

公告本

申請日期	P0.6.8
案 號	P011 3P82
類 別	C07C 209/60

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

574181

發 明 專 利 說 明 書

一、發明 新 型 名 稱	中 文	烷醇胺之製備
	英 文	PREPARATION OF ALKANOLAMINES
二、發明 創 作 人	姓 名	1. 馬撒思 福勞克倫 MATTHIAS FRAUENKRON 2. 爾里克 慕勒 ULRICH MULLER 3. 沃夫干 哈德 WOLFGANG HARDER 4. 裘格 央格 JORG UNGER
	國 籍	1.-4. 均德國
三、申請人	住、居所	1. 德國來恩河勞域沙芬市莎蘭街127號 2. 德國紐斯塔特市斯戴肯街14A號 3. 德國韋恩漢市伯格沃德街16號 4. 德國伯-伊格漢市格洛班街5A號
	姓 名 (名稱)	德商巴地斯顏料化工廠 BASF AKTIENGESELLSCHAFT
三、申請人	國 籍	德國
	住、居所 (事務所)	德國來恩河勞域沙芬市
三、申請人	代 表 人 姓 名	1. 安德瑞斯 拜伯拜奇 ANDREAS·BIEBERBACH 2. 維拉 史塔克 VERA·STARK

裝

訂

線

申請日期	
案號	
類別	

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書 新 型		
一、發明名稱	中 文	
	英 文	
二、發明人	姓 名	5.約漢-彼得 米爾德 JOHANN-PETER MELDER 7.沃特 海米爾 WALTER HIMMEL
	國 籍	6.安東 米爾 ANTON MEIER 5.-7.均德國
	住、居所	5.德國伯-伊格漢市菲齊坦街2號 6.德國伯肯海德市彼得-保羅-魯班街8A號 7.德國古恩斯塔特市提多-史東街12號
三、申請人	姓 名 (名稱)	
	國 籍	
	住、居所 (事務所)	
	代 表 人 姓 名	

裝

訂

線

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
I P C 分類：

A6
B6

本案已向：

國（地區） 申請專利，申請日期： 案號： ，☐有 ☐無主張優先權

德國 2000年06月09日 10028636.4 ☒有 ☐無主張優先權

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝 訂 線

五、發明說明(2)

DD專利案298 636中記述：經由氮與環氧乙烷在氣相中起反應而製備二乙醇胺之方法，所使用之觸媒是多相觸媒，五矽型的結晶矽酸鹽。

德國專利案A 25 47 328中記述用於連續製備二烷醇胺之方法，其中，在第一反應區中，使烯化氧與氮接觸，採所形成之單烷醇胺與自第一反應區中所移出之物料分離並使所分離出之單烷醇胺在第二反應區中與烯化氧接觸。三烷醇胺製備經由確定單烷醇胺：烯化氧的莫耳比予以調整又該等反應在無觸媒存在下，排除水而發生。

本發明的一個目的在提供能極精確建立和控制產物選擇性之方法而因此，具有一種方法，特別它可彈性及快速適應特定產物要求及/或容許高產物選擇性。

余等發現：此目的經由用於製備至少一種烷醇胺之方法而達到，即經由：於一種觸媒存在下在反應空間中使氮與環氧烷起反應而產生單烷醇胺或二烷醇胺或三烷醇胺或兩或三種此等化合物的混合物，產物領域中各種烷醇胺的分佈藉反應空間中之溫度予以控制，其中溫度經由調整反應空間中之溫度分佈圖予以確定。

在本發明之上下文中，術語反應空間係指反應器、反應器室和反應器段。因此，一個個別反應器可構成單一反應空間而如果採此個別反應器分成兩或數個段，爲了程序工程原因，若須要，實際上相互分離之各段或各室，則是兩或數個不同之反應空間。術語"反應空間"亦句括那些具體實施例其中，舉例而言，採兩或數個反應器並聯或串聯，

五、發明說明(3)

構成單一反應空間。

調整反應空間中之溫度分佈圖可經由所有適當方法而進行。舉例而言，可能自溫度分佈圖的特定設定點數值開始，採經由適當方法所測定之實際數值與此設定點數值比較，經由適當方法使實際數值反覆或直接，各別或連續適應於此設定點數值。亦可能舉例而言，考慮所獲得之產物領域及使實際數值適應於各自不同之設定點數值而因此，適應於可變更之設定點數值而改變溫度分佈圖的設定點數值。在本申請案的上下文中，術語"設定點數值"係指：溫度分佈圖之數值，由於它而獲得產物領域中烷醇胺的特定所需要之分佈。在本申請案的上下文中，術語"實際數值"係指：溫度分佈圖之數值，其係由適當方法予以測定並適應於設定點數值。在本申請案的上下文中，術語"溫度分佈圖之數值"係指：所測得之數值的總數其係由測量和建立反應空間中溫度分佈圖之適當方法予以測定。

溫度或溫度分佈圖基本上係由使來自反應空間之熱流動適應於環繞反應空間之絕緣設備(例如，環繞反應空間之雙來套冷却管)予以調整。在此具體實施例中，亦如下述，更佳採許多雙來套冷却管沿著反應空間例如一具管式反應器而連續使用。採此等冷却管(相互無關)裝載以冷却液體。此項排列便利於適應性控制溫度分佈圖。關於特定反應器設計及具有固定組成之反應物流動，控制參數是冷却劑之體積流速及絕緣設備(例如雙來套)中之入口溫度，或進入環繞反應器之連續雙來套中。

五、發明說明(4)

冷却劑的可變更之流速，舉例而言，經由控制相對應之循環泵予以實現。於進入絕緣設備之冷却劑的不同溫度可藉一或數個具有熱交換器之次級循環在廣大限度內(予以)變更。

反應空間中之溫度分佈圖通常可經由任何適當方法而獲得。特別，可使測定溫度時之量計點的數目和位置適應於反應空間的幾何學和尺寸。關於此點，反應空間中之溫度分佈圖因此可以相當於需要之任何所需要精確性而測定。

就其本身而論，溫度測量此處可經由任何適當方法而進行。

關於溫度測量，可使用所有習用之溫度感測器在反應空間的內部中，舉例而言可能使用熱電偶或具有或無保護管之電阻溫度計，關於在絕緣設備中之冷却介質入口和出口處之溫度測量較佳使用相同型式之感測器。另外，可使用用以測量熱輻射之光學，無接觸方法在絕緣設備的外限上以便溫度測量或測量可藉熱電偶或電阻溫度計，經由在絕緣設備的外限上之接觸方法予以實施。溫度測量較佳在反應空間之內部中之熱保護管中進行。以程序控制系統為基準，所使用之感測器是熱電偶或電阻溫度計。

