

19



Octrooi centrum  
Nederland

11 2000384

12 C OCTROOI<sup>20</sup>

21 Aanvraag om octrooi: 2000384

51 Int.Cl.:  
B01J19/00 (2006.01) B01J19/24 (2006.01)  
C07D301/10 (2006.01) C07D303/04 (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 **Methode voor het installeren van een epoxideringskatalysator in een reactor, werkwijze ter bereiding van een olefineoxide of een chemisch product dat van een olefineoxide kan worden afgeleid en reactor die voor een dergelijke werkwijze geschikt is.**

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

NL C 2000384

De inhoud van dit octrooi wijkt af van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en). De oorspronkelijk ingediende stukken kunnen bij het Octrooi centrum Nederland worden ingezien. Octrooi centrum Nederland is het Bureau voor de Industriële Eigendom, een agentschap van het ministerie van Economische Zaken

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

Terrein van de uitvinding

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

10 Achtergrond van de uitvinding

Etheenoxide en andere olefineoxiden zijn belangrijke industriechemicaliën die als voeding worden gebruikt voor het maken van chemische producten zoals ethyleenglycol, propyleenglycol, ethyleenglycolethers, ethyleencarbonaat, ethanolaminen en 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, kooldioxide of een amine teneinde een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine te produceren. Deze productie van een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine wordt in het algemeen afzonderlijk van de vervaardiging van het olefineoxide uitgevoerd en in ieder geval worden de twee processen normaliter in aparte reactoren uitgevoerd.

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

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

5           Olefine-epoxidatie wordt in het algemeen uitgevoerd met een relatief lage olefineomzetting en zuurstofomzetting. Normaliter wordt hercirculering van niet-omgezette olefine en zuurstof toegepast om het rendement van het proces te verhogen. In het algemeen omvat de voeding tevens een grote hoeveelheid zogeheten ballastgas om bedrijf buiten de explosiegrenzen te vergemakkelijken. Ballastgas omvat onder  
10 meer verzadigde koolwaterstoffen, met name methaan en ethaan. Als gevolg daarvan behelst hercirculering in het algemeen het behandelen van grote hoeveelheden processtromen, die onder meer de niet-omgezette olefine, niet-omgezette zuurstof en het ballastgas omvatten. De verwerking van de hercirculeringsstroom zoals die normaal in een olefine-epoxideringsinstallatie wordt toegepast, is eveneens tamelijk  
15 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  
20 verbinding, meestal een metaal uit Groep 11 (met name zilver) en versnellercomponenten, op een vormgegeven dragermateriaal. Vormgegeven dragermaterialen worden in het algemeen zorgvuldig geselecteerd om te voldoen aan eisen qua bijvoorbeeld sterkte en schuringsweerstand, oppervlakgrootte en porositeit. De vormgegeven dragermaterialen worden in het algemeen vervaardigd door  
25 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  
30 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.

5 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 onderhavige uitvinding een methode voor het installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor, welke methode omvat afzetten van een metaal uit Groep 11 of een kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden van genoemde procesmicrokanalen, afzetten van een of meer versnellercomponenten op ten minste een deel van dezelfde wanden voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van het metaal uit Groep 11 of de kationische Groep 11-metaalcomponent en, indien een kationische Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet, reduceren van ten minste een deel van de kationische Groep 11-metaalcomponent.

In een andere uitvoeringsvorm verschaft de uitvinding een werkwijze voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijze omvat - installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor door afzetten van een metaal uit Groep 11 of een kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden van genoemde procesmicrokanalen;

afzetten van een of meer versnellercomponenten op ten minste een deel van dezelfde wanden voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van het metaal uit Groep 11 of de kationische Groep 11-metaalcomponent en,

indien een kationische Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet, reduceren van ten minste een deel van de kationische Groep 11-metaalcomponent, en

- in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van de in de een of meer procesmicrokanalen geïnstalleerde epoxideringskatalysator.

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

- installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor door

afzetten van een metaal uit Groep 11 of een kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden van genoemde procesmicrokanalen;

afzetten van een of meer versnellercomponenten op ten minste een deel van dezelfde wanden voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van het metaal uit Groep 11 of de kationische Groep 11-metaalcomponent en,

indien een kationische Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet, reduceren van ten minste een deel van de kationische Groep 11-metaalcomponent,

- in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van de in de een of meer procesmicrokanalen geïnstalleerde epoxideringskatalysator teneinde een olefineoxide te produceren, 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.

De uitvinding verschaft een reactor die geschikt is voor de epoxidering van een olefine, welke reactor een microkanaalreactor is die een of meer procesmicrokanalen omvat waarin een epoxideringskatalysator is geïnstalleerd die een metaal uit Groep 11 omvat, waarbij de hoeveelheid van het metaal uit Groep 11 in het gebied van 10 tot 500 kg/m<sup>3</sup> reactorvolume ligt, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd

door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de microkanalen.

### 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

10 Het gebruik van een microkanaalreactor met een katalysator daarin geïnstalleerd volgens deze uitvinding leidt tot een of meer van de volgende voordelen:

- de epoxideringskatalysator behelst niet het gebruik van een vormgegeven drager, hetgeen de noodzaak van een productiestap voor een vormgegeven drager 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 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.
- 20 - 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 epoxidatiereactie kan tot verbeterde selectiviteit en verbeterde levensduur van de katalysator leiden. Toepassing van omstandigheden van hoge totale concentratie van
- 25 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 hercirculeringskosten oplevert.
- 30

- de in procesmicrokanalen uitgevoerde epoxidering kan worden bedreven bij een hoog omzettingsniveau van zuurstof of het olefineoxide. Vooral wanneer de werkwijze bij een hoog olefineomzettingsniveau wordt uitgevoerd, heeft het voordelen om de epoxidieringswerkwijze 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.

5  
10  
15  
- uitvoeren van de olefine-epoxidatie in de procesmicrokanalen biedt de mogelijkheid tot afschrikken in die procesmicrokanalen en omzetten van het mede gevormde kooldioxide met ten minste een deel van het geproduceerde olefineoxide en eventueel 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 hercirculering. Dit kan de complexiteit van de verdere verwerking van product- en hercirculeringsstromen verminderen doordat de noodzaak van bijvoorbeeld een terugwinningseenheid voor olefineoxide en een kooldioxideverwijderingseenheid wordt weggenomen.

20  
25  
- 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 wegnemen en de noodzaak van warmtewisselingsapparatuur verminderen. Het kan derhalve de complexiteit van de conventioneel in een vervaardigingsinstallatie toegepaste, additionele verwerking, bijvoorbeeld ten behoeve van productterugwinning, verminderen. Omzetting van het olefineoxide in de procesmicrokanalen vermindert tevens de vorming van nevenproducten zoals aldehyden en carbonzuren.

30  
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

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.

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

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

          De procesmicrokanalen zijn meestal evenwijdig opgesteld - zij kunnen  
15   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 breedtedimensie kan bijvoorbeeld 0,1 tot 100 cm, in het bijzonder 0,2 tot 75 cm, meer  
20   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 afgebeeld in FIG. 1) die in warmtewisselingscontact met de procesmicrokanalen 104  
25   staan. De warmtewisselingskanalen kunnen eveneens microkanalen zijn. De microkanaalreactor is zodanig ingericht dat warmtewisselingsfluïdum vanuit warmtewisselingsingang 110 door de warmtewisselingskanalen naar warmtewisselingsuitgang 112 kan stromen. De warmtewisselingskanalen kunnen worden uitgelijnd teneinde een stroming in gelijkstroomse, tegenstroomse of, bij  
30   voorkeur, dwarsstroomrichting ten opzichte van een stroming in de procesmicrokanalen 104 te verschaffen. De dwarsstroomrichting is zoals aangegeven door pijlen 114 en 116.



