公告本

申請日期：90.7.6	案號：90116598
類別：C07D301/32	

（以上各欄由本局填註）

發明專利說明書 588045

一、發明名稱	中文	製備氧化丙烯之方法
	英文	PROCESS FOR THE PREPARATION OF PROPYLENE OXIDE
二、發明人	姓名（中文）	1.裘昆 漢里奎 泰勒斯 2.歐文 里芬格 3.彼得 巴斯勒 4.安妮 溫瑟
	姓名（英文）	1.JOAQUIM HENRIQUE TELES 2.ALWIN REHFINGER 3.PETER BABLER 4.ANNE WENZEL
	國籍	1.葡萄牙 2.德國 3.德國 4.德國
	住、居所	1.德國歐崔普市賽吉勒街29A號 2.德國慕特斯塔特市羅森街10號 3.德國佛恩漢市瑪莉亞-曼道街18號 4.德國伊根斯坦-里奧波夏芬市波斯塔莫路14號
三、申請人	姓名（名稱）（中文）	1.德商巴地斯顏料化工廠
	姓名（名稱）（英文）	1.BASF AKTIENGESELLSCHAFT
	國籍	1.德國
	住、居所（事務所）	1.德國來恩河勞域沙芬市
	代表人姓名（中文）	1.安德瑞斯・拜伯拜奇 2.維拉・史塔克
	代表人姓名（英文）	1.ANDREAS BIEBERBACH 2.VERA STARK

申請日期：	案號：
類別：	

（以上各欄由本局填註）

發明專利說明書

一、發明名稱	中 文	
	英 文	
二、發明人	姓 名（中文）	5.諾伯特 里伯 6.彼得 魯道夫
	姓 名（英文）	5.NORBERT RIEBER 6.PETER RUDOLF
	國 籍	5.德國 6.德國
	住、居所	5.德國曼漢市里勞恩街1C號 6.德國拉登伯格市勞坦撒勒路12號
三、申請人	姓 名（名稱）（中文）	
	姓 名（名稱）（英文）	
	國 籍	
	住、居所（事務所）	
	代表人姓 名（中文）	
	代表人姓 名（英文）	

本案已向

國(地區)申請專利	申請日期	案號	主張優先權
德國 DE	2000/07/06	10032885.7	有

有關微生物已寄存於　　寄存日期　　寄存號碼

無

五、發明說明（1）

本發明係關於其中用甲醇製備氧化丙烯之方法。在本發明之方法中，甲醇係經處理，並自包含甲醇和甲酸甲酯之混合物分離。

在甲醇存在下製備氧化丙烯的標準先前技術方法中，甲酸甲酯一般以至少一個處理步驟自甲醇及/或氧化丙烯生成。如果需要使目標產物氧化丙烯自不合需要的副產物甲酸甲酯分離，則將出現難題，因為此兩種化合物沸點很相近，所以分離需要高度設備複雜性。在此方面所正常使用的蒸餾方法中，保證必要目標產物純度需要萃取蒸餾方法。

此類自氧化丙烯分離甲酸甲酯之複雜方法描述於（例如）美國專利申請案第5,107,002號及第5,106,458號。

本發明一個目的為提供一種能夠減小設備複雜性及保證更有效和更廉價製備氧化丙烯之方法。

我們發現，這一目的可藉由在甲醇存在下製備氧化丙烯之方法實現，其中使氧化丙烯自包含氧化丙烯和甲醇之混合物分離，並處理所得包含甲醇之混合物，其包括在處理期間使甲醇自包含甲醇和甲酸甲酯之混合物分離。

