



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 10 2006 060 353 A1** 2007.07.12

(12)

Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2006 060 353.2**

(22) Anmeldetag: **20.12.2006**

(43) Offenlegungstag: **12.07.2007**

(51) Int Cl.⁸: **C07C 29/10** (2006.01)

C07C 31/20 (2006.01)

C07D 301/10 (2006.01)

C07D 303/04 (2006.01)

C07D 317/26 (2006.01)

B01J 19/00 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

60/752,974 **22.12.2005** **US**

(71) Anmelder:

**Shell Internationale Research Maatschappij B.V.,
Den Haag, NL**

(74) Vertreter:

**WUESTHOFF & WUESTHOFF Patent- und
Rechtsanwälte, 81541 München**

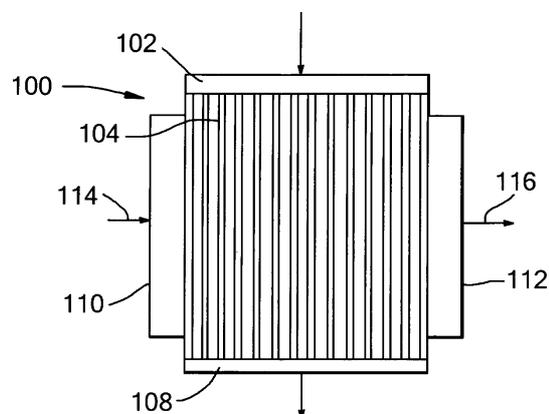
(72) Erfinder:

**Bolk, Jeroen Willem, Amsterdam, NL; Bos,
Aloisius Nicolaas Renée, Amsterdam, NL; Evans,
Wayne Errol, Richmond, Tex., US; Lockemeyer,
John Robert, Sugar Land, Tex., US; McAllister,
John Michael, Houston, Tex., US; Rekers,
Dominicus Maria, Amsterdam, NL; Slapak,
Mathias Jozef Paul, Amsterdam, NL**

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

(54) Bezeichnung: **Verfahren zur Herstellung einer Chemikalie, die von einem Olefinoxid ableitbar ist, und Reaktor, der für solch ein Verfahren geeignet ist**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein verbessertes Epoxidierungsverfahren und einen verbesserten Epoxidierungsreaktor. Die vorliegende Erfindung macht von einem Reaktor Gebrauch, der eine Mehrzahl von Mikrokanälen umfasst. Solche Prozessmikrokanäle können so angepasst sein, dass die Epoxidierung und wahlweise andere Prozesse in den Mikrokanälen stattfinden können, und dass sie in einer Wärmeaustauschbeziehung mit Kanälen stehen, die angepasst sind, ein Wärmeaustauschfluid zu enthalten. Ein Reaktor, der solche Prozessmikrokanäle umfasst, wird als "Mikrokanalreaktor" bezeichnet. Die Erfindung stellt ein zuverlässiges Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins und ein Verfahren für die Herstellung einer Chemikalie, die von einem Olefinoxid ableitbar ist, bereit. Die Erfindung stellt auch einen Mikrokanalreaktor bereit.



Beschreibung

Gebiet der Erfindung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Chemikalie, die von einem Olefinoxid ableitbar ist. Insbesondere kann solch eine Chemikalie ein 1,2-Diol sein. Die Erfindung betrifft auch einen Reaktor, der geeignet ist, in solch einem Verfahren verwendet zu werden.

Hintergrund der Erfindung

[0002] Ethylenoxid und andere Olefinoxide sind wichtige industrielle Chemikalien, die als Ausgangsmaterial für die Herstellung solcher Chemikalien wie Ethylenglykol, Propylenglykol, Ethylenglykolethern, Ethylencarbonat, Ethanolaminen und Detergenzien verwendet werden. Ein Verfahren zur Herstellung eines Olefinoxids besteht in der Olefinepoxidierung, das heißt der katalysierten partiellen Oxidation des Olefins mit Sauerstoff, wobei das Olefinoxid erhalten wird. Das so hergestellte Olefinoxid kann mit Wasser, einem Alkohol, Kohlendioxid oder einem Amin zur Reaktion gebracht werden, um ein 1,2-Diol, einen 1,2-Diolether, ein 1,2-Carbonat oder ein Alkanolamin herzustellen. Eine solche Herstellung eines 1,2-Diols, 1,2-Diolethers, 1,2-Carbonats oder Alkanolamins wird im Allgemeinen getrennt von der Herstellung des Olefinoxids durchgeführt, in jedem Fall werden die zwei Prozesse normalerweise in getrennten Reaktoren durchgeführt.

[0003] Bei der Olefinepoxidierung wird ein Zustrom, der das Olefin und Sauerstoff enthält, über ein Katalysatorbett geleitet, das sich innerhalb eines Reaktionsbereichs befindet, der bei bestimmten Reaktionsbedingungen gehalten wird. Ein kommerzieller Epoxidierungsreaktor hat im Allgemeinen die Form eines ummantelten Rohrbündelwärmeaustauschers, in dem eine Mehrzahl von im Wesentlichen parallel verlängerten, relativ engen Rohren mit Katalysator-Formteilchen gefüllt ist, um ein Festbett zu bilden, und in dem der Mantel ein Kühlmittel enthält. Unabhängig von der Art des verwendeten Epoxidierungskatalysators liegt der innere Rohrdurchmesser bei kommerziellem Betrieb häufig im Bereich von 20 bis 40 mm, und die Anzahl an Rohren pro Reaktor kann in den Tausenden liegen, beispielsweise bei bis zu 12000.

[0004] Eine Olefinepoxidierung wird im Allgemeinen bei relativ geringem Olefinumsatz und Sauerstoffumsatz durchgeführt. Normalerweise erfolgt eine Rückführung von nicht umgesetztem Olefin und Sauerstoff, um die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens zu erhöhen. Im Allgemeinen umfasst der Zustrom zusätzlich eine große Menge an sogenanntem Ballastgas, um einen Betrieb außerhalb der Explosionsgrenzen zu erleichtern. Ballastgas umfasst gesättigte Kohlen-

wasserstoffe, insbesondere Methan und Ethan. Infolge dessen ist die Rückführung im Allgemeinen mit der Handhabung großer Mengen an Prozessströmen verbunden, die das nicht umgesetzte Olefin, nicht umgesetzten Sauerstoff und das Ballastgas umfassen. Die Verarbeitung des Rückführungsstroms, wie sie normalerweise in einer Olefinepoxidierungsanlage erfolgt, ist außerdem ziemlich komplex, da sie mit einer Rückgewinnung von Olefinoxid, einer Entfernung von Kohlendioxid, einer Entfernung von Wasser und einem Wiederunterdrucksetzen verbunden ist. Die Verwendung von Ballastgas trägt nicht nur zu den Kosten der Verarbeitung bei, sie reduziert auch die Reaktionsgeschwindigkeit der Epoxidierung.

[0005] Der Epoxidierungskatalysator enthält im Allgemeinen die katalytisch aktive Spezies, üblicherweise ein Metall der Gruppe 11 (insbesondere Silber) und Promotorkomponenten auf einem Trägerformmaterial. Trägerformmaterialien werden im Allgemeinen sorgfältig ausgewählt, um den Erfordernissen hinsichtlich beispielsweise der Festigkeit und Widerstandsfähigkeit gegen Abnutzung, der Oberfläche und der Porosität zu genügen. Die Trägerformmaterialien werden im Allgemeinen dadurch hergestellt, dass ausgewählte anorganische Materialien soweit gesintert werden, dass sie die gewünschten Eigenschaften besitzen.

[0006] Während der Epoxidierung unterliegt der Katalysator einem Rückgang der Leistungsfähigkeit, der sich in einem Verlust an Aktivität des Katalysators und an Selektivität bei der Bildung des gewünschten Olefinoxids zeigt. Als Reaktion auf den Verlust an Aktivität kann die Reaktionstemperatur der Epoxidierung erhöht werden, so dass die Herstellungsgeschwindigkeit des Olefinoxids gehalten wird. Der Betrieb kommerzieller Reaktoren ist normalerweise hinsichtlich der Reaktionstemperatur begrenzt und wenn das maßgebliche Temperaturlimit erreicht worden ist, muss die Herstellung des Olefinoxids für einen Austausch der vorhandenen Ladung an Epoxidierungskatalysator durch eine frische Ladung unterbrochen werden.

[0007] Es wäre von großem Wert, wenn verbesserte Epoxidierungsverfahren und verbesserte Epoxidierungsreaktoren verfügbar werden würden.

Zusammenfassung der Erfindung

[0008] Die vorliegende Erfindung stellt solche verbesserte Epoxidierungsverfahren und verbesserte Epoxidierungsreaktoren bereit. Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung machen von einem Reaktor Gebrauch, der eine Mehrzahl an Mikrokanälen (im Folgenden "Prozessmikrokanäle") umfasst. Die Prozessmikrokanäle können so angepasst sein, dass die Epoxidierung und wahlweise andere Prozesse in den Mikrokanälen stattfinden können, und dass sie in

einer Wärmeaustauschbeziehung mit Kanälen stehen, die angepasst sind, ein Wärmeaustauschfluid zu enthalten (im Folgenden "Wärmeaustauschkanäle"). Ein Reaktor, der Prozessmikrokanäle umfasst, wird hier mit dem Ausdruck "Mikrokanalreaktor" bezeichnet. Der Ausdruck "Gruppe 11", wie er hier verwendet wird, bezieht sich auf die Gruppe 11 des Periodensystems der Elemente.

[0009] In einer Ausführungsform stellt die Erfindung ein Verfahren für die Herstellung eines 1,2-Diols bereit, wobei das Verfahren umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, der sich in einem ersten Abschnitt von einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors befindet, um ein Olefinoxid zu bilden,
- die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid in einem zweiten Abschnitt von einem oder mehreren Prozessmikrokanälen, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt, um ein 1,2-Carbonat zu bilden, und
- die Umsetzung des 1,2-Carbonats mit Wasser oder einem Alkohol in einem dritten Abschnitt von einem oder mehreren Prozessmikrokanälen, der stromabwärts von dem zweiten Abschnitt liegt, um das 1,2-Diol zu bilden.

[0010] In einer anderen Ausführungsform stellt die Erfindung ein Verfahren für die Herstellung eines 1,2-Diols bereit, wobei das Verfahren die Umsetzung von 1,2-Carbonat mit Wasser oder einem Alkohol in einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors umfasst, um das 1,2-Diol zu bilden.

[0011] In einer anderen Ausführungsform stellt die Erfindung einen Reaktor bereit, der zur Herstellung eines 1,2-Diols geeignet ist, wobei der Reaktor ein Mikrokanalreaktor ist, umfassend einen oder mehrere Prozessmikrokanäle, welche

- ein stromaufwärts gelegenes Ende,
- ein stromabwärts gelegenes Ende,
- einen ersten Abschnitt, der angepasst ist, einen Epoxidierungskatalysator zu enthalten, einen Zustrom, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, aufzunehmen und die Umsetzung von mindestens einem Teil des Zustroms zu bewirken, um in Gegenwart des Epoxidierungskatalysators ein Olefinoxid zu bilden,
- einen zweiten Abschnitt, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt und der angepasst ist, das Olefinoxid aufzunehmen, Kohlendioxid aufzunehmen und die Umsetzung des Olefinoxids zu bewirken, um ein 1,2-Carbonat zu bilden, und
- einen dritten Abschnitt, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt, der dazu angepasst ist, das 1,2-Carbonat aufzunehmen, Wasser oder einen Alkohol aufzunehmen und die Umsetzung

des 1,2-Carbonats zu bewirken, um ein 1,2-Diol zu bilden, umfassen.

[0012] Der Reaktor der letztgenannten Ausführungsform kann zusätzlich einen oder mehrere erste Wärmeaustauschkanäle umfassen, die dazu angepasst sind, Wärme mit dem ersten Abschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen, einen oder mehrere zweite Wärmeaustauschkanäle, die dazu angepasst sind, Wärme mit dem zweiten Abschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen, und einen oder mehrere dritte Wärmeaustauschkanäle, die dazu angepasst sind, Wärme mit dem dritten Abschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen.

[0013] Weiterhin können der eine oder die mehreren Prozessmikrokanäle zusätzlich einen ersten Zwischenabschnitt stromabwärts von dem ersten Abschnitt und stromaufwärts von dem zweiten Abschnitt umfassen, wobei der erste Zwischenabschnitt dazu angepasst ist, die Temperatur des Olefinoxids zu regulieren, und einen zweiten Zwischenabschnitt stromabwärts von dem zweiten Abschnitt und stromaufwärts von dem dritten Abschnitt, wobei der zweite Zwischenabschnitt dazu angepasst ist, die Temperatur des 1,2-Carbonats zu regulieren.

[0014] Insbesondere kann der Reaktor zusätzlich einen oder mehrere vierte Wärmeaustauschkanäle umfassen, die dazu angepasst sind, Wärme mit dem ersten Zwischenabschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen, und einen oder mehrere fünfte Wärmeaustauschkanäle, die dazu angepasst sind, Wärme mit dem zweiten Zwischenabschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen.

Beschreibung der Abbildungen

[0015] [Fig. 1](#) zeigt eine schematische Darstellung eines Mikrokanalreaktors und seiner Hauptbestandteile.

[0016] [Fig. 2](#) zeigt eine schematische Darstellung eines typischen Beispiels einer sich wiederholenden Einheit, die Prozessmikrokanäle und Wärmeaustauschkanäle umfasst, sowie deren Betrieb, wenn sie zur Ausführung der Erfindung verwendet wird. Ein Mikrokanalreaktor dieser Erfindung kann eine Mehrzahl solcher sich wiederholender Einheiten umfassen.

Detaillierte Beschreibung der Erfindung

[0017] Die Verwendung eines Mikrokanalreaktors gemäß dieser Erfindung führt zu einem oder mehreren der folgenden Vorteile:

- Der Epoxidierungskatalysator bedarf nicht unbedingt der Verwendung eines geformten Trägers, was ermöglichen kann, dass auf einen Schritt zur Herstellung eines geformten Trägers

verzichtet werden kann.

– Das Abschrecken des Olefinoxids innerhalb des Prozessmikrokanals ermöglicht den Betrieb unter Bedingungen, die innerhalb der Explosionsgrenzen liegen können, wenn diese Bedingungen in einem herkömmlichen Rohrbündelwärmeaustauschreaktor angewendet würden. Solche Bedingungen können dadurch erreicht werden, dass eine sauerstoffreiche Komponente des Zustroms mit einer olefinreichen Komponente des Zustroms innerhalb der Prozessmikrokanäle in Kontakt gebracht wird, wobei die sauerstoffreiche Komponente des Zustroms und die olefinreiche Komponente des Zustroms normalerweise außerhalb der Explosionsgrenzen liegen. Das Abschrecken innerhalb der Prozessmikrokanäle verringert auch die Bildung von Nebenprodukten wie etwa Aldehyden und Carbonsäuren.

– Die Epoxidierung innerhalb der Prozessmikrokanäle kann zweckmäßig bei Bedingungen hoher Gesamtkonzentrationen von dem Olefin, Sauerstoff und dem Olefinoxid durchgeführt werden, was zu einer höheren Epoxidierungsgeschwindigkeit und/oder einer geringeren Reaktionstemperatur der Epoxidierung führen kann. Die Verringerung der Reaktionstemperatur der Epoxidierung kann zu einer verbesserten Selektivität und einer verlängerten Lebensdauer des Katalysators führen. Die Anwendung von Bedingungen hoher Gesamtkonzentrationen von dem Olefin, Sauerstoff und dem Olefinoxid kann ebenfalls ermöglichen, das auf die Verwendung von Ballastgas verzichtet werden kann, was eine effizientere Verarbeitung und eine Verringerung der Kosten der Rückgewinnung bewirkt.