在根據本發明之方法中，溫度控制之特佳所測量之變數是溫度梯度以及在反應空間中達到最大溫度時之位置。關於此點，術語"溫度梯度"應了解係意指：反應器中之最大溫度與原料流之溫度間或原料流的溫度之溫度差。因此，如果採不同溫度下之兩或數種原料流通入反應空間中，則

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(5)

可能自最大溫度開始，使用兩或數種不同溫度梯度於溫度控制。以反應空間的幾何學及/或大小為基準，亦可能：有兩或數個位置在反應空間中，在每一情況中，相同最大溫度發生在此等位置在測量的精確度以內及/或步驟的精確要求以內。

關於反應器的物質上之應力，不使用特別熱的反應區特別有利，特熱之反應區空間上受到嚴格限制而是使用平衡之溫度梯度遍及管的長度。另外，循著產物的所需要之比率來選擇熱點溫度及熱點之位置係有利。彼等自選擇體積流速(滯留時間)而獲得，因此採溫階建立在反應器中。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中調整反應空間中之溫度分佈圖係由以一種受控制之方式建立溫度梯度在反應空間中予以實施或經由以一種受控制之方式，確定最大溫度的位置在反應空間中或經由以一種受控制方式建位兩個參數予以實施。

溫度梯度記述沿著反應區之溫度的局部改變。為了此目的，採許多溫度感測器沿著反應空間中之此區域而分佈。使用感測器，可測定溫度之局部改變及最大數值，熱點，調整係如本文中上文所述予以實施。

在新穎方法中，發生在反應空間中並予以調整之溫度分佈圖可能經由所有適當措施所影響。

舉例而言，為了降低溫度，可採反應過程中所產生之熱經由任何適當方法而移除。特別，外部冷却係屬可能，舉例而言，利用環繞反應空間之一或數個冷却夾套。亦可能

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(6)

經由使一或數種適當惰性氣體通過反應空間來移除所放出之反應熱。反應熱亦可經由，舉例而言，蒸發存在於反應空間中之一部份的氫而移除。同樣可使用所有適當方法來增加反應空間中之溫度。此等包括直接方法，例如自外部加熱反應空間及間接方法。特別，應了解：間接方法意指那些方法其中，溫度增加經由完全或部份減少上述降低溫度之措施予以實現。

若必須，關於調整新穎方法中之溫度分佈圖，以反應空間的幾何學為基準，可採溫度在一或數個段中增加及可採溫度在一或數個段中同時降低。

影響反應空間中溫度之另外可能性是藉反應物在反應空間中之滯留時間，在連續步驟中反應混合物通過反應空間之流速或原料流之溫度或被通入反應空間中之原料流溫度。

溫度分佈圖較佳經由隨同相對應加熱反應物流所放釋之化學能量及經由利用輻射物理移除熱或更為有效地藉冷却介質而移除熱所調整者予以測定。為了此目的，參照關於特定控制使用冷却設備來移除熱之上文評述，冷却設備能控制熱移除在廣大限度內。

如上文中所使用之該組的反應物包括在新穎方法的過程中相互起反應之所有化合物。此等化合物特別是環氧烷，氫和烷醇胺。另外實例是單烷醇胺其可與環氧烷起反應而產生二烷醇胺而二烷醇胺可與環氧烷起反應而產生三烷醇胺。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(7)

當然，亦可採所有此等措施以適當方式相互併用。作為另種方法的實例，(其可同樣與上述各種措施併用)，包括原料氨與環氧烷的莫耳比。在新穎方法的此極特佳具體實施例中，產物領域中各種烷醇胺之分佈因此經由經通入反應空間中反應的各種原料莫耳比予以控制。

如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中產物領域中各種烷醇胺的分佈係通過氨：環氧烷的莫耳比予以另外控制。

原則上，亦可能另外藉進行反應時之壓力來影響產物領域中各種烷醇胺的分佈。

通常，關於反應空間的幾何學和尺寸並無限制。舉例而言，可能特別使用攪拌鍋、攪拌鍋串級、管式反應器、管式反應器串級或反應性蒸餾塔作為適當反應空間。而且，分批及連續步驟均屬可能。分批步驟和連續步驟之組合及不同反應器形式之組合(其依次可串聯及/或並聯)亦屬可能。

在新穎方法特佳具體實施例中，使用管式反應器供環氧烷與氨起反應之用。關於此點，可採兩或數個管式反應器串聯或可採兩或數個管式反應器並聯或可提供串聯和並聯排列的組合。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中反應係在管式反應器中予以進行。

舉例而言，根據本發明所使用之管式反應器是抗壓之反應管，可採它論理學上或實際上分成個別段。採各個段，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(8)

在一起或個別(相互獨立)予以恆溫，舉例而言經由環繞彼等之冷卻劑循環，即：舉例而言，利用雙夾套管或測定熱流動之其他構造措施。在個別段中，溫度係由許多溫度感測器予以測定，即：至少兩個溫度感測器。

各段的構造上排列亦可以一種方式予以實現以致使反應混合物連續流經一個在另一個內部之同中心所排列之許多反應管以便採所移除之熱不僅轉移至在環繞雙夾套管中之冷卻介質而且或代替充作用以加熱反應混合物本身。

通常，如所指明之反應係在觸媒之存在下予以進行。

使用勻相觸媒，例如水或一種烷醇胺通常係屬可能。特別，此處可述及適當無機或有機酸或銨鹽。

在新穎方法中，特佳使用一種多相觸媒。當然，亦可使用兩或數種適當多相觸媒。另外，可使用類似沸石之物料，例如磷酸鋁鹽和磷酸矽鋁鹽及有機離子交換劑，舉例而言，如德國專利A 19 41 859.8中所述。

在極特佳之具體實施例中，使用沸石觸媒作為一或數種多相觸媒。在本發明的上下文中，術語"沸石觸媒"係指適合作為觸媒之所有氧化物並具有或包括一種沸石結構或類似沸石之結構。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中反應係在一種多相觸媒之存在下予以進行，較佳是一種多相沸石觸媒。

根據本發明，較佳所使用之觸媒較佳是包括至少Si和Ti元素，至少非晶性矽石及至少一種結晶矽酸鹽相之氧化

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (9)