原則上可由任何可相信方法使甲醇自包含甲酸甲酯和甲醇之混合物分離，只要保證所分離甲醇純度滿足製造需要。

除其它外，在此要提到化學方法。例如，可使包含甲醇和甲酸甲酯之混合物與適用鹼性離子交換劑接觸，這將產生甲醇，而甲酸甲酯留在離子交換劑上。除其它外，該方

五、發明說明（2）

法描述於美國專利申請案第5,107,002號。

另外，可用鹼處理包含甲醇和甲酸甲酯之混合物，其間使甲酸甲酯水解。在此，可利用能夠水解甲酸甲酯的所有鹼。較佳使用強鹼。可為本發明目的提及的特佳鹼為比甲酸弱的酸之鹽。除其它外，在此可提及（例如）鹼金屬和鹼土金屬氫氧化物或者醇或酚之鹼金屬鹽。當然亦可使用兩種或多種此等鹼之混合物。

另外可較佳用物理方法（例如蒸餾方法）使甲醇自包含甲醇和甲酸甲酯之混合物分離。

在此等方法中，可使用萃取蒸餾方法，如自先前技藝瞭解並如上述的美國專利申請案第5,107,002號。

但較佳使用其中能夠以比該萃取蒸餾方法複雜性更小的設備實施之蒸餾方法。

較佳使用其中利用一塔或多塔（較佳一塔）之蒸餾方法。如果使用一塔，則應具有至少5個，較佳至少10個且特別至少20個理論塔板。

所用壓力一般在0.2至50巴，較佳在1.5至30巴，特別在2.0至20巴。

塔頂及塔底溫度明顯受所選擇壓力決定。在一特佳具體實施例中，該塔具有約20個理論分離塔板數，且一般在0.2至50巴壓力操作，較佳在1.5至30巴，特佳在2.0至20巴。所得塔頂產物為包含存在於進料中的甲酸甲酯及小比例甲醇之混合物。通常，所得混合物具有小於80重量%含量甲醇，較佳小於50重量%，特佳小於20重量%。

五、發明說明 (3)

因此，本發明亦關於如上所述之方法，其中自包含甲醇和甲酸甲酯之混合物分離甲醇系於具至少5個理論塔板之蒸餾塔以0.2至50巴之壓力進行。

另外可以相信，包含甲醇和甲酸甲酯之混合物除具有甲酸甲酯外，尚額外具有其它組分。在此，"組分"指純化合物和具有沸點低於甲醇沸點之共沸物二者。除其它外，可藉實例提及的此類型組分為乙醛、1,1-二甲氧基乙烷、丙醛、1,1-二甲氧基丙烷、丙酮及2,4-二甲基-1,3-二氧戊環。可在處理過程中同樣使此等自混合物分離。

因此，可在甲醇自甲酸甲酯分離之前由一種或多種適用物理或化學方法使一些副產物自該混合物分離。可同樣首先使甲醇自混合物分離，如此能夠產生包含甲醇和至少一種雜質之混合物。在此情況下，可在自混合物分離甲醇之後進行其中自至少一種雜質分離甲醇的一個或多個分離階段。自混合物分離甲醇可同樣產生包含甲酸甲酯和一種或多種雜質之混合物。如需要，亦可將其由一種或多種適用物理或化學方法分離成其組分。然後可將該組分作為原料單獨或共同送到一個或多個其它製程或經歷熱回收。

亦可依雜質化學性質，藉由在單一處理步驟自甲醇分離甲酸甲酯和至少一種雜質使甲醇自混合物分離。

上述蒸餾係根據本發明優先利用，得到一種具有小於500 ppm甲酸甲酯含量(較佳小於100 ppm，特佳小於20 ppm)之甲醇餾分。

因此，本發明亦關於一種其中在處理期間所分離甲醇具

五、發明說明 (4)

有小於500 ppm甲酸甲酯含量之上述方法。

根據甲醇餾分純度需要，在蒸餾性處理後保留在甲醇餾分中的其它組分殘餘物(例如，乙醛、1,1-二甲氧基乙烷、丙醛、1,1-二甲氧基丙烯、丙酮或2,4-二甲基-1,3-二氧戊環)可藉由一個或多個適用步驟(例如一次或多次額外蒸餾)自甲醇分離。

