengsel in tussensectie 440 van de een of meer stroomafwaarts van eerste sectie 240 geplaatste procesmicrokanalen 210 door warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum, op eenzelfde wijze als in het voorgaande beschreven, en

- 5 - omzetten van het afgeschrikte eerste mengsel in tweede sectie 340 van de een of meer stroomafwaarts van tussensectie 440 geplaatste procesmicrokanalen 210 onder vorming van een tweede mengsel dat het olefineoxide en een 1,2-carbonaat omvat.

De omzetting van het afgeschrikte eerste mengsel, dat het olefineoxide en kooldioxide omvat, onder vorming van het tweede mengsel, dat het olefineoxide en een 1,2-carbonaat omvat, behelst meestal het in reactie brengen van ten minste een deel van het in het eerste mengsel aanwezige olefineoxide met ten minste een deel van het in het eerste mengsel aanwezige kooldioxide onder vorming van het 1,2-carbonaat. In het eerste mengsel aanwezig kooldioxide is meestal kooldioxide dat mede bij de epoxidatiereactie is gevormd. De molaire hoeveelheid van het in het eerste mengsel aanwezige kooldioxide kan in het gebied van 0,01 tot 1 mol liggen, in het bijzonder 0,02 tot 0,8 mol, meer in het bijzonder 0,05 tot 0,6 mol% per mol van het in het eerste mengsel aanwezige olefineoxide. Geschikte katalysatoren voor de omzetting van het olefineoxide met kooldioxide kunnen bijvoorbeeld harsen zijn die quaternair-fosfoniumhalogenidegroepen of quaternair-ammoniumhalogenidegroepen op een matrix van styreen/divinylbenzeencopolymeer omvatten, waarbij het halogenide in het bijzonder chloride of bromide kan zijn. Dergelijke katalysatoren voor deze omzetting zijn bekend uit T. Nishikubo, A. Kameyama, J. Yamashita en M. Tomoi, Journal of Polymer Science, Pt. A. Polymer Chemist, 31, 939 - 947 (1993), dat hierin door verwijzing is opgenomen. Andere geschikte katalysatoren voor de omzetting van het olefineoxide met kooldioxide zijn bijvoorbeeld quaternair-fosfoniumhalogeniden, quaternair-ammoniumhalogeniden en bepaalde metaalhalogeniden. Een voorbeeld is methyltributylfosfoniumjodide. De temperatuur kan in het gebied van 30-200°C, in het bijzonder 50-150°C liggen. De druk kan in het gebied van 500 tot 3500 kPa liggen, zoals gemeten aan het hierboven beschreven tweede voedingskanaal. Meestal wordt ten minste 50 mol%, in het bijzonder ten minste 80 mol%, meer in het bijzonder ten minste 90 mol% van het kooldioxide omgezet, bijvoorbeeld ten minste 98 mol%, en in de praktijk van deze uitvinding wordt vaak tot 99,9 mol% omgezet.

Het epoxidatiereactiemengsel, waaronder het olefineoxide, kan aan het procesmicrokanaal en de microkanaalreactor worden onttrokken en op de gebruikelijke manier met gebruikmaking van conventionele methoden en conventionele apparatuur worden verwerkt. Een scheidingssysteem kan voor de
5 afsplitsing van het olefineoxide van eventueel niet-omgezette olefine, eventueel niet-omgezette zuurstof, eventueel ballastgas en kooldioxide zorgen. Een waterig extractiefluidum zoals water kan voor de scheiding van deze componenten worden gebruikt. Het verrijkte extractiefluidum dat het olefineoxide bevat, kan voor terugwinning van het olefineoxide verder worden verwerkt. Het geproduceerde
10 olefineoxide kan door bijvoorbeeld destillatie of extractie uit het verrijkte extractiefluidum worden teruggewonnen. Een mengsel dat eventueel niet-omgezette olefine, eventueel niet-omgezette zuurstof, eventueel ballastgas en kooldioxide omvat en dat arm is aan olefineoxide kan worden geëxtraheerd om kooldioxide ten minste gedeeltelijk te verwijderen. Het aldus verkregen kooldioxidearme mengsel kan weer
15 worden samengeperst, gedroogd en als voedingscomponent naar de epoxideringswerkwijze volgens deze uitvinding worden gehercirculeerd.

