

19



Octrooi­centrum
Nederland

11 2000388

12 C OCTROOI²⁰

21 Aanvraag om octrooi: 2000388

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

22 Ingediend: 20.12.2006

30 Voorrang:
22.12.2005 US 60/752974

73 Octrooi­houder(s):
SHELL INTERNATIONALE RESEARCH
MAATSCHAPPIJ B.V. te Den Haag.

41 Ingeschreven:
25.06.2007 I.E. 2007/09

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

47 Dagtekening:
24.10.2007

45 Uitgegeven:
03.12.2007 I.E. 2007/12

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

54 Werkwijze ter bereiding van een olefineoxide of een chemisch product dat van een olefineoxide kan worden afgeleid.

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

NL C 2000388

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

WERKWIJZE TER BEREIDING VAN EEN OLEFINEOXIDE OF EEN CHEMISCH PRODUCT DAT VAN EEN OLEFINEOXIDE KAN WORDEN AFGELEID

Terrein van de uitvinding

De uitvinding heeft betrekking op een werkwijze voor de epoxidering van een olefine. De uitvinding heeft tevens betrekking op een werkwijze ter bereiding van een chemisch product dat van een olefineoxide kan worden afgeleid. In het bijzonder kan
5 een dergelijk chemisch product een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine zijn.

Achtergrond van de uitvinding

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

20 Bij olefine-epoxidatie wordt een voeding die de olefine en zuurstof bevat over een katalysatorbed gevoerd dat in een reactiezone zit die op bepaalde reactieomstandigheden wordt gehouden. Een commerciële epoxideringsreactor is over het algemeen in de vorm van een mantel-en-buiswarmtewisselaar waarin een veelvoud van in hoofdzaak evenwijdige, langwerpige, relatief nauwe buizen is gevuld
25 met vormgegeven katalysatordeeltjes teneinde een gepakt bed te vormen en waarin de mantel een koelmiddel bevat. Ongeacht het type epoxideringskatalysator dat wordt gebruikt, ligt bij commercieel bedrijf de inwendige buisdiameter dikwijls in het gebied van 20 tot 40 mm en kan het aantal buizen per reactor in de duizenden lopen, bijvoorbeeld tot wel 12.000.

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

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

Tijdens het epoxideren is de katalysator onderhevig aan een prestatiedaling die tot uiting komt in verlies van werkzaamheid en selectiviteit van de katalysator bij de vorming van het gewenste olefineoxide. Naar aanleiding van het werkzaamheidsverlies kan de temperatuur van de epoxidatiereactie zodanig worden verhoogd dat de productiesnelheid van het olefineoxide in stand wordt gehouden. Het bedrijf van commerciële reactoren is normaliter ten aanzien van de reactietemperatuur begrensd en wanneer de desbetreffende temperatuurlimiet is bereikt, moet de productie van het olefineoxide worden onderbroken om de bestaande lading epoxideringskatalysator door een verse te vervangen.

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

Samenvatting van de uitvinding

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

In een bepaalde uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een werkwijze voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijze het in reactie brengen omvat van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van een epoxideringskatalysator die in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor zit en het toepassen van zodanige omstandigheden voor het in reactie brengen van de voeding dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is.

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

- in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van een epoxideringskatalysator die in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor zit, onder vorming van een olefineoxide, en toepassen van zodanige omstandigheden voor het in reactie brengen van de voeding dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is, en
- omzetten van het olefineoxide met water, een alcohol, kooldioxide of een amine teneinde het 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine te vormen.

Beschrijving van de tekeningen

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

FIG. 2 is een schematische afbeelding van een typisch voorbeeld van een repeterende eenheid die procesmicrokanalen en warmtewisselingskanalen omvat,

alsmede van de werking daarvan bij gebruik bij de uitvoering van de uitvinding. Een microkanaalreactor volgens deze uitvinding kan een aantal van dergelijke repeterende eenheden omvatten.

Gedetailleerde beschrijving van de uitvinding

- 5 Het gebruik van een microkanaalreactor volgens deze uitvinding leidt tot een of meer van de volgende voordelen:
- de in procesmicrokanalen uitgevoerde epoxidering maakt bedrijf bij een hoog omzettingsniveau van zuurstof of het olefineoxide mogelijk. Vooral wanneer de werkwijze bij een hoog olefineomzettingsniveau wordt uitgevoerd, heeft het
 - 10 voordelen om de epoxideringswerkwijze als procédé met één passage te bedrijven, wat inhoudt dat geen hercirculeringsstroom wordt toegepast. Bovendien is het voordeel dat in een dergelijk geval lucht aan de procesmicrokanalen kan worden toegevoerd in plaats van zuurstof die van lucht is afgesplitst, hetgeen de noodzaak van een luchtscheidingseenheid kan wegnemen.
 - 15 - afschrikken van het olefineoxide in het procesmicrokanaal maakt bedrijf mogelijk onder omstandigheden die binnen explosiegrenzen kunnen liggen wanneer dergelijke omstandigheden in een conventionele mantel-en-buiswarmtewisselaarreactor zouden worden toegepast. Dergelijke omstandigheden kunnen worden bereikt door een zuurstofrijke voedingscomponent in de procesmicrokanalen in aanraking te brengen
 - 20 met een olefinenrijke voedingscomponent, welke zuurstofrijke voedingscomponent en olefinenrijke voedingscomponent normaliter buiten de explosiegrenzen liggen. Afschrikken in de procesmicrokanalen vermindert tevens de vorming van nevenproducten zoals aldehyden en carbonzuren.
 - uitvoeren van de olefine-epoxidatie in de procesmicrokanalen biedt de mogelijkheid
 - 25 tot afschrikken in die procesmicrokanalen en omzetten van het mede gevormde kooldioxide met ten minste een deel van het geproduceerde olefineoxide, en naar keuze condenseren van een vloeibaar, meestal waterig mengsel dat niet-omgezet olefineoxide en het 1,2-carbonaat omvat. Wat betreft samenstelling, is een resterende gasvormige stroom die niet-omgezette etheen en zuurstof kan omvatten, geschikt voor
 - 30 hercirculering. Dit kan de complexiteit van de verdere verwerking van product- en hercirculeringsstromen verminderen, waardoor de noodzaak van bijvoorbeeld een terugwinningseenheid voor olefineoxide en een kooldioxideverwijderingseenheid wordt weggenomen.

- de epoxidering in de procesmicrokanalen kan met voordeel worden uitgevoerd onder omstandigheden van hoge totale concentratie van de olefine, de zuurstof en het olefineoxide, hetgeen tot een hogere epoxidatiesnelheid en/of lagere temperatuur van de epoxidatiereactie kan leiden. Verlaging van de temperatuur van de

5 epoxidatiereactie kan tot verbeterde selectiviteit en verbeterde levensduur van de katalysator leiden. Toepassing van omstandigheden van hoge totale concentratie van de olefine, de zuurstof en het olefineoxide kan tevens de noodzaak van het gebruik van een ballastgas wegnemen, wat efficiëntere verwerking en verlaging van de hercircularingskosten oplevert.