物，此結晶矽酸鹽相具有至少一種沸石結構，採非晶性矽石施加至具有至少一種沸石結構之至少一種結晶矽酸鹽相，其中氧化物不具有矽-碳鍵。

如所指之沸石熟知是具有有序通道和籠式結構(彼等具有微孔)之結晶矽鋁酸鹽。術語"微孔"如本發明的上下文中所使用者相當於Pure Appl. Chem. 57 (1985), 603-619中之定義，其係指具有小於2奈米之細孔直徑之細孔。此等沸石的網路係經由共用氧橋所連接之 SiO_4 和 AlO_4 四面體所組成。已知結構之概觀，舉例而言在下列文獻中見到：倫敦，W.M. Meier, D.H. Olson和Ch. Baerlocher在Atlas of Zeolite Structure Types, Elsevier(第四版)1996。

特別有不含鋁之沸石而其中矽酸鹽晶格中之某些Si(IV)經由鈦例如Ti(IV)所替代。鈦沸石，特別是具有MFI型之晶體結構者及其製備之可能性，舉例而言記述於歐洲專利案A 0 311 983與A 0 405 978中。

眾人皆知：具有MFI結構之鈦沸石可藉於測定其X射線繞射圖型時之特定圖型予以鑑別；及另外藉在大約 960 cm^{-1} 之紅外線區域(IR)中之骨架振動帶予以鑑別而因此與鹼金屬鈦酸鹽或結晶和非晶 TiO_2 相不同。

較佳使用於新穎方法中之觸媒的特定實例是具有五矽結構之沸石，特別是具有下列結構者：ABW，ACO，AEI，AEL，AEN，AET，AFG，AFI，AFN，AFO，AFR，ARS，AFT，AFX，AFY，AHT，ANA，APC，APD，AST，ATN，ATO，ATS，ATT，ATV，AWO，AWW，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(10)

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, 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, ZON或包括兩或數種此等結構之混合結構及ITQ-4、ITQ-6、ITQ-7和CIT-6。許多具有此型之此類沸石，舉例而言，記述於Meier等人之上述出版物中。

根據本發明，經使用作為觸媒之氧化物可另外包括具有UTD-1、CIT-1、CIT-5、MCM-22或MCM-61等結構之含鈦之沸石。另外含鈦之沸石的實例是具有ZSM-48或ZSM-12結構者。特別，此類沸石記述於美國專利案A 5 430 000和世界專利94/29408中，以引用的方式併入本文中。在本發明之上下文中，具有MFI、MEL或MFI/MEL混合結構之Ti沸石被視為特佳。具有與 β 沸石同晶型之骨架結構之Ti沸石亦可述及為較佳。

除去矽和鈦以外，具有至少一種沸石結構之一或數個結

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(11)

晶矽酸鹽相亦可含有另外之元素，例如鋁、鋯、釩、錫、鋅、鐵、碲、鈮、鉭、鉻、鈷、鎳、鎳、鎳、鎳、鎳或少量的氟。

新穎氧化物較佳包括鈦、釩、鉻、鈮和鋯沸石、更佳是鈦沸石，特別是鈦矽酸鹽。

關於具有沸石結構之一或數個結晶矽酸鹽相的細孔結構，在此方面並無特別限制。舉例而言，具有微孔、中間細孔或巨觀細孔或具有微孔和中間細孔或具有微孔和巨觀細孔或具有微孔和中間細孔及巨觀細孔等結構均屬可能，本發明的上下文中此等微孔的定義相當於Pure Appl. Chem. 45, 71中之定義且其特徵係具有小於或等於2奈米直徑之微孔，具有大於2奈米至大約50奈米直徑之中間細孔以及具有大於50奈米直徑之巨觀細孔。

關於新穎氧化物之製備方法，基本上無限制，其限制條件為：新穎氧化物自此方法而獲得。該氧化物較佳以一種方法予以製備，其中採一種適當之氧化物物質(其具有沸石結構之至少一種結晶矽酸鹽相)使用一種適當矽烷或矽烷衍生物處理。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中觸媒是一種經矽烷基化之沸石觸媒。

此觸媒較佳經由用於製備包括至少Si和Ti元素，至少非晶矽石和至少一種結晶矽酸鹽相之氧化物之方法而獲得，其中

(a) 製備一種氧化物物質其包括至少元素Si和Ti及至少一種

五、發明說明 (12)

結晶矽酸鹽相(其具有至少一種沸石結構)及

(b) 使自(a)所獲得之氧化物物質

(i) 在至少一種溶劑中與至少一種矽烷或至少一種矽烷衍生物或與其兩或多種之混合物起反應而產生包括至少一種氧化物反應產物和一或多種溶劑之混合物，

在反應後採一或多種溶劑直接自混合物中移出而產生一或多種氧化物反應產物，及

在移出一或多種溶劑後，採一或多種氧化物反應產物直接煅燒而產生氧化物，或

(ii) 在氣相中與至少一種矽烷或至少一種矽烷衍生物或其兩或多種之混合物起反應而產生至少一種氧化物反應產物及

在反應後，採一或多種氧化物反應產物直接煅燒而產生氧化物。

此方法的細節顯現在德國專利A 199 54 322.4中，以引用的方法併入本文中。

在較佳具體實施例中，一種或多種矽烷或一種或多種矽烷衍生物係由下列各化合物組成之群中選出：三氯矽烷、四氯化矽、甲基氫二氯矽烷、一、二和三甲基氯矽烷、正矽酸四烷酯(具有超過2個原子之相同或不同烷基自由基)，此等正矽酸四烷酯之水解產物，具有相同或不同烷基自由基和烷氧基自由基之烷基烷氧基矽烷及上述之矽烷或矽烷衍生物其另外具有由下列各基組成之群中選出之一或數種

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (13)

官能基：羥基、羧基、乙烯基、縮水甘油基、胺基和胺烷基等基因。

本發明之上下文中特佳者是具有至少一個矽-碳鍵之那些矽烷或矽烷衍生物。因此，一或數種矽烷或一種或數種矽烷衍生物較佳係由下列各化合物組成之群中選出：甲基氫二氯矽烷、一、二和三甲基氯矽烷，具有超過2個碳原子之相同或不同烷基自由基之正矽酸四烷酯，此等正矽酸四烷酯之水解產物，具有相同或不同烷基自由基和烷氧基自由基之烷基烷氧基矽烷，及上述之矽烷或矽烷衍生物其另外具有由下列各基組成之群中選出之一或數種官能基：羥基、羧基、乙烯基、縮水甘油基、胺基和胺烷基等基因。