Het bij de epoxideringswerkwijze volgens de uitvinding geproduceerde olefineoxide kan met conventionele methoden in een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine worden omgezet.

20 De omzetting in het 1,2-diol of de 1,2-diolether kan bijvoorbeeld het in reactie brengen van het etheenoxide met water omvatten, in een thermisch proces of met gebruikmaking van een katalysator, die een zure of een basische katalysator kan zijn. Bijvoorbeeld, om overwegend het 1,2-diol en minder 1,2-diolether te maken, kan het olefineoxide in een vloeistoffasereactie in reactie worden gebracht met een
25 tienvoudige molaire overmaat water in aanwezigheid van een zure katalysator, bijvoorbeeld 0,5-1,0 gew.% zwavelzuur, op basis van het totale reactiemengsel, bij 50-70°C en 100 kPa abs. of in een gasfasereactie bij 130-240°C en 2000-4000 kPa abs., bij voorkeur in afwezigheid van een katalysator. De aanwezigheid van zo'n grote hoeveelheid water kan selectieve vorming van 1,2-diol bevorderen en kan als opvang
30 voor de reactie-exotherm fungeren en zo de reactietemperatuur helpen beheersen. Als het aandeel water wordt verlaagd, wordt het aandeel aan 1,2-diolethers in het reactiemengsel verhoudingsgewijs verhoogd. De aldus geproduceerde 1,2-diolethers kunnen een di-ether, tri-ether, tetra-ether of een volgende ether zijn. Ook kunnen 1,2-

diolethers worden bereid door het olefineoxide om te zetten met een alcohol, in het bijzonder een primaire alcohol zoals methanol of ethanol, door ten minste een deel van het water door de alcohol te vervangen.

Het olefineoxide kan in het corresponderende 1,2-carbonaat worden omgezet
5 door het met kooldioxide in reactie te brengen. Desgewenst kan een 1,2-diol worden bereid door het 1,2-carbonaat daarna in reactie te brengen met water of een alcohol onder vorming van het 1,2-diol. Voor toepasselijke methoden wordt verwezen naar US-A-6080897, dat hierin door verwijzing is opgenomen.

De omzetting in het alkanolamine kan het in reactie brengen van het
10 olefineoxide met een amine zoals ammoniak, een alkylamine of een dialkylamine omvatten. Watervrije of waterige ammoniak kan worden gebruikt. Watervrije ammoniak wordt meestal gebruikt om de productie van monoalkanolamine te bevorderen. Voor toepasselijke methoden voor de omzetting van het olefineoxide in het alkanolamine raadplege men bijvoorbeeld US-A-4845296, dat door verwijzing
15 hierin is opgenomen.

De 1,2-diolen en 1,2 diolethers, bijvoorbeeld ethyleenglycol, 1,2-propyleenglycol en ethyleenglycolethers, kunnen bij zeer uiteenlopende industriële toepassingen worden gebruikt, bijvoorbeeld op de terreinen voedsel, dranken, tabak, cosmetica, thermoplastische polymeren, hardbare harssystemen, detergenten,
20 warmteoverdrachtsystemen, enz. De 1,2-carbonaten, bijvoorbeeld ethyleencarbonaat, kunnen als verdunningsmiddel, in het bijzonder als oplosmiddel worden gebruikt. Ethanolaminen kunnen bijvoorbeeld worden gebruikt bij de behandeling (“sweetening”) van aardgas.

Tenzij anders vermeld, hebben de hier genoemde organische verbindingen,
25 bijvoorbeeld de olefinen, alcoholen, 1,2-diolen, 1,2-diolethers, 1,2-carbonaten, ethanolaminen en organische halogeniden, meestal ten hoogste 40 koolstofatomen, vaker ten hoogste 20 koolstofatomen, in het bijzonder ten hoogste 10 koolstofatomen, meer in het bijzonder ten hoogste 6 koolstofatomen. Meestal hebben de organische verbindingen ten minste een koolstofaatom. Zoals hier gedefinieerd, omvat het bereik
30 van de aantallen koolstofatomen (dat wil zeggen, koolstofgetal) mede het begin- en het eindgetal van de gespecificeerde grenzen.

Het volgende voorbeeld is bedoeld als illustratie van de voordelen van de onderhavige uitvinding en is niet bedoeld om de reikwijdte van de uitvinding ten onrechte te beperken.