10 - uitvoeren van de olefine-epoxidatie in de procesmicrokanalen biedt de mogelijkheid tot omzetten in die procesmicrokanalen van het gevormde olefineoxide tot 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine. Dit kan de noodzaak van additionele reactoren voor die verdere omzetting wegnemen. Ook kan het de noodzaak van een terugwinningseenheid voor olefineoxide en/of een kooldioxideverwijderingseenheid

15 wegnemen en de noodzaak van warmtewisselingsapparatuur verminderen. Het kan derhalve de complexiteit van de conventioneel in een vervaardigingsinstallatie toegepaste, additionele verwerking, bijvoorbeeld ten behoeve van productterugwinning, verminderen. Omzetting van het olefineoxide in de procesmicrokanalen vermindert tevens de vorming van nevenproducten zoals

20 aldehyden en carbonzuren.

Voor gebruik bij deze uitvinding geschikte microkanaalreactoren en hun bedrijf worden beschreven in WO-A-2004/099113, WO-A-01/12312, WO-01/54812, US-A-6440895, US-A-6284217, US-A-6451864, US-A-6491880, US-A-6666909, US-6811829, US-A-6851171, US-A-6494614, US-A-6228434 en US-A-6192596, die

25 door verwijzing hierin zijn opgenomen. Methoden waarmee de microkanaalreactor kan worden vervaardigd, met katalysator worden geladen en worden bedreven, zoals die in deze literatuur worden beschreven, kunnen in het algemeen toepasbaar zijn bij de uitvoering van de onderhavige uitvinding.

Onder verwijzing naar FIG. 1 kan microkanaalreactor 100 een procesingang

30 102, een veelvoud van procesmicrokanalen 104 en een procesuitgang 108 omvatten. De procesingang 102 verschaft een doorgang waardoor fluïdum de procesmicrokanalen 104 kan instromen. De procesuitgang 108 verschaft een doorgang waardoor fluïdum de procesmicrokanalen 104 kan uitstromen.

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

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

De microkanaalreactor 100 omvat daarnaast warmtewisselingskanalen (niet
15 afgebeeld in FIG. 1) die in warmtewisselingscontact met de procesmicrokanalen 104 staan. De warmtewisselingskanalen kunnen eveneens microkanalen zijn. De microkanaalreactor is zodanig ingericht dat warmtewisselingsfluidum vanuit warmtewisselingsingang 110 door de warmtewisselingskanalen naar warmtewisselingsuitgang 112 kan stromen. De warmtewisselingskanalen kunnen
20 worden uitgelijnd teneinde een stroming in gelijkstroomse, tegenstroomse of, bij voorkeur, dwarsstroomrichting ten opzichte van een stroming in de procesmicrokanalen 104 te verschaffen. De dwarsstroomrichting is zoals aangegeven door pijlen 114 en 116.

De warmtewisselingskanalen kunnen ten minste een inwendige hoogte- of
25 breedtedimensie van ten hoogste 15 mm hebben, bijvoorbeeld 0,05 tot 10 mm, in het bijzonder 0,1 tot 5 mm, meer in het bijzonder 0,5 tot 2 mm. De andere inwendige hoogte- of breedtedimensie kan bijvoorbeeld 0,1 tot 100 cm, in het bijzonder 0,2 tot 75 cm, meer in het bijzonder 0,3 tot 50 cm zijn. De lengte van de warmtewisselingskanalen kan bijvoorbeeld 1 tot 500 cm, in het bijzonder 2 tot
30 300 cm, meer in het bijzonder 3 tot 200 cm of 5 tot 100 cm zijn.

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

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

Procesingang 102, procesuitgang 108, warmtewisselingsingang 110, warmtewisselingsuitgang 112, procesmicrokanalen 104 en warmtewisselingskanalen kunnen onafhankelijk van elkaar van elk constructiemateriaal zijn gemaakt dat voldoende sterkte, dimensionale stabiliteit en warmteoverdrachtseigenschappen
15 verschaft om bedrijf van de werkwijzen volgens deze uitvinding mogelijk te maken. Geschikte constructiematerialen zijn bijvoorbeeld staal (bijvoorbeeld roestvrij staal en koolstofstaal), monel, titaan, koper, glas en polymeercomposities. Het soort warmtewisselingsfluidum is niet essentieel voor de onderhavige uitvinding en het warmtewisselingsfluidum kan uit een grote verscheidenheid worden geselecteerd.
20 Geschikte warmtewisselingsfluida zijn onder meer stoom, water, lucht en oliën. In uitvoeringsvormen van de uitvinding die onder meer een aantal stellen warmtewisselingskanalen omvatten, kunnen dergelijke stellen warmtewisselingskanalen met verschillende warmtewisselingsfluida of met warmtewisselingsfluida van verschillende temperaturen werken.

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

30 Procesmicrokanalen 210 hebben een stroomopwaarts uiteinde 220 en een stroomafwaarts uiteinde 230 en kunnen een eerste sectie 240 omvatten die een katalysator (niet in de tekening opgenomen), bijvoorbeeld een epoxideringskatalysator, kan bevatten. Eerste sectie 240 kan in warmtewisselingscontact met eerste warmtewisselingskanaal 250 staan, waardoor

warmtewisseling tussen eerste sectie 240 van procesmicrokanaal 210 en eerste warmtewisselingskanaal 250 mogelijk is. De repeterende eenheid kan eerste voedingskanaal 260 omvatten dat door een of meer eerste openingen 280 uitkomt in eerste sectie 240. Meestal kunnen een of meer eerste openingen 280 stroomafwaarts ten opzichte van een andere eerste opening 280 worden geplaatst. Tijdens bedrijf kan voeding die de olefine en zuurstof omvat eerste sectie 240 van procesmicrokanaal 210 ingaan door een opening in stroomopwaarts uiteinde 220 en/of door eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280.

Procesmicrokanalen 210 kunnen een tweede sectie 340 omvatten die al dan niet is ingericht om een katalysator te bevatten. Tweede sectie 340 kan al dan niet een katalysator zoals hierin beschreven, bevatten. Tweede sectie 340 is stroomafwaarts van eerste sectie 240 geplaatst. Tweede sectie 340 kan in warmtewisselingscontact met tweede warmtewisselingskanaal 350 staan, waardoor warmtewisseling tussen tweede sectie 340 van procesmicrokanaal 210 en tweede warmtewisselingskanaal 350 mogelijk is. In sommige uitvoeringsvormen is tweede sectie 340 ingericht voor het afschrikken door warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum in tweede warmtewisselingskanaal 350 van in eerste sectie 240 verkregen en daaruit ontvangen olefineoxide. Afschrikken kan in een of meer fasen worden bereikt door de aanwezigheid van een aantal tweede warmtewisselingskanalen 350, bijvoorbeeld twee of drie of vier. Een dergelijk aantal tweede warmtewisselingskanalen 350 kan zijn ingericht om warmtewisselingsfluida van verschillende temperaturen te bevatten, in het bijzonder zodanig dat in stroomafwaartse richting van tweede sectie 340 warmtewisseling plaatsvindt met een tweede warmtewisselingskanaal 350 dat een warmtewisselingsfluidum met een lagere temperatuur bevat. De repeterende eenheid kan tweede voedingskanaal 360 omvatten dat door een of meer tweede openingen 380 uitkomt in tweede sectie 340. Tijdens bedrijf kan van stroomopwaarts afkomstige voeding in procesmicrokanaal 210 en door tweede voedingskanaal 360 en een of meer tweede openingen 380 tweede sectie 340 binnentreden. Meestal kunnen een of meer tweede openingen 380 stroomafwaarts ten opzichte van een andere tweede opening 380 worden geplaatst. In uitvoeringsvormen waarin tweede sectie 340 is ingericht om daarin omzetting van olefineoxide in 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine te laten plaatsvinden, kan voeding die tijdens bedrijf door tweede voedingskanaal 360 en een of meer tweede openingen 380 binnenkomt, water, de

alcohol, kooldioxide of de amine omvatten. Ook kan katalysator door tweede voedingskanaal 360 en een of meer tweede openingen 380 worden toegevoerd. Desgewenst kan een afzonderlijk stel van tweede voedingskanalen (niet in de tekening opgenomen) met een of meer tweede openingen (niet in de tekening opgenomen) aanwezig zijn om afzonderlijke toevoer van voeding en katalysator mogelijk te maken.