通常，如果甲醇中各單獨二級組分小於1重量%且所有二級組分之和不超過5重量%，就完全足夠。

可再利用以此方法自甲酸甲酯分離的甲醇，原則上可將甲醇送回製備氧化丙烯之製程或(如必要)送到其中需要甲醇作溶劑或原料或另一種功能的不同製程。當然亦可將自根據本發明分離產生的甲醇物流分成兩個或多個物流，並將各物流送到不同製程。

在本發明方法的一個特佳具體實施例中，頃自甲酸甲酯和(如存在)一種或多種副產物或雜質分離的甲醇係如上述送回製備氧化丙烯之製程。除其它外，較佳將甲醇以泵輸入緩衝罐，並自其送入製程中。

因此，本發明亦關於一種其中將在處理過程中自甲酸甲酯分離的甲醇送回到製程之上述方法。

原則上可由任何在甲醇存在下進行之方法製備氧化丙烯。

在根據本發明方法的一個較佳具體實施例中，氧化丙烯在甲醇存在下以至少一個反應步驟自丙烯和過氧化氫製備，得到包含甲醇、氧化丙烯和水之混合物。

五、發明說明 (5)

可由任何適用方法使丙烯與過氧化氫進行反應。例如，可分批方法或連續製備氧化丙烯。

關於連續方法，可同樣使用所有適合反應器佈置。例如，可在相互串聯的兩個或多個串聯反應器中製備氧化丙烯。可用方法亦可為其中利用並聯反應器者。亦可組合此等方法。如果串聯兩個或多個反應器，亦可在反應器間提供適合中間處理。對此可參考(除其它外)PCT/EP 99/05740及德國專利申請案第100 15 246.5號，與反應器佈置和中間處理有關的全部範圍係明確以參考方式併於本文。

另外，可在自丙烯和過氧化氫製備氧化丙烯之製程期間修飾反應介質之溫度及壓力。可同樣修飾反應介質之pH和溫度。除反應介質之pH和溫度外，可額外修飾進行反應之壓力。對此可參考德國專利申請案第199 36 547.4號，與此有關的全部範圍係明確以參考方式併於本申請案。

自丙烯和過氧化氫製備氧化丙烯產生之混合物包括甲醇、氧化丙烯及水，較佳在本發明方法中由首先分離氧化丙烯處理該混合物。

因此，在一特佳具體實施例中，本發明關於一種上述方法，其中

(i) 以至少一個反應步驟，在甲醇存在下自丙烯和過氧化氫製備氧化丙烯，得到包含甲醇、氧化丙烯和水之混合物(Gi)，

(ii) 自混合物(Gi)分離氧化丙烯，得到包含甲醇和水

五、發明說明 (6)

之混合物(Gii)，

(iii) 自混合物(Gii)分離水，得到包含甲醇和甲酸甲酯之混合物(Giii)，

(iv) 自混合物(Giii)分離甲醇，及

(v) 將(iv)中分離的甲醇送回入(i)。

在(iii)自混合物(Gii)分離水較佳在本發明製程中由蒸餾進行，可使用一個或多個蒸餾塔。較佳利用一個或二個蒸餾塔。如果沒有必要熱回收，則較佳使用一個蒸餾塔。若要在製程中保證特佳熱整合，則較佳使用二或多個蒸餾塔。

關於物理參數，如溫度或壓力，在自混合物(Gii)蒸餾分離水時沒有特殊限制。如果在本發明方法中只用一個塔使水自混合物(Gii)分離，該塔較佳具有至少5個理論塔板，較佳至少20個，更佳至少30個。蒸餾較佳在0.5至40巴(較佳1.0至20巴，特佳2.0至15巴)壓力進行。

如果在本發明方法中用兩個塔使自混合物(Gii)分離，則應選擇壓力，以便能夠在塔頂用凝縮熱量加熱其它製程物流。為此，可用水冷却至少一個塔之冷凝器，用自冷却產生的熱水或自冷却產生的物流加熱本發明製程的一個或多個步驟或一個或多個其它製程。