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

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

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

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

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

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

Procesmicrokanalen 210 hebben een stroomopwaarts uiteinde 220 en een stroomafwaarts uiteinde 230 en kunnen een eerste sectie 240 omvatten die een katalysator (niet in de tekening opgenomen), bijvoorbeeld een epoxideringskatalysator, kan bevatten. Eerste sectie 240 kan in 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  
5 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  
10 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  
15 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  
20 380 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  
25 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-  
30 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  
5 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  
10 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  
15 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  
20 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  
25 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  
30 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

5 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  
10 voedingscomponenten of voor andere verhittingsdoeleinden.

De epoxideringskatalysatoren zijn meestal vaste katalysatoren onder de omstandigheden van de epoxidatiereactie. De katalysatoren 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  
15 binnenwand van de procesmicrokanalen wordt aangebracht. Daarnaast kunnen een of meer van de katalysatoren in de vorm zijn van een deklaag op inbrengstukken die in de daartoe aangewezen sectie van de procesmicrokanalen kunnen worden geplaatst.

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  
20 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  
25 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  
30 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 verschaft de onderhavige uitvinding een methode voor het installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor, welke methode omvat: afzetten van een of meer metalen uit Groep 11 of een of meer kationische metaalcomponenten uit Groep 11 op ten minste een deel van de wanden van genoemde procesmicrokanalen, afzetten van een of meer versnellercomponenten op ten minste dezelfde wanden voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van het/(de) metaal/(metalen) uit Groep 11 of de kationische metaalcomponent(en) uit Groep 11 en, indien een kationische Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet, reduceren van ten minste een deel van de kationische metaalcomponent(en) uit Groep 11.

Metaal uit Groep 11 kan op ten minste een deel van de wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet door de wanden in aanraking te brengen met een vloeistof die gedispergeerd metaal uit Groep 11 bevat, bijvoorbeeld een metaalsol uit Groep 11, en de vloeistof te verwijderen, bijvoorbeeld door verdamping, met achterlating van metaal uit Groep 11 op de wand. Dit afzetten kan meer dan eens worden uitgevoerd, bijvoorbeeld twee of drie maal, om afzetting van een gewenste hoeveelheid metaal uit Groep 11 te bewerkstelligen. De hoeveelheid metaal uit Groep 11 in een dergelijke vloeistof kan in het gebied van 1 tot 30 gew.%, in het bijzonder 2 tot 15 gew.%, ten opzichte van het gewicht van de vloeistof liggen. De vloeistof kan additieven zoals disperseermiddelen en stabilisatoren omvatten. Dergelijke additieven kunnen na verwijdering van de vloeistof worden verwijderd, bijvoorbeeld door verhitting tot een temperatuur van 100-300°C, in het bijzonder 150-250°C, in een inerte atmosfeer, bijvoorbeeld in stikstof of argon of in een zuurstofhoudende atmosfeer, bijvoorbeeld lucht of een mengsel dat zuurstof en argon omvat.

Als alternatief of bovendien kan metaal uit Groep 11 door middel van in de techniek bekende opdamptechnieken op ten minste een deel van de wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet.

Een kationische Groep 11-metaalcomponent kan op ten minste een deel van de wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet door de wanden in aanraking te brengen met een vloeistofmengsel dat de kationische Groep 11-metaalcomponent omvat en een vloeistofcomponent van het vloeistofmengsel te verwijderen.

Voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van kationische Groep 11- metaalcomponent kan een reductiemiddel worden toegepast. Meestal kan het vloeistofmengsel de kationische Groep 11-metaalcomponent en een reductiemiddel omvatten, in welk geval verwijdering van de vloeistof en verrichting van het

5 reduceren van ten minste een deel van de kationische Groep 11-metaalcomponent tegelijk kunnen worden bewerkstelligd. Zulk afzetten kan meer dan eens worden uitgevoerd, bijvoorbeeld twee of drie maal, om afzetting van een gewenste hoeveelheid metaal uit Groep 11 te bereiken. De kationische Groep 11- metaalcomponent omvat bijvoorbeeld een niet-gecomplexiseerd of gecomplexiseerd

10 metaalzout uit Groep 11, in het bijzonder een kationisch metaalaminecomplex uit Groep 11. Het in aanraking brengen van de wanden met een vloeistofmengsel dat een kationisch metaalaminecomplex uit Groep 11 en een reductiemiddel omvat, kan worden gevolgd door verhitting bij een temperatuur van 100-300°C, in het bijzonder 150-250°C, in een inerte atmosfeer, bijvoorbeeld in stikstof of argon of in een

15 zuurstofhoudende atmosfeer, bijvoorbeeld lucht of een mengsel dat zuurstof en argon omvat. De verhitting bewerkstelligt in het algemeen reductie van ten minste een deel van het kationische metaalaminecomplex uit Groep 11. Voorbeelden van kationische metaalaminecomplexen uit Groep 11 zijn kationisch metaal uit Groep 11 dat met een monoamine of een diamine is gecomplexiseerd, in het bijzonder een 1,2-

20 alkyleendiamine. Voorbeelden van geschikte aminen zijn ethyleendiamine, 1,2-propyleendiamine, 2,3-butyleendiamine en ethanolamine. Hogere aminen kunnen worden gebruikt, zoals bijvoorbeeld triaminen, tetraminen en pentaminen. Voorbeelden van reductiemiddelen zijn oxalaten, lactaten en formaldehyde. De hoeveelheid metaal uit Groep 11 in een dergelijk vloeistofmengsel kan in het gebied

25 van 1 tot 40 gew.%, in het bijzonder 2 tot 30 gew.%, liggen, berekend als het gewicht van het metaal uit Groep 11 ten opzichte van het gewicht van het vloeistofmengsel. Voor nadere bijzonderheden over vloeistofmengsels die kationisch metaalaminecomplex uit Groep 11 en een reductiemiddel omvatten, raadplege men

30 US-A-5380697, US-A-5739075, EP-A-266015 en US-B-6368998, die door verwijzing hierin zijn opgenomen.

In sommige uitvoeringsvormen kan metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet voordat de microkanaalreactor wordt vervaardigd

door platen samen te stellen, zoals in het voorgaande beschreven. In dergelijke uitvoeringsvormen kunnen delen van de wanden waarop geen metaal uit Groep 11 moet worden afgezet, door een tijdelijke deklaag worden afgeschermd. In andere uitvoeringsvormen kan metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-

5 metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet nadat zij door samenstelling van de platen zijn gevormd, zoals in het voorgaande beschreven. In dergelijke uitvoeringsvormen kunnen tijdelijk inzetstukken worden geplaatst in de secties van de microkanalen waar geen metaal uit Groep 11 op de wanden mag worden afgezet.

10 In sommige uitvoeringsvormen kan metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet waarbij genoemde wanden ten minste gedeeltelijk met een dragermateriaal zijn bedekt en waarbij metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent op of in het dragermateriaal wordt afgezet, op  
15 geschikte wijze met gebruikmaking van een impregneringsmethode. Genoemde wanden kunnen voorafgaand aan of na het samenstellen van de procesmicrokanalen ten minste gedeeltelijk door middel van wassend bekleden met het dragermateriaal worden bedekt. Bijzonderheden van geschikte dragermaterialen zijn zoals hierna gespecificeerd.