De eerste en tweede voedingskanalen 260 of 360, in combinatie met eerste en tweede openingen 280 of 380, waarbij een of meer eerste of tweede openingen 280 of 380 stroomafwaarts zijn geplaatst van een andere eerste of tweede opening 280 of respectievelijk 380, maken bijvullen van een reactiestof mogelijk. Bijvullen van een reactiestof is een kenmerk van sommige uitvoeringsvormen van deze uitvinding.

Procesmicrokanalen 210 kunnen een tussensectie 440 omvatten, die stroomafwaarts van eerste sectie 240 en stroomopwaarts van tweede sectie 340 is geplaatst. Tussensectie 440 kan in warmtewisselingscontact met derde warmtewisselingskanaal 450 staan, waardoor warmtewisseling tussen tussensectie 440 van procesmicrokanaal 210 en derde warmtewisselingskanaal 450 mogelijk is. In sommige uitvoeringsvormen, bijvoorbeeld in uitvoeringsvormen waarin tweede sectie 340 is ingericht om daarin omzetting van olefineoxide in 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine te laten plaatsvinden, is tussensectie 440 ingericht voor het afschrikken door warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum in derde warmtewisselingskanaal 450 van in eerste sectie 240 verkregen en daaruit ontvangen olefineoxide. Afschrikken kan door de aanwezigheid van een aantal derde warmtewisselingskanalen 450 in fasen worden bereikt, bijvoorbeeld twee of drie of vier. Een dergelijk aantal derde warmtewisselingskanalen 450 kan zijn ingericht om warmtewisselingsfluida van verschillende temperaturen te bevatten, in het bijzonder zodanig dat in stroomafwaartse richting van tussensectie 440 warmtewisseling plaatsvindt met een derde warmtewisselingskanaal 450 dat een warmtewisselingsfluidum met een lagere temperatuur bevat.

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

voedingskanalen kan bijvoorbeeld 1 tot 250 cm zijn, in het bijzonder 2 tot 150 cm en meer in het bijzonder 3 tot 100 cm of 5 tot 50 cm.

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

De microkanaalreactor volgens deze uitvinding kan met gebruikmaking van bekende technieken worden vervaardigd, bijvoorbeeld conventioneel verspanen, lasersnijden, gieten, stampen en etsen en combinaties daarvan. De microkanaalreactor volgens deze uitvinding kan worden vervaardigd door platen te vormen waaruit stukken zijn verwijderd die doorgangen mogelijk maken. Van dergelijke platen kan een stapel worden samengesteld om met gebruikmaking van bekende technieken, bijvoorbeeld diffusiehechten, laserlassen, koud lassen, diffusiesolderen en combinaties daarvan, een geïntegreerde inrichting te vormen. De microkanaalreactor volgens deze uitvinding omvat toepasselijke ingangen, uitgangen, afsluiters, leidingen en andere kenmerken om invoer van reactiestoffen, uitvoer van product en stroming van warmtewisselingsfluida te regelen. Deze zijn niet in de tekeningen opgenomen maar kunnen eenvoudig door deskundigen worden verschaft. Tevens kan er verdere warmtewisselingsapparatuur (niet afgebeeld in de tekeningen) zijn voor de temperatuurregeling van voeding, in het bijzonder om voeding of voedingscomponenten te verhitten alvorens die de procesmicrokanalen ingaan of voor de temperatuurregeling van product, in het bijzonder om product af te schrikken nadat het de procesmicrokanalen heeft verlaten. Dergelijke verdere warmtewisselingsapparatuur kan met de microkanaalreactor worden geïntegreerd maar zal vaker afzonderlijke apparatuur zijn. Deze is niet in de tekeningen opgenomen maar kan eenvoudig door deskundigen worden verschaft. Warmte-integratie kan worden toegepast, bijvoorbeeld door gebruik te maken van reactiewarmte van de epoxideringswerkwijze voor het verhitten van voedingscomponenten of voor andere verhittingsdoeleinden.

De epoxideringskatalysatoren zijn meestal vaste katalysatoren onder de omstandigheden van de epoxidatiereactie. Dergelijke epoxideringskatalysator, en, in voorkomende gevallen, eventuele andere vaste katalysatoren kunnen met elke bekende techniek in de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen worden geïnstalleerd. De katalysatoren kunnen een gepakt bed in de daartoe aangewezen sectie van het procesmicrokanaal vormen en/of zij kunnen een deklaag op ten minste een deel van de wand van de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen vormen. Deskundigen zullen inzien dat de deklaag op de binnenwand van de procesmicrokanalen wordt aangebracht. Als alternatief of daarnaast kunnen een of meer van de katalysatoren in de vorm zijn van een deklaag op inbrengruukstukken die in de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen kunnen worden geplaatst. Deklagen kunnen met elke afzettingsmethode worden bereid, zoals wassend bekleden of opdampen. In sommige uitvoeringsvormen is de epoxideringskatalysator onder de epoxidatieomstandigheden wellicht geen vaste katalysator, in welk geval de epoxideringskatalysator samen met een of meer componenten van de epoxidatievoeding aan de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen kan worden toegevoerd en samen met het epoxidatiereactiemengsel door de procesmicrokanalen kan gaan.

De epoxideringskatalysator die bij deze uitvinding kan worden gebruikt, is meestal een katalysator die een of meer metalen uit Groep 11 omvat. De metalen uit Groep 11 kunnen worden gekozen uit de groep bestaande uit zilver en goud. Bij voorkeur omvat het metaal uit Groep 11 zilver. In het bijzonder omvat het metaal uit Groep 11 zilver in een hoeveelheid van ten minste 90 gew.%, meer in het bijzonder ten minste 95 gew.%, bijvoorbeeld ten minste 99 gew.% of ten minste 99,5 gew.%, berekend als het gewicht van zilvermetaal ten opzichte van het totale gewicht van het metaal uit Groep 11, als metaal. Meestal omvat de epoxideringskatalysator daarnaast een of meer versnellercomponenten. Vaker omvat de epoxideringskatalysator het metaal uit Groep 11, een of meer versnellercomponenten en tevens een of meer componenten die een of meer verdere elementen omvatten. In sommige uitvoeringsvormen kan de epoxideringskatalysator een dragermateriaal omvatten waarop het metaal uit Groep 11, eventuele versnellercomponenten en eventuele, een of meer verdere elementen omvattende componenten kunnen worden afgezet. Geschikte versnellercomponenten en geschikte, een of meer verdere elementen

omvattende componenten en geschikte dragermaterialen kunnen zijn zoals hierna beschreven.