Voorbeeld

5 Dit profetische voorbeeld beschrijft hoe een uitvoeringsvorm van deze uitvinding kan worden uitgevoerd.

Een microkanaalreactor omvat procesmicrokanalen, eerste warmtewisselingsmicrokanalen, tweede warmtewisselingsmicrokanalen en eerste voedingskanalen. De procesmicrokanalen omvatten een stroomopwaarts uiteinde, een
10 eerste sectie en een tweede sectie.

De eerste sectie is ingericht voor het uitwisselen van warmte met een warmtewisselingsfluidum dat in de eerste warmtewisselingsmicrokanalen stroomt. De tweede warmtewisselingsmicrokanalen omvat twee stellen tweede warmtewisselingsmicrokanalen die zijn ingericht voor het uitwisselen van warmte
15 met de tweede sectie, zodanig dat in het stroomafwaartse deel van de tweede sectie een lagere temperatuur wordt bereikt dan in het stroomopwaartse deel van de tweede sectie. Een voedingsmicrokanaal komt door openingen uit in de eerste sectie van het procesmicrokanaal. De openingen zijn in stroomafwaartse richting van de eerste sectie op ongeveer gelijke afstanden vanaf het stroomopwaartse uiteinde van het
20 microkanaal tot twee derde van de lengte van de eerste sectie geplaatst, en in de richting haaks daarop zijn de openingen op ongeveer gelijke afstanden over ongeveer de hele breedte van het procesmicrokanaal geplaatst.

De microkanaalreactor wordt volgens methoden die bekend zijn uit WO-A-2004/099113 en daarin aangehaalde literatuur geassembleerd. Na assemblage wordt in
25 de eerste sectie van de procesmicrokanalen een uit deeltjes bestaande epoxideringskatalysator geïnstalleerd. De uit deeltjes bestaande epoxideringskatalysator omvat zilver, renium, wolfram, cesium en lithium afgezet op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal, volgens de onderhavige uitvinding. Het uit deeltjes bestaande dragermateriaal is een α -alumina met een oppervlaktegrootte van
30 $1,5 \text{ m}^2/\text{g}$, een totaal porievolume van $0,4 \text{ ml/g}$ en een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van $0,2$ tot $10 \text{ }\mu\text{m}$ 95% van het totale porievolume vertegenwoordigen en dat poriën met een diameter in het gebied van $0,3$

tot 10 μm meer dan 92% van het porievolume in de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm vertegenwoordigen.

De eerste sectie wordt door warmtewisseling met het warmtewisselingsfluidum dat in het eerste warmtewisselingsmicrokanaal stroomt, 5 verhit tot 220°C terwijl etheen door een opening aan het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen wordt toegevoerd. Door de voedingskanalen wordt een mengsel van zuurstof en ethylchloride (3 volumedelen per miljoen) toegevoerd. De molaire verhouding zuurstof tot etheen is 1:1. Het mengsel dat de eerste sectie verlaat 10 en de tweede sectie van de procesmicrokanalen ingaat, wordt in de tweede sectie in twee stappen afgeschikt, in eerste instantie tot een temperatuur van 150°C en vervolgens tot een temperatuur van 80°C. De temperatuur en de voedingstoevoer van het etheen en de zuurstof worden zodanig aangepast dat de omzetting van etheen 97 mol% is. Vervolgens wordt de hoeveelheid ethylchloride in het mengsel van 15 zuurstof en ethylchloride aangepast om de selectiviteit voor etheenoxide te optimaliseren.

Het aan etheenoxide rijke product kan worden gezuiverd door kooldioxide en niet-omgezette zuurstof en etheen te verwijderen. Het gezuiverde etheenoxide kan met water worden omgezet om ethyleenglycol te verkrijgen.