20 In sommige uitvoeringsvormen worden de wanden van de procesmicrokanalen waarop metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent kan worden afgezet ten minste gedeeltelijk opgeruwd of geribbeld. Opruwen of ribbelen kan groeven en verheffingen verschaffen, zodat het opgeruwde of geribbelde wandoppervlak in feite wordt vergroot, bijvoorbeeld met een factor 0,5 tot 10 of 1 tot  
25 5, ten opzichte van de oppervlaktegrootte van het opgeruwde of geribbelde wandoppervlak zoals gedefinieerd door zijn buitenmaten. Dit kan de adhesie van de op de wand afgezette epoxideringskatalysator verhogen en maakt dat meer epoxideringskatalysatoroppervlak kan bijdragen bij het katalyseren van de epoxidatiereactie. Opruwen en ribbelen kunnen met in de techniek bekende methoden  
30 worden bereikt, bijvoorbeeld etsen of uitoefenen van schuurkracht.

In sommige uitvoeringsvormen levert genoemd afzetten van metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent, met daaropvolgend reduceren, een spiegelbeeldig op de wanden van de procesmicrokanalen geplaatst metaal uit Groep



11 op en levert dit in andere uitvoeringsvormen afzonderlijke metaaldeeltjes uit Groep 11 op, bijvoorbeeld in de vorm van bolletjes. Nog andere uitvoeringsvormen leveren een combinatie van een spiegelbeeld en afzonderlijk deeltjes op. Dergelijke morfologieverschillen zijn niet essentieel voor de uitvoering van de onderhavige uitvinding.

Op ten minste een deel van dezelfde wanden van de procesmicrokanalen als de wanden waarop metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet, kunnen een of meer versnellercomponenten worden afgezet. Afzetten van versnellercomponenten kan voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent worden bewerkstelligd. Bijzonderheden van dergelijke versnellercomponenten, waaronder geschikte hoeveelheden daarvan, worden hierna vermeld. Geschikte methoden voor het afzetten van de versnellercomponenten kunnen bijvoorbeeld zijn het in aanraking brengen van de wanden met een vloeistofmengsel dat een of meer van de af te zetten versnellercomponenten en een verdunningsmiddel omvat en verwijderen van het verdunningsmiddel met achterlating van ten minste een deel van de versnellercomponent(en). In het bijzonder in uitvoeringsvormen waarbij de wanden van de procesmicrokanalen met een dragermateriaal worden bedekt, kan het vloeistofmengsel, alvorens het verdunningsmiddel te verwijderen, gedurende een bepaalde periode in aanraking met de wanden worden gehouden, bijvoorbeeld tot 10 uur, in het bijzonder 0,25 tot 5 uur, en kan de temperatuur tot 95°C zijn, in het bijzonder in het gebied van 10-80°C. Geschikte vloeistoffen omvatten de versnellercomponent(en) meestal opgelost of gedispergeerd in een waterige vloeistof, bijvoorbeeld water of een waterig organisch verdunningsmiddel, zoals bijvoorbeeld een mengsel van water en een of meer van methanol, ethanol, propanol, isopropanol, aceton of methylethylketon. Het afzetten kan meer dan eens worden uitgevoerd, bijvoorbeeld twee of drie maal, om afzetting van een gewenste hoeveelheid versnellercomponent te bewerkstelligen. In plaats daarvan kunnen verschillende versnellercomponenten in verschillende afzetstappen worden afgezet.

Naast een of meer versnellercomponenten kunnen een of meer componenten die een of meer verdere elementen omvatten, op ten minste een deel van dezelfde wanden van de procesmicrokanalen worden afgezet als de wanden waarop metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet. Het afzetten van componenten die

de verdere elementen omvatten, kan voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent en voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van de versnellercomponenten worden bewerkstelligd. Bijzonderheden van de componenten die de verdere elementen omvatten, waaronder

5 geschikte hoeveelheden daarvan, worden hierna vermeld. Geschikte methoden voor het afzetten van de componenten die de verdere elementen omvatten, zijn bijvoorbeeld het in aanraking brengen van de wanden met een vloeistofmengsel dat een of meer van de af te zetten componenten en een verdunningsmiddel omvat en verwijderen van het verdunningsmiddel met achterlating van ten minste een deel van de component(en). In

10 het bijzonder in uitvoeringsvormen waarbij de wanden van de procesmicrokanalen met een dragermateriaal worden bedekt, kan het vloeistofmengsel, alvorens het verdunningsmiddel te verwijderen, gedurende een bepaalde periode in aanraking met de wanden worden gehouden, bijvoorbeeld tot 10 uur, in het bijzonder 0,25 tot 5 uur, en kan de temperatuur tot 95°C zijn, in het bijzonder in het gebied van 10-80°C. Geschikte

15 vloeistoffen omvatten de component(en) meestal opgelost of gedispergeerd in een waterige vloeistof, bijvoorbeeld water of een waterig organisch verdunningsmiddel, zoals bijvoorbeeld een mengsel van water en een of meer van methanol, ethanol, propanol, isopropanol, tetrahydrofuran, ethyleenglycol, ethyleenglycoldimethylether, diethyleenglycoldimethylether, dimethylformamide, aceton of methylethylketon. Het

20 afzetten kan meer dan eens worden uitgevoerd, bijvoorbeeld twee of drie maal, om afzetting van een gewenste hoeveelheid componenten te bereiken. In plaats daarvan kunnen verschillende componenten die een verder element omvatten, in verschillende afzetstappen worden afgezet.

De totale in de eerste sectie van de procesmicrokanalen aanwezige hoeveelheid

25 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/m<sup>3</sup> liggen, vaker 50 tot 400 kg/m<sup>3</sup>, in het bijzonder 100 tot 300 kg/m<sup>3</sup> reactorvolume, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator

30 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/m<sup>3</sup> liggen, vaker 20 tot 200 kg/m<sup>3</sup>, in het bijzonder 50 tot 150 kg/m<sup>3</sup> reactorvolume, zoals in het voorgaande beschreven.

5 De dragermaterialen die bij deze uitvinding kunnen worden gebruikt, 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  
10 materiaal dat de meeste voorkeur heeft, is  $\alpha$ -alumina. Meestal omvat het dragermateriaal ten minste 85 gew.%, vaker ten minste 90 gew.%, in het bijzonder ten minste 95 gew.%  $\alpha$ -alumina, vaak tot 99,9 gew.%  $\alpha$ -alumina, ten opzichte van het gewicht van de drager. Andere componenten van het  $\alpha$ -alumina kunnen bijvoorbeeld silica, alkalimetaalcomponenten, bijvoorbeeld natrium- en/of kaliumcomponenten,  
15 en/of aardalkalimetaalcomponenten, bijvoorbeeld calcium- en/of magnesiumcomponenten, omvatten.