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

Het in hoofdzaak niet-waterige verdunningsmiddel kan een vloeistof zijn of het kan gasvormig zijn. Wat betreft vloeibare verdunningsmiddelen, betekent "in hoofdzaak niet-waterig", zoals hier gebezigd, dat het watergehalte van het verdunningsmiddel ten hoogste 20 gew.%, in het bijzonder ten hoogste 10 gew.%, meer in het bijzonder ten hoogste 5 gew.%, bijvoorbeeld ten hoogste 2 gew.% of zelfs ten hoogste 1 gew.% of ten hoogste 0,5 gew.% ten opzichte van het gewicht van het verdunningsmiddel is. In het bijzonder voor gasvormige verdunningsmiddelen betekent "in hoofdzaak niet-waterig" dat het verdunningsmiddel zoals in de procesmicrokanalen aanwezig, boven het dauwpunt is. Door de vrijwel volledige of volledige afwezigheid van vloeibaar water in het verdunningsmiddel kan de katalysator zijn integriteit qua een of meer van zijn morfologie, samenstelling en eigenschappen tijdens installatie beter in stand houden dan wanneer een waterig verdunningsmiddel wordt toegepast. Geschikte, in hoofdzaak niet-waterige vloeibare verdunningsmiddelen zijn onder meer organische verdunningsmiddelen, bijvoorbeeld koolwaterstoffen, gehalogeneerde koolwaterstoffen, alcoholen, ketons, ethers en esters. Geschikte alcoholen zijn bijvoorbeeld methanol en ethanol. De hoeveelheid katalysator die in het vloeibare verdunningsmiddel aanwezig kan zijn, kan in het gebied van 1 tot 50 gew.%, in het bijzonder 2 tot 30 gew.%, ten opzichte van het gewicht van het totaal van de katalysator en het vloeibare verdunningsmiddel liggen.

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

De in de dispersie aanwezige epoxideringskatalysator kan worden verkregen door een conventionele, vormgegeven katalysator te vergruizen, eventueel gevolgd door zeven.

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

15 Conventionele, vormgegeven epoxideringskatalysatoren omvatten meestal op een vormgegeven dragermateriaal gedispergeerd(e) metaal uit Groep 11, een of meer versnellercomponenten en naar keuze een of meer componenten die een verder element omvatten. Geschikte dragermaterialen, geschikte versnellercomponenten, geschikte componenten die een verder element omvatten en geschikte katalysatorcomposities wat
20 betreft de hoeveelheden metaal uit Groep 11, versnellercomponenten en componenten die een verder element omvatten, kunnen zijn zoals hierna beschreven.

Als alternatief en bij voorkeur wordt de in de dispersie aanwezige katalysator bereid zoals hierin beschreven.

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

procesmicrokanalen worden afgezet of kan de katalysator aanwezig zijn op in de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen geplaatste inbrengstukken.

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

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

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

en/of aardalkalimetaalcomponenten, bijvoorbeeld calcium- en/of magnesiumcomponenten, omvatten.

De oppervlakgrootte van het dragermateriaal kan op geschikte wijze ten minste 0,1 m²/g zijn, bij voorkeur ten minste 0,3 m²/g, met meer voorkeur ten minste 0,5 m²/g en in het bijzonder ten minste 0,6 m²/g ten opzichte van het gewicht van de drager; en de oppervlakgrootte kan op geschikte wijze ten hoogste 10 m²/g zijn, bij voorkeur ten hoogste 5 m²/g en in het bijzonder ten hoogste 3 m²/g ten opzichte van het gewicht van de drager. "Oppervlakgrootte" zoals hier gebezigd, wordt geacht betrekking te hebben op de oppervlakgrootte zoals bepaald met de B.E.T.-methode (Brunauer, Emmett en Teller), zoals beschreven in Journal of the American Chemical Society 60 (1938) pp. 309-316. Dragermaterialen met hoge oppervlakgrootte, in het bijzonder als zij een α -alumina zijn dat naar keuze tevens silica, alkalimetaal en/of aardalkalimetaalcomponenten omvat, verschaffen verbeterde bedrijfsprestaties en -stabiliteit.

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

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

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

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

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

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

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

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

De versnellercomponent kan meestal in de epoxideringskatalysator aanwezig zijn in een hoeveelheid van ten minste 0,05 mmol/kg, vaker ten minste 0,5 mmol/kg en bij voorkeur ten minste 1 mmol/kg, berekend als de totale hoeveelheid van het

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

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

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

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

essentieel. Hij kan bijvoorbeeld op geschikte wijze worden verschaft als een oxide of als een oxyanion, bijvoorbeeld, als een sulfaat, boraat of molybdaat in zout- of zuurvorm.

De epoxideringskatalysator omvat bij voorkeur metaal uit Groep 11, de
5 versnellercomponent en een component die een verder element omvat. In aanmerking
komende verdere elementen kunnen worden gekozen uit de groep van stikstof, fluor,
alkalimetalen, aardalkalimetalen, titaan, hafnium, zirkoon, vanadium, thallium,
thorium, tantaal, niobium, gallium en germanium en mengsels daarvan. Bij voorkeur
worden de alkalimetalen gekozen uit lithium, kalium, rubidium en cesium. Liefst is
10 het alkalimetaal lithium, kalium en/of cesium. De aardalkalimetalen worden bij
voorkeur gekozen uit calcium en barium. Meestal is het verdere element in de
epoxideringskatalysator aanwezig in een totale hoeveelheid van 0,05 tot 2500
mmol/kg, vaker 0,25 tot 500 mmol/kg, berekend als het element ten opzichte van het
gewicht aan metaal uit Groep 11. De verdere elementen kunnen in elke vorm worden
15 verschaft. Geschikt zijn bijvoorbeeld zouten van een alkali- of een aardalkalimetaal.

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

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

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

In sommige uitvoeringsvormen heeft de uitvinding betrekking op werkwijzen
10 voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijzen het in reactie brengen omvatten van een voeding die de olefine en zuurstof omvat in aanwezigheid van een epoxideringskatalysator zoals in het voorgaande beschreven, die in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor zit.

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

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

door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd. Bepaalde voedingscomponenten kunnen door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen en door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd. Bijvoorbeeld, de olefine kan deels door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen en deels door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd. Als ander voorbeeld kan zuurstof deels door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen en deels door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd.

10 In een bepaalde uitvoeringsvorm kan een zuurstofrijke voedingscomponent in de procesmicrokanalen in aanraking worden gebracht met een olefinenrijke voedingscomponent. De zuurstofrijke voedingscomponent is meestal relatief arm aan de olefine. De zuurstofrijke voedingscomponent kan meestal zuurstof in een hoeveelheid van ten minste 5 mol%, in het bijzonder ten minste 10 mol%, meer in het
15 bijzonder ten minste 15 mol%, ten opzichte van de totale zuurstofrijke voedingscomponent, omvatten en meestal in een hoeveelheid van ten hoogste 100 mol% of ten hoogste 99,9 mol% of ten hoogste 99,8 mol%, ten opzichte van de totale zuurstofrijke voedingscomponent. De zuurstofrijke voedingscomponent kan de olefine meestal in een hoeveelheid van ten hoogste 5 mol%, in het bijzonder ten
20 hoogste 1 mol%, ten opzichte van de totale zuurstofrijke voedingscomponent omvatten. Een dergelijke zuurstofrijke voedingscomponent kan normaliter buiten de explosiegrenzen liggen. De olefinenrijke voedingscomponent is meestal relatief arm aan zuurstof. De olefinenrijke voedingscomponent kan de olefine meestal in een hoeveelheid van ten minste 20 mol%, in het bijzonder ten minste 25 mol%, meer in
25 het bijzonder ten minste 30 mol%, ten opzichte van de totale olefinenrijke voedingscomponent omvatten, en meestal in een hoeveelheid van ten hoogste 100 mol% of ten hoogste 99,99 mol% of ten hoogste 99,98 mol%, ten opzichte van de totale olefinenrijke voedingscomponent. De olefinenrijke voedingscomponent kan zuurstof meestal in een hoeveelheid van ten hoogste 15 mol%, in het bijzonder ten
30 hoogste 10 mol%, meer in het bijzonder ten hoogste 5 mol%, ten opzichte van de totale olefinenrijke voedingscomponent omvatten. Een dergelijke olefinenrijke voedingscomponent kan normaliter buiten de explosiegrenzen liggen.