第一蒸餾塔較佳在0.5至40巴壓力操作，較佳1至20巴。在一可能具體實施例中，第一塔係以高於第一塔之壓力操作。在此情形下，第二塔底部藉由自第一塔之冷凝液加熱。在一較佳具體實施例中，第一塔係以低於第二塔之壓

五、發明說明（7）

力水平操作。此時，第一塔底部由自第二塔之冷凝液加熱。

在一特佳具體實施例中，第一塔係以4至9巴壓力操作，6至8更佳，第二塔係以11至16巴壓力操作，更佳12至14巴。通常，混合物(Gii)中存在的20至80%(較佳30至70%，特佳40至60%)甲醇與甲酸甲酯一起在第一塔頂部分離。第一塔底部獲得的混合物經壓縮，用作第二塔進料。自第二塔之頂部產物包括剩餘甲醇和甲酸甲酯，底部產物包括水。將自第一塔的頂部產物和第二塔的頂部產物合併得到混合物(Giii)。

在兩個塔分離水和在一個塔分離水兩種情況下，特佳選擇分離條件，使混合物(Giii)中水含量小於3重量%，較佳小於1重量%，特佳小於0.3重量%。較佳進一步選擇分離條件，使底部取出物中甲醇含量小於5重量%，較佳小於1重量%，特佳小於0.2重量%。

底部取出物可額外包括其它組分，例如甲氧基丙醇、丙二醇、甲酸、二丙二醇單甲醚和甲醛。

因此，本發明亦關於其中在(iii)由蒸餾分離水之上述方法，其中

(w) 使主要包含甲醇和甲酸甲酯之混合物(Gw)在第一蒸餾塔頂部自混合物(Gii)分離，

(x) 將在第一蒸餾塔底部獲得的混合物用作第二蒸餾塔進料。

(y) 在第二蒸餾塔頂部得到主要包含甲醇和甲酸甲酯之

五、發明說明 (8)

混合物(Gy)，

(z) 將混合物(Gw)和(Gy)合併，以得到混合物(Giii)。

如上所述，在水自所得混合物(Gii)分離之前，首先使在(i)中製備的氧化丙烯自混合物(Gi)分離。該分離可同樣由任何適用方法進行，較佳再次選用蒸餾分離。

如果此時混合物(Gi)不包含或含少量可忽略未在(i)中反應的丙烯，原則上可直接在(ii)中自混合物(Gi)分離氧化丙烯。

然而，本發明製程中混合物(Gi)通常包括足以需要分離的未反應丙烯。在此情況下，進行該製程較佳藉由在第一步驟使未反應丙烯自混合物(Gi)分離，並使氧化丙烯自所產生包含氧化丙烯之混合物分離。

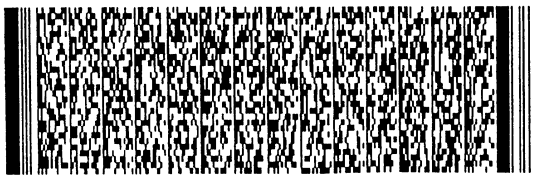
因此，本發明亦關於其中以至少兩個步驟(a)和(b)在(ii)分離氧化丙烯之上述方法，其中

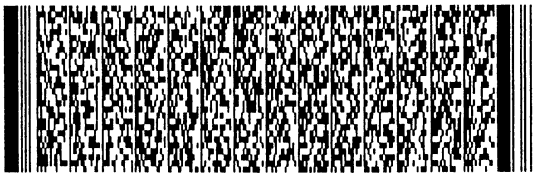
(a) 使丙烯自混合物(Gi)[該混合物除含甲醇、氧化丙烯和水外，尚包括未在(i)中反應的丙烯]分離，得到包含甲醇、氧化丙烯和水之混合物(Ga)，及

(b) 使氧化丙烯自混合物(Ga)分離，以得到混合物(Gii)。

雖然可再次用所有適合方法在(a)和(b)進行此等分離，但較佳使用蒸餾方法。

如上所述，原則上可在單個蒸餾塔中使丙烯和氧化丙烯自混合物(Gi)分離，例如，由側取分離氧化丙烯，而丙烯於頂部取出，此時在底部得到包含甲醇和水之混合物。





五、發明說明 (9)