De oppervlaktgrootte van het dragermateriaal kan op geschikte wijze ten minste 0,1 m<sup>2</sup>/g zijn, bij voorkeur ten minste 0,3 m<sup>2</sup>/g, met meer voorkeur ten minste 0,5 m<sup>2</sup>/g en in het bijzonder ten minste 0,6 m<sup>2</sup>/g ten opzichte van het gewicht van de  
20 drager; en de oppervlaktgrootte kan op geschikte wijze ten hoogste 10 m<sup>2</sup>/g zijn, bij voorkeur ten hoogste 5 m<sup>2</sup>/g en in het bijzonder ten hoogste 3 m<sup>2</sup>/g ten opzichte van het gewicht van de drager. "Oppervlaktgrootte" zoals hier gebezigd, wordt geacht betrekking te hebben op de oppervlaktgrootte zoals bepaald met de B.E.T.-methode (Brunauer, Emmett en Teller), zoals beschreven in Journal of the American Chemical  
25 Society 60 (1938) pp. 309-316. Dragermaterialen met hoge oppervlaktgrootte, in het bijzonder als zij een  $\alpha$ -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  
30 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  $\mu\text{m}$  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 Micromeretics Autopore 9200 model ( $130^\circ$  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  $\mu\text{m}$  meer dan 75%, in het bijzonder meer dan 80%, met meer voorkeur meer dan 85%, liefst meer dan 90% van het totale porievolume vertegenwoordigen. Vaak is de poriegrootteverdeling zodanig dat de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  meer dan 75%, in het bijzonder meer dan 80%, met meer voorkeur meer dan 85%, liefst meer dan 90%, in het bijzonder tot 100% van het porievolume in de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10  $\mu\text{m}$  vertegenwoordigen.

Meestal is de poriegrootteverdeling zodanig dat poriën met een diameter van minder dan 0,2  $\mu\text{m}$  minder dan 10%, in het bijzonder minder dan 5% van het totale porievolume vertegenwoordigen. Dikwijls vertegenwoordigen de poriën met een diameter van minder dan 0,2  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  minder dan 20%, in het bijzonder minder dan 10%, meer in het bijzonder minder dan 5% van het totale porievolume vertegenwoordigen. Dikwijls

vertegenwoordigen de poriën met een diameter van meer dan 10 µm meer dan 0,1%, in het bijzonder meer dan 0,5% van het totale porievolume.

Het uit deeltjes bestaande dragermateriaal heeft meestal een  $d_{50}$  in het gebied van 0,1 tot 100 µm, in het bijzonder 0,5 tot 50 µm. 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 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 wordt waargenomen, wat bij gebruik van het Horiba LA900 deeltjesgrootteanalysestoestel meestal 5 minuten sonificering vergt. Bij voorkeur omvat het uit deeltjes bestaande dragermateriaal deeltjes van zodanige afmetingen dat zij door een ASTM-zeef met openingen ter grootte van ten hoogste 50%, in het bijzonder 30% van de kleinste dimensie van het procesmicrokanaal kunnen.

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

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

De versnellercomponent kan meestal in de epoxideringskatalysator aanwezig zijn in een hoeveelheid van ten minste 0,05 mmol/kg, vaker ten minste 0,5 mmol/kg en bij voorkeur ten minste 1 mmol/kg, berekend als de totale hoeveelheid van het element (dat wil zeggen, renium, wolfram, molybdeen en/of chroom) ten opzichte van het gewicht aan metaal uit Groep 11. De versnellercomponent kan in een hoeveelheid van ten hoogste 250 mmol/kg aanwezig zijn, bij voorkeur ten hoogste 50 mmol/kg, met meer voorkeur ten hoogste 25 mmol/kg, berekend als de totale hoeveelheid van het element ten opzichte van het gewicht aan metaal uit Groep 11.

De vorm waarin de versnellercomponent kan worden afgezet, is voor de uitvinding niet essentieel. De versnellercomponent kan bijvoorbeeld op geschikte wijze worden verschaft als een oxide of als een oxyanion, bijvoorbeeld als een renaat, perrenaat of wolframaat in zout- of zuurvorm.

5           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  
10 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  
15 de drager afgezette reniumcoversneller omvatten. Op geschikte wijze kan de reniumcoversneller worden gekozen uit componenten die een element omvatten dat is gekozen uit wolfraam, chroom, molybdeen, zwavel, fosfor, boor en mengsels daarvan. Bij voorkeur wordt de reniumcoversneller geselecteerd uit componenten die wolfraam, chroom, molybdeen, zwavel en mengsels daarvan omvatten. Het heeft  
20 bijzondere voorkeur dat de reniumcoversneller wolfraam 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 wolfraam, chroom, molybdeen, zwavel, fosfor en/of boor) ten opzichte van het  
25 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  
30 als een oxyanion, bijvoorbeeld, als een sulfaat, boraat of molybdaat in zout- of zuurvorm.

De epoxideringskatalysator omvat bij voorkeur metaal uit Groep 11, de versnellercomponent en een component die een verder element omvat. In aanmerking

komende verdere elementen kunnen worden gekozen uit de groep van stikstof, fluor, alkalimetalen, aardalkalimetalen, titaan, hafnium, zirkoon, vanadium, thallium, thorium, tantaal, niobium, gallium en germanium en mengsels daarvan. Bij voorkeur worden de alkalimetalen gekozen uit lithium, kalium, rubidium en cesium. Liefst is  
5 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  
10 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  
15 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 aanwezig aardalkalimetaal geacht de hoeveelheid te zijn voor zover die met 10 gew.%  
20 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  
25 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.

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

De olefine voor gebruik bij de onderhavige uitvinding kan een aromatische olefine zijn, bijvoorbeeld styreen of een diolefine, ongeacht of die geconjugeerd is of 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  
5 isobuteen. Bij voorkeur is de olefine een mono- $\alpha$ -olefine, bijvoorbeeld 1-buteen of propeen. De olefine die de meeste voorkeur heeft, is etheen.

De voeding voor de epoxideringswerkwijze volgens deze uitvinding omvat de 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  
10 de sectie van de procesmicrokanalen waarin de desbetreffende werkwijze plaatsvindt, worden toegevoerd. Sommige van de voedingscomponenten kunnen door een opening in stroomopwaarts uiteinde 220 van procesmicrokanalen 210 aan de epoxideringswerkwijze worden toegevoerd. Sommige van de voedingscomponenten kunnen door eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280 worden  
15 toegevoerd. Bijvoorbeeld, een olefinenrijke voedingscomponent kan door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen worden toegevoerd en een zuurstofrijke voedingscomponent kan door het eerste voedingskanaal en de een of meer eerste openingen worden toegevoerd. Als alternatief kan de zuurstofrijke voedingscomponent door de opening in het stroomopwaartse uiteinde van de  
20 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,  
25 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.

30 In de voeding kan als reactiemodificator een organisch halogenide aanwezig zijn om de selectiviteit te vergroten en daarbij ongewenste oxidatie van de olefine of het olefineoxide tot kooldioxide en water te onderdrukken ten opzichte van de gewenste vorming van het olefineoxide. Het organische halogenide kan als vloeistof



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

15 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  
20 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  
25 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  
30 anorganische stikstofverbindingen zijn bijvoorbeeld stikstofoxiden, hydrazine, hydroxylamine of ammoniak. Geschikte stikstofoxiden hebben als algemene formule  $\text{NO}_x$ , waarin x in het gebied van 1 tot 2 ligt, en omvatten bijvoorbeeld NO,  $\text{N}_2\text{O}_3$  en  $\text{N}_2\text{O}_4$ .

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  
5 aanwezig is in een concentratie van ten hoogste  $50 \times 10^{-4}$  mol%, in het bijzonder ten hoogste  $20 \times 10^{-4}$  mol%, meer in het bijzonder ten hoogste  $15 \times 10^{-4}$  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  $1 \times 10^{-4}$  mol%, ten opzichte van de totale voeding.