– Die in Prozessmikrokanälen durchgeführte Epoxidierung kann bei einem hohen Umsetzungsgrad von Sauerstoff oder des Olefinoxids betrieben werden. Insbesondere wenn das Verfahren bei einem hohen Olefinumsetzungsgrad durchgeführt wird, ist es vorteilhaft, das Epoxidierungsverfahren im Durchlaufbetrieb durchzuführen, was bedeutet, dass kein Rückführungsstrom eingesetzt wird. Zudem ist es vorteilhaft, dass in solch einem Fall den Prozessmikrokanälen Luft zugeführt werden kann, anstelle von Sauerstoff, der aus der Luft abgetrennt wurde, wodurch ermöglicht wird, dass auf eine Lufttrennungseinheit verzichtet werden kann.

– Die Durchführung der Olefinepoxidierung innerhalb der Prozessmikrokanäle ermöglicht die Umsetzung des gebildeten Olefinoxids zum 1,2-Diol innerhalb derselben Prozessmikrokanäle. Dies kann ermöglichen, dass auf zusätzliche Reaktoren für solch eine weitere Umsetzung verzichtet werden kann. Es kann ebenfalls ermöglichen, dass auf eine Einheit zur Rückgewinnung des Olefinoxids und/oder eine Einheit zur Entfernung von Kohlendioxid verzichtet werden kann, und der Bedarf an Wärmeaustauschanlagen kann da-

durch verringert werden. Somit kann die Komplexität der zusätzlichen Verarbeitung, wie sie herkömmlicherweise in einer Produktionsanlage erfolgt, beispielsweise zur Rückgewinnung des Produkts, verringert werden. Die Umsetzung des Olefinoxids innerhalb der Prozessmikrokanäle verringert zudem die Bildung von Nebenprodukten wie etwa Aldehyden und Carbonsäuren.

[0018] Mikrokanalreaktoren, die zur Verwendung in dieser Erfindung geeignet sind, und deren Betrieb sind in WO-A-2004/099113, WO-A-01/12312, WO-01/54812, 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 und US-A-6192596 beschrieben worden, auf die hier Bezug genommen und deren Inhalt hier einbezogen wird. Verfahren, durch welche der Mikrokanalreaktor hergestellt, mit Katalysator beladen und betrieben werden kann, wie sie in diesen Quellen beschrieben sind, können im Allgemeinen bei der Ausführung der vorliegenden Erfindung anwendbar sein.

[0019] Bezugnehmend auf **Fig. 1** kann der Mikrokanalreaktor **100** einen Prozess-Kopfbereich **102**, eine Mehrzahl an Prozessmikrokanälen **104** und einen Prozess-Fußbereich **108** umfassen. Der Prozess-Kopfbereich **102** stellt einen Durchgang für Fluid bereit, um in die Prozessmikrokanäle **104** hinein zu fließen. Der Prozess-Fußbereich **108** stellt einen Durchgang für Fluid bereit, um aus den Prozessmikrokanälen **104** heraus zu fließen.

[0020] Die Anzahl an Prozessmikrokanälen, die in einem Mikrokanalreaktor enthalten sind, kann sehr groß sein. Zum Beispiel kann die Anzahl bis zu 10^5 oder sogar bis zu 10^6 oder bis zu 2×10^6 betragen. Normalerweise kann die Anzahl an Prozessmikrokanälen mindestens 10 oder mindestens 100 oder sogar mindestens 1000 betragen.

[0021] Die Prozessmikrokanäle sind üblicherweise parallel angeordnet, beispielsweise können sie eine Anordnung planarer Mikrokanäle bilden. Die Prozessmikrokanäle können mindestens eine innere Ausdehnung in Höhe oder Breite von bis zu 15 mm, beispielsweise von 0,05 bis 10 mm, insbesondere von 0,1 bis 5 mm, noch spezieller von 0,5 bis 2 mm haben. Die andere innere Ausdehnung in Höhe oder Breite kann beispielsweise 0,1 bis 100 cm, insbesondere 0,2 bis 75 cm, noch spezieller 0,3 bis 50 cm betragen. Die Länge der Prozessmikrokanäle kann beispielsweise 1 bis 500 cm, insbesondere 2 bis 300 cm, noch spezieller 3 bis 200 cm oder 5 bis 100 cm betragen.

[0022] Der Mikrokanalreaktor **100** umfasst zusätzlich Wärmeaustauschkanäle (nicht in **Fig. 1** dargestellt), die in Wärmeaustauschkontakt mit den Pro-

zessmikrokanälen **104** stehen. Die Wärmeaustauschkanäle können ebenfalls Mikrokanäle sein. Der Mikrokanalreaktor ist so angepasst, dass Wärmeaustauschfluid von dem Wärmeaustausch-Kopfbereich **110** durch die Wärmeaustauschkanäle zum Wärmeaustausch-Fußbereich **112** fließen kann. Die Wärmeaustauschkanäle können so ausgerichtet sein, dass sie für einen Fluss in die gleiche Richtung, in Gegenrichtung oder, vorzugsweise, in Querstromrichtung bezüglich eines Flusses in den Prozessmikrokanälen **104** sorgen. Die Querstromrichtung ist so, wie durch die Pfeile **114** und **116** angedeutet wird.

[0023] Die Wärmeaustauschkanäle können mindestens eine innere Ausdehnung in Höhe oder Breite von bis zu 15 mm, beispielsweise von 0,05 bis 10 mm, insbesondere von 0,1 bis 5 mm, noch spezieller von 0,5 bis 2 mm haben. Die andere innere Ausdehnung in Höhe oder Breite kann beispielsweise 0,1 bis 100 cm, insbesondere 0,2 bis 75 cm, noch spezieller 0,3 bis 50 cm betragen. Die Länge der Wärmeaustauschkanäle kann beispielsweise 1 bis 500 cm, insbesondere 2 bis 300 cm, noch spezieller 3 bis 200 cm oder 5 bis 100 cm betragen.

[0024] Der Abstand zwischen einem Prozessmikrokanal **104** und dem nächsten benachbarten Wärmeaustauschkanal kann im Bereich von 0,05 mm bis 5 mm, insbesondere von 0,2 bis 2 mm liegen.

[0025] In einigen Ausführungsformen dieser Erfindung sind erste Wärmeaustauschkanäle und zweite Wärmeaustauschkanäle vorgesehen, oder erste Wärmeaustauschkanäle, zweite Wärmeaustauschkanäle und dritte Wärmeaustauschkanäle, oder sogar bis zu fünften Wärmeaustauschkanälen, oder sogar weitere Wärmeaustauschkanäle. Somit gibt es in solchen Fällen eine Mehrzahl an Sätzen von Wärmeaustauschkanälen und dementsprechend kann es eine Mehrzahl von Wärmeaustausch-Kopfbereichen **110** und Wärmeaustausch-Fußbereichen **112** geben, wobei die Sätze von Wärmeaustauschkanälen angepasst sein können, Wärmeaustauschfluid von einem Wärmeaustausch-Kopfbereich **110** aufzunehmen und Wärmeaustauschfluid in einen Wärmeaustausch-Fußbereich **112** zu leiten.

[0026] Der Prozess-Kopfbereich **102**, der Prozess-Fußbereich **108**, der Wärmeaustausch-Kopfbereich **110**, der Wärmeaustausch-Fußbereich **112**, die Prozessmikrokanäle **104** und die Wärmeaustauschkanäle können unabhängig voneinander aus jeglichem Baustoff gefertigt sein, der ausreichend Festigkeit, Formstabilität und Wärmeleiteigenschaften bietet, um den Betrieb der Verfahren gemäß dieser Erfindung zu ermöglichen. Geeignete Baustoffe umfassen beispielsweise Stahl (zum Beispiel Edelstahl und Kohlenstoffstahl), Monel, Titan, Kupfer, Glas und Polymerzusammensetzungen. Die Art des Wärmeaustauschfluids ist für die vorliegende Erfindung nicht

entscheidend, und das Wärmeaustauschfluid kann aus einer großen Vielzahl ausgewählt werden. Geeignete Wärmeaustauschfluide umfassen Dampf, Wasser, Luft und Öle. In Ausführungsformen der Erfindung, die eine Mehrzahl an Sätzen von Wärmeaustauschkanälen umfassen, können diese Sätze von Wärmeaustauschkanälen mit verschiedenen Wärmeaustauschfluiden oder mit Wärmeaustauschfluiden, die verschiedene Temperaturen haben, betrieben werden.

[0027] Ein Mikrokanalreaktor gemäß der Erfindung kann eine Mehrzahl von sich wiederholenden Einheiten umfassen, welche einen oder mehrere Prozessmikrokanäle und einen oder mehrere Wärmeaustauschkanäle umfassen. Dabei wird jetzt auf **Fig. 2** Bezug genommen, die eine typische sich wiederholende Einheit und deren Betrieb zeigt.

[0028] Die Prozessmikrokanäle **210** haben ein stromaufwärts gelegenes Ende **220** und ein stromabwärts gelegenes Ende **230** und können einen ersten Abschnitt **240** umfassen, der einen Katalysator (nicht dargestellt), beispielsweise einen Epoxidierungskatalysator, enthalten kann. Der erste Abschnitt **240** kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem ersten Wärmeaustauschkanal **250** stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem ersten Abschnitt **240** von Prozessmikrokanal **210** und dem ersten Wärmeaustauschkanal **250** ermöglicht wird. Die sich wiederholende Einheit kann einen ersten Zufuhrkanal **260** umfassen, der in dem ersten Abschnitt **240** durch eine oder mehrere erste Öffnungen **280** endet. Üblicherweise können eine oder mehrere erste Öffnungen **280** stromabwärts bezüglich einer anderen ersten Öffnung **280** liegen. Während des Betriebs kann Zustrom, der das Olefin und Sauerstoff umfasst, in einen ersten Abschnitt **240** von Prozessmikrokanal **210** durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** und/oder durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** gelangen.

[0029] Die Prozessmikrokanäle **210** können einen zweiten Abschnitt **340** umfassen, der wahlweise angepasst sein kann oder nicht, einen Katalysator zu enthalten, insbesondere einen Katalysator, der für die Umwandlung von Olefinoxid zu 1,2-Carbonat geeignet ist. Der zweite Abschnitt **340** kann oder kann nicht einen Katalysator enthalten, wie hier beschrieben. Der zweite Abschnitt **340** liegt stromabwärts von dem ersten Abschnitt **240**. Der zweite Abschnitt **340** kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem zweiten Wärmeaustauschkanal **350** stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem zweiten Abschnitt **340** von Prozessmikrokanal **210** und dem zweiten Wärmeaustauschkanal **350** ermöglicht wird. Die sich wiederholende Einheit kann einen zweiten Zufuhrkanal **360** umfassen, der in dem zweiten Abschnitt **340** durch eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** en-

det. Während des Betriebs kann ein Zustrom von stromaufwärts im Prozessmikrokanal **210** und durch einen zweiten Zufuhrkanal **360** und eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** in den zweiten Abschnitt **340** gelangen. Üblicherweise können eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** stromabwärts bezüglich einer anderen zweiten Öffnung **380** liegen. Der zweite Abschnitt **340** ist dazu angepasst, dass darin die Umwandlung von Olefinoxid zu 1,2-Carbonat stattfinden kann. Zustrom, der während des Betriebs durch einen zweiten Zufuhrkanal **360** und eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** eindringt, kann Kohlendioxid enthalten. Katalysator kann ebenfalls durch einen zweiten Zustromkanal **360** und eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** zugeführt werden. Falls wünschenswert, kann ein getrennter Satz von zweiten Zufuhrkanälen (nicht dargestellt) mit einer oder mehreren zweiten Öffnungen (nicht dargestellt) vorhanden sein, um eine getrennte Zuführung von Zustrom und Katalysator zu ermöglichen.

[0030] Die ersten und zweiten Zufuhrkanäle **260** oder **360** in Verbindung mit ersten und zweiten Öffnungen **280** oder **380**, wobei eine oder mehrere erste oder zweite Öffnungen **280** oder **380** stromabwärts von einer anderen ersten bzw. zweiten Öffnung **280** bzw. **380** liegen, ermöglichen ein Nachfüllen eines Edukts. Das Nachfüllen eines Edukts ist ein Merkmal einiger Ausführungsformen dieser Erfindung.

[0031] Die Prozessmikrokanäle **210** können einen Zwischenabschnitt **440** umfassen, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt **240** und stromaufwärts von dem zweiten Abschnitt **340** liegt. Der Zwischenabschnitt **440** kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem dritten Wärmeaustauschkanal **450** stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem Zwischenabschnitt **440** von Prozessmikrokanal **210** und dem dritten Wärmeaustauschkanal **450** ermöglicht wird. In einigen Ausführungsformen ist der Zwischenabschnitt **440** dazu angepasst, das im ersten Abschnitt **240** erhaltene und aus diesem aufgenommene Olefinoxid durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid im dritten Wärmeaustauschkanal **450** abzuschrecken. Das Abschrecken kann stufenweise durch Vorliegen einer Mehrzahl von dritten Wärmeaustauschkanälen **450**, beispielsweise zwei oder drei oder vier, erreicht werden. Solch eine Mehrzahl von dritten Wärmeaustauschkanälen **450** kann dazu angepasst sein, Wärmeaustauschfluide zu enthalten, die verschiedene Temperaturen haben, insbesondere derart, dass im stromabwärts gelegenen Bereich von Zwischenabschnitt **440** ein Wärmeaustausch mit einem dritten Wärmeaustauschkanal **450** stattfindet, der ein Wärmeaustauschfluid enthält, das eine geringere Temperatur hat.

[0032] In einigen Ausführungsformen kann Prozessmikrokanal **210** einen dritten Abschnitt (nicht dargestellt) stromabwärts von dem zweiten Abschnitt

340 und wahlweise einen zweiten Zwischenabschnitt (nicht dargestellt) stromabwärts von dem zweiten Abschnitt **340** und stromaufwärts von dem dritten Abschnitt umfassen. Der dritte Abschnitt kann oder kann nicht dazu angepasst sein, einen Katalysator zu enthalten. Der dritte Abschnitt kann oder kann nicht einen Katalysator enthalten, insbesondere einen Katalysator, der zur Umsetzung eines Olefinoxids in ein 1,2-Carbonat geeignet ist. Der dritte Abschnitt kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem vierten Wärmeaustauschkanal (nicht dargestellt) stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem dritten Abschnitt des Prozessmikrokanals **210** und dem vierten Wärmeaustauschkanal ermöglicht wird. Der zweite Zwischenabschnitt kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem fünften Wärmeaustauschkanal (nicht dargestellt) stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem zweiten Zwischenabschnitt des Prozessmikrokanals **210** und dem fünften Wärmeaustauschkanal ermöglicht wird. Die sich wiederholende Einheit kann einen dritten Zufuhrkanal (nicht dargestellt) umfassen, der in dem dritten Abschnitt durch eine oder mehrere dritte Öffnungen (nicht dargestellt) endet. Üblicherweise können eine oder mehrere dritte Öffnungen stromabwärts bezüglich einer anderen dritten Öffnung liegen. Während des Betriebs kann Zustrom in den dritten Abschnitt von stromaufwärts im Prozessmikrokanal **210** und durch den dritten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren dritten Öffnungen gelangen. Der dritte Abschnitt ist dazu angepasst, das darin die Umsetzung von 1,2-Carbonat zu 1,2-Diol stattfinden kann. Der Zustrom, der während des Betriebs durch den dritten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren dritten Öffnungen eindringt, kann Wasser, einen Alkohol oder ein Alkohol/Wasser-Gemisch umfassen. Auch kann Katalysator durch den dritten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren dritten Öffnungen zugeführt werden. Falls wünschenswert, kann ein getrennter Satz von dritten Zufuhrkanälen (nicht dargestellt) mit einer oder mehreren dritten Öffnungen (nicht dargestellt) vorhanden sein, so dass eine getrennte Zufuhr von Zustrom und Katalysator stattfinden kann.