Indien er sprake is van een veelvoud van eerste openingen 280, waarbij een of meer eerste openingen 280 stroomafwaarts van een andere eerste opening 280 zijn geplaatst, kan omgezette reactiestof nagenoeg geheel worden aangevuld.

5 Bijvoorbeeld, aanvullen van omgezette zuurstof kan bewerkstelligen dat de concentratie van zuurstof in de voeding over de lengte van de epoxideringskatalysator nagenoeg constant kan worden gehouden, hetgeen nagenoeg volledige omzetting van de olefine kan bevorderen. Als alternatief kan de concentratie van de olefine nagenoeg constant worden gehouden door omgezette olefine aan te vullen, hetgeen nagenoeg volledige omzetting van zuurstof kan bevorderen.

10 Voorts kunnen in een aspect van de uitvinding, door de olefinenrijke voedingscomponent en de zuurstofrijke voedingscomponent door verschillende kanalen toe te voeren en de voedingscomponenten in de procesmicrokanalen te mengen, in de procesmicrokanalen voedingscomposities worden bereikt, terwijl dergelijke voedingscomposities buiten de procesmicrokanalen tot een explosie zouden
15 kunnen leiden.

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

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

Naast een organisch halogenide kan als reactiemodificator een organische of anorganische stikstofverbinding worden gebruikt, maar dit heeft in het algemeen minder voorkeur. Men is van oordeel dat de stikstofhoudende reactiemodificatoren onder de bedrijfsomstandigheden van de epoxideringswerkwijze precursors van nitraten of nitrieten zijn (zie bijvoorbeeld EP-A-3642 en US-A-4822900, die door verwijzing hierin zijn opgenomen). Organische stikstofverbindingen en anorganische stikstofverbindingen kunnen worden toegepast. Geschikte organische stikstofverbindingen zijn nitroverbindingen, nitrosoverbindingen, aminen, nitraten en nitrieten, bijvoorbeeld nitromethaan, 1-nitropropan of 2-nitropropan. Geschikte anorganische stikstofverbindingen zijn bijvoorbeeld stikstofoxiden, hydrazine, hydroxylamine of ammoniak. Geschikte stikstofoxiden hebben als algemene formule NO_x , waarin x in het gebied van 1 tot 2 ligt, en omvatten bijvoorbeeld NO, N_2O_3 en N_2O_4 .

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

Behalve de olefine, de zuurstof en het organische halogenide kan de voeding bovendien een of meer verdere componenten omvatten, bijvoorbeeld verzadigde koolwaterstoffen als ballastgas, inerte gassen en kooldioxide. De een of meer verdere componenten kunnen afzonderlijk of samen met andere voedingscomponenten door

een opening in stroomopwaarts uiteinde 220 van de procesmicrokanalen 210 of door eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280 worden toegevoerd.

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

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

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

15 In de voeding kan kooldioxide aanwezig zijn omdat dat wordt gevormd als een gevolg van ongewenste oxidatie van de olefine en/of het olefineoxide en het kan derhalve aanwezig zijn in voedingscomponenten die in een hercirculeringsstroom zitten. Kooldioxide heeft in het algemeen een nadelig effect op de katalysatorwerkzaamheid. Met voordeel is de hoeveelheid kooldioxide bijvoorbeeld 20 minder dan 2 mol%, bij voorkeur minder dan 1 mol% of ligt zij in het gebied van 0,2 tot 1 mol% van de totale voeding.

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

25 De epoxideringswerkwijze volgens deze uitvinding kan op basis van lucht of op basis van zuurstof zijn, zie "Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology", 3rd edition, Volume 9, 1980, pp. 445-447. Bij de werkwijze op basis van lucht wordt lucht of met zuurstof verrijkte lucht als de bron van het oxideringsmiddel gebruikt, terwijl zuurstof van hoge zuiverheid (ten minste 95 mol%) bij de werkwijzen op basis 30 van zuurstof als de bron van het oxideringsmiddel wordt gebruikt. Tegenwoordig zijn de meeste epoxideringsinstallaties op basis van zuurstof en bij de uitvoering van bepaalde uitvoeringsvormen van deze uitvinding heeft dit de voorkeur. Het is een

voordeel van andere uitvoeringsvormen van deze uitvinding dat lucht als de bron van het oxideringsmiddel aan het proces kan worden toegevoerd.

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

Zoals in het voorgaande vermeld, kunnen de epoxideringskatalysatoren tijdens
10 gebruik onderhevig zijn aan een prestatiedaling. Om de effecten van een werkzaamheidsafname te verminderen, kan de reactietemperatuur geleidelijk of in een aantal stappen worden verhoogd, bijvoorbeeld in stappen van 0,1 tot 20°C, in het bijzonder 0,2 tot 10°C, meer in het bijzonder 0,5 tot 5°C. De totale stijging van de reactietemperatuur kan in het gebied van 10 tot 140°C, vaker 20 tot 100°C liggen. De
15 reactietemperatuur kan meestal worden verhoogd van een niveau in het gebied van 150 tot 300°C, vaker 200 tot 280°C, wanneer een verse epoxideringskatalysator of een verjongde epoxideringskatalysator wordt gebruikt, tot een niveau in het gebied van 230 tot 340°C, vaker 240 tot 325°C wanneer de werkzaamheid van de epoxideringskatalysator is afgenomen.

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

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

In een bepaalde uitvoeringsvorm kan de epoxideringswerkwijze het in reactie
30 brengen omvatten van de voeding die de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 50 mol% ten opzichte van de totale voeding omvat. In deze uitvoeringsvorm kunnen de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 80 mol% ten opzichte van de totale voeding in de voeding aanwezig zijn, in het bijzonder ten minste 90

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

In een bepaalde uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een werkwijze voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijze het in reactie brengen omvat van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van een epoxidieringskatalysator die in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor zit, en toepassen van zodanige omstandigheden voor het in reactie brengen van de voeding dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is. De omzetting van de olefine kan ten minste 90 mol% zijn en de omzetting van zuurstof kan ten minste 90 mol% zijn. In het bijzonder kan de voeding in deze uitvoeringsvorm de olefine en zuurstof in een hoeveelheid van ten hoogste 50 mol% ten opzichte van de totale voeding omvatten en kan de voeding bovendien verzadigde koolwaterstoffen als ballastgas en inert gas omvatten. Meestal worden zodanige procesomstandigheden gebruikt dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 95 mol% is, in het bijzonder ten minste 98 mol%, meer in het bijzonder ten minste 99 mol%. Zoals hier gebezigd, is omzetting de omgezette hoeveelheid van een reactiestof ten opzichte van de hoeveelheid van de reactiestof in de voeding, uitgedrukt in mol%. Bij voorkeur is de omzetting van de olefine ten minste 95 mol%, in het bijzonder ten minste 98 mol%, meer in het bijzonder ten minste 99 mol% en kan zuurstof ten minste gedeeltelijk worden aangevuld. De aanwezigheid van een