10 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  
15 eerste voedingskanaal 260 en een of meer eerste openingen 280 worden toegevoerd.

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

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

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

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

minder dan 2 mol%, bij voorkeur minder dan 1 mol% of ligt zij in het gebied van 0,2 tot 1 mol% van de totale voeding.

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

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

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

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

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

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

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

De epoxideringswerkwijze kan toepassing van zodanige omstandigheden omvatten dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is. De omzetting van de olefine kan ten minste 90 mol% zijn en de omzetting van zuurstof kan ten minste 90 mol% zijn. In het bijzonder kan de voeding in deze uitvoeringsvorm de olefine en zuurstof in een hoeveelheid van ten hoogste 50 mol% ten opzichte van de totale voeding omvatten en kan de voeding bovendien verzadigde koolwaterstoffen als ballastgas en inert gas omvatten. Meestal worden zodanige procesomstandigheden gebruikt dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 95 mol% is, in het bijzonder ten minste 98 mol%, meer in het bijzonder ten minste 99 mol%. Zoals hier gebezigd, is omzetting de omgezette hoeveelheid van een reactiestof ten opzichte van de hoeveelheid van de reactiestof in de voeding, uitgedrukt in mol%. Bij voorkeur is de omzetting van de olefine ten minste 95 mol%, in het bijzonder ten minste 98 mol%, meer in het bijzonder ten minste 99 mol% en kan zuurstof ten minste gedeeltelijk worden aangevuld. De aanwezigheid van een overmaat zuurstof ten opzichte van de olefine in de voeding helpt bij het bereiken van een hoge omzetting van de olefine. Bijvoorbeeld, de molaire verhouding van zuurstof ten opzichte van de olefine in de voeding kan ten minste 1,01 zijn, meestal ten minste 1,05, in

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

Bij de uitvoering van deze uitvinding kan het reactieproduct, waaronder het  
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  
15 tweede warmtewisselingskanalen 350 aanwezig is. Meestal kan de temperatuur van  
het reactieproduct, waaronder het olefineoxide, worden verlaagd tot een temperatuur  
van ten hoogste 250°C, vaker ten hoogste 225°C, bij voorkeur in het gebied van 20 tot  
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  
20 200°C, in het bijzonder 70 tot 160°C. Afschrikken maakt het mogelijk om de totale  
hoeveelheid van het olefineoxide en de zuurstof in de voeding van de  
epoxideringswerkwijze te verhogen en het ballastgas te elimineren of de hoeveelheid  
ballastgas in de voeding van de epoxideringswerkwijze te verminderen. Ook is een  
gevolg van het afschrikken dat het geproduceerde olefineoxide een schoner product is,  
25 dat minder aldehyde en carbonzure onzuiverheden omvat.

In sommige uitvoeringsvormen kan de epoxideringswerkwijze omvatten  
- in reactie brengen van een voeding die een olefine en zuurstof omvat in aanwezigheid  
van een epoxideringskatalysator die in een eerste sectie 240 van een of meer  
procesmicrokanalen 210 van een microkanaalreactor zit teneinde daardoor een eerste  
30 mengsel te vormen dat het olefineoxide en kooldioxide omvat, zoals in het voorgaande  
beschreven,  
- afschrikken van het eerste mengsel in tussensectie 440 van de een of meer  
stroomafwaarts van eerste sectie 240 geplaatste procesmicrokanalen 210 door

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

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

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

Bij deze uitvoeringsvorm, in gevallen waarin het tweede mengsel als gasvormige fase wordt gevormd, kan de werkwijze tevens het condenseren omvatten van ten minste een deel van het tweede mengsel, dat het olefineoxide en het 1,2-carbonaat omvat, in een

derde sectie van de een of meer procesmicrokanalen, welke derde sectie stroomafwaarts van de tweede sectie is geplaatst. Meestal behelst het condenseren van ten minste een deel van het tweede mengsel het afvoeren van warmte door warmtewisseling met een warmtewisselingsfluidum. Een dergelijk warmtewisselingsfluidum kan in een vierde  
5 warmtewisselingskanaal aanwezig zijn, zoals in het voorgaande beschreven. Meestal wordt ten minste 50 mol%, in het bijzonder ten minste 80 mol%, meer in het bijzonder ten minste 90 mol% van het totaal van het olefineoxide en het in het tweede mengsel aanwezige 1,2-carbonaat gecondenseerd, bijvoorbeeld ten minste 98 mol%, en in de praktijk van deze uitvinding wordt vaak tot 99,9 mol% gecondenseerd. In gevallen waarin  
10 het tweede mengsel water ten minste gedeeltelijk als gasvormige fase omvat, kan de werkwijze bij voorkeur tevens het condenseren omvatten ten minste een deel van dergelijk in het tweede mengsel in de derde sectie aanwezige water. In een eventueel tweede mengsel aanwezig water is meestal water dat bij de epoxidatiereactie mede is gevormd. De molaire hoeveelheid in het tweede mengsel aanwezige water kan in het  
15 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 de totale hoeveelheden van het in het tweede mengsel aanwezige olefineoxide en 1,2-carbonaat. Meestal wordt ten minste 50 mol%, in het bijzonder ten minste 80 mol%, meer in het bijzonder ten minste 90 mol% van het totaal van het in het tweede mengsel aanwezige water gecondenseerd, bijvoorbeeld ten minste  
20 98 mol%, en in de praktijk van deze uitvinding wordt vaak tot 99,9 mol% gecondenseerd.

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  
25 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  
30 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  
5 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.  
10 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  
15 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  
20 kunnen een di-ether, tri-ether, tetra-ether of een volgende ether zijn. Ook kunnen 1,2-diolethers worden bereid door het olefineoxide om te zetten met een alcohol, in het bijzonder een primaire alcohol zoals methanol of ethanol, door ten minste een deel van het water door de alcohol te vervangen.

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

De omzetting in het alkanolamine kan het in reactie brengen van het  
30 olefineoxide met een amine zoals ammoniak, een alkylamine of een dialkylamine omvatten. Watervrije of waterige ammoniak kan worden gebruikt. Watervrije ammoniak wordt meestal gebruikt om de productie van monoalkanolamine te bevorderen. Voor toepasselijke methoden voor de omzetting van het olefineoxide in



het alkanolamine raadplege men bijvoorbeeld US-A-4845296, dat door verwijzing hierin is opgenomen.

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

Tenzij anders vermeld, hebben de hier genoemde organische verbindingen, bijvoorbeeld de olefinen, alcoholen, 1,2-diolen, 1,2-diolethers, 1,2-carbonaten, ethanolaminen en organische halogeniden, meestal ten hoogste 40 koolstofatomen, vaker ten hoogste 20 koolstofatomen, in het bijzonder ten hoogste 10 koolstofatomen, meer in het bijzonder ten hoogste 6 koolstofatomen. Meestal hebben de organische verbindingen ten minste een 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

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 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 met de tweede sectie, zodanig dat in het stroomafwaartse deel van de tweede sectie

een lagere temperatuur wordt bereikt dan in het stroomopwaartse deel van de tweede sectie. Een voedingsmicrokanaal komt door openingen uit in de eerste sectie van het procesmicrokanaal. De openingen zijn in stroomafwaartse richting van de eerste sectie op ongeveer gelijke afstanden vanaf het stroomopwaartse uiteinde van het  
5 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, wolfrum, cesium en lithium afgezet op een uit deeltjes bestaand dragermateriaal  
10 omvat. Het uit deeltjes bestaande dragermateriaal is een  $\alpha$ -alumina met een oppervlakte 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 porievolume in de poriën met een  
15 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  
20 na het assembleren worden zilver, renium, wolfrum, cesium en lithium met gebruikmaking van als zodanig uit US-A-5380697 bekende methoden op het dragermateriaal afgezet. De hoeveelheid zilver is  $350 \text{ kg/m}^3$  reactorvolume, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator  
25 ingenomen delen van de microkanalen.