[0033] Die Zufuhrkanäle können Mikrokanäle sein. Sie können mindestens eine innere Ausdehnung in Höhe oder Weite von bis zu 15 mm, zum Beispiel von 0,05 bis 10 mm, insbesondere von 0,1 bis 5 mm, noch spezieller von 0,5 bis 2 mm haben. Die andere innere Ausdehnung in Höhe oder Weite kann beispielsweise 0,1 bis 100 cm, insbesondere 0,2 bis 75 cm, noch spezieller 0,3 bis 50 cm betragen. Die Länge der Zufuhrkanäle kann beispielsweise 1 bis 250 cm, insbesondere 2 bis 150 cm, und noch spezieller 3 bis 100 cm oder 5 bis 50 cm betragen.

[0034] Die Länge der Abschnitte der Prozessmikrokanäle kann unabhängig voneinander ausgewählt sein, in Übereinstimmung mit beispielsweise der benötigten Wärmeaustauschkapazität oder der Menge

an Katalysator, die in dem Abschnitt enthalten sein kann. Die Längen der Abschnitte betragen vorzugsweise mindestens 1 cm oder mindestens 2 cm oder mindestens 5 cm. Die Längen der Abschnitte betragen vorzugsweise höchstens 250 cm oder höchstens 150 cm oder höchstens 100 cm oder höchstens 50 cm. Andere Ausdehnungen der Abschnitte werden durch die entsprechenden Ausdehnungen von Prozessmikrokanal **210** vorgegeben.

[0035] Der Mikrokanalreaktor dieser Erfindung kann unter Verwendung bekannter Methoden hergestellt werden, beispielsweise durch herkömmliche mechanische Bearbeitung, Laserschneiden, Gießen, Stanzen und Ätzen sowie deren Kombinationen. Der Mikrokanalreaktor dieser Erfindung kann durch Ausbilden von Platten mit daraus entfernten Bereichen, die den Durchfluss ermöglichen, hergestellt werden. Ein Stapel solcher Platten kann unter Verwendung bekannter Methoden zusammengebaut werden, um eine integrierte Vorrichtung zu bilden, beispielsweise durch Diffusionsverbindung, Laserschweißen, Kaltschweißen, Diffusionslöten und deren Kombinationen. Der Mikrokanalreaktor dieser Erfindung umfasst geeignete Kopfbereiche, Fußbereiche, Ventile, Leitungsrohre und andere Einrichtungen, um den Eintritt von Edukten, den Austritt von Produkt und den Fluss von Wärmeaustauschfluiden zu regulieren. Diese sind nicht in den Abbildungen dargestellt, sie können aber leicht durch Fachleute bereitgestellt werden. Auch können weitere Wärmeaustauschanlagen (nicht in den Abbildungen dargestellt) zur Temperaturregulation des Zustroms, insbesondere zum Erhitzen des Zustroms oder von Komponenten des Zustroms, bevor dieser in die Prozessmikrokanäle gelangt oder zur Temperaturregulation von Produkt, insbesondere zum Abschrecken von Produkt, nachdem es die Prozessmikrokanäle verlassen hat, vorhanden sein. Solche weiteren Wärmeaustauschanlagen können Bestandteil des Mikrokanalreaktors sein, es ist jedoch üblicher, dass es sich dabei um getrennte Anlagen handelt. Diese sind nicht in den Abbildungen dargestellt, sie können jedoch leicht durch Fachleute bereitgestellt werden. Eine Wärmeintegration kann erfolgen, beispielsweise durch Verwendung von Reaktionswärme des Epoxidierungsprozesses zum Erhitzen von Komponenten des Zustroms oder für andere Heizwecke.

[0036] Üblicherweise sind die Epoxidierungskatalysatoren unter den Bedingungen der Epoxidierungsreaktion Feststoffkatalysatoren. Solch ein Epoxidierungskatalysator und andere Feststoffkatalysatoren, soweit angemessen, können mittels jeder bekannten Methode in den dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle eingebracht werden. Die Katalysatoren können ein Festbett in dem dafür vorgesehenen Abschnitt des Prozessmikrokanals bilden und/oder sie können eine Beschichtung an mindestens einem Teil der Wand des dafür vorgesehenen

Abschnitts der Prozessmikrokanäle bilden. Dem Fachmann ist klar, dass die Beschichtung an der Innenseite der Wand der Prozessmikrokanäle zu liegen hat. Alternativ oder zusätzlich dazu können einer oder mehrere der Katalysatoren in Form einer Beschichtung auf Einsätzen vorliegen, die in den dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle gebracht werden können. Die Beschichtungen können durch jedes Abscheidungsverfahren hergestellt werden, wie etwa Waschbeschichtung oder Aufdampfen. In einigen Ausführungsformen kann der Epoxidierungskatalysator unter den Bedingungen der Epoxidierung kein Feststoffkatalysator sein, wobei in diesem Fall der Epoxidierungskatalysator dem dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle zusammen mit einer oder mehreren Komponenten des Zustroms der Epoxidierung zugeführt werden kann, und zusammen mit dem Reaktionsgemisch der Epoxidierung durch die Prozessmikrokanäle fließen kann.

[0037] Der Epoxidierungskatalysator, der in dieser Erfindung verwendet werden kann, ist üblicherweise ein Katalysator, der ein oder mehrere Metalle der Gruppe 11 umfasst. Die Metalle der Gruppe 11 können ausgewählt sein aus der Gruppe bestehend aus Silber und Gold. Vorzugsweise umfasst das Metall der Gruppe 11 Silber. Insbesondere umfasst das Metall der Gruppe 11 Silber in einer Menge von mindestens 90 Gew.-%, noch spezieller mindestens 95 Gew.-%, beispielsweise mindestens 99 Gew.-% oder mindestens 99,5 Gew.-%, berechnet als das Gewicht an metallischem Silber bezogen auf das Gesamtgewicht des Metalls der Gruppe 11 als Metall. Üblicherweise umfasst der Epoxidierungskatalysator zusätzlich eine oder mehrere Promotorkomponenten. Noch üblicher umfasst der Epoxidierungskatalysator das Metall der Gruppe 11, eine oder mehrere Promotorkomponenten und zusätzlich eine oder mehrere Komponenten, die ein oder mehrere weitere Elemente umfassen. In einigen Ausführungsformen kann der Epoxidierungskatalysator ein Trägermaterial umfassen, auf dem das Metall der Gruppe 11, Promotorkomponenten und Komponenten, die ein oder mehr weitere Elemente umfassen, abgeschieden sein können. Geeignete Promotorkomponenten und geeignete Komponenten, die ein oder mehrere weitere Elemente umfassen, sowie geeignete Trägermaterialien können derart sein, wie sie im Folgenden beschrieben sind.

[0038] In einer Ausführungsform umfasst ein Verfahren des Einbringens eines Epoxidierungskatalysators in einen oder mehrere Prozessmikrokanäle eines Mikrokanalreaktors das Einleiten einer Dispersion des Epoxidierungskatalysators, der in einem im Wesentlichen nichtwässrigen Verdünnungsmittel dispergiert ist, in den einen oder die mehreren Prozessmikrokanäle, sowie das Entfernen des Verdünnungsmittels.

[0039] Das im Wesentlichen nichtwässrige Verdünnungsmittel kann eine Flüssigkeit sein, oder es kann gasförmig sein. Wie hier verwendet, bedeutet "im Wesentlichen nichtwässrig" bei flüssigen Verdünnungsmitteln, dass der Wassergehalt des Verdünnungsmittels höchstens 20 Gew.-%, insbesondere höchstens 10 Gew.-%, noch spezieller höchstens 5 Gew.-%, beispielsweise höchstens 2 Gew.-% oder sogar höchstens 1 Gew.-% oder höchstens 0,5 Gew.-% bezüglich des Gewichts des Verdünnungsmittels beträgt. Bei gasförmigen Verdünnungsmitteln bedeutet "im Wesentlichen nichtwässrig" insbesondere, dass sich das Verdünnungsmittel, wie es in den Prozessmikrokanälen vorliegt, oberhalb des Taupunkts befindet. Die weitgehende oder völlige Abwesenheit von flüssigem Wasser in dem Verdünnungsmittel ermöglicht dem Katalysator, während des Einbringens seine Integrität hinsichtlich einem oder mehreren aus seiner Morphologie, Zusammensetzung und Eigenschaften besser zu bewahren, als wenn ein wässriges Verdünnungsmittel eingesetzt wird. Geeignete im Wesentlichen nichtwässrige flüssige Verdünnungsmittel umfassen organische Verdünnungsmittel, beispielsweise Kohlenwasserstoffe, halogenierte Kohlenwasserstoffe, Alkohole, Ketone, Ether und Ester. Geeignete Alkohole umfassen beispielsweise Methanol und Ethanol. Die Menge an Katalysator, die in dem flüssigen Verdünnungsmittel vorliegen kann, kann im Bereich von 1 bis 50 Gew.-%, insbesondere von 2 bis 30 Gew.-% bezüglich des Gewichts der Summe von dem Katalysator und dem flüssigen Verdünnungsmittel liegen.

[0040] Geeignete im Wesentlichen nichtwässrige gasförmige Verdünnungsmittel umfassen beispielsweise Luft, Stickstoff, Argon und Kohlendioxid. Die Menge an Katalysator, die in dem gasförmigen Verdünnungsmittel vorliegen kann, kann im Bereich von 10 bis 500 g/l, insbesondere von 22 bis 300 g/l liegen, berechnet als das Gewicht an Katalysator bezüglich des Volumens des gasförmigen Verdünnungsmittels.

[0041] Der Epoxidierungskatalysator, der in der Dispersion enthalten ist, kann durch Zerkleinern eines herkömmlichen Formkatalysators und wahlweise nachfolgendes Sieben erhalten werden. Die Teilchengröße des Katalysators, der in der Dispersion enthalten ist, liegt üblicherweise so, dass der d_{50} -Wert im Bereich von 0,1 bis 100 μm , insbesondere von 0,5 bis 50 μm liegt. Wie hier verwendet, ist die durchschnittliche Teilchengröße, hier als " d_{50} -Wert" bezeichnet, der Wert, wie er mittels eines Horiba LA900-Teilchengrößenmessgeräts gemessen wird, und stellt einen Teilchendurchmesser dar, bei dem gleiche kugelförmige Äquivalenzvolumina an Teilchen, die größer sind, und an Teilchen, die kleiner sind als die angegebene durchschnittliche Teilchengröße, vorliegen. Das Verfahren der Messung umfasst das Dispergieren der Teilchen durch Ultraschallbehandlung, wodurch sekundäre Teilchen in

primäre Teilchen aufbrechen. Diese Ultraschallbehandlung wird solange fortgesetzt, bis keine weitere Änderung des d_{50} -Werts festgestellt wird, was üblicherweise 5 Minuten Ultraschall erfordert, wenn das Horiba LA900-Teilchengrößenmessgerät verwendet wird. Vorzugsweise umfasst der Epoxidierungskatalysator Teilchen, die eine Größe aufweisen, so dass sie einen Sieb passieren, dessen Durchgänge eine Weite von höchstens 50 %, insbesondere von höchstens 30 % der kleinsten Ausdehnung des Prozessmikrokanals aufweisen.

[0042] Herkömmliche Epoxidierungsformkatalysatoren umfassen üblicherweise Metall der Gruppe 11, eine oder mehrere Promotorkomponenten und wahlweise eine oder mehrere Komponenten, die ein weiteres Element umfassen, dispergiert auf einem Trägerformmaterial. Geeignete Trägermaterialien, geeignete Promotorkomponenten, geeignete Komponenten, die ein weiteres Element umfassen und geeignete Katalysatorzusammensetzungen hinsichtlich der Mengen an Metall der Gruppe 11, Promotorkomponenten und Komponenten, die ein weiteres Element umfassen, können derart sein, wie sie im Folgenden beschrieben sind.

[0043] Alternativ und vorzugsweise wird der Epoxidierungskatalysator, der in der Dispersion enthalten ist, wie hier beschrieben erzeugt.

[0044] Die Dispersion des Katalysators kann so eingeleitet werden, dass ein Katalysatorfestbett in dem dafür vorgesehenen Abschnitt von einem oder mehreren der Prozessmikrokanäle gebildet wird, oder alternativ so, dass zumindest ein Teil der Wände dieser Abschnitte mit dem Katalysator bedeckt ist. Im ersten Fall kann vor dem Einleiten der Dispersion des Katalysators eine Stützvorrichtung, beispielsweise ein Sieb oder ein abgestuftes partikuläres Material, in den stromabwärts gelegenen Teil des dafür vorgesehenen Abschnitts des einen oder der mehreren der Prozessmikrokanäle gebracht worden sein, um den Katalysator zu tragen und zu verhindern, dass er weiter stromabwärts wandert. Im letzteren Fall kann der Katalysator an den Wänden der Prozessmikrokanäle vor oder nach dem Zusammenbau der Prozessmikrokanäle abgeschieden werden, oder der Katalysator kann auf Einsätzen vorliegen, die in den dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle gebracht werden.

[0045] Die Gesamtmenge an Metall der Gruppe 11, die in dem ersten Abschnitt der Prozessmikrokanäle vorliegt, ist für die Erfindung nicht entscheidend und kann aus weiten Bereichen ausgewählt sein. Üblicherweise kann die Gesamtmenge an Metall der Gruppe 11 im Bereich von 10 bis 500 kg/m^3 , noch üblicher von 50 bis 400 kg/m^3 , insbesondere von 100 bis 300 kg/m^3 Reaktorvolumen liegen, wobei das Reaktorvolumen das Gesamtvolumen ist, das durch die

Querschnittsfläche und die Gesamtlänge der Teile der Prozessmikrokanäle definiert ist, die mit dem Epoxidierungskatalysator belegt sind, durch Vorliegen eines Festbetts und/oder durch das Vorliegen des Epoxidierungskatalysators an der Wand. Um Zweifel zu vermeiden: das so definierte Reaktorvolumen umfasst nicht Teile des Prozessmikrokanals, die keinen Epoxidierungskatalysator umfassen. In Ausführungsformen der Erfindung, in denen der Zustrom das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von mindestens 50 Mol-% umfasst, kann die Gesamtmenge an Metall der Gruppe 11 im Bereich von 5 bis 250 kg/m³, noch üblicher von 20 bis 200 kg/m³, insbesondere von 50 bis 150 kg/m³ Reaktorvolumen, wie zuvor definiert, liegen.

[0046] In einer Ausführungsform stellt die Erfindung ein Verfahren der Herstellung eines partikulären Epoxidierungskatalysators bereit, wobei dieses Verfahren das Abscheiden von Metall der Gruppe 11 und einer oder mehrerer Promotorkomponenten auf einem partikulären Trägermaterial umfasst, das eine Porengrößenverteilung aufweist, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm mindestens 70 % des Gesamtporenvolumens darstellen.

[0047] Die Trägermaterialien zur Verwendung in dieser Erfindung können natürliche oder künstlich erzeugte anorganische Materialien sein und sie können feuerfeste Materialien, Siliziumcarbid, Tone, Zeolithe, Kohle und Erdalkalimetallcarbonate, beispielsweise Calciumcarbonat, umfassen. Feuerfeste Materialien wie etwa Aluminiumoxid, Magnesiumoxid, Zirkoniumoxid und Siliziumoxid werden bevorzugt. Das am meisten bevorzugte Material ist α -Aluminiumoxid. Üblicherweise umfasst das Trägermaterial mindestens 85 Gew.-%, noch üblicher mindestens 90 Gew.-%, insbesondere mindestens 95 Gew.-% α -Aluminiumoxid, häufig bis zu 99,9 Gew.-% α -Aluminiumoxid bezüglich des Gewichts des Trägers. Andere Komponenten des α -Aluminiumoxids können beispielsweise Siliziumoxid, Alkalimetall-Komponenten, beispielsweise Natrium- und/oder Kaliumkomponenten, und/oder Erdalkalimetall-Komponenten, beispielsweise Calcium- und/oder Magnesiumkomponenten, umfassen.