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

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

In sommige uitvoeringsvormen kan de epoxideringswerkwijze omvatten
30 - in reactie brengen van een voeding die een olefine en zuurstof omvat in aanwezigheid van een epoxideringskatalysator die in een eerste sectie 240 van een of meer procesmicrokanalen 210 van een microkanaalreactor zit teneinde daardoor een eerste

mengsel te vormen dat het olefineoxide en kooldioxide omvat, zoals in het voorgaande beschreven,

- afschrikken van het eerste mengsel in tussensectie 440 van de een of meer stroomafwaarts van eerste sectie 240 geplaatste procesmicrokanalen 210 door

5 warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum, op eenzelfde wijze als in het voorgaande beschreven, en

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

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

omgezet, bijvoorbeeld ten minste 98 mol%, en in de praktijk van deze uitvinding wordt vaak tot 99,9 mol% omgezet.

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

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

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

reactiemengsel verhoudingsgewijs verhoogd. De aldus geproduceerde 1,2-diolethers kunnen een di-ether, tri-ether, tetra-ether of een volgende ether zijn. Ook kunnen 1,2-diolethers worden bereid door het olefineoxide om te zetten met een alcohol, in het bijzonder een primaire alcohol zoals methanol of ethanol, door ten minste een deel
5 van het water door de alcohol te vervangen.

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

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

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

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

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

Voorbeeld

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

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

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

De eerste sectie omvat een epoxideringskatalysator die zilver, renium, wolfram, cesium en lithium afgezet op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal
25 volgens de onderhavige uitvinding omvat. Het uit deeltjes bestaande dragermateriaal is een α -alumina met een oppervlakgrootte van $1,5 \text{ m}^2/\text{g}$, een totaal porievolume van $0,4 \text{ ml/g}$ en een zodanige poriegrootteverdeling dat poriën met een diameter in het gebied van $0,2$ tot $10 \text{ }\mu\text{m}$ 95% van het totale porievolume vertegenwoordigen en dat poriën met een diameter in het gebied van $0,3$ tot $10 \text{ }\mu\text{m}$ meer dan 92% van het
30 porievolume in de poriën met een diameter in het gebied van $0,2$ tot $10 \text{ }\mu\text{m}$ vertegenwoordigen.

De microkanaalreactor wordt volgens methoden die bekend zijn uit WO-A-2004/099113 en daarin aangehaalde literatuur geassembleerd. Het dragermateriaal

wordt door middel van wassend bekleden afgezet op de wanden van de eerste sectie van de procesmicrokanalen. Daarna worden de procesmicrokanalen geassembleerd en na het assembleren worden zilver, renium, wolfram, cesium en lithium met gebruikmaking van als zodanig uit US-A-5380697 bekende methoden op het dragermateriaal afgezet.

5 Als alternatief wordt de microkanaalreactor zonder voorafgaand wassend bekleden geassembleerd en wordt na het assembleren de eerste sectie gevuld met een uit deeltjes bestaande epoxideringskatalysator die wordt bereid door fijnwrijven en zeven van een commerciële HS-PLUS epoxideringskatalysator, die kan worden verkregen van CRI Catalyst Company, Houston, Texas, VS.

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

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

CONCLUSIES

1. Werkwijze voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijze het in reactie brengen omvat van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van een epoxideringskatalysator die in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor zit, en toepassen van zodanige omstandigheden voor het in reactie
5 brengen van de voeding dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is.
2. Werkwijze volgens conclusie 1, waarbij de epoxideringskatalysator een metaal uit Groep 11 in een hoeveelheid van 50 tot 500 g/kg, ten opzichte van het gewicht van de katalysator, omvat.
- 10 3. Werkwijze volgens conclusie 2, waarbij de katalysator het metaal uit Groep 11 in een hoeveelheid van 100 tot 400 g/kg, ten opzichte van het gewicht van de katalysator, omvat.
4. Werkwijze volgens een der conclusies 1-3, waarbij de epoxideringskatalysator zilver afgezet in een dragermateriaal omvat.
- 15 5. Werkwijze volgens conclusie 4, waarbij de katalysator als versnellercomponent(en) een of meer elementen die zijn gekozen uit renium, wolfram, molybdeen, chroom en mengsels daarvan omvat en daarnaast een of meer alkalimetalen die zijn gekozen uit lithium, kalium en cesium.
- 20 6. Werkwijze volgens conclusie 4 of 5, waarbij het dragermateriaal een alumina met een oppervlaktgrootte van ten minste $0,3 \text{ m}^2/\text{g}$ en ten hoogste $10 \text{ m}^2/\text{g}$ ten opzichte van het gewicht van de drager is en een zodanige poriegrootteverdeling heeft dat poriën met een diameter in het gebied van $0,2$ tot $10 \mu\text{m}$ meer dan 80% van het totale porievolume vertegenwoordigen.
- 25 7. Werkwijze volgens conclusie 6, waarbij de oppervlaktgrootte ten minste $0,5 \text{ m}^2/\text{g}$, en ten hoogste $5 \text{ m}^2/\text{g}$ ten opzichte van het gewicht van de drager is en de poriën met een diameter in het gebied van $0,2$ tot $10 \mu\text{m}$ meer dan 90% van het totale porievolume vertegenwoordigen.

8. Werkwijze volgens een der conclusies 1-7, waarbij de voeding de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 50 mol% ten opzichte van de totale voeding omvat.

5 9. Werkwijze volgens conclusie 8, waarbij de voeding de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid from 80 tot 99,5 mol% ten opzichte van de totale voeding omvat.

10. Werkwijze volgens een der conclusies 1-9, waarbij de omzetting van de olefine ten minste 95 mol% is.

10 11. Werkwijze volgens conclusie 10, waarbij de omzetting van de olefine ten minste 98 mol% is.

12. Werkwijze volgens conclusie 10 of 11, waarbij de werkwijze tevens ten minste gedeeltelijk aanvullen van zuurstof omvat.

15 13. Werkwijze volgens een der conclusies 1-12, waarbij de voeding de olefine en zuurstof in een molaire verhouding van olefine tot zuurstof in het gebied van 3 tot 100 omvat.

14. Werkwijze volgens conclusie 13, waarbij de molaire verhouding in het gebied van 4 tot 50 ligt.

20 15. Werkwijze volgens een der conclusies 1-14, waarbij de voeding verzadigde koolwaterstoffen in een hoeveelheid van ten hoogste 5 mol%, ten opzichte van de totale voeding, omvat en de voeding inerte gassen in een hoeveelheid van ten hoogste 5 mol% ten opzichte van de totale voeding omvat.

16. Werkwijze volgens conclusie 15, waarbij de hoeveelheid verzadigde koolwaterstoffen ten opzichte van de totale voeding ten hoogste 2 mol% is en de hoeveelheid inerte gassen ten hoogste 2 mol% ten opzichte van de totale voeding is.

25 17. Werkwijze volgens een der conclusies 1-16, waarbij de werkwijze het uitvoeren van de werkwijze met één passage omvat.

18. Werkwijze volgens een der conclusies 1-17, waarbij de werkwijze het toevoeren van lucht als de bron van zuurstof omvat.