De eerste sectie wordt door warmtewisseling met het warmtewisselingsfluidum dat in het eerste warmtewisselingsmicrokanaal stroomt, verhit tot  $220^\circ\text{C}$  terwijl etheen door een opening aan het stroomopwaartse uiteinde van de procesmicrokanalen wordt toegevoerd. Door de voedingskanalen wordt een  
30 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  $150^\circ\text{C}$  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.

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

## CONCLUSIES

1. Methode voor het installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor, welke methode omvat afzetten van een metaal uit Groep 11 of een kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden van genoemde procesmicrokanalen,  
5 afzetten van een of meer versnellercomponenten op ten minste een deel van dezelfde wanden voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van het metaal uit Groep 11 of de kationische Groep 11-metaalcomponent en, indien een kationische Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet, reduceren van ten minste een deel van de kationische Groep 11-metaalcomponent,  
10 waarbij de afgezette hoeveelheid metaal uit Groep 11 in het gebied van 10 tot 500 kg/m<sup>3</sup> reactorvolume ligt, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de microkanalen..
  2. Methode volgens conclusie 1, waarbij het metaal uit Groep 11 als een kationische  
15 Groep 11-metaalcomponent wordt afgezet.
    3. Methode volgens conclusie 2, waarbij het metaal uit Groep 11 wordt afgezet door de wanden in aanraking te brengen met een vloeistofmengsel dat de kationische Groep 11-metaalcomponent omvat,  
een vloeistofcomponent van het vloeistofmengsel te verwijderen, en  
20 voorafgaand aan, samen met of na het afzetten van kationische Groep 11-metaalcomponent een reductiemiddel toe te passen.
      4. Methode volgens een der conclusies 1-3, waarbij de methode tevens omvat het ten minste gedeeltelijk met een dragermateriaal bedekken van de wanden van de procesmicrokanalen en vervolgens het op of in het dragermateriaal afzetten van het  
25 metaal uit Groep 11 of de kationische Groep 11-metaalcomponent.
        5. Methode volgens conclusie 4, waarbij het dragermateriaal een poriegrootteverdeling heeft, zodanig dat de poriën met een diameter in het gebied van 0,3

tot 10 µm meer dan 75%, met voorkeur meer dan 85%, met meer voorkeur meer dan 90% van het porievolume in de poriën met een diameter in het gebied van 0,2 tot 10 µm vertegenwoordigen.

5 6. Methode volgens conclusie 4 of 5, waarbij het dragermateriaal een uit deeltjes bestaand materiaal met een  $d_{50}$  in het gebied van 0,1 tot 100 µm is.

7. Methode volgens conclusie 6, waarbij het uit deeltjes bestaande materiaal een  $d_{50}$  in het gebied van 0,5 tot 50 µm heeft.

10 8. Methode volgens conclusie 4, waarbij het dragermateriaal een uit deeltjes bestaand materiaal is dat door een ASTM-zeef met openingen ter grootte van ten hoogste 50% van de kleinste dimensie van het procesmicrokanaal kan.

9. Methode volgens conclusie 8, waarbij het dragermateriaal een uit deeltjes bestaand materiaal is dat door een ASTM-zeef met openingen ter grootte van ten hoogste 30% van de kleinste dimensie van het procesmicrokanaal kan.

15 10. Methode volgens conclusie 1, waarbij het metaal uit Groep 11 wordt afgezet door de wanden in aanraking te brengen met een vloeistof die gedispergeerd metaal uit Groep 11 bevat, en de vloeistof te verwijderen met achterlating van metaal uit Groep 11 op de wand.

11. Methode volgens conclusie 1, waarbij het metaal uit Groep 11 door middel van een opdamptechniek wordt afgezet.

20 12. Methode volgens een der conclusies 1-10, waarbij het metaal uit Groep 11 of de kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van de wanden wordt afgezet door metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent op ten minste een deel van een of meer platen af te zetten, en een microkanaalreactor te vervaardigen door de platen te assembleren teneinde 25 procesmicrokanalen te vormen met metaal uit Groep 11 of kationische Groep 11-metaalcomponent afgezet op ten minste een deel van de wanden.

30 13. Methode volgens een der conclusies 1-11, waarbij de afgezette hoeveelheid metaal uit Groep 11 in het gebied van 50 tot 400 kg/m<sup>3</sup> reactorvolume ligt, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de microkanalen.

14. Methode volgens een der conclusies 4-13, waarbij de methode het afzetten van het metaal uit Groep 11 of de kationische Groep 11-metaalcomponent of het dragermateriaal op ten minste gedeeltelijk opgeruwde of geribbelde delen van de wanden van de procesmicrokanalen omvat, van welke delen het opgeruwde of geribbelde wandoppervlak in feite met een factor 0,5 tot 10 is vergroot ten opzichte van de oppervlakgrootte van het opgeruwde of geribbelde wandoppervlak zoals door zijn buitenmaten gedefinieerd.

15. Methode volgens een der conclusies 1-14, waarbij de katalysator zilver als het metaal uit Groep 11 omvat.

16. Methode volgens conclusie 15, waarbij de katalysator tevens een versnellercomponent omvat die een of meer elementen omvat die zijn gekozen uit renium, wolfram, molybdeen, chroom en mengsels daarvan, en daarnaast een alkalimetaal omvat dat is gekozen uit lithium, kalium, cesium en mengsels daarvan.

17. Werkwijze voor de epoxidering van een olefine, welke werkwijze omvat - met een methode volgens een der conclusies 1-16 installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor, en - in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van de in de een of meer procesmicrokanalen geïnstalleerde epoxideringskatalysator.

18. Werkwijze volgens conclusie 17, waarbij de voeding de olefine en zuurstof in een totale hoeveelheid van ten minste 50 mol%, ten opzichte van de totale voeding, omvat.

19. Werkwijze volgens conclusie 17 of 18, waarbij de werkwijze het in reactie brengen omvat van een voeding die de olefine en zuurstof omvat en het toepassen van zodanige omstandigheden dat de omzetting van de olefine of de omzetting van zuurstof ten minste 90 mol% is.

20. Werkwijze volgens een der conclusies 17-19, waarbij de werkwijze tevens het afschrikken van het reactieproduct in een stroomafwaartse sectie van de procesmicrokanalen omvat.

21. Werkwijze volgens conclusie 20, waarbij de werkwijze tevens het 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.

22. Werkwijze ter bereiding van een 1,2-diol, een 1,2-diolether, een 1,2-carbonaat of een alkanolamine, welke werkwijze omvat

- installeren van een epoxideringskatalysator in een of meer procesmicrokanalen van een microkanaalreactor met een methode volgens een der conclusies 1-16,
- in reactie brengen van een voeding die de olefine en zuurstof omvat, in aanwezigheid van de in de een of meer procesmicrokanalen geïnstalleerde epoxideringskatalysator teneinde een olefineoxide te produceren, 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.