[0048] Die Oberfläche des Trägermaterials kann in geeigneter Weise mindestens 0,1 m²/g, vorzugsweise mindestens 0,3 m²/g, weiter bevorzugt mindestens 0,5 m²/g und insbesondere mindestens 0,6 m²/g bezüglich des Gewichts des Trägers betragen; und die Oberfläche kann in geeigneter Weise höchstens 10 m²/g, vorzugsweise höchstens 5 m²/g und insbesondere höchstens 3 m²/g bezüglich des Gewichts des Trägers betragen. Die "Oberfläche", wie hier verwendet, wird als die Oberfläche verstanden, wie sie nach dem B.E.T. (Brunauer, Emmett und Teller)-Verfahren bestimmt wird, wie es in Journal of the American Chemical Society 60 (1938), S. 309-316 be-

schrieben ist. Trägermaterialien mit großer Oberfläche, insbesondere wenn es sich um ein α -Aluminiumoxid handelt, das wahlweise zusätzlich Siliziumoxid, Alkalimetall- und/oder Erdalkalimetall-Komponenten umfasst, sorgen für eine verbesserte Leistungsfähigkeit und Betriebsstabilität.

[0049] Die Wasserabsorption des Trägermaterials liegt üblicherweise im Bereich von 0,2 bis 0,8 g/g, vorzugsweise im Bereich von 0,3 bis 0,7 g/g. Eine höhere Wasserabsorption kann von Vorteil sein angesichts einer effizienteren Abscheidung von Metall der Gruppe 11, Promotorkomponenten und Komponenten, die ein oder mehrere Elemente umfassen. Wie hier verwendet, ist die Wasserabsorption der Wert, der in Übereinstimmung mit ASTM C20 gemessen wird, und die Wasserabsorption wird als das Gewicht des Wassers, das in den Poren des Trägers absorbiert werden kann, bezogen auf das Gewicht des Trägers ausgedrückt.

[0050] Das partikuläre Trägermaterial kann eine Porengrößenverteilung aufweisen, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm mindestens 70 % des Gesamtporenvolumens darstellen. Solch eine relativ enge Porengrößenverteilung kann zu einem oder mehreren aus Aktivität, Selektivität und Langlebigkeit des Katalysators beitragen. Die Langlebigkeit kann bezüglich des Aufrechterhaltens der Katalysatoraktivität und/oder des Aufrechterhaltens der Selektivität bestehen. Wie hier verwendet, sind die Porengrößenverteilung und die Porenvolumina Größen, die durch Eindringen von Quecksilber bei einem Druck von $3,0 \times 10^8$ Pa unter Verwendung eines Micromeritics Autopore 9200-Modells gemessen werden (Kontaktwinkel 130°, Quecksilber mit einer Oberflächenspannung von 0,473 N/m und mit einer Korrektur für die Kompression des Quecksilbers).

[0051] Vorzugsweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass die Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm mehr als 75 %, insbesondere mehr als 80 %, weiter bevorzugt mehr als 85 %, am meisten bevorzugt mehr als 90 % des Gesamtporenvolumens darstellen. Häufig ist die Porengrößenverteilung derart, dass die Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm weniger als 99,9 %, noch häufiger weniger als 99 % des Gesamtporenvolumens darstellen.

[0052] Vorzugsweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass die Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,3 bis 10 µm mehr als 75 %, insbesondere mehr als 80 %, weiter bevorzugt mehr als 85 %, am meisten bevorzugt mehr als 90 %, insbesondere bis zu 100 % des Porenvolumens darstellen, das in den Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm enthalten ist.

[0053] Üblicherweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass Poren mit einem Durchmesser von weniger als 0,2 µm weniger als 10 %, insbesondere weniger als 5 % des Gesamtporenvolumens darstellen. Häufig stellen die Poren mit einem Durchmesser von weniger als 0,2 µm mehr als 0,1 %, noch häufiger mehr als 0,5 % des Gesamtporenvolumens dar.

[0054] Üblicherweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass Poren mit einem Durchmesser von mehr als 10 µm weniger als 20 %, insbesondere weniger als 10 %, noch spezieller weniger als 5 % des Gesamtporenvolumens darstellen. Häufig stellen die Poren mit einem Durchmesser von mehr als 10 µm mehr als 0,1 %, insbesondere mehr als 0,5 % des Gesamtporenvolumens dar.

[0055] Der Epoxidierungskatalysator, der ein oder mehrere Metalle der Gruppe 11 umfasst, die auf einem Trägermaterial dispergiert sind, zeigt eine nennenswerte katalytische Aktivität, wenn der Gehalt an Metall der Gruppe 11 mindestens 10 g/kg bezüglich des Gewichts des Katalysators beträgt. Vorzugsweise umfasst der Katalysator das Metall der Gruppe 11 in einer Menge von 50 bis 500 g/kg, weiter bevorzugt von 100 bis 400 g/kg.

[0056] Die Promotorkomponente kann ein oder mehrere Elemente umfassen, die ausgewählt sind aus Rhenium, Wolfram, Molybdän, Chrom und deren Gemischen. Vorzugsweise umfasst die Promotorkomponente als eines ihrer Elemente Rhenium.

[0057] Die Promotorkomponente kann üblicherweise im Epoxidierungskatalysator in einer Menge von mindestens 0,05 mmol/kg, noch üblicher von mindestens 0,5 mmol/kg und vorzugsweise von mindestens 1 mmol/kg, berechnet als die Gesamtmenge des Elements (das heißt Rhenium, Wolfram, Molybdän und/oder Chrom) bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Die Promotorkomponente kann in einer Menge von höchstens 250 mmol/kg, vorzugsweise von höchstens 50 mmol/kg, weiter bevorzugt von höchstens 25 mmol/kg, berechnet als die Gesamtmenge des Elements bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Die Form, in der die Promotorkomponente abgeschieden werden kann, ist für die Erfindung nicht entscheidend. Beispielsweise kann die Promotorkomponente in geeigneter Weise als ein Oxid oder als ein Oxyanion, beispielsweise als ein Rhenat, Perrhenat oder Wolframat, in Form von Salz oder Säure, bereitgestellt werden.

[0058] Wenn der Epoxidierungskatalysator eine Rhenium enthaltende Promotorkomponente umfasst, kann das Rhenium üblicherweise in einer Menge von mindestens 0,5 mmol/kg, noch üblicher von mindestens 2,5 mmol/kg, und vorzugsweise von mindestens 5 mmol/kg, insbesondere von mindestens 7,5

mmol/kg, berechnet als die Menge des Elements bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Rhenium liegt üblicherweise in einer Menge von höchstens 25 mmol/kg, vorzugsweise von höchstens 15 mmol/kg, weiter bevorzugt von höchstens 10 mmol/kg, insbesondere von höchstens 7,5 mmol/kg auf derselben Grundlage vor.

[0059] Wenn der Epoxidierungskatalysator eine Rhenium enthaltende Promotorkomponente umfasst, kann der Katalysator weiterhin vorzugsweise einen Rhenium-Copromotor als weitere Komponente umfassen, die auf dem Träger abgeschieden ist. In geeigneter Weise kann der Rhenium-Copromotor ausgewählt sein aus Komponenten, die ein Element umfassen, das ausgewählt ist aus Wolfram, Chrom, Molybdän, Schwefel, Phosphor, Bor und deren Gemischen. Vorzugsweise ist der Rhenium-Copromotor ausgewählt aus Komponenten, die Wolfram, Chrom, Molybdän, Schwefel und deren Gemische umfassen. Es wird insbesondere bevorzugt, dass der Rhenium-Copromotor als ein Element Wolfram umfasst.

[0060] Der Rhenium-Copromotor kann üblicherweise in einer Gesamtmenge von mindestens 0,05 mmol/kg, noch üblicher von mindestens 0,5 mmol/kg und vorzugsweise von mindestens 2,5 mmol/kg, berechnet als das Element (d.h. die Summe von Wolfram, Chrom, Molybdän, Schwefel, Phosphor und/oder Bor) bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Der Rhenium-Copromotor kann in einer Gesamtmenge von höchstens 200 mmol/kg, vorzugsweise von höchstens 50 mmol/kg, weiter bevorzugt von höchstens 25 mmol/kg auf derselben Grundlage vorliegen. Die Form, in der der Rhenium-Copromotor abgeschieden werden kann, ist für die Erfindung nicht entscheidend. Beispielsweise kann er in geeigneter Weise als ein Oxid oder als ein Oxyanion, beispielsweise als ein Sulfat, Borat oder Molybdat, in Form von Salz oder Säure, bereitgestellt werden.

[0061] Der Epoxidierungskatalysator umfasst vorzugsweise Metall der Gruppe 11, die Promotorkomponente und eine Komponente, die ein weiteres Element umfasst. In Frage kommende weitere Elemente können ausgewählt sein aus der Gruppe aus Stickstoff, Fluor, Alkalimetallen, Erdalkalimetallen, Titan, Hafnium, Zirkonium, Vanadium, Thallium, Thorium, Tantal, Niobium, Gallium und Germanium sowie deren Gemischen. Vorzugsweise sind die Alkalimetalle ausgewählt aus Lithium, Kalium, Rubidium und Cäsium. Am meisten bevorzugt ist das Alkalimetall Lithium, Kalium und/oder Cäsium. Vorzugsweise sind die Erdalkalimetalle ausgewählt aus Calcium und Barium. Üblicherweise liegt das weitere Element im Epoxidierungskatalysator in einer Gesamtmenge von 0,05 bis 2500 mmol/kg, noch üblicher von 0,25 bis 500 mmol/kg, berechnet als das Element bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vor. Die

weiteren Elemente können in jeglicher Form bereitgestellt werden. Beispielsweise eignen sich Salze eines Alkalimetalls oder eines Erdalkalimetalls.

[0062] Wie hier verwendet, gilt als Menge an Alkalimetall, die in dem Epoxidierungskatalysator vorliegt, die Menge, die aus dem Epoxidierungskatalysator mit entionisiertem Wasser bei 100 °C extrahiert werden kann. Das Extraktionsverfahren geht mit dem dreimaligen Extrahieren einer 10 g-Probe des Katalysators durch deren Erhitzen in 20 ml-Portionen entionisiertem Wasser für 5 Minuten bei 100 °C und dem Bestimmen der relevanten Metalle in den vereinten Extrakten unter Verwendung eines bekannten Verfahrens, beispielsweise der Atomabsorptionsspektroskopie, einher.

[0063] Wie hier verwendet, gilt als Menge an Erdalkalimetall, die in dem Epoxidierungskatalysator vorliegt, die Menge, die aus dem Epoxidierungskatalysator mit 10 Gew.-% Salpetersäure in entionisiertem Wasser bei 100 °C extrahiert werden kann. Das Extraktionsverfahren geht mit dem Extrahieren einer 10 g-Probe des Katalysators durch deren Kochen mit einer 100 ml-Portion 10 Gew.-% Salpetersäure für 30 Minuten (1 atm, d.h. 101,3 kPa) und dem Bestimmen der relevanten Metalle in den vereinten Extrakten unter Verwendung eines bekannten Verfahrens, beispielsweise der Atomabsorptionsspektroskopie, einher. Dabei sei auf US-A-5801259 verwiesen, deren Inhalt hier einbezogen wird.

[0064] Verfahren zur Abscheidung von Metall der Gruppe 11, der einen oder mehreren Promotorkomponenten und der einen oder mehreren Komponenten, die ein weiteres Element umfassen, auf einem Trägermaterial sind der Fachwelt bekannt und solche Verfahren können bei der Ausführung dieser Erfindung angewendet werden. Dabei kann auf US-A-5380697, US-A-5739075, EP-A-266015 und US-B-6368998 verwiesen werden, deren Inhalt hier einbezogen wird. Die Verfahren umfassen in geeigneter Weise das Imprägnieren der partikulären Trägermaterialien mit einem flüssigen Gemisch, das kationische Gruppe 11-Metall-Amin-Komplexe und ein Reduktionsmittel umfasst.

[0065] Die Erfindung betrifft Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins, die die Reaktion eines Zustroms, der das Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators wie hier zuvor beschrieben, der in einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors enthalten ist, umfassen.

[0066] Das Olefin zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung kann ein aromatisches Olefin, beispielsweise Styrol, oder ein Diolefin, ob konjugiert oder nicht, beispielsweise 1,9-Decadien oder 1,3-Butadien sein. Ein Gemisch von Olefinen kann verwenden

werden. Üblicherweise ist das Olefin ein Monoolefin, beispielsweise 2-Buten oder Isobuten. Vorzugsweise ist das Olefin ein Mono- α -olefin, beispielsweise 1-Buten oder Propylen. Das am meisten bevorzugte Olefin ist Ethylen.

[0067] Der Zustrom für das Epoxidierungsverfahren dieser Erfindung umfasst das Olefin und Sauerstoff. Wie hier verwendet, wird der Zustrom zu einem Prozess so verstanden, dass er die Summe an Edukten und anderen Komponenten darstellt, die dem Abschnitt der Prozessmikrokanäle zugeführt wird, in dem der fragliche Prozess stattfindet. Einige der Komponenten des Zustroms können dem Epoxidierungsprozess durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** von Prozessmikrokanälen **210** zugeführt werden. Einige der Komponenten des Zustroms können durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** zugeführt werden. Beispielsweise kann eine olefinreiche Komponente des Zustroms durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle zugeführt werden, und eine sauerstoffreiche Komponente des Zustroms kann durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Alternativ kann die sauerstoffreiche Komponente des Zustroms durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle zugeführt werden, und die olefinreiche Komponente des Zustroms kann durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Gewisse Komponenten des Zustroms können durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle und durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Beispielsweise kann das Olefin teilweise durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle und teilweise durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Als ein weiteres Beispiel kann Sauerstoff teilweise durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle und teilweise durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden.

[0068] In einer Ausführungsform kann eine sauerstoffreiche Komponente des Zustroms in den Prozessmikrokanälen mit einer olefinreichen Komponente des Zustroms in Kontakt gebracht werden. Die sauerstoffreiche Komponente des Zustroms ist üblicherweise relativ arm an Olefin. Die sauerstoffreiche Komponente des Zustroms kann üblicherweise Sauerstoff in einer Menge von mindestens 5 Mol-%, insbesondere von mindestens 10 Mol-%, noch spezieller von mindestens 15 Mol-% bezüglich der gesamten sauerstoffreichen Komponente des Zustroms umfassen und üblicherweise in einer Menge von höchstens 100 Mol-% oder höchstens 99,9 Mol-% oder höchstens 99,8 Mol-% bezüglich der gesamten sauer-

erstoffreichen Komponente des Zustroms. Die sauerstoffreiche Komponente des Zustroms kann das Olefin üblicherweise in einer Menge von höchstens 5 Mol-%, insbesondere von höchstens 1 Mol-% bezüglich der gesamten sauerstoffreichen Komponente des Zustroms umfassen. Solch eine sauerstoffreiche Komponente des Zustroms kann normalerweise außerhalb der Explosionsgrenzen liegen. Die olefinreiche Komponente des Zustroms ist üblicherweise relativ arm an Sauerstoff. Die olefinreiche Komponente des Zustroms kann das Olefin üblicherweise in einer Menge von mindestens 20 Mol-%, insbesondere von mindestens 25 Mol-%, noch spezieller von mindestens 30 Mol-% bezüglich der gesamten olefinreichen Komponente des Zustroms umfassen, und üblicherweise in einer Menge von höchstens 100 Mol-% oder höchstens 99,99 Mol-% oder höchstens 99,98 Mol-% bezüglich der gesamten olefinreichen Komponente des Zustroms. Die olefinreiche Komponente des Zustroms kann Sauerstoff üblicherweise in einer Menge von höchstens 15 Mol-%, insbesondere von höchstens 10 Mol-%, noch spezieller von höchstens 5 Mol-% bezüglich der gesamten olefinreichen Komponente des Zustroms umfassen. Solch eine olefinreiche Komponente des Zustroms kann normalerweise außerhalb der Explosionsgrenzen liegen.