亦係極特佳者，使模製物形式之氧化物物質(係自具有TS-1結構之矽酸鈦與一種矽石黏結劑所產生)與已溶入一種適當無水溶劑中之3-胺丙基三乙氧基矽烷起反應。

較佳採新穎觸媒使用於固定床中。堆集或結構填充和薄膜觸媒是可使用之形式的其他實例。

可採此種新穎，較佳使用之多相沸石觸媒通常利用任何適當方法在新穎程序中再生。舉例而言，此等方法記述於德國專利案A 100 15 246.5中，以引用之方式併入本文中。

通常，可採所有適當環氧烷使用於新穎方法中，特別以具有 $R_1R_2COCR_3R_4$ 結構者較佳。此處 R_1 至 R_4 係相同或不同而每一者是氫、甲基或乙基。特佳使用具有2至4個碳原子之環氧烷，依次，較佳使用環氧乙烷。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(14)

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中所使用之環氧烷是環氧乙烷。

此處，原則上，環氧烷可經由任何適當方法予以製備並使用於新穎方法中。此等方法是先前技藝的一部份且特別詳細記述於Ullmann氏化學工藝百科全書(第五版)中。另外，參照環氧烷製備方法，特別是環氧丙烷之製備方法如PCT/EP99/05740及德國專利案A 100 15 246.5中所述，以引用的方式併入本文中。

在較佳具體實施例中，根據本發明經使用作為原料之環氧烷係由使相對應之烯烴與一種氫過氧化物、含氧之氣體或純氧起反應予以製備。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中環氧烷係經由一種烯烴與一種氫過氧化物起反應予以製備。

舉例而言，如果使用環氧丙烷作為原料，則較佳它係由丙烯與過氧化氫起反應予以製備。與過氧化氫之反應更佳係於一種觸媒存在下予以實施，較佳是一種多相觸媒，更佳是具有沸石結構之觸媒。關於可能之沸石結構，可參照上文所述之各種結構。特佳觸媒的一個實例是具有結構TS-1者。關於此點，參照上述之出版物PCT/EP99/05740及德國專利案A 100 15 246.5。

關於較佳所使用之環氧乙烷之製備，參照Ullmann氏化學工藝百科全書上述引用文中。

如果採單烷醇胺較佳在新穎方法中予以製備，則可採來自反應空間之產物流(除去單烷醇胺外，其可含有二烷醇胺

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (15)

及/或三烷醇胺，氨和水)餵供至一或數個分離段，採混合物在其中分離。在較佳具體實施例中，首先採低沸點組份，例如氨和水分離出，然後若需要，採單烷醇胺與二烷醇胺及/或三烷醇胺分離，較佳經由蒸餾。此處蒸餾可經由任何適當方法而進行。

可採單、二和三乙醇胺經由習用之方法分離出，以蒸餾較佳，但亦可使用液體/液體萃取或利用隔膜而分離。

然後可採所分離出之組份，例如氨或水循環至該方法中，其中較佳製備單烷醇胺。可採所分離出之單烷醇胺作為所需要之產物而獲得或可採它全部或部份地餵供至一方法，其中較佳製備二或三烷醇胺而單烷醇胺在其中充作原料。

如果採二烷醇胺在新穎方法中較佳製備，則可採來自反應空間之產物流(除去二烷醇胺外，它可含有單烷醇胺及/或三烷醇胺，氨和水)餵供至一或數個分離段，採此混合物在其中分離。在較佳具體實施例中，再度首先採低沸點組份，例如氨和水分離出，然後若需要，將二烷醇胺與單烷醇胺及/或三烷醇胺分離，較佳經由蒸餾。此處，蒸餾再度可經由任何適當方法而實施。

然後可採所分離出之組份，例如單烷醇胺、氨或水循環至該方法中，較佳採二烷醇胺在其中製備。可採所分離出之二烷醇胺作為所需要之產物而獲得或可採它全部或部份地餵供至一方法，其中較佳製備三烷醇胺而二烷醇胺在其中充作原料。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (16)

如果採三烷醇胺在新穎方法中較佳製備，則可採來自反應空間之產物流(除去三烷醇胺外，它可含有單烷醇胺及/或三烷醇胺，氨和水)餵供至一或數個分離段，採此混合物在其中分離。在較佳具體實施例中，再次首先採低沸點組份例如氨和水分離出，然後若需要，採三烷醇胺與單烷醇胺及/或二烷醇胺分離，較佳經由蒸餾。此處，再次蒸餾可經由任何適當方法予以實施。

然後可採所分離出之各組份，例如單烷醇胺、二烷醇胺、氨或水循環至方法中，較佳採三烷醇胺在其中製備。亦可採所分離出之單烷醇胺餵供至另外方法中，較佳採二烷醇胺在其中製備而單烷醇胺在其中充作原料。

可採單、二和三乙醇胺經由習用之方法分離出。以蒸餾較佳但亦可使用液體/液體萃取或透過隔膜而分離。

經由調整反應空間中之溫度分佈圖而新穎控制產物領域中各種烷醇胺的分佈之優點即：特別，可設計該方法以便較先前技藝中所述各方法具有大體上更大彈性。然而在先前技藝中，採關於此點所述之方法或觸媒最適化以使可採單烷醇胺或二烷醇胺或三烷醇胺以特定產率予以製備。特別透過特定溫度調整，較佳連同調整原料氨和環氧烷的莫耳比率，該新穎方法容許一種步驟，首先較佳採單或二或三烷醇胺在有與第一程序段中相同觸媒之存在下在單一反應空間中製備而與在第一處理段中較佳製備之該烷醇胺不同之一種烷醇胺較佳通過新穎調整在第二程序段中製備。

藉此種彈性步驟，舉例而言，可能以一種可變更方式回

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (17)

應顧客之要求或使該方法適應於改變之市場情況而不須大的費用。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中

- (i) 在第一程序段中，選擇性製備單烷醇胺或二烷醇胺或三烷醇胺及
- (ii) 在相同反應空間中並於相同觸媒存在下之第二程序段中，經由調整反應空間中之溫度分佈圖及若需要，另外通過氮：環氧烷之莫耳比，與第一程序段比較，改變了第二程序段中之產物選擇性。

當然，該程序的此具體實施例亦包括各種步驟，其中在至少一個附加之程序段中，相同地在相同反應空間中及相同地於相同觸媒之存在下，經由調整反應空間中之溫度分佈圖及若需要，另外通過氮：環氧烷之莫耳比率，與第二或通常與各自先前之程序段相比較，改變了此至少一個附加程序段中之產物選擇性。