CONCLUSIES

1. Methode ter bereiding van een uit deeltjes bestaande epoxideringskatalysator, welke methode omvat het afzetten van een metaal uit Groep 11 en een of meer versnellercomponenten op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal met een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 5 10 μm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen.
2. Methode volgens conclusie 1, omvattende het impregneren van het uit deeltjes bestaande dragermateriaal met een vloeistofmengsel dat een kationisch metaalaminecomplex uit Groep 11 en een reductiemiddel omvat.
3. Methode volgens conclusie 1 of 2, waarbij het dragermateriaal ten 10 minste 85 gew.% alumina, ten opzichte van het gewicht van de drager, omvat.
4. Methode volgens conclusie 3, waarbij het dragermateriaal tevens een of meer van silica, alkalimetaalcomponenten en aardalkalimetaalcomponenten omvat.
5. Methode volgens een der conclusies 1-4, waarbij de oppervlaktgrootte van het dragermateriaal ten minste 0,3 m^2/g en ten hoogste 10 m^2/g , ten opzichte van 15 het gewicht van de drager, is.
6. Methode volgens conclusie 5, waarbij de oppervlaktgrootte van het dragermateriaal ten minste 0,5 m^2/g , en ten hoogste 5 m^2/g , ten opzichte van het gewicht van de drager, is.
7. Methode volgens een der conclusies 1-6, waarbij de poriën met een 20 diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm meer dan 80% van het totale porievolume vertegenwoordigen.
8. Methode volgens conclusie 7, waarbij de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm meer dan 90% van het totale porievolume vertegenwoordigen.
- 25 9. Methode volgens een der conclusies 1-6, waarbij de poriegrootteverdeling zodanig is dat de poriën met een diameter in het gebied van 0,3 tot 10 μm meer dan 80% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

10. Methode volgens conclusie 9, waarbij de poriën met een diameter in het gebied van 0,3 tot 10 μm meer dan 90% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

5 11. Methode volgens een der conclusies 1-10, waarbij de poriegrootteverdeling zodanig is dat poriën met een diameter van minder dan 0,2 μm minder dan 10% van het totale porievolume vertegenwoordigen en dat poriën met een diameter van meer dan 10 μm minder dan 10% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

10 12. Methode volgens conclusie 11, waarbij de poriën met een diameter van minder dan 0,2 μm minder dan 5% van het totale porievolume vertegenwoordigen, en poriën met een diameter van meer dan 10 μm minder dan 5% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

13. Methode volgens een der conclusies 1-12, waarbij het dragermateriaal een uit deeltjes bestaand materiaal met een d_{50} in het gebied van 0,1 tot 100 μm is.

15 14. Methode volgens conclusie 13, waarbij het uit deeltjes bestaande materiaal een d_{50} in het gebied van 0,5 tot 50 μm heeft.

20 15. Uit deeltjes bestaande epoxideringskatalysator, welke katalysator een metaal uit Groep 11 en een of meer versnellercomponenten omvat die zijn afgezet op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal met een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 μm ten minste 70% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

16. Katalysator volgens conclusie 15, waarbij de katalysator het metaal uit Groep 11 in een hoeveelheid van 50 tot 500 g/kg, ten opzichte van het gewicht van de katalysator, omvat.

25 17. Katalysator volgens conclusie 16, waarbij de katalysator het metaal uit Groep 11 in een hoeveelheid van 100 tot 400 g/kg, ten opzichte van het gewicht van de katalysator, omvat.

18. Katalysator volgens een der conclusies 15-17, waarbij de katalysator zilver als het metaal uit Groep 11 omvat.

30 19. Katalysator volgens conclusie 18, waarbij de katalysator als versnellercomponent(en) een of meer elementen omvat die zijn gekozen uit renium, wolfram, molybdeen, chroom en mengsels daarvan, en tevens een of meer alkalimetalen die zijn gekozen uit lithium, kalium en cesium.

20. Katalysator volgens een der conclusies 15-19, waarbij de katalysator met een methode volgens een der conclusies 1-14 kan worden verkregen.

21. Werkwijze voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijze het in reactie brengen omvat van een voeding die de olefine en zuurstof omvat in aanwezigheid van een in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor geïnstalleerde epoxideringskatalysator, welke epoxideringskatalysator een katalysator volgens een der conclusies 15-20 is.

22. Werkwijze volgens conclusie 21, waarbij de voeding de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 50 mol%, ten opzichte van de totale voeding, omvat.

23. Werkwijze volgens conclusie 21 of 22, waarbij de werkwijze omvat: het in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat en het toepassen van zodanige omstandigheden dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is.

24. Werkwijze volgens een der conclusies 21-24, waarbij de werkwijze tevens het afschrikken van het reactieproduct in een stroomafwaartse sectie van de procesmicrokanalen omvat.

25. Werkwijze volgens conclusie 24, waarbij de werkwijze tevens het omzetten in de een of meer procesmicrokanalen van het afgeschrikte reactieproduct onder vorming van een mengsel dat het olefineoxide en een 1,2-carbonaat omvat.