30 19. Werkwijze volgens een der conclusies 1-18, waarbij de voeding tevens een reactiemodificator in een hoeveelheid van ten hoogste 0,01 mol% omvat.

20. Werkwijze volgens conclusie 19, waarbij de reactiemodificator een organisch halogenide is dat aanwezig is in een concentratie van ten minste $0,2 \times 10^{-4}$ mol% en ten hoogste 50×10^{-4} mol% ten opzichte van de totale voeding.

21. Werkwijze volgens conclusie 20, waarbij de reactiemodificator een organisch halogenide is dat aanwezig is in een concentratie van ten minste $0,5 \times 10^{-4}$ mol% en ten hoogste 20×10^{-4} mol% ten opzichte van de totale voeding.

5 22. Werkwijze volgens een der conclusies 1-21, waarbij de werkwijze tevens afschrikken van het reactieproduct in een stroomafwaartse sectie van de procesmicrokanalen omvat.

23. Werkwijze volgens conclusie 22, waarbij de werkwijze tevens omzetten in de een of meer procesmicrokanalen van het afgeschrikte reactieproduct omvat onder vorming van een mengsel dat het olefineoxide en een 1,2-carbonaat omvat.

10 24. Werkwijze voor de bereiding van een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine, welke werkwijze omvat

- vormen van een olefineoxide met een epoxideringswerkwijze volgens een der conclusies 1-23, en

15 - omzetten van het olefineoxide met water, een alcohol, kooldioxide of een amine teneinde het 1,2-diol, 1,2-diolether, 1,2-carbonaat of alkanolamine te vormen.

Fig.1

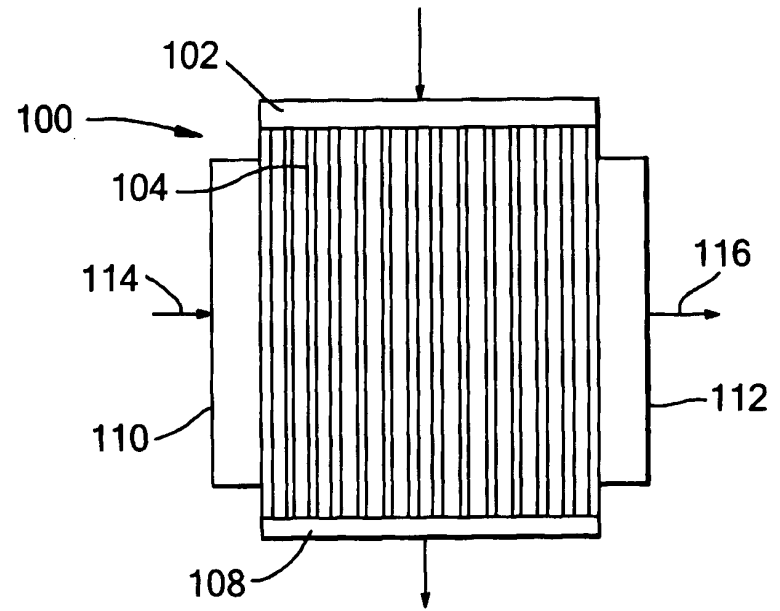
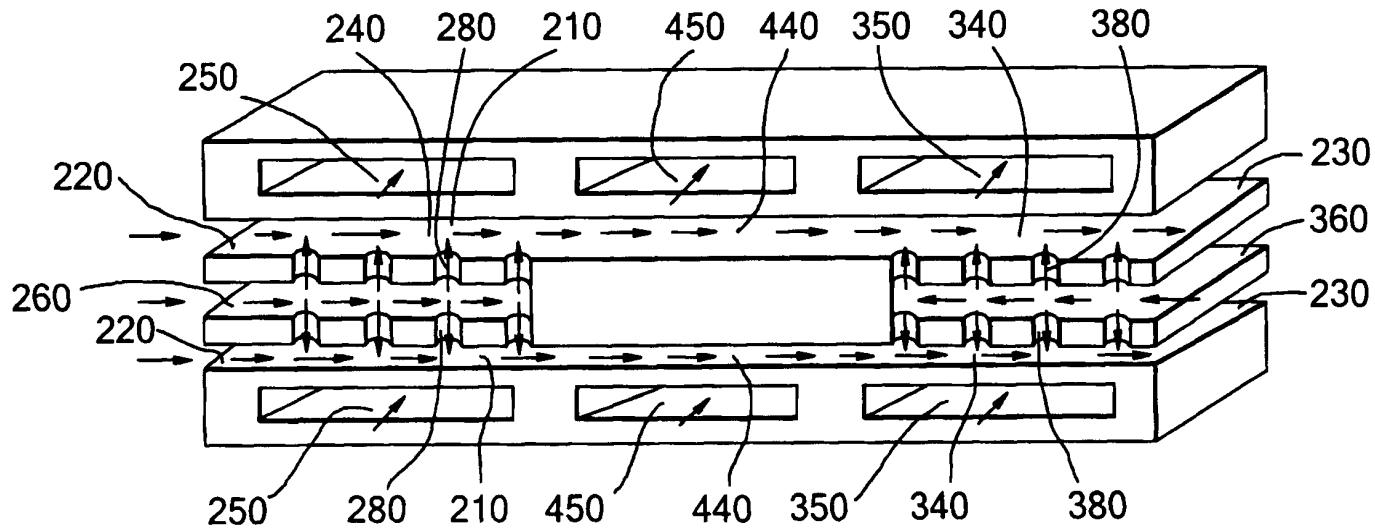


Fig.2



RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK

Van belang zijnde literatuur			
Categorie ¹	Vermelding van literatuur met aanduiding, voor zover nodig, van speciaal van belang zijnde tekstgedeelten of figuren.	Van belang voor conclusie(s) Nr.:	International Patent Classification (IPC)
E	WO 2006/02/0709 A (VELOCYS), 23 februari 2006 * blz. 8 regel 16 - blz. 11 regel 9 * * blz. 37 regel 29 – blz. 38 regel 9 * * conclusies *	1-22	C07D301/10 C07D303/04 B01J19/00 B01J19/24
X	Kursawe A. et al., "Comparison of Ag/Al- and Ag/ α -Al ₂ O ₃ 5 - Catalytic Surfaces for the Partial Oxidation of Ethene in Microchannel reactors", Microreaction Technology: IMRET Proceedings of the 5th Int. Conference on Microreaction Technology (Eds. M. Matlosz, W. Ehrfeld, J. P. Baselt), Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 2001, 240-251, ISBN 3-540-42498-9 * figuren; par 2.1 *	1-24	Onderzochte gebieden van de techniek, gedefinieerd volgens IPC 8 B01J C07D Computerbestanden
X	Kestenbaum H. et al, "Silver-Catalyzed Oxidation of Ethylene to Ethylene Oxide in a Microreaction System", Ind.Eng.Chem.Res. 41 (2002) 710-719 * tabel 1; figuren 8 en 9; par. 4 *	1-24	EPODOC WPI
L	US 5703253 A (SHELL), 30 december 1997		
L	US 5597773 A (SHELL), 28 januari 1997		
L	EP 266015 A (SHELL), 4 mei 1988		

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

Omvang van het onderzoek: **Volledig**

Onderzochte conclusies: **Alle**

Niet (volledig) onderzochte
conclusies met redenen: —

Datum waarop het
onderzoek werd voltooid:

21 augustus 2007

Vooronderzoeker: Dr. M.W. de Lange

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

Categorie van de vermelde literatuur:

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

AANHANGSEL BEHORENDE BIJ HET RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK, UITGEVOERD IN OCTROOIAANVRAGE NR. 2000388

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

De opgave is samengesteld aan de hand van gegevens uit het computerbestand van het Europees Octrooibureau per 23 augustus 2007.