經由附加措施用以同樣影響產物領域中各種烷醇胺的分佈之另外可能性係如上述且亦可使用於本文中所述之彈性程序中。

在新穎方法中，通常單烷醇胺係在20至250巴下予以製備，較佳自40至230巴，特佳自70至160巴。經通入反應空間中之氮氣流的溫度以及環氧烷流的溫度通常是自20至200°C，較佳自50至150°C，特佳自60至140°C。此處，氮：環氧烷的莫耳比通常自100至7，較佳自40至7，特佳自20至7。此外，反應空間中之最大溫度通常係低於200°C，較佳

五、發明說明 (18)

自20至180°C，更佳自50至150°C，特佳自60至130°C。

在新穎方法中，通常二烷醇胺係在20至250巴下予以製備，較佳自40至230巴，特佳自70至160巴。經通入反應空間中之氮氣流的溫度以及環氧烷流的溫度通常是自20至180°C，較佳自40至150°C，特佳自60至140°C。此處氮：環氧烷的莫耳比通常自10至2，較佳自8至2，特佳自7至2。此外，反應空間中之最大溫度通常係自70至200°C，較佳自75至150°C，特佳自80至140°C。

在新穎方法中，通常三烷醇胺係在5至250巴下予以製備，較佳自30至230巴，特佳自40至160巴。經通入反應空間中之氮氣流的溫度以及環氧烷流的溫度通常是自20至180°C，較佳自40至150°C，特佳自60至140°C。此處氮：環氧烷的莫耳比通常自10至0.3，較佳自8至0.3，特佳自6至0.3。此外，反應空間中之最大溫度通常係小於400°C，更佳自75至400°C，甚至更佳自90至400°C，特佳自100至400°C。

此步驟基本上可對於上文所述並可使用作為原料之所有環氧烷而進行。為了本發明之目的，較佳所使用之原料是環氧乙烷。

因此，如上所述，本發明係關於一種方法，其中

- (i) 在第一程序段中，選擇性製備單乙醇胺或二乙醇胺或三乙醇胺及
- (ii) 在相同反應空間中並於相同觸媒存在下之第二程序段中，經由調整反應空間中之溫度分佈圖及若需要，另外

五、發明說明 (19)

通過氮：環氧烷之莫耳比，與第一程序段比較，改變了第二程序段中之產物選擇性。

與新穎方法的此較佳具體實施例有關，其中，採單乙醇胺或二乙醇胺或三乙醇胺在第一程序段中選擇性製備，而在第二程序段中，在相同反應空間中並於相同觸媒存在下，經由調整反應空間中之溫度分佈圖及若需要，另外通過氮：環氧烷的莫耳比，與第一程序段比較，改變了第二程序段中之產物選擇性，使用術語選擇性如下：

- 當超過65重量%的單乙醇胺存在於產物領域中時，將所需要之產物單乙醇胺選擇性製備；
- 當超過35重量%的二乙醇胺存在於產物領域中時，將所需要之產物二乙醇胺選擇性製備；
- 當超過35重量%的三乙醇胺存在於產物領域中時，將所需要之三乙醇胺選擇性製備。

以重量%計之數據在每一情況中以所製備之乙醇胺的總數量為基準。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其中

- (a) 超過65重量%的單乙醇胺係在(i)中予以形成而超過35重量%的二或三乙醇胺係在(ii)中予以形成或
- (b) 超過35重量%的二或三乙醇胺係在(i)中予以形成而超過65重量%的單乙醇胺係在(ii)中予以形成，

在每一情況中，係以單、二或三乙醇胺的總數量為基準。

關於該新穎步驟，請注意：至少應選擇壓力以便流體反應混合物以單相存在而無氣相之存在。以熱力學為基礎，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (20)

所得最小壓力是在相對應溫度下，反應混合物的蒸氣壓，即：該最小壓力係由各組份之濃度及個別反應器段中之溫度予以決定。

其有利但並非重要的是：將反應器以在其總體積內之單一壓力操作。在其他方面，舉例而言，具有降低系統壓力之各段亦屬可能且容易實現，最小壓力係經由熱力學予以測定，例如經由在熱點溫度下之反應混合物中最低沸點組份的濃度。

如果將單乙醇胺在新穎方法中予以製備，舉例而言，在第一程序段中，通常採用自20至250巴之壓力，較佳自40至230巴，特佳自70至160巴。反應器中反應介質之滯留時間通常是自2至60分鐘，較佳自5至20分鐘。氣：環氧烷之莫耳比通常是5至100莫耳較佳自5至40，更佳自5至20。此處，採用溫度梯度，即：反應空間中最大溫度與未經混合之原料的溫度間之溫度差，通常其係在自0至100°C之範圍內，較佳自0至80°C，更佳自0至30°C。

如果欲採二乙醇胺在第二程序段中在相同反應空間中並於相同觸媒存在下選擇性製備，則採用溫度梯度，其通常是在自50至120°C之範圍內，較佳自60至100°C在於製備單乙醇胺的情況時所選擇之壓力範圍和滯留時間範圍內。

如果欲將三乙醇胺在第二程序段中在相同反應空間中並於相同觸媒存在下選擇性製備，則採用溫度梯度，其通常是在自70至300°C之範圍內在於製備單乙醇胺及/或二乙醇胺的情況時所選擇之壓力範圍和滯留時間範圍內。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (21)

使用所陳述之反應參數的本文中所述各反應係關於根據本發明較佳所使用非逆混管式反應器但是亦可應用或轉移至攪拌鍋或同樣可使用配置攪拌鍋成爲攪拌鍋串級。

當然，該新穎方法並非受限爲在單一反應空間中進行反應之各具體實施例。毋寧是，可採經由調整反應空間中之溫度分佈圖而控制產物領域中各種烷醇胺的分佈應用於所有可能步驟中。此等亦包括各種方法，在其中一種烷醇胺係在第一程序段中在第一反應空間中並於第一觸媒存在下經一種環氧烷與氨起反應予以製備並使所獲得之烷醇胺在第二程序段中在第二反應空間中更進一步起反應。另外，一第三程序段及極普遍之任何所需要數目之另外程序段亦可遵循第二程序段。

關於在第一程序段中根據本發明所製備之烷醇胺在第二或另外程序段中之更進一步反應，烷醇胺可能歷經之所有反應通常係屬可能。

新穎方法的較佳步驟包括那些步驟，其中使一種環氧烷與氨在第一程序段中，在第一反應空間中並於第一觸媒存在下起反應而產生單烷醇胺及使第一程序段中所獲得之單烷醇胺與環氧烷在第二程序段中在第二反應空間中起反應而產生二烷醇胺及/或產生三烷醇胺。此處，可使單烷醇胺在第二程序段中與經使用於第一程序段中之相同環氧烷起反應。以此種方式，可能製備對稱之二或三烷醇胺。亦可使單烷醇胺在第二程序段中與第一程序段中所使用之環氧烷不同之一種環氧烷起反應。因此，如果舉例而言，採一