23. Werkwijze volgens een der conclusies 17-22, waarbij de olefine etheen omvat.

24. Reactor die geschikt is voor de epoxidering van een olefine, welke reactor een microkanaalreactor is die een of meer procesmicrokanalen omvat met daarin een epoxideringskatalysator geïnstalleerd die een metaal uit Groep 11 omvat, waarbij de hoeveelheid van het metaal uit Groep 11 in het gebied van 10 tot 500 kg/m<sup>3</sup> reactorvolume ligt, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de microkanalen.

25. Reactor volgens conclusie 24, waarbij de afgezette hoeveelheid metaal uit Groep 11 in het gebied van 50 tot 400 kg/m<sup>3</sup> reactorvolume ligt, waarbij reactorvolume het totale volume is dat wordt gedefinieerd door het dwarsdoorsnedeoppervlak en de totale lengte van de door de epoxideringskatalysator ingenomen delen van de microkanalen.

26. Reactor volgens conclusie 24 of 25, waarbij de katalysator zilver als het metaal uit Groep 11 omvat.

27. Reactor volgens conclusie 26, waarbij de katalysator tevens een versnellercomponent omvat die een of meer elementen omvat die zijn gekozen uit renium, wolfram, molybdeen, chroom en mengsels daarvan, en tevens een alkalimetaal omvat dat is gekozen uit lithium, kalium, cesium en mengsels daarvan.





RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK

Van belang zijnde literatuur

Categorie <sup>1</sup>	Vermelding van literatuur met aanduiding, voor zover nodig, van speciaal van belang zijnde tekstgedeelten of figuren.	Van belang voor conclusie(s) Nr.:	International Patent Classification (IPC)
X, D	WO 2004/099113 A (VELOCYS), 18 november 2004 * blz.4 regel 30; conclusie 69 *	1-15, 17-20, 22-27	B01J19/00 B01J19/24
Y	* blz.28 regel 8 – blz.30 regel 30 * * blz.27 regels 23-27 * * blz.10 regels 5-26 *	16, 21	C07D301/10 C07D303/04
---			
Y, D	US 5380697 A (MATUSZ ET AL), 10 januari 1995 * conclusies; voorbeelden *	16	B01J C07D
---			
Y	GB 2107712 A (PPG INDUSTRIES), 5 mei 1983 * blz. 2 regels 3-19 *	21	Computerbestanden
---			
E	WO 2006/02/0709 A (VELOCYS), 23 februari 2006 * blz.37 regel 29 – blz.38 regel 9 * * blz.39 regel 20 – blz.43 regel 24 * * blz.31 regels 29-30 *	1-15, 17-20, 22-27	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 ---		
---			
A	Kursawe A. et al., "Comparison of Ag/Al- and Ag/ $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 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	1-27	

A	----- Kestenbaum H. et al, "Silver-Catalyzed Oxidation of Ethylene to Ethylene Oxide in a Microreaction System", Ind.Eng.Chem.Res. 41 (2002) 710-719 -----	1-27	
---	---	------	--

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

<sup>1</sup> Verklaring van de categorie-aanduiding: zie apart blad.

Categorie van de vermelde literatuur:

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

**AANHANGSEL BEHORENDE BIJ HET RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK, UITGEVOERD IN OCTROOIAANVRAGE NR. 2000384**

---

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
WO2004099113	A	2004-11-18	US2004220434	A	2004-11-04
			CA2523704	A	2004-11-18
			EP1626948	A	2006-02-22
			KR20060026016	A	2006-03-22
			BRPI0410039	A	2006-04-25
			MXPA05011732	A	2006-07-06
			JP2006525334T	T	2006-11-09
<hr/>					
US5380697	A	1995-01-10	CA2171213	AC	1995-03-16
			WO9507139	A	1995-03-16
			AU7695194	A	1995-03-27
			ZA9406841	A	1995-04-24
			FI961030	A	1996-03-06
			NO960915	A	1996-05-06
			PL313355	A	1996-06-24
			EP0717659	AB	1996-06-26
			CZ9600729	A	1996-09-11
			TR28524	A	1996-09-30
			SK30496	A	1996-10-01
			CN1133571	A	1996-10-16
			NZ273597	A	1996-10-28
			BR9407417	A	1996-11-12
			JP9502129T	T	1997-03-04
			AU680299B	B	1997-07-24

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
		PH30949 A	1997-12-23
		AT164784T T	1998-04-15
		DE69409536D D	1998-05-14
		ES2114225T T	1998-05-16
		DE69409536T T	1998-07-30
		DK717659T T	1998-12-21
		RU2126296 C	1999-02-20
		SG81876 A	2001-07-24
		JP3727653B2 B	2005-12-14
GB2107712 AB	1983-05-05	DE3237138 AC	1983-04-28
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

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
			JP3832848B2	B	2006-10-11
EP0266015	AB	1988-05-04			
			PT86038	AB	1987-11-01
			IE60557	B	1994-07-27
			DK560087	A	1988-05-01
			FI874786	A	1988-05-01
			NO874528	A	1988-05-02
			AU8053987	A	1988-05-05
			JP63126552	A	1988-05-30
			BR8705810	A	1988-05-31
			MA21096	A	1988-07-01
			CN87107194	A	1988-07-27
			PL268522	A	1988-12-08
			YU197887	A	1988-12-31
			HU47046	A	1989-01-30
			NZ222342	A	1989-09-27
			AU592478B	B	1990-01-11
			YU180088	A	1990-02-28
			CS8707729	A	1990-06-13
			CS8806977	A	1990-09-12
			PH25304	A	1991-04-30
			IN169589	A	1991-11-16
			DE3774999D	D	1992-01-16
			IL84232	A	1992-06-21
			CA1304346	C	1992-06-30
			ES2028860T	T	1992-07-16
			SG126392G	G	1993-02-19
			GR3003662T	T	1993-03-16
			SU1831369	A	1993-07-30
			MX170627	B	1993-08-31
			EG18719	A	1993-12-30
			TR26675	A	1994-07-05
			BG60854	B	1996-05-31
			KR960011047B	B	1996-08-16
			DZ1139	A	2004-09-13

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





OCTROOICENTRUM NEDERLAND

SCHRIFTELIJKE OPINIE

	INDIENINGSDATUM 20 december 2006	VOORRANGSDATUM 22 december 2005	AANVRAAGNUMMER 2000384
CLASSIFICATIE B01J19/00, B01J19/24, C07D301/10, C07D303/04,			
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.: 2000384

---

### 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 10, 12, 13, 16, 21 Nee: Conclusies 1-9, 11, 14-15, 17-20, 22-27
Inventiviteit	Ja: Conclusies Nee: Conclusies 10, 12, 13, 16, 21
Industriële toepasbaarheid	Ja: Conclusies 1-27 Nee: Conclusies

#### 2. Literatuur en toelichting

Van de in het rapport van het onderzoek naar de stand van de techniek vermelde documenten worden de volgende besproken:

WO 2004/099113 A	(D1)
US 5380697 A	(D2)
GB 2107712 A	(D3)
WO 2006/02/0709 A	(D4)
US 5703253 A	(D5)
US 5597773 A	(D6)
EP 266015 A	(D7)

In de beschrijving van de aanvraag is reeds een groot aantal documenten genoemd (vgl. bijvoorbeeld pag. 6, regel 30 e.v.) waaruit blijkt dat verscheidene maatregelen op het onderhavige vakgebied bekend zijn uit de stand van de techniek, met name ook werkwijzen voor het installeren van een epoxideringskatalysator in procesmicrokanalen van een microkanaalreactor door afzetten van de katalysator op de wanden van de procesmicrokanalen (vgl. o.m. D1, blz. 28, regel 7 e.v.). Desondanks is conclusie 1 niet van deze werkwijzen afgebakend, zodat onduidelijk is -mede gezien de wijdlopieg geredigeerde tekst van de beschrijving- welke nieuwe maatregelen de aanvraag aan de stand der techniek toevoegt en waarin de uitvinding nu moet worden gezien.