[0069] Für den Fall, dass es eine Mehrzahl an ersten Öffnungen **280** gibt, wobei eine oder mehrere erste Öffnungen **280** stromabwärts von einer anderen ersten Öffnung **280** liegen, kann umgesetztes Edukt in wesentlichem Umfang nachgefüllt werden. Beispielsweise kann das Nachfüllen von umgesetztem Sauerstoff bewirken, dass die Konzentration an Sauerstoff im Zustrom entlang dem Epoxidierungskatalysator im Wesentlichen konstant gehalten werden kann, was eine vollständige Umsetzung des Olefins wesentlich begünstigen kann. Alternativ kann die Konzentration des Olefins durch Nachfüllen des umgesetzten Olefins im Wesentlichen konstant gehalten werden, was eine vollständige Umsetzung von Sauerstoff wesentlich begünstigen kann.

[0070] Weiterhin kann in einem Aspekt der Erfindung durch Zuführung der olefinreichen Komponente des Zustroms und der sauerstoffreichen Komponente des Zustroms durch verschiedene Kanäle und Mischen der Komponenten des Zustroms in den Prozessmikrokanälen bewirkt werden, dass Zusammensetzungen des Zustroms innerhalb der Prozessmikrokanäle erzielt werden können, die außerhalb der Prozessmikrokanäle zu einer Explosion führen könnten.

[0071] Ein organisches Halogenid kann als Reaktionsmodifizierer zur Erhöhung der Selektivität im Zustrom vorliegen, wodurch die unerwünschte Oxidation des Olefins oder des Olefinoxids zu Kohlendioxid und Wasser relativ zur erwünschten Bildung des Olefinoxids unterdrückt wird. Das organische Halogenid

kann als Flüssigkeit oder als Dampf zugeführt werden. Das organische Halogenid kann getrennt oder zusammen mit anderen Komponenten des Zustroms durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** der Prozessmikrokanäle **210** oder durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** zugeführt werden. Ein Aspekt der Zuführung des organischen Halogenids durch eine Mehrzahl erster Öffnungen besteht darin, dass dies zu einem Anstieg des Niveaus der Menge an organischem Halogenid entlang dem Epoxidierungskatalysator führen kann, wodurch die Aktivität und/oder Selektivität des Epoxidierungskatalysators manipuliert werden kann, in Übereinstimmung mit der Lehre von EP-A-352850, auf die hier Bezug genommen und deren Inhalt hier einbezogen wird. Beispielsweise kann, wenn ein Rhenium enthaltender Epoxidierungskatalysator verwendet wird, die Aktivität des Epoxidierungskatalysators entlang dem Epoxidierungskatalysator erhöht werden. Dies kann eine bessere Nutzung des Epoxidierungskatalysators in Bereichen ermöglichen, in denen Sauerstoff oder das Olefin verarmt ist relativ zu den Bereichen, in denen Sauerstoff und das Olefin eingespeist werden.

[0072] Organische Halogenide sind insbesondere organische Bromide und noch spezieller organische Chloride. Bevorzugte organische Halogenide sind Chlorkohlenwasserstoffe oder Bromkohlenwasserstoffe. Es wird weiter bevorzugt, dass sie ausgewählt sind aus der Gruppe aus Methylchlorid, Ethylchlorid, Ethylendichlorid, Ethylendibromid, Vinylchlorid oder einem Gemisch aus diesen. Am meisten bevorzugt sind Ethylchlorid und Ethylendichlorid.

[0073] Zusätzlich zu einem organischen Halogenid kann eine organische oder anorganische Stickstoffverbindung als Reaktionsmodifizierer eingesetzt werden, dies wird jedoch im Allgemeinen weniger bevorzugt. Unter den Betriebsbedingungen des Epoxidierungsprozesses werden die Stickstoff enthaltenden Reaktionsmodifizierer als Vorstufen von Nitraten oder Nitriten betrachtet (vgl. z.B. EP-A-3642 und US-A-4822900, auf die hier Bezug genommen und deren Inhalt hier einbezogen wird). Organische Stickstoffverbindungen und anorganische Stickstoffverbindungen können eingesetzt werden.

[0074] Geeignete organische Stickstoffverbindungen sind Nitroverbindungen, Nitrosoverbindungen, Amine, Nitrate und Nitrite, beispielsweise Nitromethan, 1-Nitropropan oder 2-Nitropropan. Geeignete anorganische Stickstoffverbindungen sind beispielsweise Stickoxide, Hydrazin, Hydroxylamin oder Ammoniak. Geeignete Stickoxide fallen unter die allgemeine Formel NO_x , wobei x im Bereich von 1 bis 2 liegt, und umfassen zum Beispiel NO , N_2O_3 und N_2O_4 .

[0075] Die organischen Halogenide und die organischen oder anorganischen Stickstoffverbindungen

wirken im Allgemeinen als Reaktionsmodifizierer, wenn sie in geringer Gesamtkonzentration eingesetzt werden, beispielsweise von bis zu 0,01 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms. Es wird bevorzugt, dass das organische Halogenid in einer Konzentration von höchstens 50×10^{-4} Mol-%, insbesondere von höchstens 20×10^{-4} Mol-%, noch spezieller von höchstens 15×10^{-4} Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms vorliegt, und vorzugsweise von mindestens $0,2 \times 10^{-4}$ Mol-%, insbesondere von mindestens $0,5 \times 10^{-4}$ Mol-%, noch spezieller von mindestens 1×10^{-4} Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms.

[0076] Zusätzlich zu dem Olefin, Sauerstoff und dem organischen Halogenid kann der Zustrom außerdem eine oder mehrere weitere Komponenten umfassen, beispielsweise gesättigte Kohlenwasserstoffe als Ballastgas, Inertgase und Kohlendioxid. Die eine oder mehreren weiteren Komponenten können getrennt oder zusammen mit anderen Komponenten des Zustroms durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** der Prozessmikrokanäle **210** oder durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** zugeführt werden.

[0077] Die Olefinkonzentration im Zustrom kann aus einem weiten Bereich ausgewählt werden. Üblicherweise wird die Olefinkonzentration im Zustrom höchstens 80 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms betragen. Vorzugsweise wird sie im Bereich von 0,5 bis 70 Mol-%, insbesondere von 1 bis 60 Mol-% auf derselben Basis liegen.

[0078] Die Sauerstoffkonzentration im Zustrom kann aus einem weiten Bereich ausgewählt werden. Üblicherweise wird die eingesetzte Konzentration an Sauerstoff im Bereich von 1 bis 15 Mol-%, noch üblicher von 2 bis 12 Mol-% des gesamten Zustroms liegen.

[0079] Die gesättigten Kohlenwasserstoffe umfassen beispielsweise Methan und Ethan. Solange hier nichts anderes angegeben ist, können gesättigte Kohlenwasserstoffe in einer Menge von bis zu 80 Mol-%, insbesondere von bis zu 75 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms vorliegen, und häufig liegen sie in einer Menge von mindestens 30 Mol-%, häufiger noch von mindestens 40 Mol-% auf derselben Basis vor.

[0080] Kohlendioxid kann im Zustrom vorhanden sein, da es als Ergebnis einer unerwünschten Oxidation des Olefins und/oder des Olefinoxids gebildet wird, und es kann dementsprechend bei den Komponenten des Zustroms vorhanden sein, die in einem Rückführungsstrom vorkommen. Kohlendioxid hat im Allgemeinen eine ungünstige Wirkung auf die Katalysatoraktivität. Die Menge an Kohlendioxid liegt zweckmäßig beispielsweise unterhalb 2 Mol-%, vorzugsweise unterhalb 1 Mol-% oder im Bereich von

0,2 bis 1 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms.

[0081] Die Inertgase umfassen beispielsweise Stickstoff oder Argon. Solange hier nichts anderes angegeben ist, können die Inertgase im Zustrom in einer Konzentration von 30 bis 90 Mol-%, üblicherweise von 40 bis 80 Mol-% vorliegen.

[0082] Das Epoxidierungsverfahren dieser Erfindung kann auf Luft oder auf Sauerstoff basieren, siehe "Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology", 3. Aufl., Band 9, 1980, S. 445-447. In dem auf Luft basierenden Verfahren wird Luft oder Luft, die mit Sauerstoff angereichert ist, als Quelle des Oxidationsmittels eingesetzt, während in den auf Sauerstoff basierenden Verfahren Sauerstoff hoher Reinheit (mindestens 95 Mol-%) als Quelle des Oxidationsmittels eingesetzt wird. Zur Zeit basieren die meisten Epoxidierungsanlagen auf Sauerstoff und dies wird bei der Ausführung gewisser Ausführungsformen dieser Erfindung bevorzugt. Es ist ein Vorteil anderer Ausführungsformen dieser Erfindung, dass Luft als Quelle des Oxidationsmittels dem Prozess zugeführt werden kann.

[0083] Das Epoxidierungsverfahren kann unter Verwendung von Reaktionstemperaturen durchgeführt werden, die aus einem weiten Bereich ausgewählt sind. Vorzugsweise liegt die Reaktionstemperatur im Bereich von 150 bis 340 °C, weiter bevorzugt im Bereich von 180 bis 325 °C. Üblicherweise kann die Wärmetransferflüssigkeit, die in den ersten Wärmeaustauschkanälen vorliegt, eine Temperatur haben, die 0,5 bis 10 °C geringer ist als die Reaktionstemperatur.

[0084] Wie hier zuvor offenbart, können die Epoxidierungskatalysatoren während der Verwendung einem Leistungsrückgang unterliegen. Um die Auswirkungen eines Aktivitätsrückgangs zu verringern, kann die Reaktionstemperatur allmählich oder in einer Mehrzahl von Schritten erhöht werden, beispielsweise in Schritten von 0,1 bis 20 °C, insbesondere von 0,2 bis 10 °C, noch spezieller von 0,5 bis 5 °C. Der Gesamtanstieg der Reaktionstemperatur kann im Bereich von 10 bis 140 °C, noch üblicher von 20 bis 100 °C liegen. Die Reaktionstemperatur kann üblicherweise von einem Niveau im Bereich von 150 bis 300 °C, noch üblicher von 200 bis 280 °C, wenn ein frischer Epoxidierungskatalysator oder ein regenerierter Epoxidierungskatalysator verwendet wird, auf ein Niveau im Bereich von 230 bis 340 °C, noch üblicher von 240 bis 325 °C erhöht werden, wenn die Aktivität des Epoxidierungskatalysators abgenommen hat.

[0085] Das Epoxidierungsverfahren wird vorzugsweise bei einem Druck im Bereich von 1000 bis 3500 kPa durchgeführt, gemessen am stromaufwärts gelegenen Ende **220** der Prozessmikrokanäle **210**.

[0086] Das Olefinoxid, das den Abschnitt der Prozessmikrokanäle verlässt, der den Epoxidierungskatalysator enthält, ist in einem Reaktionsgemisch enthalten, das außerdem nicht reagiertes Olefin, nicht reagierten Sauerstoff und andere Reaktionsprodukte wie etwa Kohlendioxid umfasst. Üblicherweise liegt der Gehalt an Olefinoxid im Reaktionsprodukt im Allgemeinen im Bereich von 1 bis 25 Mol-%, noch üblicher von 2 bis 20 Mol-%, insbesondere von 2 bis 5 Mol-%.

[0087] In einer Ausführungsform umfasst das Epoxidierungsverfahren die Reaktion eines Zustroms, der das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von mindestens 50 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms umfasst. In dieser Ausführungsform können das Olefin und Sauerstoff im Zustrom in einer Gesamtmenge von mindestens 80 Mol-%, insbesondere von mindestens 90 Mol-%, noch spezieller von mindestens 95 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms und üblicherweise bis zu 99,5 Mol-%, insbesondere bis zu 99 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms vorliegen. Das molare Verhältnis von Olefin zu Sauerstoff kann im Bereich von 3 bis 100, insbesondere von 4 bis 50, noch spezieller von 5 bis 20 liegen. Die gesättigten Kohlenwasserstoffe und die Inertgase können im Wesentlichen nicht vorhanden sein. Wie hier verwendet, bedeutet "im Wesentlichen nicht vorhanden" in diesem Zusammenhang, dass die Menge an gesättigten Kohlenwasserstoffen im Zustrom höchstens 10 Mol-%, insbesondere höchstens 5 Mol-%, noch spezieller höchstens 2 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms beträgt, und dass die Menge an Inertgasen im Zustrom höchstens 10 Mol-%, insbesondere höchstens 5 Mol-%, noch spezieller höchstens 2 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms beträgt. In dieser speziellen Ausführungsform können Prozessbedingungen angewendet werden, so dass die Menge an Olefinoxid im Reaktionsgemisch der Epoxidierung im Bereich von 4 bis 15 Mol-%, insbesondere von 5 bis 12 Mol-%, beispielsweise von 6 bis 10 Mol-% liegt. Vorzugsweise wird das Reaktionsgemisch der Epoxidierung, das das Olefinoxid umfasst, wie hier beschrieben abgeschreckt.

[0088] In einer Ausführungsform umfasst das Epoxidierungsverfahren die Anwendung solcher Bedingungen für die Reaktion des Zustroms, dass die Umsetzung des Olefins oder die Umsetzung von Sauerstoff mindestens 90 Mol-% beträgt. Die Umsetzung des Olefins kann mindestens 90 Mol-% betragen und die Umsetzung von Sauerstoff kann mindestens 90 Mol-% betragen. Insbesondere kann der Zustrom in dieser Ausführungsform das Olefin und Sauerstoff in einer Menge von höchstens 50 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms umfassen, und der Zustrom kann zusätzlich gesättigte Kohlenwasserstoffe als Ballastgas sowie Inertgas umfassen. Üblicherweise werden solche Prozessbedingungen angewendet,

dass die Umsetzung des Olefins oder die Umsetzung von Sauerstoff mindestens 95 Mol-%, insbesondere mindestens 98 Mol-%, noch spezieller mindestens 99 Mol-% beträgt. Wie hier verwendet, ist die Umsetzung die Menge eines umgesetzten Edukts relativ zur Menge des Edukts im Zustrom, ausgedrückt in Mol-%. Vorzugsweise beträgt die Umsetzung des Olefins mindestens 95 Mol-%, insbesondere mindestens 98 Mol-%, noch spezieller mindestens 99 Mol-%, und Sauerstoff kann zumindest teilweise nachgefüllt werden. Die Gegenwart eines Überschusses an Sauerstoff im Zustrom relativ zum Olefin trägt zum Erzielen einer hohen Umsetzung des Olefins bei. Beispielsweise kann das molare Verhältnis von Sauerstoff zum Olefin im Zustrom mindestens 1,01, üblicherweise mindestens 1,05, insbesondere mindestens 1,1, noch spezieller mindestens 1,2 betragen; und beispielsweise höchstens 5, insbesondere höchstens 3, noch spezieller höchstens 2. In dieser Ausführungsform wird eine relativ hohe Selektivität bei der Umsetzung des Olefins zum Olefinoxid erzielt. Wie hier verwendet ist die Selektivität die Menge an gebildetem Olefinoxid relativ zur Menge an umgesetztem Olefin, ausgedrückt in Mol-%. Darüber hinaus ermöglicht eine solch hohe Umsetzung des Olefins, dass das Verfahren wirtschaftlich in einem Durchlaufmodus durchgeführt werden kann, was bedeutet, dass keine Rückführung von nicht umgesetzten Edukten erfolgt, und dass dem Epoxidierungsverfahren Luft zugeführt werden kann, was effektiv bedeutet, dass kein Bedarf an einer Lufttrennungseinheit besteht.