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (22)

種不對稱之二烷醇胺在第二程序段中製備，則順次可使它在第三程序段中與第一及/或第二程序段中所使用之環氧烷之一相同或不同之環氧烷起反應。舉例而言，亦可能在第一程序段中製備對稱二烷醇胺及在第二程序段中使它與環氧烷起反應，第二程序段中所使用之環氧烷與第一程序段中所使用之環氧烷相同或不同。雖然原則上可能在第二程序段中不使用觸媒而操作，但是特佳者是於第二觸媒(其與第一程序段中所使用之觸媒相同或不同)存在下進行該反應。

在新穎方法的特佳具體實施例中，單烷醇胺係由環氧烷與氨在第一程序段中在第一反應空間中於第一觸媒存在下起反應予以製備。將如此獲得之單烷醇胺與產物混合物分離並在第二程序段中與環氧烷起反應(亦將它使用於第一程序段中)而產生二烷醇胺。

因此，如上所述，本發明亦係關於一種方法，其在下文中稱為方法II，其中

- (I) 採單烷醇胺經由在第一程序段中在第一反應空間中於第一觸媒存在下使氨與環氧烷起反應予以選擇性製備，獲得包括單烷醇胺之混合物，
- (II) 在分離段中，採單烷醇胺與自(I)所獲得之混合物分離，及
- (III) 二烷醇胺經由在第二反應空間中於第二觸媒存在下使自(II)所獲得之單烷醇胺與環氧烷起反應而在第二程序段中選擇性獲得。

五、發明說明 (23)

經由新穎調整反應空間中之溫度分佈圖而控制產物領域中各種烷醇胺的分佈可在此處(I)或在(II)中或在(I)和(III)中予以實施。該新穎調整較佳在程序段(I)及在程序段(III)兩者中予以實施。

當然，方法II的此具體實施例亦包括各種步驟，其中在至少一個附加程序段中，在另外之反應空間中並於另外觸媒存在下(此觸媒可能與(I)和(III)中所使用之觸媒相同或不同)，經由調整反應空間中之溫度分佈圖並若需要，另外通過氮：環氧烷的莫耳比，此至少一個附加程序段中之產物選擇性與第二或通常與各自之先前程序段比較可予以改變。

除去經由附加措施之新穎調整溫度分佈圖以外，對於影響產物領域中烷醇胺分佈之另外可能性，舉例而言，個別程序段的原料之草耳比率，反應物在各反應空間中之壓力或滯留時間均如上文中所述，亦可使用於此處所述之方法II中。

關於上述之並可使用作為原料之所有環氧烷，此步驟基本上可予以進行。為了本發明之目的，較佳所使用之原料是環氧乙烷。

因此，如上所述，本發明亦係關於方法II，其中

- (I) 單乙醇胺係由在第一程序段中在第一反應空間中於第一觸媒存在下使氮與環氧乙烷起反應予以選擇性製備，獲得包括單烷醇胺之混合物，
- (II) 在分離段中，採單乙醇胺與自(I)所獲得之混合物分

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (24)

離，及

(III) 二乙醇胺係由在第二反應空間中於第二觸媒存在下，使自(II)所獲得之單乙醇胺與環氧乙烷起反應而在第二程序段中選擇性獲得。

關於經使用於(I)和(III)中之觸媒，此等可能相同或相互不同。關於原則上及較佳可使用之觸媒，可參照上述。

在新穎方法II的此具體實施例中，單烷醇胺通常係在自20至250巴之壓力下予以製備，較佳自40至230巴，特佳自70至160巴。經通入反應空間中之氨氣流的溫度和環氧烷流的溫度通常是自20至200°C，較佳自50至150°C，特佳自60至140°C。氨：環氧烷之莫耳比通常是自100至7，較佳自40至7，特佳自20至7。此外，反應空間中之最大溫度通常小於200°C，較佳自20至180°C，更佳自50至150°C，特佳自60至130°C。

根據(II)單烷醇胺之離析可經由所有適當方法II予以進行。較佳，首先採自(I)所獲得之混合物的組份(與單烷醇胺比較彼等是低沸點)分離出，然後採單烷醇胺離析。此處所有之分離較佳由蒸餾予以實施。可將所分離出之低沸點組份，例如氨或水在分離後循環至(I)。

採特佳之單乙醇胺經由蒸餾或精餾方法自(I)所獲得之混合物中離析出。

在第二反應段(III)中，使自(II)所獲得之單烷醇胺與環氧乙烷起反應。在新穎方法II中，此反應係在通常自20至250巴之壓力下予以實施，較佳自40至230巴，特佳自70至160

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (25)

巴。經通入第二反應空間中之單烷醇胺流之溫度及環氧烷流之溫度通常是自20至180°C，較佳自40至150°C，特佳自60至140°C。此處單烷醇胺；環氧烷的莫耳比通常是自10至2，較佳自8至2，特佳自7至2。此外，反應空間的最大溫度通常自70至200°C，更佳自75至150°C，特佳自80至140°C。

在較佳具體實施例中，將單烷醇胺在(I)中選擇性製備及將二烷醇胺在(III)中選擇性製備。在新穎方法II之此較佳具體實施例中，使用術語選擇性如下：

- 當超過70重量%的單烷醇胺存在於產物領域中時，將所需要之產物單烷醇胺在(I)選擇性製備及
- 當卸料中二乙醇胺：三乙醇胺的重量比是 ≥ 2.5 時，將所需要之產物二烷醇胺在(III)選擇性製備。

在每一情況中，以重量%計之數據以在(I)及在(III)中所製備之烷醇胺的總數量為基準。

因此，如上所述，本發明亦係關於方法II，其中

(A) 將超過70重量%的單乙醇胺在(I)中形成及

(B) 在(III)中，卸料中二乙醇胺：三乙醇胺的重量比是 ≥ 2.5 ，

在每一情況中，以各自程序段的產物領域中單、二和三乙醇胺的總數量為基準。

在新穎方法II中，如果將單乙醇胺在第一程序段中選擇性製備，則應了解選擇性係如(A)中所界定之定義，通常採用自20至250巴之壓力，較佳自40至230巴，特佳自70至160

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (26)

巴。反應器中反應介質的滯留時間通常是自2至60分鐘，較佳自5至20分鐘。氮：環氧烷的莫耳比通常是自5至100，較佳自5至40，更佳自5至20莫耳。此處採用溫度梯度，即：反應空間中最大溫度與未經混合之原料溫度間之溫度差，通常它是自0至100°C，較佳自0至80°C，更佳自0至30°C。