但較佳利用兩個單獨塔，丙烯較佳在至少一個塔之頂部取出，而包含氧化丙烯、甲醇和水之混合物(Ga)則在底部獲得。氧化丙烯較佳在至少一個另外塔頂部自混合物(Ga)分離、混合物(Gii)在其底部獲得。

較佳在具少5個理論塔板(較佳至少10個，特佳至少15個理論塔板)之塔中以0.2至25巴壓力(較佳0.5至5巴，特佳約1巴)在(a)進行蒸餾分離。在頂部分離丙烯所處之溫度在約1巴特佳壓力特佳為約25℃。在底部分離含甲醇、水和氧化丙烯之混合物所處之溫度在約1巴特佳壓力特佳為約63℃。

關於在(b)蒸餾分離，在本發明之方法中，較佳其中以0.3至10巴(較佳0.5至5巴，特佳0.6至1.2巴)壓力操作具至少20個理論塔板(較佳至少40，特佳至少60個理論塔板)之塔。在頂部分離氧化丙烯所處溫度在約0.75巴壓力接近26℃。在底部分離包含甲醇和水之混合物所處之溫度在約0.75巴壓力接近67℃。

因此，本發明亦關於如上所述之方法，其中在(a)和(b)分離係藉由

(a) 在具至少5個理論塔板之塔以0.2至25巴之壓力，及

(b) 在具至少20個理論塔板之塔以0.3至10巴之壓力蒸餾進行。

在本發明一特佳具體實施例中，在(a)中分離的丙烯係作為原料送回(i)。在某些情況下，在將丙烯作為低沸點餾分進行上述分離時發生問題，氧氣可能在低沸點餾分中

五、發明說明（10）

以使低沸點餾分轉化成可燃混合物之濃度積累。如果由蒸餾使丙烯自低沸點餾分分離並送回(i)，則可能產生嚴重安全危險。為解決這一問題，可由蒸餾使丙烯自低沸點餾分移除，並將具有低於丙烯沸點之惰性物質（較佳甲烷）加入為此用途所使用的分離裝置上部，且其用量應將氧氣稀釋到混合物不再可燃之濃度。該方法描述於（例如）歐洲專利第EP-B 0 719 768號。但較佳用處理包含丙烯和氧氣之混合物之方法解決該問題，其中由蒸餾使氧氣自該混合物移除，得到一種額外混合物，並由蒸餾使丙烯自該額外混合物移除。該方法描述於德國專利申請案第100 01 401.1號，在此方面的全部範圍係明確以參考方式併於本發明。

原則上可在上述方法中用甲醇作溶劑，除甲醇外，亦可使用一種或多種其它適用溶劑。可同樣如甲醇一樣處理該至少一種其它溶劑，並送回製程。除其它外，此類型其它溶劑為

- 水，
- 醇，較佳低碳醇，更佳具小於6個碳原子之醇，例如乙醇、丙醇、丁醇及戊醇，
- 二醇或多元醇，較佳具小於6個碳原子者，
- 醚，例如乙醚、四氫呋喃、二氧雜環己烷、1,2-二乙氧基乙烷及二甲氧基乙醇，
- 酯，例如乙酸甲酯或丁內酯，
- 醯胺，例如二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺及N-甲基吡咯啶酮，

五、發明說明（11）

- 酮，例如丙酮，
- 腈，例如乙腈，
- 或兩種或多種上述化合物之混合物。

適用於將丙烯轉化成氧化丙烯之催化劑原則上為所有適合各反應的催化劑，較佳為所有雜相催化劑。較佳催化劑包括多孔性氧化材料，例如沸石。較佳催化劑中多孔性氧化材料為含鈦、釩、鉻、鈮或鋯之沸石。