26. Werkwijze ter bereiding van een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine, welke werkwijze omvat
- in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat in aanwezigheid van een in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor geïnstalleerde epoxideringskatalysator teneinde een olefineoxide te produceren, welke epoxideringskatalysator een katalysator volgens een der conclusies 15-20 is, en
- omzetten van het olefineoxide met water, een alcohol, kooldioxide of een amine teneinde het 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine te vormen.

27. Reactor die geschikt is voor de epoxidering van een olefine, welke reactor een microkanaalreactor is die een of meer procesmicrokanalen met daarin geïnstalleerd een epoxideringskatalysator omvat, welke epoxideringskatalysator een katalysator volgens een der conclusies 15-20 is.

28. Reactor volgens conclusie 27, die het metaal uit Groep 11 in een hoeveelheid in het gebied van 10 tot 500 kg/m³ reactorvolume omvat, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de microkanalen.

29. Reactor volgens conclusie 28, waarbij de hoeveelheid metaal uit Groep 11 in het gebied van 50 tot 400 kg/m³ reactorvolume ligt, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de microkanalen.

30. Reactor volgens een der conclusies 27-29, waarbij de katalysator een uit deeltjes bestaand materiaal is dat door een ASTM-zeef met openingen ter grootte van ten hoogste 50% van de kleinste dimensie van het procesmicrokanaal kan.

31. Reactor volgens conclusie 30, waarbij de katalysator een uit deeltjes bestaand materiaal is dat door een ASTM-zeef met openingen ter grootte van ten hoogste 30% van de kleinste dimensie van het procesmicrokanaal kan.

Fig.1

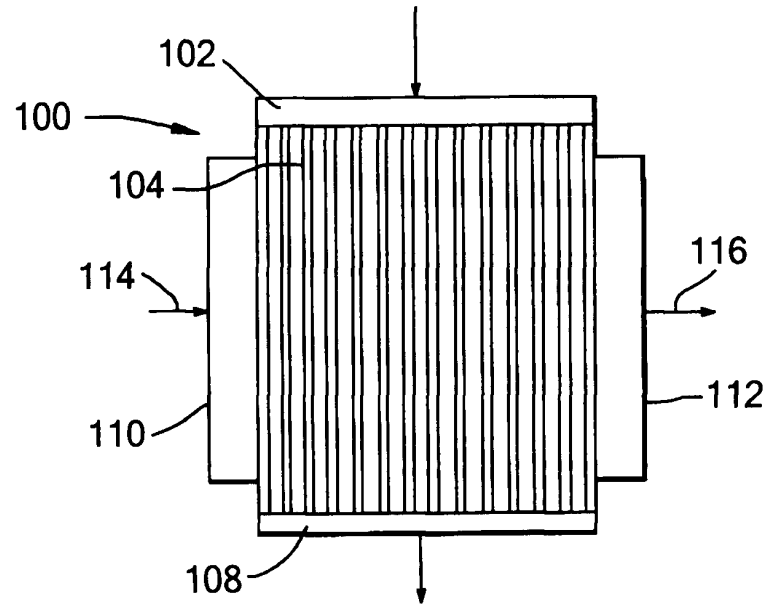
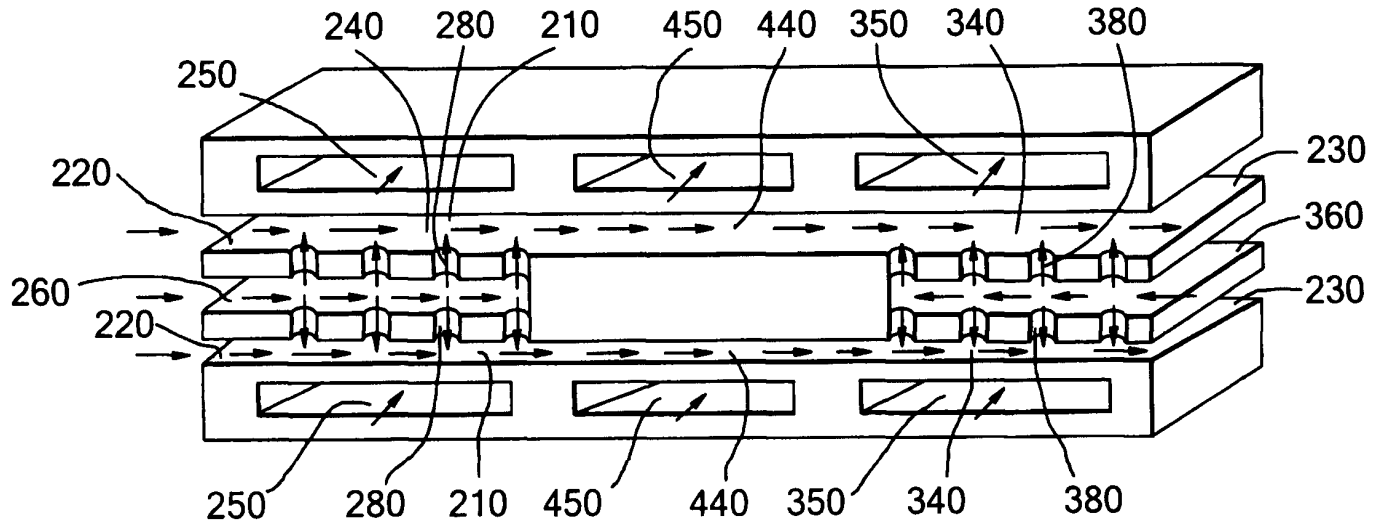