如果將二乙醇胺在第二程序段中在第二反應空間中於第二觸媒存在下選擇性製備，則應了解選擇性係指(B)中所界定之定義，通常採用自20至150巴之壓力下，特佳自30至80巴。反應介質在反應器中之滯留時間通常是自1至60分鐘，特佳自1至30分鐘，特別自2至10分鐘。氮：環氧乙烷的莫耳比通常是自20至3，較佳自16至4，特別自10至4。

此處，採用溫度梯度，即：反應空間中最大溫度與未經混合之原料溫度間之溫度差，通常是自0至150°C，較佳自0至70°C，更佳自0至40°C。

關於壓力、溫度和滯留時間之上文中陳述係關於新穎方法II之具體實施例其係在管式反應器中或在串級之攪拌鍋(通過它，流動是連續性)中予以進行，此等參數可能由熟諳此藝者予以適用，或當使用其他反應器時藉例行試驗。

可採(III)中所獲得之二烷醇胺經由任何適當方法自(III)中自所獲得之產物混合物中離析出。此項分離較佳經由蒸餾予以實施。

如果單烷醇胺存在於來自(III)之產物領域中，在較佳具體實施例中，可採它作為原料循環至(III)。

下列各實例舉例說明本發明。

五、發明說明 (27)

實例

實例1：製備觸媒1

將根據德國專利A 43 23 774.6所製備之具有結構ZBM-10之400克，五矽沸石使用篩篩孔大小為1毫米之亞歷山大(Alexander)單元研磨。

然後將經研磨之觸媒與來自Condea公司之100克Plural[®]和10克之甲酸控揉在一起，添加400毫升之水。在60分鐘之控揉時間後，添加另外100毫升的水。

在75分鐘之總控揉時間後，將經控揉之物質在50巴下之擠壓機中處理而產生3毫米擠壓物。

然後將所獲得之物質在120°C下乾燥歷16小時，然後在空氣中在500°C下煅燒歷5小時。

實例2：製備觸媒2

將16克的3-胺丙基三乙氧基矽烷溶入1000毫升的無水乙醇中(將它在3Å分子篩上預乾燥)並將根據實例1之100克，觸媒加至一燒瓶中。

將該批在旋轉蒸發器中以低速充分混合歷10小時。然後採溶劑蒸發。

將所獲得之物質以每分鐘2°C之加熱速率加熱至550°C併於空氣下在550°C時煅燒歷3小時。

實例3：製備觸媒3

此實例相當於歐洲專利案A 0 941 986的參考實例3，以引用方式併入本文中。

實例4：製備觸媒4(La/微晶高嶺石)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (28)

此實例相當於歐洲專利案A 0 652 207之觸媒E，以引用方式併入本文中。

實例5至7：製備乙醇胺

氮氣流之進料溫度是70°C。

環氧乙烷流之進料溫度是25°C。

選擇溫度梯度以便最陡溫度上升發生在包括5%反應區(相同於5%反應體積)之第一反應器段中。將下游管式反應器系統中之溫度(此反應器系統包括2至7個獨立恆溫之管段)保持恒定在自90至160°C之所需要溫度下，在個別實驗中它是均勻。

溫度調整如上所述經由適應個別冷却劑液流的入口溫度予以實施。將溫度使用兩個熱電偶在混合點上測量，每一熱電偶在反應管內部中之每一管段中，而各管段的雙夾套中冷却介質的入口和出口溫度予以另外量計。

使環氧乙烷和氮在自110至120巴之壓力下通經具有4毫米內直徑和3米長度之管式反應器，滯留時間是大約3.3分鐘。滯留時間係以在反應條件下，純環氧乙烷和純氮之密度為基礎並以空管的體積為基準予以計算。

此處，在每一情況中，將管式反應器填充以15克，表1中所列之觸媒。

反應器的溫度藉恆溫之油循環通過環繞反應管之雙夾套予以建立。

反應卸料經由氣相層析予以分析，測定表1中所列之各組成。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (29)

表 1

實 例	觸 媒	莫耳比 NH ₃ /EO	溫度/ °C	選擇性，重量%		
				MEA	DEA	TEA
5	1	10	90	71	28	1
6	1	4	90	42	40	17
7	1	10	160	26	28	46

縮寫EO、MEA、DEA和TEA代表環氧乙烷、單乙醇胺、二乙醇胺和三乙醇胺。選擇性之定義為：烷醇胺的重量%/合計所形成之乙醇胺的重量%。

實例8：彈性製備乙醇胺

此實例類似於實例5至7予以進行，使用水和15%氨的混合物代替觸媒。

表 2

實 例	觸 媒	莫耳比 NH ₃ /EO	溫度/ °C	選擇性，重量%		
				MEA	DEA	TEA
11	水，15%	6	90	70	23	7
12	水，15%	6	130	38	37	25
13	水，15%	6	170	17	28	55

實例9和13：選擇性製備二乙醇胺**(a) 選擇性製備單乙醇胺**

在自110至120巴之壓力下，使環氧乙烷和氨通經具有4毫米內直徑和3米長度之管式反應器，滯留時間是大約3.3分

五、發明說明 (30)

鐘。滯留時間係以在反應條件下，純環氧乙烷和純氨之密度為基礎並以空管的體積為基準予以計算。

此處，在每一情況中，將管式反應器填充以15克，表2中所列之觸媒。

反應器之溫度藉恆溫之油循環通過環繞反應管之雙夾套予以建立。進料溫度是70°C。

反應卸料經由氣相層析予以分析，測定表3中所列之各組成。

表 3

實例	觸媒	莫耳比 NH ₃ /EO	溫度/ °C	選擇性/%		
				MEA	DEA	TEA
9	Dowex® 50X8	60	100	92	8	0
10	4	25	95	90	10	0
C1	15重量%之水	10	100	60	30	10

將水加至氨氣流中而產生15重量%的水濃度在含水之氨氣流中。在另外之實例中，其中並未明確述及進料中有水存在，使用無水之氨。

縮寫EO、MEA、DEA和TEA代表環氧乙烷、單乙醇胺、二乙醇胺和三乙醇胺。選擇性之定義為烷醇胺的重量%：所形成之乙醇胺的重量%總和之比率。

(b) 選擇性製備二乙醇胺

將單乙醇胺與環氧乙烷在管式反應器中之固定床上起反應。該反應係如實例9至13(a)中之方式予以進行。

五、發明說明 (31)