[0089] Bei der Ausführung dieser Erfindung kann das Reaktionsprodukt, das das Olefinoxid umfasst, abgeschreckt werden, üblicherweise durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid. Das Abschrecken kann in einem ersten Zwischenabschnitt **440** der Prozessmikrokanäle **210** durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid erfolgen, das in einem oder mehreren dritten Wärmeaustauschkanälen **450** vorliegt. Üblicherweise kann die Temperatur des Reaktionsprodukts, das das Olefinoxid umfasst, auf eine Temperatur von höchstens 250 °C, noch üblicher von höchstens 225 °C, vorzugsweise in den Bereich von 20 bis 200 °C, weiter bevorzugt von 50 bis 190 °C, insbesondere von 80 bis 180 °C verringert werden. Das Abschrecken kann eine Verringerung der Temperatur um einen Betrag im Bereich von 50 bis 200 °C, insbesondere von 70 bis 160 °C bewirken. Das Abschrecken ermöglicht die Erhöhung der Gesamtmenge an dem Olefinoxid und Sauerstoff im Zustrom des Epoxidierungsprozesses und das Weglassen des Ballastgases oder die Verringerung der Menge an Ballastgas im Zustrom des Epoxidierungsprozesses. Ein Ergebnis des Abschreckens besteht auch darin, dass das hergestellte Olefinoxid ein saubereres Produkt ist, das weniger Aldehyd- und Carbonsäure-Verunreinigungen umfasst.

[0090] Ein Teil des Reaktionsgemisches der Epoxidierung, das das Olefinoxid umfasst, kann teilweise aus dem Prozessmikrokanal und dem Mikrokanalreaktor entnommen werden, und auf herkömmliche Art und Weise unter Verwendung herkömmlicher Verfahren und herkömmlicher Anlagen weiterverarbeitet werden. Dies ist jedoch keine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens. Die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid im zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle kann eine Umsetzung sein, die unter Verwendung eines geeigneten Katalysators katalysiert wird.

[0091] Geeignete Katalysatoren für die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid können beispielsweise Harze sein, die quartäre Phosphoniumhalogenid-Gruppen oder quartäre Ammoniumhalogenid-Gruppen auf einer Styrol/Divinylbenzol-Copolymermatrix umfassen, wobei das Halogenid insbesondere Chlorid oder Bromid sein kann. Solche Katalysatoren für diese Umsetzung sind aus T. Nishikubo, A. Kameyama, J. Yamashita und M. Tomoi, Journal of Polymer Science, Teil A. Polymer Chemist, 31, 939-947 (1993) bekannt, auf das hier Bezug genommen und dessen Inhalt hier einbezogen wird. Geeignete Katalysatoren umfassen ein Metallsalz, das in einem festen Träger immobilisiert ist, wobei das Metallsalz ein Kation eines Metalls umfassen kann, das ausgewählt ist aus denen der dritten Periode und Gruppe 2, der vierten Periode und den Gruppen 2 und 4-12, der fünften Periode und den Gruppen 2, 4-7, 12 und 14, und der sechsten Periode und den Gruppen 2 und 4-6 des Periodensystems der Elemente, und wobei der Träger ein quartäres Ammonium-, quartäres Phosphonium-, quartäres Arsonium-, quartäres Stibonium- oder ein quartäres Sulfonium-Kation enthält, wobei das Kation vom Gerüst des Trägers durch eine Spacer-Gruppe der allgemeinen Formel $-(\text{CH}_3\text{-O})_m\text{-(CH}_2)_n\text{-}$ getrennt sein kann, wobei m und n ganze Zahlen sind mit beispielsweise n höchstens 10, zum Beispiel 1, 2, 3 oder 6, wenn m 0 ist, und n von 1 bis 8, zum Beispiel 2 oder 4 ist, wenn m 1 ist. Das Metallsalz kann insbesondere ausgewählt sein aus den Halogeniden, Acetaten, Lauraten, Nitraten und Sulfaten von einem oder mehreren, die ausgewählt sind aus Magnesium, Calcium, Zink, Kobalt, Nickel, Mangan, Kupfer und Zinn, beispielsweise Zinkbromid, Zinkiodid, Zinkacetat oder Kobaltbromid. Der feste Träger zum Immobilisieren des Metallsalzes kann beispielsweise Siliziumoxid, ein Silizium-Aluminium-Oxid oder ein Zeolith sein, oder es kann ein Harz mit einem Gerüst aus Polystyrol/Divinylbenzol-Copolymer oder einem auf Siliziumoxid basierenden, polymeren Gerüst, wie etwa in Polysiloxanen, oder ein Harz, in das quartäre Vinylpyridin-Monomere eingefügt sind, sein. Andere geeignete Katalysatoren für die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid sind beispielsweise quartäre Phosphoniumhalogenide, quartäre Ammoniumhalogenide

und gewisse Metallhalogenide. Ein Beispiel ist Methyltributylphosphoniumiodid. Noch geeigneter sind Katalysatoren, die eine organische Base umfassen, die mit einem Halogenwasserstoff neutralisiert ist, wobei die organische Base einen pK_a -Wert größer als 8 hat und eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält. Der Halogenwasserstoff kann Bromwasserstoff oder Iodwasserstoff sein. Beispiele solcher organischen Basen, die einen pK_a -Wert größer als 8 haben, sind 2-tert-Butylimino-2-diethylamino-1,3-dimethylperhydro-1,3,2-diazaphosphorin, als solches oder auf Polystyrol, 1,1,3,3-Tetramethylguanidin und Triethanolamin. In diesem Zusammenhang bedeutet der Ausdruck "neutralisiert", dass die organische Base und der Halogenwasserstoff in den jeweiligen Mengen miteinander reagiert haben, so dass eine wässrige Lösung des Reaktionsprodukts im Wesentlichen neutral ist, d.h. einen pH-Wert zwischen 6 und 8 hat.

[0092] Ein anderer geeigneter Katalysator für die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid umfasst 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, einer organischen Base und von 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, des Salzes der organischen Base und eines Halogenwasserstoffs, wobei die organische Base eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält, und einen pK_a -Wert hat, der hoch genug ist, dass sie in der Lage ist, Kohlendioxid unter den Reaktionsbedingungen zu binden. Der Halogenwasserstoff kann Bromwasserstoff oder Iodwasserstoff sein. Beispiele solcher organischer Basen, die die Fähigkeit besitzen, Kohlendioxid zu binden, sind 2-tert-Butylimino-2-diethylamino-1,3-dimethylperhydro-1,3,2-diazaphosphorin, als solches oder auf Polystyrol, 1,1,3,3-Tetramethylguanidin und Triethanolamin. Ein beispielhafter Katalysator kann auf 1,1,3,3-Tetramethylguanidin, Iodwasserstoff und Molybdäntrioxid in einem molaren Verhältnis von etwa 6,6:4,71:1 basieren. Wenn diese Katalysatoren in Gegenwart von Wasser und Kohlendioxid verwendet werden, kann das gebildete 1,2-Carbonat zumindest teilweise in situ in das entsprechende 1,2-Glykol umgesetzt werden.

[0093] Der Katalysator kann, wenn er unter den Bedingungen der Reaktion als Feststoff vorliegt, in den zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle mittels bekannter Verfahren eingebracht werden, und anwendbare Verfahren umfassen beispielsweise das Füllen von mindestens einem Teil des zweiten Abschnitts, um ein Festbett zu bilden, oder das Bedecken von mindestens einem Teil der Wände des zweiten Abschnitts mit dem Katalysator, beispielsweise durch Waschbeschichtung. Einige der Verfahren, die das Einbringen eines Epoxidierungs-

katalysators betreffen, wie hier zuvor dargelegt, können für diese Katalysatoren in einer analogen Weise anwendbar sein. Die Verwendung eines Katalysators, der unter den Bedingungen der Reaktion als Feststoff vorliegt, wird weniger bevorzugt. In Ausführungsformen, in denen der Katalysator unter den Bedingungen der Reaktion selbst als eine Flüssigkeit vorliegt, kann der Katalysator in den zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle durch den zweiten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren zweiten Öffnungen zugeführt werden, in geeigneter Weise zusammen mit Zustrom, der Wasser, den Alkohol, Kohlendioxid und/oder das Amin umfasst. Wenn die Umsetzung eine thermische Umsetzung ist, kann die Temperatur im Bereich von 100 bis 300 °C, insbesondere von 150 bis 250 °C liegen. Wenn die Umsetzung eine katalytische Umsetzung ist, kann die Temperatur im Bereich von 30 bis 200 °C, insbesondere von 50 bis 150 °C liegen. Das molare Verhältnis von Kohlendioxid zum Olefinoxid kann mehr als 10, beispielsweise höchstens 20 oder höchstens 30 betragen. Es ist jedoch ein Vorteil dieser Erfindung, dass eine adäquate Regulierung der Temperatur erzielt werden kann, wenn das molare Verhältnis der Summe an Wasser, dem Alkohol, Kohlendioxid und dem Amin relativ gering gehalten wird. Das molare Verhältnis an Kohlendioxid zu dem Olefinoxid kann bei höchstens 10, insbesondere im Bereich von 1 bis 8, noch spezieller von 1,1 bis 6, beispielsweise von 1,2 bis 4 liegen. Der dem zweiten Abschnitt der Prozessmikrokanäle zugeführte Zustrom kann eine Gesamtmenge von dem Olefinoxid und Kohlendioxid von mindestens 60 Gew.-%, insbesondere von mindestens 80 Gew.-%, noch spezieller von mindestens 90 Gew.-%, beispielsweise von mindestens 95 Gew.-% bezüglich des Gesamtgewichts des besagten Zustroms umfassen. Der Druck kann im Bereich von 500 bis 3500 kPa liegen, gemessen am zweiten Zufuhrkanal, wie hier zuvor beschrieben. Die Reaktionsbedingungen können so ausgewählt sein, dass die Umsetzung des Olefinoxids mindestens 50 Mol-%, insbesondere mindestens 80 Mol-%, noch spezieller mindestens 90 Mol-%, beispielsweise mindestens 95 Mol-% beträgt.

[0094] Die Temperatur des Reaktionsgemisches der Epoxidierung, das das Olefinoxid umfasst, kann reguliert werden, bevor das Olefinoxid in den zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle gelangt, so dass das Olefinoxid die gewünschte Temperatur für die Umsetzung zum 1,2-Carbonat annehmen kann. So können die einen oder mehrere Prozessmikrokanäle zusätzlich einen Zwischenabschnitt stromabwärts von dem ersten Abschnitt und stromaufwärts von dem zweiten Abschnitt umfassen, wobei der Zwischenabschnitt angepasst ist, die Temperatur des Olefinoxids zu regulieren. Insbesondere kann der Reaktor zusätzlich einen oder mehrere vierte Wärmeaustauschmikrokanäle aufweisen, die angepasst sind, Wärme mit dem ersten Zwi-

schenabschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen.

[0095] Die Umsetzung des 1,2-Carbonats mit Wasser oder einem Alkohol im dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle kann eine thermische Umsetzung sein, vorzugsweise ist sie jedoch ein katalytischer Prozess. Die Temperatur kann im Bereich von 50 bis 250 °C, insbesondere von 80 bis 200 °C, noch spezieller von 100 bis 180 °C liegen. Geeignete Katalysatoren sind basische anorganische Verbindungen, wie beispielsweise Hydroxide von Alkalimetallen, Erdalkalimetallen und Metallen, die ausgewählt sind aus den Gruppen 3-12 des Periodensystems der Elemente; feuerfeste basische Oxide, wie beispielsweise basisches Aluminiumoxid; und basische Zeolithe. Geeignete Alkalimetalle sind beispielsweise Lithium, Natrium und Kalium. Geeignete Erdalkalimetalle können beispielsweise Calcium und Magnesium sein. Geeignete Metalle aus den Gruppen 3-12 des Periodensystems der Elemente sind beispielsweise Zirkonium und Zink. Andere geeignete Katalysatoren sind jene, die aus US-A-4283580 bekannt sind, auf die hier Bezug genommen und deren Inhalt hier einbezogen wird. Weitere geeignete Katalysatoren umfassen ein Metallat oder Hydrogencarbonat, das auf einem festen Träger immobilisiert ist, der eine oder mehrere elektropositive Stellen aufweist. Das Metallat ist ein Metalloxidation, wobei das Metall eine funktionelle positive Oxidationsstufe von mindestens +3 hat, und es ist polyvalent (d.h. das Metall kann mehr als eine Valenz haben). Das polyvalente Metall ist vorzugsweise ausgewählt aus den Gruppen 5 und 6 des Periodensystems der Elemente, und weiter bevorzugt aus Wolfram, Vanadium und insbesondere Molybdän. Typische Beispiele solcher Metallat-Anionen umfassen Anionen, die herkömmlicherweise durch die Formeln $[\text{MoO}_4]^{2-}$, $[\text{VO}_3]^-$, $[\text{V}_2\text{O}_7\text{H}]^{3-}$, $[\text{V}_2\text{O}_7]^{4-}$ und $[\text{WO}_4]^{2-}$ charakterisiert sind. Es versteht sich, dass die exakten Formeln dieser Metallat-Anionen mit den Prozessbedingungen, bei denen sie verwendet werden, variieren können. Es wird jedoch allgemein akzeptiert, dass diese Formeln eine gerechte Charakterisierung der fraglichen Metallat-Anionen darstellen. Das Hydrogencarbonat kann oder kann nicht in situ aus Hydroxyl-Anionen oder Carbonat-Anionen durch Reaktion mit Wasser und Kohlendioxid gebildet werden. Der feste Träger, der eine oder mehrere elektropositive Stellen aufweist, umfasst anorganische Träger, beispielsweise Siliziumoxid, Silizium-Aluminium-Oxid, Zeolithe und Harze, die ein quartäres Ammonium-, quartäres Phosphonium-, quartäres Arsonium-, quartäres Stibonium- oder ein quartäres Sulfonium-Kation enthalten, oder einen komplexierenden Makrozyklus, beispielsweise einen Kronenether. Das Kation oder der komplexierende Makrozyklus kann oder kann nicht vom Gerüst des Harzes durch eine Spacer-Gruppe getrennt sein, die geeigneterweise eine Alkylengruppe enthält, die wahlweise ein oder mehrere Sauer-

stoffatome zwischen Methylengruppen enthält. Das Harz kann ein Gerüst aus Polystyrol/Divinylbenzol-Copolymer oder ein auf Siliziumoxid basierendes polymeres Gerüst wie etwa in Polysiloxanen besitzen, oder es kann ein Harz sein, in das quartäre Vinylpyridin-Monomere eingefügt sind. Der Katalysator kann absorbierte Molybdat $[\text{MoO}_4]^{2-}$ oder Hydrogencarbonat-Anionen aufweisen, durch Ionenaustausch von Natriummolybdat oder Natriumhydrogencarbonat auf ein im Handel erhältliches Ionenaustauschharz, beispielsweise Amberjet 4200 (Amberjet ist eine Handelsmarke).