Fig.2



RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK

Van belang zijnde literatuur

Categorie ¹	Vermelding van literatuur met aanduiding, voor zover nodig, van speciaal van belang zijnde tekstgedeelten of figuren.	Van belang voor conclusie(s) Nr.:	International Patent Classification (IPC)
X	WO 03/072246 A (SHELL), 4 september 2003	1-20	C07D301/10
Y	* conclusies; blz. 2 regels 11-30 *	21-31	C07D303/04
	---		B01J19/00
X	WO 2004039790 A (SHELL), 13 mei 2004	1-20	B01J19/24
Y	* blz. 3 regel 27 – blz. 4 regel 17 *	21-31	Onderzochte gebieden van de techniek, gedefinieerd volgens IPC 8

X	WO 2004/002954 A (SHELL), 8 januari 2004	1-20	
Y	* blz. 5 regel 18 – blz. 6 regel 9 *	21-31	C07D
	---		B01J
X	EP 266015 A (SHELL), 4 mei 1988	1-20	
Y	* blz. 3 regels 37-42, figuren 3-8 *	21-31	

Y	WO 2004/099113 A (VELOCYS), 18 november 2004	21-31	Computerbestanden
	* blz.4 regel 30; conclusie 69 *		
	---		EPODOC
Y	US 2004/0076562 A (MANZANEC ET AL), 22 april 2004	21-31	WPI
	* par. [0011], [0012], [0100] *		

Indien gewijzigde conclusies zijn ingediend, heeft dit rapport betrekking op de conclusies ingediend op:

Omvang van het onderzoek: Volledig

Onderzochte conclusies: Alle

Niet (volledig) onderzochte conclusies met redenen: —

Datum waarop het onderzoek werd voltooid: 21 augustus 2007

Vooronderzoeker: Dr. M.W. de Lange

¹ Verklaring van de categorie-aanduiding: zie apart blad.

Categorie van de vermelde literatuur:

- X: op zichzelf van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- Y: in samenhang met andere geciteerde literatuur van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- A: niet tot de categorie X of Y behorende van belang zijnde stand van de techniek
- O: verwijzend naar niet op schrift gestelde stand van de techniek
- P: literatuur gepubliceerd tussen voorrang- en indieningsdatum
- T: niet tijdig gepubliceerde literatuur over theorie of principe ten grondslag liggend aan de uitvinding
- E: colliderende octrooiaanvraag
- D: in de aanvraag genoemd
- L: om andere redenen vermelde literatuur
- &: lid van dezelfde octrooifamilie; corresponderende literatuur

AANHANGSEL BEHORENDE BIJ HET RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK, UITGEVOERD IN OCTROOIAANVRAGE NR. 2000386

Het aanhangsel bevat een opgave van elders gepubliceerde octrooiaanvragen of octrooien (zogenaamde leden van dezelfde octrooifamilie), die overeenkomen met octrooigeschriften genoemd in het rapport.

De opgave is samengesteld aan de hand van gegevens uit het computerbestand van het Europees Octrooibureau per 22 augustus 2007.