特別為，沸石不含鋁且其中在矽酸鹽晶格中一些Si(IV)頃由鈦以Ti(IV)形式替代。鈦沸石(特別具MFI類型晶體結構者)及其製備方法描述於(例如)歐洲專利申請案第0 311 983號及第0 405 978號。

具MFI結構之鈦沸石係為已知，其能夠由在其X-射線衍射測定圖中的確定圖形以及在紅外區域(IR)約960厘米$^{-1}$處骨架振動帶鑑定，並因此有別於鹼金屬鈦酸鹽或晶體或無定形TiO_2相。

具體適用者為含有鈦、釩、鉻、鈮及鋯的具五矽(pentasil)沸石結構之沸石，特別為X-射線排佈成ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AWO、AWW、BEA、BIK、BOG、BPH、BRE、CAN、CAS、CFI、CGF、CGS、CHA、CHI、CLO、CON、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EMT、EPI、ERI、ESV、EUO、FAU、FER、GIS、GME、GOO、HEU、IFR、ISV、ITE、JBW、KFI、LAU、LEV、LIO、LOS、LOV、

五、發明說明 (13)

246.5號，此方面內容係明確以參考方式併於本文。

在以下實例中，本發明得以更詳細說明。

實例

比較性實例：

使64.5：15.5：20重量比甲醇，30重量%濃度水性過氧化氫溶液和丙烯之混合物在含TS-1粉末的0℃自體壓力高壓釜中反應，直到過氧化氫轉化率大於99%。

隨後將反應器內容物通入泡罩塔板，由升氣管將蒸餾裝置冷却至0℃，並用所安裝濾器阻擋催化劑。

然後將粗產物蒸餾，收集在33至36℃沸騰且包含氧化丙烯之餾分。

然後繼續蒸餾，收集沸點在56至66℃之餾分(S)。該餾分基本包括所有甲醇與少量乙醛(約0.3至0.6重量%)、丙酮(約0.1至0.3重量%)、1,1-二甲氧基乙烷(約0.4至0.8重量%)及甲酸甲酯(約50至120 ppm)。各重量%數據均以餾分重量計。

隨後用甲醇餾分(S)作溶劑重複上述丙烯反應。蒸餾所得粗產物得到具1000至2500 ppm甲酸甲酯含量之氧化丙烯餾分(蒸餾餾分在33至36℃範圍)。

本發明實例

如比較性實例重複第一反應及第一蒸餾。

用具至少10個理論塔板之塔使所得甲醇餾分(S)經歷第二蒸餾。取出頂部產物，直到頂部高度大於58℃。總共約1%所利用甲醇餾分作為頂部產物餾出。剩餘底部產物含小

五、發明說明（14）

於10 ppm甲酸甲酯。

以此回收甲醇作底部產物，重複使丙烯與過氧化氫反應。

蒸餾所得粗產物得到具低於10 ppm甲酸甲酯含量之氧化丙烯餾分（蒸餾餾分在33至36℃）。

甲酸甲酯含量分別由氣相色譜法測定。

圖式簡單說明

四、中文發明摘要　（發明之名稱：製備氧化丙烯之方法）

一種在甲醇存在下製備氧化丙烯之方法，其中使氧化丙烯自包含氧化丙烯和甲醇之混合物分離，並處理所得包含甲醇之混合物，其包括在處理期間使甲醇自包含甲醇和甲酸甲酯之混合物分離。

英文發明摘要　（發明之名稱：PROCESS FOR THE PREPARATION OF PROPYLENE OXIDE）

A process for the preparation of propylene oxide in the presence of methanol, in which propylene oxide is separated from a mixture comprising propylene oxide and methanol, and the resultant mixture comprising methanol is worked up, which comprises separating methanol from a mixture comprising methanol and methyl formate during the work-up.