[0096] Der Katalysator kann, wenn er unter den Bedingungen der Reaktion als Feststoff vorliegt, mittels bekannter Verfahren in den dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle eingebracht werden, und anwendbare Verfahren umfassen beispielsweise das Füllen von mindestens einem Teil des dritten Abschnitts zur Bildung eines Festbetts oder das Bedecken von mindestens einem Teil der Wände des dritten Abschnitts mit dem Katalysator, beispielsweise durch Waschbeschichtung. Einige der Verfahren, die das Einbringen eines Epoxidierungskatalysators betreffen, wie sie zuvor dargelegt wurden, können für diese Katalysatoren in einer analogen Weise angewendet werden. In Ausführungsformen, bei denen der Katalysator unter den Bedingungen der Reaktion selbst eine Flüssigkeit ist, kann der Katalysator dem dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle durch den dritten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren dritten Öffnungen zugeführt werden, in geeigneter Weise zusammen mit dem Wasser- und/oder Alkohol-Zustrom. Das molare Verhältnis der Gesamtmenge an Wasser und dem Alkohol zu dem 1,2-Carbonat kann bei weniger als 10, insbesondere im Bereich von 1 bis 8, insbesondere von 1,1 bis 6, beispielsweise von 1,2 bis 4 liegen. Der Zustrom, der dem dritten Abschnitt der Prozessmikrokanäle zugeführt wird, kann eine Gesamtmenge von dem 1,2-Carbonat, Wasser und dem Alkohol von mindestens 60 Gew.-%, insbesondere von mindestens 80 Gew.-%, noch spezieller von mindestens 90 Gew.-%, beispielsweise mindestens 95 Gew.-% bezüglich des Gesamtgewichts des besagten Zustroms umfassen. Der Druck kann im Bereich von 100 bis 5000 kPa, insbesondere im Bereich von 200 bis 3000 kPa, noch spezieller im Bereich von 500 bis 2000 kPa liegen, gemessen am dritten Zufuhrkanal, wie zuvor beschrieben. Die Reaktionsbedingungen können so gewählt werden, dass die Umsetzung des 1,2-Carbonats mindestens 50 Mol-%, insbesondere mindestens 80 Mol-%, noch spezieller mindestens 90 Mol-%, beispielsweise mindestens 95 Mol-% beträgt. Geeignete Alkohole für die Umsetzung des 1,2-Carbonats in das 1,2-Diol können Methanol, Ethanol, Propanol, Isobutanol, 1-Butanol und 2-Butanol sein. Methanol ist ein bevorzugter Alkohol. Gemische von Alkoholen und Gemische aus Wasser und einem oder mehreren Alkoholen können verwen-

det werden. Die Umsetzung von 1,2-Carbonat mit einem oder mehreren Alkoholen liefert im Allgemeinen zusätzlich zu einem 1,2-Diol die Carbonate, die dem einen oder den mehreren Alkoholen entsprechen. Beispielsweise liefert die Umsetzung von Ethylencarbonat mit Methanol im Allgemeinen Ethylenglykol und Dimethylcarbonat. Die Temperatur des Reaktionsgemisches der Epoxidierung, das das Olefinoxid umfasst, kann reguliert werden, bevor das Olefinoxid in den zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle gelangt, so dass das Olefinoxid die gewünschte Temperatur für die Umsetzung in das 1,2-Carbonat annehmen kann. Die Temperatur des Reaktionsgemisches der Carboxylierung, einschließlich des 1,2-Carbonats, kann reguliert werden, bevor das 1,2-Carbonat in den dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle gelangt, so dass das 1,2-Carbonat die gewünschte Temperatur für die Umsetzung in das 1,2-Diol annehmen kann. So können der eine oder die mehreren Prozessmikrokanäle zusätzlich einen ersten Zwischenabschnitt stromabwärts von dem ersten Abschnitt und stromaufwärts von dem zweiten Abschnitt umfassen, wobei der erste Zwischenabschnitt angepasst ist, die Temperatur des Olefinoxids zu regulieren, und einen zweiten Zwischenabschnitt stromabwärts von dem zweiten Abschnitt und stromaufwärts von dem dritten Abschnitt, wobei der zweite Zwischenabschnitt angepasst ist, die Temperatur des 1,2-Carbonats zu regulieren. Insbesondere kann der Reaktor zusätzlich einen oder mehrere vierte Wärmeaustauschkanäle umfassen, die angepasst sind, Wärme mit dem ersten Zwischenabschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen, und einen oder mehrere fünfte Wärmeaustauschkanäle, die angepasst sind, Wärme mit dem zweiten Zwischenabschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen.

[0097] Die 1,2-Diole, beispielsweise Ethylenglykol und 1,2-Propylenglykol, können in einer großen Vielzahl gewerblicher Anwendungen verwendet werden, beispielsweise auf den Gebieten Lebensmittel, Getränke, Tabakwaren, Kosmetika, thermoplastische Polymere, härtbare Harzsysteme, Detergenzien, Wärmeleitssysteme, usw.

[0098] Soweit nichts anderes angegeben ist, haben die hier erwähnten organischen Verbindungen, beispielsweise die Olefine, Alkohole, 1,2-Diole und organischen Halogenide, üblicherweise höchstens 40 Kohlenstoffatome, noch üblicher höchstens 20 Kohlenstoffatome, insbesondere höchstens 10 Kohlenstoffatome, noch spezieller höchstens 6 Kohlenstoffatome. Üblicherweise haben die organischen Verbindungen mindestens ein Kohlenstoffatom. Wie hier definiert, umfassen die Zahlenbereiche der Kohlenstoffatome (d.h. die Anzahl an Kohlenstoffen) die Zahlenwerte, die für die Bereichsgrenzen angegeben sind.

[0099] Das folgende Beispiel soll der Veranschaulichung der Vorteile der vorliegenden Erfindung dienen und ist nicht dazu gedacht, den Umfang der Erfindung in unzulässiger Weise einzuschränken.

Beispiel

[0100] Dieses geplante Beispiel beschreibt, wie eine Ausführungsform dieser Erfindung in die Tat umgesetzt werden kann.

[0101] Ein Mikrokanalreaktor wird Prozessmikrokanäle, erste Wärmeaustauschmikrokanäle, zweite Wärmeaustauschmikrokanäle, dritte Wärmeaustauschmikrokanäle, vierte Wärmeaustauschmikrokanäle, fünfte Wärmeaustauschmikrokanäle, erste Zufuhrkanäle, zweite Zufuhrkanäle und dritte Zufuhrkanäle umfassen. Die Prozessmikrokanäle werden ein stromaufwärts gelegenes Ende, einen ersten Abschnitt, einen ersten Zwischenabschnitt, einen zweiten Abschnitt, einen zweiten Zwischenabschnitt und einen dritten Abschnitt umfassen.

[0102] Der erste Abschnitt wird angepasst sein, Wärme mit einem Wärmeaustauschfluid auszutauschen, das in den ersten Wärmeaustauschmikrokanälen fließt. Ein erster Zufuhrmikrokanal wird im ersten Abschnitt des Prozessmikrokanals durch erste Öffnungen enden. Die ersten Öffnungen werden im ersten Abschnitt zwischen dem stromaufwärts gelegenen Ende des Mikrokanals und bis zwei Drittel der Länge des ersten Abschnitts in ungefähr gleichen Abständen in Stromrichtung liegen, und in senkrechter Richtung werden die Öffnungen in ungefähr gleichen Abständen näherungsweise über die gesamte Breite des Prozessmikrokanals liegen. Zweite Öffnungen werden auf eine ähnliche Weise bezüglich des zweiten Abschnitts liegen und werden die zweiten Zufuhrmikrokanäle mit dem zweiten Abschnitt der Prozessmikrokanäle verbinden. Die dritten Öffnungen werden auf eine ähnliche Weise bezüglich des dritten Abschnitts liegen und werden die dritten Zufuhrmikrokanäle mit dem dritten Abschnitt der Prozessmikrokanäle verbinden. Die zweiten Wärmeaustauschmikrokanäle werden einen Satz von zweiten Wärmeaustauschmikrokanälen umfassen, die angepasst sind, Wärme mit den zweiten Abschnitten auszutauschen, so dass in den zweiten Abschnitten eine ausgewählte Temperatur gehalten wird. Die dritten Wärmeaustauschmikrokanäle werden einen Satz von dritten Wärmeaustauschmikrokanälen umfassen, die angepasst sind, Wärme mit den dritten Abschnitten auszutauschen, so dass in den dritten Abschnitten eine ausgewählte Temperatur gehalten wird. Die vierten Wärmeaustauschmikrokanäle werden zwei Sätze von vierten Wärmeaustauschmikrokanälen umfassen, die dazu angepasst sind, Wärme mit dem ersten Zwischenabschnitt auszutauschen, auf eine Weise, dass in dem stromabwärts gelegenen Teil des ersten Zwischenabschnitts eine geringere Temperatur er-

zielt wird als im stromaufwärts gelegenen Teil des ersten Zwischenabschnitts. Die fünften Wärmeaustauschmikrokanäle werden einen Satz von fünften Wärmeaustauschmikrokanälen umfassen, die angepasst sind, Wärme mit den zweiten Zwischenabschnitten auszutauschen, so dass in den zweiten Zwischenabschnitten eine ausgewählte Temperatur gehalten wird.

[0103] Der erste Abschnitt wird einen Epoxidierungskatalysator umfassen, der gemäß der vorliegenden Erfindung Silber, Rhenium, Wolfram, Cäsium und Lithium, auf einem partikulären Trägermaterial abgeschieden, umfasst. Das partikuläre Trägermaterial wird ein α -Aluminiumoxid sein, das eine Oberfläche von $1,5 \text{ m}^2/\text{g}$, ein Gesamtporenvolumen von $0,4 \text{ ml/g}$ und eine Porengrößenverteilung aufweist, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von $0,2$ bis $10 \text{ }\mu\text{m}$ 95% des Gesamtporenvolumens darstellen, und dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von $0,3$ bis $10 \text{ }\mu\text{m}$ mehr als 92% des Porenvolumens darstellen, das in den Poren mit einem Durchmesser im Bereich von $0,2$ bis $10 \text{ }\mu\text{m}$ enthalten ist.

[0104] Der Mikrokanalreaktor wird gemäß Verfahren zusammengebaut, die aus WO-A-2004/099113 und darin zitierten Literaturstellen bekannt sind. Das Trägermaterial wird an den Wänden des ersten Abschnitts der Prozessmikrokanäle durch Waschbeschichtung abgeschieden. Danach werden die Prozessmikrokanäle zusammengebaut und nach dem Zusammenbau werden Silber, Rhenium, Wolfram, Cäsium und Lithium auf dem Trägermaterial unter Verwendung von Verfahren abgeschieden, wie sie als solche aus US-A-5380697 bekannt sind.

[0105] Als Alternative wird der Mikrokanalreaktor ohne vorherige Waschbeschichtung zusammengebaut und nach dem Zusammenbau wird der erste Abschnitt mit einem partikulären Epoxidierungskatalysator gefüllt, der durch Mahlen und Sieben eines im Handel erhältlichen HS-PLUS-Epoxidierungskatalysators hergestellt wird, der von CRI Catalyst Company, Houston, Texas, USA erhalten werden kann.

[0106] In jeder dieser Alternativen wird der erste Abschnitt durch Wärmeaustausch mit dem Wärmeaustauschfluid, das in dem ersten Wärmeaustauschmikrokanal fließt, auf $220 \text{ }^\circ\text{C}$ erhitzt, während Ethylen durch eine Öffnung zugeführt wird, die am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle liegt. Ein Gemisch aus Sauerstoff und Ethylchlorid (3 Volumenteile pro Million) wird durch die Zufuhrkanäle zugeführt. Das molare Verhältnis von Sauerstoff zu Ethylen wird $1 : 1$ betragen. Das den ersten Abschnitt verlassende und in den ersten Zwischenabschnitt der Prozessmikrokanäle gelangende Gemisch wird im ersten Zwischenabschnitt in zwei Schritten abgeschreckt, anfangs auf eine Temperatur von $150 \text{ }^\circ\text{C}$

und nachfolgend auf eine Temperatur von 80 °C. Die Temperatur und die Zufuhrate von dem Ethylen und Sauerstoff werden so eingestellt, dass die Umsetzung von Ethylen 97 Mol-% beträgt. Anschließend wird die Menge an Ethylchlorid im Gemisch aus Sauerstoff und Ethylchlorid so eingestellt, dass die Selektivität für Ethylenoxid optimiert ist.

[0107] Das abgeschreckte, Ethylenoxid umfassende Gemisch, das den ersten Zwischenabschnitt verlässt und in den zweiten Abschnitt gelangt, wird im zweiten Abschnitt mit Kohlendioxid in Gegenwart einer 1 Gew.-%igen wässrigen Lösung von Methyltributylphosphoniumiodid reagieren, um Ethylenoxid in Ethylencarbonat umzusetzen. Die wässrige Methyltributylphosphoniumiodid-Lösung und Kohlendioxid werden durch die zweiten Öffnungen in den zweiten Abschnitt gelangen. Das molare Verhältnis von Kohlendioxid zu Ethylenoxid wird 1,5 : 1 betragen. Die Temperatur im zweiten Abschnitt wird durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid, das im zweiten Wärmeaustauschmikrokanal fließt, bei 80 °C gehalten.

[0108] Das Ethylencarbonat umfassende Reaktionsgemisch, das den zweiten Abschnitt verlässt und in den zweiten Zwischenabschnitt gelangt, wird im zweiten Zwischenabschnitt durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid, das in dem fünften Wärmeaustauschmikrokanal fließt, auf 90 °C erhitzt. Nachfolgend wird das Reaktionsgemisch, das Ethylencarbonat umfasst, im dritten Abschnitt mit Wasser in Gegenwart einer 1 Gew.-%igen wässrigen Lösung von Kaliumhydroxid reagieren, um Ethylencarbonat in Ethylenglykol umzusetzen. Die wässrige Kaliumhydroxid-Lösung wird durch die dritten Öffnungen in den dritten Abschnitt gelangen. Das molare Verhältnis von Wasser zu Ethylencarbonat wird 2 : 1 betragen. Die Temperatur im zweiten Abschnitt wird durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid, das im dritten Wärmeaustauschmikrokanal fließt, bei 90 °C gehalten.

[0109] Das Reaktionsprodukt, das Ethylenglykol umfasst, kann getrennt und gereinigt werden.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung eines 1,2-Diols, wobei das Verfahren umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, der in einem ersten Abschnitt von einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors enthalten ist, um ein Olefinoxid zu bilden,
- die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid in einem zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt, um ein 1,2-Carbonat zu bilden,

und

- die Umsetzung des 1,2-Carbonats mit Wasser oder einem Alkohol in einem dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle, der stromabwärts von dem zweiten Abschnitt liegt, um das 1,2-Diol zu bilden.

2. Verfahren wie in Anspruch 1 beansprucht, wobei der Epoxidierungskatalysator ein Metall der Gruppe 11 in einer Menge von 50 bis 500 g/kg bezüglich des Gewichts des Katalysators umfasst.

3. Verfahren wie in Anspruch 1 oder 2 beansprucht, wobei der Epoxidierungskatalysator Silber umfasst, das in einem Trägermaterial abgeschieden ist.

4. Verfahren wie in Anspruch 3 beansprucht, wobei der Katalysator als Promotorkomponente(n) ein oder mehrere Elemente umfasst, die ausgewählt sind aus Rhenium, Wolfram, Molybdän, Chrom und deren Gemischen, und zusätzlich ein oder mehrere Alkalimetalle, die ausgewählt sind aus Lithium, Kalium und Cäsium.

5. Verfahren wie in Anspruch 3 oder 4 beansprucht, wobei das Trägermaterial ein Aluminiumoxid ist, das eine Oberfläche von mindestens 0,3 m²/g und höchstens 10 m²/g bezüglich des Gewichts des Trägers hat, und eine Porengrößenverteilung aufweist, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm mehr als 80 % des Gesamtporenvolumens darstellen.

6. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-5 beansprucht, wobei der Zustrom das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von mindestens 50 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms umfasst.

7. Verfahren wie in Anspruch 6 beansprucht, wobei der Zustrom das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von 80 bis 99,5 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms umfasst.

8. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-7 beansprucht, wobei der Zustrom gesättigte Kohlenwasserstoffe in einer Menge von höchstens 5 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms umfasst, und der Zustrom Inertgase in einer Menge von höchstens 5 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms umfasst.

9. Verfahren wie in Anspruch 8 beansprucht, wobei die Menge an gesättigten Kohlenwasserstoffen höchstens 2 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms beträgt und die Menge an Inertgasen höchstens 2 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms beträgt.

10. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-9 beansprucht, wobei dieses Verfahren zusätzlich das

Abschrecken des Olefinoxids in einem ersten Zwischenabschnitt umfasst, der stromabwärts von einem ersten Abschnitt und stromaufwärts von einem zweiten Abschnitt liegt.

11. Verfahren wie in Anspruch 10 beansprucht, wobei das Abschrecken die Verringerung der Temperatur des ersten Gemisches auf eine Temperatur im Bereich von 20 bis 200 °C umfasst.