De juistheid en volledigheid van deze opgave wordt noch door het Europees Octrooibureau, noch door Octrooicentrum Nederland gegarandeerd; de gegevens worden verstrekt voor informatiedoeleinden.

In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)		datum van publicatie
WO03072246	A	2003-09-04	CA2477069	A	2003-09-04
			AU2003217756	A	2003-09-09
			MXPA04008167	A	2004-11-26
			BR0307958	A	2004-12-21
			EP1511563	A	2005-03-09
			RU2004128458	A	2005-04-10
			JP2005518276T	T	2005-06-23
			CN1642637	A	2005-07-20
			ZA200406645	A	2006-05-31
WO2004039790	A	2004-05-13	AU2003284195	A	2004-05-25
WO2004002954	A	2004-01-08	CA2491523	A	2004-01-08
			AU2003243757	A	2004-01-19
			EP1517751	A	2005-03-30
			BR0312244	A	2005-04-12
			RU2005102076	A	2005-07-10
			CN1665594	A	2005-09-07
			MXPA04012745	A	2005-11-17
			JP2006504510T	T	2006-02-09

Algemene informatie over dit aanhangsel is gepubliceerd in de 'Official Journal' van het Europees Octrooibureau nr 12/82 blz 448 ev



In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)		datum van publicatie
EP0266015	AB	1988-05-04	PT86038	AB	1987-11-01
			IE60557	B	1994-07-27
			DK560087	A	1988-05-01
			FI874786	A	1988-05-01
			NO874528	A	1988-05-02
			AU8053987	A	1988-05-05
			JP63126552	A	1988-05-30
			BR8705810	A	1988-05-31
			MA21096	A	1988-07-01
			CN87107194	A	1988-07-27
			PL268522	A	1988-12-08
			YU197887	A	1988-12-31
			HU47046	A	1989-01-30
			NZ222342	A	1989-09-27
			AU592478B	B	1990-01-11
			YU180088	A	1990-02-28
			CS8707729	A	1990-06-13
			CS8806977	A	1990-09-12
			PH25304	A	1991-04-30
			IN169589	A	1991-11-16
			DE3774999D	D	1992-01-16
			IL84232	A	1992-06-21
			CA1304346	C	1992-06-30
			ES2028860T	T	1992-07-16
			SG126392G	G	1993-02-19
			GR3003662T	T	1993-03-16
			SU1831369	A	1993-07-30
			MX170627	B	1993-08-31
			EG18719	A	1993-12-30
			TR26675	A	1994-07-05
			BG60854	B	1996-05-31
			KR960011047B	B	1996-08-16
			DZ1139	A	2004-09-13

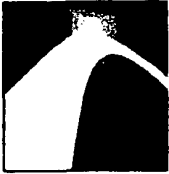
Algemene informatie over dit aanhangsel is gepubliceerd in de 'Official Journal' van het Europees Octrooibureau nr 12/82 blz 448 ev



In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)		datum van publicatie
WO2004099113	A	2004-11-18	US2004220434	A	2004-11-04
			CA2523704	A	2004-11-18
			EP1626948	A	2006-02-22
			KR20060026016	A	2006-03-22
			BRPI0410039	A	2006-04-25
			MXPA05011732	A	2006-07-06
			JP2006525334T	T	2006-11-09
<hr/>					
US2004076562	A	2004-04-22	CA2503194	A	2004-05-06
			WO2004037418	A	2004-05-06
			AU2003301664	A	2004-05-13
			EP1556165	A	2005-07-27
			JP2006505387T	T	2006-02-16

Algemene informatie over dit aanhangsel is gepubliceerd in de 'Official Journal' van het Europees Octrooibureau nr 12/82 blz 448 ev





OCTROOICENTRUM NEDERLAND

SCHRIFTELIJKE OPINIE

	INDIENINGSDATUM 20 december 2006	VOORRANGSDATUM 22 december 2005	AANVRAAGNUMMER 2000386
CLASSIFICATIE C07D301/10, C07D303/04, B01J19/00, B01J19/24			
AANVRAGER Shell Internationale Research Maatschappij B.V. te Den Haag			

Deze schriftelijke opinie bevat een toelichting op de volgende onderdelen:

- Onderdeel I Basis van de schriftelijke opinie
- Onderdeel II Voorrang
- Onderdeel III Vaststelling nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid niet mogelijk
- Onderdeel IV De aanvraag heeft betrekking op meer dan één uitvinding
- Onderdeel V Gemotiveerde verklaring ten aanzien van nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid
- Onderdeel VI Andere geciteerde documenten
- Onderdeel VII Overige gebreken
- Onderdeel VIII Overige opmerkingen

	DE BEVOEGDE AMBTENAAR Dr. M.W. de Lange
--	--

Schriftelijke Opinie

Aanvraag nr.:2000386

Onderdeel I Basis van de schriftelijke opinie

Deze schriftelijke opinie is opgesteld op basis van de meest recente conclusies ingediend voor aanvang van het onderzoek.