將反應卸料經由氣相層析予以分析，測定表4中所列之組成。

表 4

實例	觸媒	莫耳比 NH ₃ /EO	溫度/ °C	選擇性/%	
				DEA	TEA
11	3	4	110	90	10
C2	自催化	4	110	86	14

經由C₂所示之比較性實例係未添加觸媒予以進行。

(c) 根據(a)之選擇性MEA合成方法與根據(b)之用於選擇性製備二乙醇胺方法的組合

表5顯示：在使用兩個反應器之聯合方法中所獲得之各實驗的結果。

表 5

實例	觸媒 I	觸媒 II	溫度/°C 反應器	選擇性	
				DEA	TEA
12	Dowex® 50X8	3	100/110	91	9
13	4	3	95/110	91	9
C3	Dowex® 50X8	自催化	110/110	87	13

五、發明說明 (1)

本發明係關於自環氧烷和氨製備烷醇胺之方法，該新穎方法之特色為下列事實：反應的選擇性可經由特別控制反應空間的溫度予以影響，此項控制係由調整反應空間中之溫度分佈圖予以實施。在特佳之具體實施例中，本發明係關於在製備烷醇胺時，彈性進行該反應之方法，此方法之特色為下列事實：烷醇胺合成的產物選擇性可經由於相同觸媒存在下，反應空間中特定溫度調整的上述措施予以確定。在同樣較佳之具體實施體中，本發明係關於用以製備二烷醇胺之方法，其中採單烷醇胺在第一程序段中選擇性製備亦採二烷醇胺在第二程序段中自此單烷醇胺選擇性製備。

德國專利案A 19 41 859.8中記述：於一種陽離子交換樹脂存在下，自環氧烷和氨選擇性合成單烷醇胺之方法。為了最適宜利用工廠，確定觸媒的反應體積之溫度及通過觸媒之反應混合物的流速以便可獲得每單位時間，單烷醇胺之最高產率。

歐洲專利案A 0 652 207號揭示在液相中，自環氧烷和氨製備單烷醇胺之方法，所使用之觸媒係包括經施加至耐熱載體上之一種稀土元素者。舉例而言，明確記述單乙醇胺之製備法。反應發生時之溫度僅經由油浴之溫度予以決定如自各實例顯然可見。

歐洲專利案A 0 941 986號記述自環氧烷和氨出發用於製備二烷醇胺之方法，使用沸石觸媒。此處亦是，反應發生時之溫度僅經由油浴之溫度予以大致決定。

四、中文發明摘要(發明之名稱： 烷醇胺之製備)

本發明提供一種將環氧乙烷與氨在管式反應器中於一種觸媒存在下反應以製備單烷醇胺之方法，其中含環氧乙烷及氨之進料氣體流係被注入管式反應器而獲得一含單烷醇胺、二烷醇胺及三烷醇胺之產物混合物(I)，其中管式反應器中之最大溫度係在自60至130°C之範圍內，而該最大溫度係高於進料氣體流之溫度自0至30°C之間，且另提供

英文發明摘要(發明之名稱： PREPARATION OF ALKANOLAMINES)

The present invention provides a process for the preparation of monoethanolamines by reacting ethylene oxide with ammonia in the presence of a catalyst in a tube reactor, wherein a feed gas stream containing ethylene oxide and ammonia is fed to the tube reactor and a product mixture (I) containing monoethanolamine, diethanolamine and triethanolamine is obtained, wherein the maximum temperature in the tube reactor is in the range of from 60 to 130°C and said maximum temperature is from 0 to 30°C above the temperature of the feed gas stream, and further provides a process for the preparation of diethanolamines and/or triethanolamines, wherein monoethanolamine is prepared according to the above process in a first reaction stage,

四、中文發明摘要(發明之名稱：)

一種用於製備二烷醇胺及/或三烷醇胺之方法，其中在第一反應段中根據上述之方法製備單烷醇胺，將單烷醇胺自所獲得之產物混合物(I)中分離，接著在第二反應段中將單烷醇胺在管式反應器中於一種觸媒存在下與環氧乙烷反應，其中含單烷醇胺及環氧乙烷之進料氣體流係被注入管式反應器而獲得含二烷醇胺及三烷醇胺之產物混合物(II)，其中在第二反應段，管式反應器中之最大溫度係在自60至140°C之範圍內。

英文發明摘要(發明之名稱：)

monoethanolamine is separated from the product mixture (I) obtained thereby, and monoethanolamine is reacted with ethylene oxide in the presence of a catalyst in a tube reactor in a second reaction stage, wherein the feed gas stream containing monoethanolamine and ethylene oxide is fed to the tube reactor and a product mixture (II) containing diethanolamine and triethanolamine is obtained, wherein the maximum temperature in the tube reactor is in the range of from 60 to 140°C in the second reaction stage.

六、申請專利範圍

1. 一種將環氧乙烷與氨在管式反應器中於一種觸媒存在下反應以製備單烷醇胺之方法，其中含環氧乙烷及氨之進料氣體流係被注入管式反應器而獲得一含單烷醇胺、二烷醇胺及三烷醇胺之產物混合物（I），其中管式反應器中之最大溫度係在自60至130℃之範圍內，而該最大溫度係高於進料氣體流之溫度自0至30℃之間。
2. 如申請專利範圍第1項之方法，其中管式反應器中之溫度係藉由調整沿著管式反應器流出反應空間或流入反應空間之熱流而建立。
3. 如申請專利範圍第1項之方法，其中反應係在自20至250巴之壓力下進行。
4. 如申請專利範圍第1項之方法，其中進料氣體流中之氨與環氧乙烷之莫耳比係介於100：1至5：1之間。
5. 如申請專利範圍第1項之方法，其中觸媒係沸石觸媒。
6. 如申請專利範圍第1項之方法，其中觸媒係水。
7. 一種用於製備二烷醇胺及/或三烷醇胺之方法，其中在第一反應段中根據申請專利範圍第1項之方法製備單烷醇胺，將單烷醇胺自所獲得之產物混合物（I）中分離，接著在第二反應段中將單烷醇胺在管式反應器中於一種觸媒存在下與環氧乙烷反應，其中含單烷醇胺及環氧乙烷之進料氣體流係被注入管式反應器而獲得含二烷醇胺及三烷醇胺之產物混合物（II），其中在第二反應段，管式反應器中之最大溫度係在自60至

六、申請專利範圍

140°C之範圍內。

8. 如申請專利範圍第7項之方法，其中第二反應段係在自20至250巴之壓力下進行。
9. 如申請專利範圍第8項之方法，其中單烷醇胺與環氧乙烷之莫耳比係介於10：1之2：1之間。