12. Verfahren wie in Anspruch 10 oder 11 beansprucht, wobei das Verfahren das Abschrecken durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid umfasst.

13. Verfahren wie in einem der Ansprüche 10-12 beansprucht, wobei das Verfahren das Abschrecken in mehr als einem Schritt durch Wärmeaustausch mit einer Mehrzahl von Wärmeaustauschfluiden umfasst, die verschiedene Temperaturen haben.

14. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-13 beansprucht, wobei das Verfahren die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid umfasst, wobei ein molares Verhältnis von Kohlendioxid zu dem Olefinoxid von höchstens 10 eingesetzt wird.

15. Verfahren wie in Anspruch 14 beansprucht, wobei das molare Verhältnis im Bereich von 1 bis 8 liegt.

16. Verfahren wie in Anspruch 15 beansprucht, wobei das molare Verhältnis im Bereich von 1,1 bis 6 liegt.

17. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-16 beansprucht, wobei das Verfahren die katalytische Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid bei einer Temperatur im Bereich von 30 bis 200 °C und bei einem Druck im Bereich von 500 bis 3500 kPa, gemessen am zweiten Zufuhrkanal, umfasst.

18. Verfahren wie in Anspruch 17 beansprucht, wobei die Temperatur im Bereich von 50 bis 150 °C liegt.

19. Verfahren wie in Anspruch 17 oder 18 beansprucht, wobei die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid die Umsetzung des Olefinoxids in Gegenwart eines Katalysators umfasst, der ausgewählt ist aus

– Harzen, die quartäre Phosphoniumhalogenid-Gruppen oder quartäre Ammoniumhalogenid-Gruppen auf einer Styrol/Divinylbenzol-Copolymermatrix umfassen;

– Katalysatoren, die ein Metallsalz umfassen, das in einem festen Träger immobilisiert ist, wobei das Metallsalz ein Kation eines Metalls umfasst, das ausgewählt ist aus jenen der dritten Periode und Gruppe 2, der vierten Periode und den Gruppen 2 und 4-12, der

fünften Periode und den Gruppen 2, 4-7, 12 und 14, und der sechsten Periode und den Gruppen 2 und 4-6 des Periodensystems der Elemente, und wobei der Träger ein quartäres Ammonium-, quartäres Phosphonium-, quartäres Arsonium-, quartäres Stibonium- oder ein quartäres Sulfonium-Kation enthält, wobei das Kation von dem Gerüst des Trägers durch eine Spacer-Gruppe der allgemeinen Formel $-(\text{CH}_2-\text{O})_m(\text{CH}_2)_n-$ getrennt sein kann oder auch nicht, wobei m und n ganze Zahlen sind, mit n höchstens 10, wenn m 0 ist, und n zwischen 1 und 8, wenn m 1 ist;

– quartären Phosphoniumhalogeniden, quartären Ammoniumhalogeniden und Metallhalogeniden;
– Katalysatoren, die eine organische Base umfassen, die mit einem Halogenwasserstoff neutralisiert ist, wobei die organische Base einen pK_a -Wert größer als 8 hat und eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält; und

– Katalysatoren, die 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, einer organischen Base, und 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, des Salzes der organischen Base und eines Halogenwasserstoffs, umfassen, wobei die organische Base eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält, und die einen pK_a -Wert hat, der hoch genug ist, dass sie in der Lage ist, Kohlendioxid unter den Reaktionsbedingungen zu binden.

20. Verfahren wie in Anspruch 19 beansprucht, wobei

– das Metallsalz ein Metallsalz ist, das ausgewählt ist aus Halogeniden, Acetaten, Lauraten, Nitraten und Sulfaten von einem oder mehreren, die ausgewählt sind aus Magnesium, Calcium, Zink, Kobalt, Nickel, Mangan, Kupfer und Zinn, oder

– der feste Träger zum Immobilisieren des Metallsalzes ausgewählt ist aus einem Silizium-Aluminium-Oxid, einem Zeolith, einem Harz mit einem Gerüst aus Polystyrol/Divinylbenzol-Copolymer, einem auf Siliziumoxid basierenden polymeren Gerüst, und einem Harz, in das quartäre Vinylpyridin-Monomere eingefügt sind; oder

– der Katalysator Methyltributylphosphoniumiodid ist; oder

– die organische Base ausgewählt ist aus 2-tert-Butylimino-2-diethylamino-1,3-dimethylperhydro-1,3,2-diazaphosphorin, als solches oder auf Polystyrol, 1,1,3,3-Tetramethylguanidin und Triethanolamin.

21. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-20 beansprucht, wobei das Verfahren die Umsetzung des 1,2-Carbonats mit Wasser oder einem Alkohol in Gegenwart eines Katalysators umfasst, der ausgewählt ist aus

– basischen anorganischen Verbindungen;

- basischen feuerfesten Oxiden;
- basischen Zeolithen; und
- Metallaten oder Hydrogencarbonat, die auf einem festen Träger immobilisiert sind, der eine oder mehrere elektropositive Stellen aufweist, wobei das Metallat ein Metalloxid-Anion eines polyvalenten Metalls ist, das eine funktionelle positive Oxidationsstufe von mindestens +3 hat.

22. Verfahren wie in Anspruch 21 beansprucht, wobei

- die basischen anorganischen Verbindungen ausgewählt sind aus Hydroxiden von Alkalimetallen, Erdalkalimetallen und Metallen, die ausgewählt sind aus den Gruppen 3-12 des Periodensystems der Elemente; oder
- die basischen feuerfesten Oxide ausgewählt sind aus basischen Aluminiumoxiden; oder
- das polyvalente Metall ausgewählt ist aus den Gruppen 5 und 6 des Periodensystems; oder
- der feste Träger, der eine oder mehrere elektropositive Stellen aufweist, ausgewählt ist aus anorganischen Trägern und aus Harzen, die ein quartäres Ammonium-, quartäres Phosphonium-, quartäres Arsonium-, quartäres Stibonium- oder ein quartäres Sulfonium-Kation enthalten, oder einen komplexierenden Makrozyklus, wobei das Kation oder der komplexierende Makrozyklus vom Gerüst des Harzes durch eine Spacer-Gruppe getrennt sein kann, die eine Alkylengruppe enthält, welche wahlweise ein oder mehrere Sauerstoffatome zwischen Methylengruppen enthalten kann.

23. Verfahren wie in Anspruch 22 beansprucht, wobei

- die Alkalimetalle ausgewählt sind aus Lithium, Natrium und Kalium; oder
- die Erdalkalimetalle ausgewählt sind aus Calcium und Magnesium; oder
- die Metalle aus den Gruppen 3-12 des Periodensystems der Elemente ausgewählt sind aus Zirkonium und Zink; oder
- das polyvalente Metall ausgewählt ist aus Wolfram, Vanadium und Molybdän; oder
- der feste Träger, der eine oder mehrere elektropositive Stellen aufweist, ausgewählt ist aus anorganischen Trägern, die Siliziumoxid, Silizium-Aluminium-Oxid, Zeolithe umfassen, und Harzen, die ein quartäres Ammonium-, quartäres Phosphonium-, quartäres Arsonium-, quartäres Stibonium- oder ein quartäres Sulfonium-Kation enthalten, oder einen komplexierenden Makrozyklus, der ein Kronenether ist, wobei die Harze ein Gerüst aus Polystyrol/Divinylbenzol-Copolymer oder ein auf Siliziumoxid basierendes polymeres Gerüst aufweisen, oder in das quartäre Vinylpyridin-Monomere eingefügt sind.

24. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-23 beansprucht, wobei das Verfahren die Umsetzung des 1,2-Carbonats mit Wasser oder einem Alkohol in

einem molaren Verhältnis der Summe von Wasser und dem Alkohol zu dem Olefinoxid von höchstens 10 umfasst.

25. Verfahren wie in Anspruch 24 beansprucht, wobei das molare Verhältnis im Bereich von 1 bis 8 liegt.

26. Verfahren wie in Anspruch 25 beansprucht, wobei das molare Verhältnis im Bereich von 1,1 bis 6 liegt.

27. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-26 beansprucht, wobei das Verfahren die katalytische Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid bei einer Temperatur im Bereich von 50 bis 250 °C und bei einem Druck im Bereich von 200 bis 3000 kPa, gemessen am zweiten Zufuhrkanal, umfasst.

28. Verfahren wie in Anspruch 27 beansprucht, wobei die Temperatur im Bereich von 80 bis 200 °C liegt, und bei einem Druck im Bereich von 500 bis 2000 kPa, gemessen am zweiten Zufuhrkanal.

29. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1-28 beansprucht, wobei der Alkohol ausgewählt ist aus Methanol, Ethanol, Propanol, Isopropanol, 1-Butanol und 2-Butanol.

30. Verfahren zur Herstellung eines 1,2-Diols, wobei das Verfahren die Umsetzung von 1,2-Carbonat mit Wasser oder einem Alkohol in einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors umfasst, um das 1,2-Diol zu bilden.

31. Reaktor, der zur Herstellung eines 1,2-Diols geeignet ist, wobei dieser Reaktor ein Mikrokanalreaktor ist, umfassend

- einen oder mehrere Prozessmikrokanäle, umfassend
- ein stromaufwärts gelegenes Ende,
- ein stromabwärts gelegenes Ende,
- einen ersten Abschnitt, der angepasst ist, einen Epoxidierungskatalysator zu enthalten, einen Zustrom, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, aufzunehmen und die Umsetzung von mindestens einem Teil des Zustroms zu bewirken, um ein Olefinoxid in Gegenwart des Epoxidierungskatalysators zu bilden,
- einen zweiten Abschnitt, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt, und der angepasst ist, das Olefinoxid aufzunehmen, Kohlendioxid aufzunehmen und die Umsetzung des Olefinoxids zu bewirken, um ein 1,2-Carbonat zu bilden, und
- einen dritten Abschnitt, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt, und der angepasst ist, das 1,2-Carbonat aufzunehmen, Wasser oder einen Alkohol aufzunehmen und die Umsetzung des 1,2-Carbonats zu bewirken, um ein 1,2-Diol zu bilden.

32. Reaktor wie in Anspruch 31 beansprucht, wobei der Reaktor zusätzlich umfasst einen oder meh-

rere erste Wärmeaustauschkanäle, die angepasst sind, Wärme mit dem ersten Abschnitt der Prozessmikrokanäle auszutauschen, einen oder mehrere zweite Wärmeaustauschkanäle, die angepasst sind, Wärme mit dem zweiten Abschnitt der Prozessmikrokanäle auszutauschen, und einen oder mehrere dritte Wärmeaustauschkanäle, die angepasst sind, Wärme mit dem dritten Abschnitt der Prozessmikrokanäle auszutauschen.

33. Reaktor wie in Anspruch 31 oder 32 beansprucht, wobei der Reaktor zusätzlich umfasst einen ersten Zwischenabschnitt, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt und stromaufwärts von dem zweiten Abschnitt liegt, wobei der erste Zwischenabschnitt angepasst ist, die Temperatur des Olefinoxids zu regulieren, und einen zweiten Zwischenabschnitt, der stromabwärts von dem zweiten Abschnitt und stromaufwärts von dem dritten Abschnitt liegt, wobei der zweite Zwischenabschnitt angepasst ist, die Temperatur des 1,2-Carbonats zu regulieren.

34. Reaktor wie in Anspruch 33 beansprucht, wobei der Reaktor zusätzlich umfasst einen oder mehrere vierte Wärmeaustauschkanäle, die angepasst sind, Wärme mit dem ersten Zwischenabschnitt der Prozessmikrokanäle auszutauschen, und einen oder mehrere fünfte Wärmeaustauschkanäle, die angepasst sind, Wärme mit dem zweiten Zwischenabschnitt der Prozessmikrokanäle auszutauschen.

35. Reaktor wie in einem der Ansprüche 31-34 beansprucht, wobei der zweite Abschnitt und der dritte Abschnitt zusätzlich angepasst sind, einen Katalysator zu enthalten.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

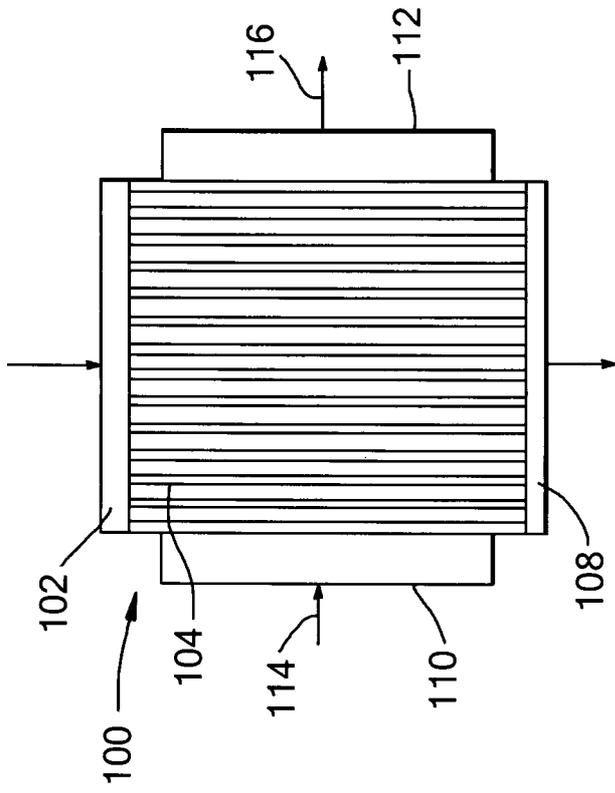


Fig. 1

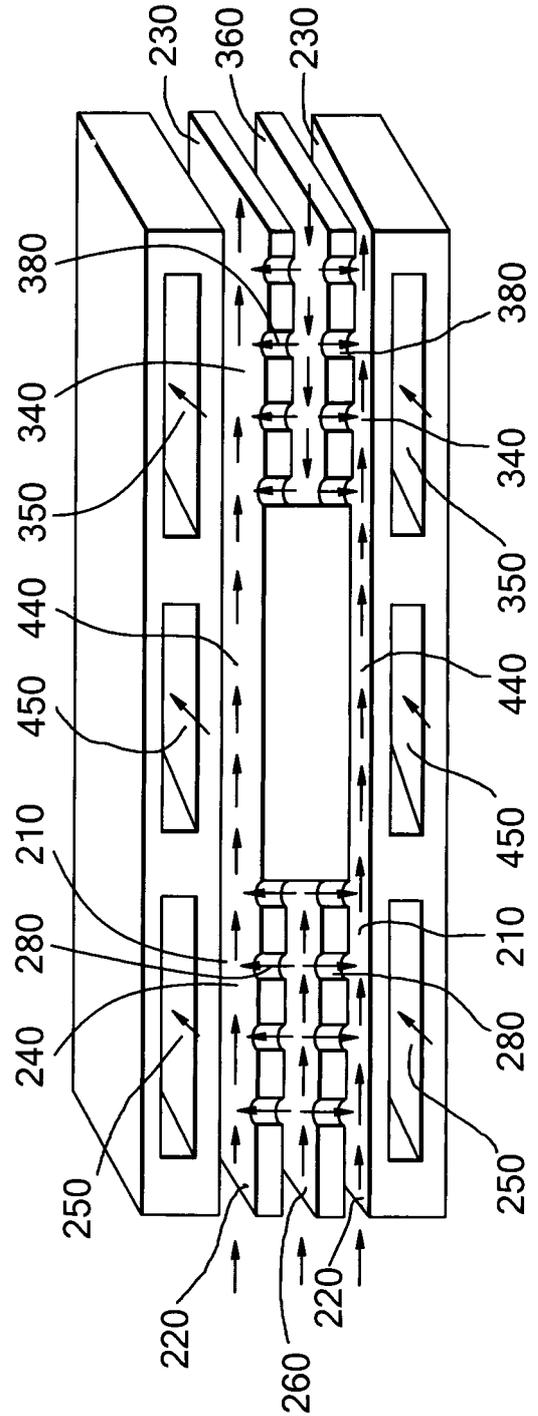


Fig. 2