Onderdeel II Voorrang

Deze schriftelijke opinie is opgesteld onder de aanname dat eventueel ingeroepen voorrang geldig is, tenzij hieronder anders is aangegeven. Controleren van de voorrang maakt geen deel uit van het reguliere onderzoek naar de stand van de techniek.

Onderdeel V Gemotiveerde verklaring ten aanzien van nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid

1. Verklaring

Nieuwheid	Ja: Conclusies
	Nee: Conclusies 1-20
Inventiviteit	Ja: Conclusies
	Nee: Conclusies 21-31
Industriële toepasbaarheid	Ja: Conclusies 1-31
	Nee: Conclusies

2. Literatuur en toelichting

In het rapport van het onderzoek naar de stand van de techniek worden de volgende documenten genoemd:

- WO 03072246 A (D1)
- WO 2004039790 A (D2)
- WO 2004002954 A (D3)
- EP 266015 A (D4)
- WO 2004/099113 A (D5)
- US 2004/076562 A (D6)

Uit D1 tot en met D4 zijn gepromoteerde (zilver)katalysatoren bekend voor de epoxidering van etheen met zuurstof met een drager met de specifieke poriegrootteverdeling zoals is vermeld in conclusie 15 van de onderhavige aanvraag, alsmede werkwijzen voor de bereiding van deze katalysatoren door afzetten van zilver en promotor(en) op zulk een dragermateriaal, zoals omschreven in conclusie 1 van de aanvraag (zie bijv. D1 claim 1 en 9). Deze conclusies, en conclusie 20 zijn dus niet nieuw.

Ook de materie uit de volgconclusies 2-6, 13, 14, 16-19 wordt bekend geacht uit D1, D2, D3 of D4. De materie van conclusies 7 t/m 12 lijkt ook bekend uit D1. Voor zover de materie uit deze conclusies bekend is uit D1 mist deze materie nieuwheid, voor zover op zichzelf bekend uit D2, D3 of D4 ontbreekt inventiviteit.

Bovendien geldt dat, indien deze materie moet worden gezien als nadere keuzes uit de materie bekend uit D2, D3 of D4, deze keuzes in de beschrijving van de aanvraag niet verder worden

Schriftelijke Opinie

Aanvraag nr.:2000386

gemotiveerd, zodat er vooralsnog geen sprake is van een verrassend technisch voordeel en daarmee inventiviteit.

Uit D5 en D6 zijn microkanaalreactoren bekend voor de gekatalyseerde epoxidatie van etheen met zuurstof naar ethyleenoxide. In deze documenten komt duidelijk naar voren wat de voordelen zijn van de toepassing van microkanaalreactoren in plaats van reguliere reactoren, zoals het voorkomen van de vorming van "hot spots" en een verbetering van de selectiviteit.

De vakman, bekend met D1, D2, D3 of D4 in combinatie met D5 of D6, zal zonder inventieve arbeid inzien dat het zinvol is bij de in D1, D2, D3 of D4 geopenbaarde werkwijzen gebruik te maken van de in D5 of D6 geopenbaarde microkanaalreactoren in plaats van reguliere buisreactoren om zo te profiteren van de genoemde aanzienlijke voordelen van de microkanaalreactoren.

Onafhankelijke conclusies 21 en 27 missen daarom inventiviteit.

De resterende volgconclusies hebben betrekking op gebruikelijke maatregelen voor het uitvoeren van de reacties of maatregelen voor het inrichten van de reactor die ofwel bekend zijn uit de stand van de techniek, ofwel op een voor de hand liggende wijze daaruit voortvloeien ofwel algemeen gebruikelijk zijn. Deze conclusies vallen met de onafhankelijke conclusies waarnaar ze verwijzen.