LTA、LTL、LTN、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MWW、NAT、NES、NON、OFF、OSI、PAR、PAU、PHI、RHO、RON、RSN、RTE、RTH、RUT、SAO、SAT、SBE、SBS、SBT、SFF、SGT、SOD、STF、STI、STT、TER、THO、TON、TSC、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、WEN、YUG或ZON結構或由兩種或多種上述結構之混合結構之類型。將具UTD-1、CIT-1或CIT-5結構之含鈦沸石用於本發明之方法也是可行的。其它可提及含鈦沸石為具有ZSM-48或ZSM-12結構者。

具MFI、MEL或MFI/MEL混合結構之鈦沸石被認為對本發明之方法特佳。其它較佳沸石具體為通稱"TS-1"、"TS-2"和"TS-3"之含鈦沸石催化劑以及具有與β-沸石同晶形骨架結構之鈦沸石。

在本發明之方法中，特佳使用包括含鈦矽質岩沸石(silicalite)TS-1之雜相催化劑。

因此，本發明亦關於其中用沸石催化劑(較佳為鈦矽質岩沸石催化劑，特別為TS-1結構之鈦矽質岩沸石催化劑)製備氧化丙烯之上述方法。

在本發明之方法中，所用沸石可自身為多孔性氧化材料。當然，所用催化劑亦可為包含多孔性氧化材料之模造物。在此，可由任何先前技藝方法自該多孔性氧化材料開始生產模造物。

如果根據本發明方法之目的需要，可將所用催化劑再生。此等方法描述於(例如)德國專利申請案第100 15

92.8.15修正

六、申請專利範圍

1. 一種在甲醇存在下製備氧化丙烯之方法，其中使氧化丙烯自包含氧化丙烯和甲醇之混合物分離，並處理所得包含甲醇之混合物，其包括在處理期間使甲醇自包含甲醇和甲酸甲酯之混合物分離。

2. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該使甲醇自包含甲醇和甲酸甲酯混合物分離係於具至少5個理論塔板之蒸餾塔以0.2至50巴壓力進行。

3. 根據申請專利範圍第1或2項之方法，其中在處理過程分離之甲醇具有小於500 ppm之甲酸甲酯含量。

4. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中在處理過程自甲酸甲酯之甲醇係送回製程中。

5. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中

(i) 以至少一個反應步驟，在甲醇存在下自丙烯和過氧化氫製備氧化丙烯，得到包含甲醇、氧化丙烯和水之混合物(Gi)，

(ii) 自混合物(Gi)分離氧化丙烯，得到包含甲醇和水之混合物(Gii)，

(iii) 自混合物(Gii)分離水，得到包含甲醇和甲酸甲酯之混合物(Giii)，

(iv) 自混合物(Giii)分離甲醇，及

(v) 將(iv)中分離的甲醇送回入(i)。

6. 根據申請專利範圍第5項之方法，其中水係於(iii)藉由蒸餾移除，其中

(w) 使主要包含甲醇和甲酸甲酯之混合物(Gw)在第一蒸

六、申請專利範圍

餾塔頂部自混合物(Gii)分離，

(x) 將在第一蒸餾塔底部獲得的混合物用作第二蒸餾塔進料，

(y) 在第二蒸餾塔頂部得到主要包含甲醇和甲酸甲酯之混合物(Gy)，及

(z) 合併混合物(Gw)和(Gy)合併，以得到混合物(Giii)。

7. 根據申請專利範圍第5或6項之方法，其中於(ii)分離氧化丙烯係以至少兩個步驟(a)和(b)進行，其中

(a) 自混合物(Gi)[除甲醇、氧化丙烯和水外，尚包括未在(i)中反應的丙烯]分離丙烯，得到包含甲醇、氧化丙烯和水之混合物(Ga)，及

(b) 自混合物(Ga)分離氧化丙烯，以得到混合物(Gii)。

8. 根據申請專利範圍第7項之方法，其中在(a)和(b)分離係藉由

(a) 在具至少5個理論塔板之塔以0.2至25巴範圍壓力，及

(b) 在具至少20個理論塔板之塔以0.3至10巴範圍壓力蒸餾進行。

9. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該氧化丙烯係用沸石催化劑製備。

10. 根據申請專利範圍第9項之方法，其中該沸石催化劑為具TS-1結構之鈦矽質岩沸石催化劑。