Een aanwijzing daarvoor geeft wellicht de volgende passage:

*"De microkanaalreactor wordt volgens methoden die bekend zijn uit WO-A2004/099113 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, rhenium, wolfram, cesium en lithium met gebruikmaking van als zodanig uit US-A-5380697*

## Schriftelijke Opinie

Aanvraag nr.: 2000384

**bekende methoden op het dragermateriaal afgezet.” (zie blz. 33, regels 17- 25 en conclusie 4 van de aanvraag)**

Hiermee lijkt aanvraagster aan te geven dat ten opzichte van D1 de uitvinding gelegen is in het “installeren” van de katalysator na het assembleren, welk installeren kennelijk gekenmerkt is door het afzetten van zilver en promotercomponenten op het, reeds op de wanden van de procesmicrokanalen aangebrachte dragermateriaal.

Uit D1 is echter ook bekend dat de microkanaalreactor wordt gebruikt voor gekatalyseerde epoxideringsreacties, zoals de vorming van etheenoxide uit ethyleen (zie blz.4 regel 30). Welke katalysator juist voor die reactie wordt gebruikt is in D1 niet letterlijk vermeld, maar de gebruikelijke katalysator hiervoor is, zoals de gemiddelde vakman weet, een  $\alpha$ -alumina gedragen gepromoteerde zilverkatalysator. Het is ook algemeen bekend dat zilver veelal wordt aangebracht op een drager uitgaande van een vloeistofmengsel dat een kationische zilvercomponent bevat, waarna een reductiebehandeling plaatsvindt om zo te komen tot katalytisch actieve metallische zilverdeeltjes (vgl. o.m. D2, kol.1, regels 12-38 en D5-D7). Voorts is uit D1 ook bekend dat de actieve katalysatordeeltjes worden afgezet op de drager (zie blz. 30 regels 23-30). Een veelgebruikte drager voor dergelijke zilverkatalysatoren is  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  waarvan gebruikelijk de afmetingen vallen binnen het bereik zoals genoemd in de conclusies 5- 8 (zie bijvoorbeeld tabel 1, D2).

De materie van de conclusies 1-9 en 11 is dan ook bekend uit D1 en, voor zover niet letterlijk vermeld, zal deze materie door de vakman op grond van zijn algemene vakkennis daarin worden meegelezen. Deze conclusies worden dus niet nieuw geacht.

Het gebruik van een opdamptechniek in plaats van “washcoaten” is niet vermeld in D1, maar deze techniek is wel algemeen bekend. Bovendien wordt in de beschrijving niet gemotiveerd wat de bijzondere en/of onverwachte voordelen zijn van de toepassing van deze techniek boven “washcoaten”. Conclusie 10 is dus niet inventief.

Het bepalen van de juiste hoeveelheid af te zetten metaal behoort tot de standaard maatregelen bij het in gebruik nemen van een reactor en conclusies 12 en 13 lijken dus niet bijzonder.

De procesmicrokanalen volgens D1 kunnen voorzien zijn van “insertable fins” wat zal resulteren in opgeruwde of geribbelde delen van de wanden. Conclusie 14 is dus evenmin nieuw.

Zoals hiervoor reeds aangegeven is een zilverkatalysator voor epoxidatiereacties algemeen bekend, dus conclusie 15 is evenmin nieuw.

De katalysator volgens conclusie 16 is, zoals in de beschrijving ook aangegeven (blz. 33, regels 17-25), bekend uit D2. De keuze voor deze katalysator in plaats van andere gepromoteerde zilverkatalysatoren is niet bijzonder en ligt binnen het bereik van de vakman bekend met D1 en D2.

Conclusies 17 en 18 hebben betrekking op de gebruikelijke wijze van het bedrijven van een microkanaalreactor nadat daarin de epoxidatiekatalysator is geïnstalleerd. Deze conclusies vallen met de conclusies waarnaar ze terugverwijzen.

Conclusie 19 is een zgn. wensconclusie, zie Onderdeel VII.

De maatregel van conclusie 20, het afschrikken van het reactieproduct in een stroomafwaartse sectie van de procesmicrokanalen, is eveneens bekend uit D1 (blz.10 regels 5-26) en deze conclusie valt dan ook met de conclusies waarnaar wordt terugverwezen.

Uit D3 is een twee-staps proces bekend, zonder tussentijdse productscheiding, waarbij eerst ethyleen en zuurstof worden omgezet naar ethyleenoxide en kooldioxide en vervolgens deze productgassen worden omgezet naar ethyleencarbonaat. De reactie naar ethyleencarbonaat kan plaatsvinden in meerdere parallel geplaatste reactoren (blz. 2 regels 18-19). Juist omdat de reactie naar ethyleencarbonaat ook exotherm is en het verwijderen van warmte goed moet



## Schriftelijke Opinie

Aanvraag nr.: 2000384

worden gecontroleerd ligt het voor de hand deze tweestapssynthese toe te passen in het microkanaalsysteem volgens D1. Conclusie 21 mist daarom inventiviteit.

De reacties van ethyleenoxide uit conclusie 22 zijn algemeen bekend en deze conclusie valt met de conclusie waarnaar wordt terugverwezen.

In het voorgaande is reeds uitgegaan van de keuze voor etheen als olefine, dus conclusie 23 valt eveneens.

Conclusies 24-27 zijn gericht op een reactor geschikt voor het uitvoeren van de hiervoor besproken werkwijze en bevatten geen maatregelen die nog niet zijn besproken. Deze inrichtingsconclusies zijn daarom om dezelfde redenen op zich bekend uit de stand van de techniek, dan wel niet inventief.

Tenslotte is de materie van de conclusies 1-9, 11, 14-15, 17-20, 22-27 ook beschreven in de niet vóórgepubliceerde internationale aanvraag D4 van oudere rang, zie de in het nieuwheidsrapport aangegeven passages. Daarbij verdient ook opmerking dat op blz. 38 van D4 wordt aangegeven dat de katalysatoren beschreven in de octrooipublicaties US 5703253 A, US 5597773 A en EP 266015 A van Shell kunnen worden toegepast. De vakman zal daarom dat wat aldaar is beschreven over de samenstelling van de katalysatoren meelesen in D4.

---

### Onderdeel VII Overige gebreken

---

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

Conclusies 19 is geformuleerd in termen van het resultaat dat moet worden bereikt, te weten een bepaalde omzetting van zuurstof of olefine, zonder aan te geven de maatregelen die nodig zijn om dit gewenste resultaat te bereiken. Er wordt enkel gesproken van "zodanige omstandigheden". Ook in de beschrijving, waarin geen praktisch voorbeeld met experimentele data is opgenomen, wordt niet uiteengezet welke maatregelen leiden tot dit gewenste resultaat. Geconcludeerd wordt dat daarom het octrooischrift niet een beschrijving bevat van de uitvinding (volgens conclusie 19) die zodanig duidelijk en volledig is dat de vakman de uitvinding kan toepassen.