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

In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)		datum van publicatie
WO2006020709	A	2006-02-23	CA2575165	A	2006-02-23
			EP1786797	A	2007-05-23
US5703253	A	1997-12-30			
US5597773	A	1997-01-28	US5418202	A	1995-05-23
			CA2180153	AC	1995-07-06
			WO9517957	A	1995-07-06
			AU1371195	A	1995-07-17
			EP0737099	AB	1996-10-16
			CN1139886	A	1997-01-08
			JP9507159T	T	1997-07-22
			AU680713B	B	1997-08-07
			AT168042T	T	1998-07-15
			DE69411591D	D	1998-08-13
			ES2118551T	T	1998-09-16
			DE69411591T	T	1998-11-12
			DK737099T	T	1998-11-16
			GR3027703T	T	1998-11-30
			SG81885	A	2001-07-24
			JP3832848B2	B	2006-10-11
EP0266015	AB	1988-05-04	PT86038	AB	1987-11-01

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



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

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





OCTROOICENTRUM NEDERLAND

SCHRIFTELIJKE OPINIE

	INDIENINGSDATUM 20 december 2006	VOORRANGSDATUM 22 december 2005	AANVRAAGNUMMER 2000388
CLASSIFICATIE C07D301/10, C07D303/04, B01J19/00, B01J19/24			
AANVRAGER Shell Internationale Research Maatschappij B.V. te Den Haag			

Deze schriftelijke opinie bevat een toelichting op de volgende onderdelen:

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

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

Schriftelijke Opinie

Aanvraag nr.: 2000388

Onderdeel I Basis van de schriftelijke opinie

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

Onderdeel II Voorrang

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

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

1. Verklaring

Nieuwheid	Ja: Conclusies
	Nee: Conclusies 1-22
Inventiviteit	Ja: Conclusies
	Nee: Conclusies 23-24
Industriële toepasbaarheid	Ja: Conclusies 1-24
	Nee: Conclusies

2. Literatuur en toelichting

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

D1: WO 2006/020709 A

D2: Kursawe A. et al., "Comparison of Ag/Al- and Ag/ α -Al₂O₃ Catalytic Surfaces for the Partial Oxidation of Ethene in Microchannel reactors", *Microreaction Technology: IMRET 5 - Proceedings of the 5th Int. Conference on Microreaction Technology* (Eds. M. Matlosz, W. Ehrfeld, J. P. Baselt), Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 2001, 240-251, ISBN 3-540-42498-9

D3: Kestenbaum H. et al, "Silver-Catalyzed Oxidation of Ethylene to Ethylene Oxide in a Microreaction System", *Ind.Eng.Chem.Res.* 41 (2002) 710-719

D4: WO 03/072246 A

D5: US 5703253 A

D6: US 5597773 A

D7: EP 266015 A

Het niet vóórgenpubliceerde document D1 van oudere rang beschrijft de epoxidering van etheen in een microkanaalreactor met een op α -alumina gedragen zilverkatalysator. De omzetting van zuurstof kan daarbij hoger zijn dan 80%, de omzetting van etheen hoger dan 50% (zie blz. 49 regels 12 en 17).

Schriftelijke Opinie

Aanvraag nr.: 2000388

Uit de beschrijving van de aanvraag, waarin geen enkel praktisch voorbeeld is opgenomen, wordt niet duidelijk wat bijzonder is aan de keuze, die in conclusie 1 is opgenomen, voor een omzetting van hoger dan 90%. Met andere woorden, de keuze voor deze omzetting lijkt niet meer te zijn dan een gewenste variant van het bekende uit D1. Conclusie 1 is daarom niet nieuw. Hetzelfde argument geldt ook voor conclusies 10 en 11.

Ook de materie van de conclusies 2 tot en met 9 en 12 tot en met 22 is bekend uit D1 (zie de in het nieuwheidsrapport aangegeven passages). Daarbij verdient nog opmerking dat op blz. 38 van D1 wordt aangegeven dat de katalysatoren beschreven in de octrooipublicaties US 5703253 A, US 5597773 A en EP 266015 A van Shell kunnen worden toegepast; deze katalysatoren maken dus deel uit van de materie van D1. Hoewel de samenstelling van deze bekende katalysatoren niet letterlijk in D1 is vermeld, zal de vakman deze wel in D1 meelesen.

De tijdige documenten D2 en D3 beschrijven eveneens de epoxidering van etheen met een op α -alumina gedragen zilverkatalysator in een microkanaalreactor. De omzetting bedraagt volgens D2 ten hoogste ca. 43%. D3 vermeldt geen omzettingspercentages. Onduidelijk is, zoals in Onderdeel VII verder wordt toegelicht, welke maatregelen of combinatie van maatregelen uit de volgconclusies leiden tot een omzetting van meer dan 90%. Zeker is wel dat deze maatregelen op zich bekend zijn uit D2 of D3, dan wel algemeen gebruikelijk zijn bij de epoxidering van etheen, dan wel bekend uit D4 (m.b.t. in ieder geval conclusies 5-7). Nu het onderzoek beschreven in D2 en D3 aantoont dat het mogelijk is om de epoxidering van etheen in een microkanaalreactor uit te voeren, zal de vakman zonder meer inzien dat een volgende stap in het onderzoek is het uitvoeren van de reactie met typische industrieel toegepaste katalysatoren en onder diverse reactiecondities om zo het proces te optimaliseren, en zo onder meer te komen tot een omzetting hoger dan 90%. Het ligt dan ook binnen het bereik van de vakman om de maatregelen uit de volgconclusies toe te passen. Alle conclusies zijn dus evenmin inventief.

Onderdeel VII Overige gebreken

De volgende gebreken in de vorm of inhoud van de aanvraag zijn opgemerkt:

Conclusie 1 is geformuleerd in termen van een bepaald gewenst resultaat, te weten de omzetting van olefine of zuurstof van ten minste 90 mol%, zonder aan te geven de maatregelen die nodig zijn om dit gewenste resultaat te bereiken. Er wordt enkel gesproken van "zodanige omstandigheden". Naar vaste jurisprudentie zijn dergelijke zgn. wensconclusies niet aanvaardbaar. Aangezien alle overige conclusies ook direct of indirect verwijzen naar conclusie 1 bevatten de overige conclusies ook dit element en zijn dus evens te beschouwen als wensconclusies. Weliswaar bevatten deze conclusies een nadere invulling van de omstandigheden die kunnen worden toegepast, maar gezien de aard en het scala van mogelijkheden lijkt het niet aannemelijk dat elk van deze uitvoeringsvormen over het gehele bereik leidt tot de gewenste omzetting.

Welke maatregelen in welke combinatie nu leiden tot de gewenste omzetting is dus niet duidelijk. Ook de beschrijving, waarin geen praktisch voorbeeld met experimentele data is opgenomen, biedt de vakman geen enkel houvast.

Geconcludeerd wordt dat daarom het octrooischrift niet een beschrijving bevat van de uitvinding die zodanig duidelijk en volledig is dat de vakman de uitvinding kan toepassen.