



(12) Ausschließungspatent

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

(19) DD (11) 248 361 A5

4(51) C 07 D 301/10

AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) AP C 07 D / 289 817 6
(31) 729,431

(22) 30.04.86
(32) 01.05.85

(44) 05.08.87
(33) US

(71) siehe (73)

(72) Ozero, Brian J., US

(73) The Halcon SD Group, Inc., One Phillips Parkway, Montvale, New Jersey, US

(54) Verfahren zur Herstellung von Äthylenoxid

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Ethylenoxid durch ein durch Silber katalysierte Dampfphasenoxidation von Ethylen, bei dem eine wirksame selektive Entfernung von Argon-Verdünnungsmitteln aus dem Prozeßkreislaufgas ohne nennenswerte Ethylenverluste ermöglicht wird. Erfindungsgemäß dient zur selektiven Argonentfernung eine geeignete semipermeable Membranvorrichtung, durch die das Reaktionsgas geleitet wird, wobei die verbrauchten Reaktionsmittelgase wieder ersetzt werden.
Fig. 1

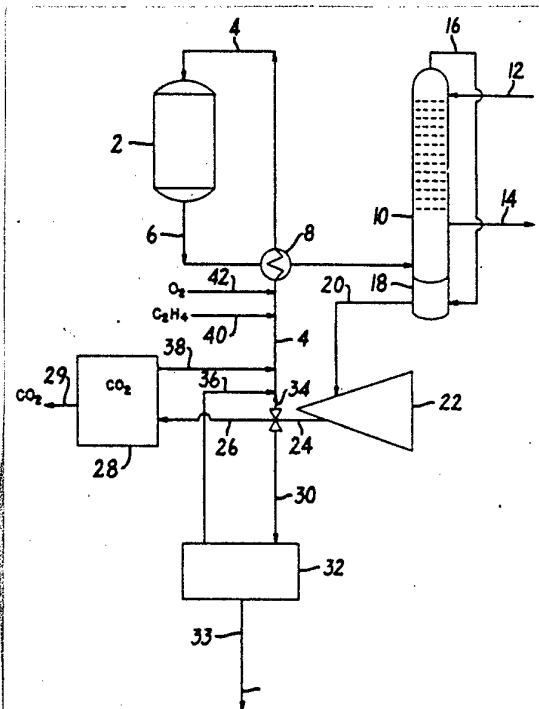


FIG. 1

Verfahren zur Herstellung von EthylenoxidAnwendungsgebiet der Erfindung:

Die Erfindung betrifft eine Verbesserung bei dem Verfahren zur Herstellung von Ethylenoxid durch die durch Silber katalysierte Dampfphasenoxydation von Ethylen, und genauer gesagt ein wirtschaftliches Verfahren zur Herstellung von Ethylenoxid, bei dem Verluste an nichtumgesetztem Ethylen durch die Anwendung von semipermeablen Membran-Trennvorrichtungen auf ein Mindestmaß gesenkt werden, wodurch eine wirksame selektive Entfernung von Argon-Verdünnungsmitteln aus dem Prozeßkreislaufgas ohne nennenswerte Ethylenverluste ermöglicht wird.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen:

Die Erzeugung von Ethylenoxid ist eine der wichtigsten großtechnischen Reaktionen in der Welt mit einer derzeitigen Weltjahresproduktion von etwa acht Millionen Tonnen/Jahr. Häufig kann die Durchführung eines Verfahrens dieser Größenordnung im Rahmen der großtechnischen praktischen Anwendbarkeit davon abhängen, ob die Möglichkeit zur Erhöhung der Ethylenoxid-Ausbeute, selbst um nur verhältnismäßig geringe Mengen, oder ob umgekehrt die Möglichkeit zur Senkung der Kosten, wenn auch nur um verhältnismäßig geringe Beträge, bei einer Reihe von wichtigen Elementen für das Verfahren gegeben ist.

Bei einem Hauptausführungsbeispiel des Verfahrens wird der für die Umsetzung mit Ethylen zugeführte Sauerstoff von einer teuren Sauerstoffquelle bezogen, die im wesentlichen verhältnismäßig reinen Sauerstoff, d. h. 95+%, zusammen mit einem wesentlich geringeren, aber doch wichtigen Anteil von einem oder mehreren Verdünnungsmitteln, z. B. Stickstoff, Argon und dergleichen, liefert. Bei der Zugabe zu dem Prozeßkreislaufgas, ge-

wöhnlich in Verbindung mit einem Zusatzethylenstrom, vermischen sich der Sauerstoff und das Ethylen mit einer kontrollierten Menge anderer Verdünnungsmittel, anderer Reaktionsprodukte und Verunreinigungsstoffe, d. h. Kohlendioxid, Argon, Stickstoff, Methan usw. Die genaue Konzentration der Bestandteile, die aufgenommen werden können, ist eine bedeutende Voraussetzung für die Bestimmung der Zusammensetzung des Reaktionsgases, weil es nach dem bisherigen Stand der Technik keine wirtschaftliche Möglichkeit gab, um selektiv einige dieser Verunreinigungen, vor allem Stickstoff und Argon, auszuspülen, ohne daß dabei auch große Mengen wertvoller Einsatzgase, d. h. Ethylen, verloren gegangen sind. In großtechnischen Anlagen wird überschüssiges CO_2 gewöhnlich chemisch aus dem Reaktionskreislaufgas absorbiert, indem der Gasstrom mit einer heißen Kaliumcarbonatlösung in Kontakt gebracht, das CO_2 mit Dampf ausgetrieben und an die Atmosphäre bei einem minimalen Ethylenverlust abgeblasen wird. Obwohl solche Absortionsanlagen teuer sind und während des Betriebes auch beträchtliche Mengen Energie verbrauchen, sind sie doch immer noch wirtschaftlich wegen der Verringerung der Ethylenverluste, die sie ermöglichen, zu rechtfertigen. Nach dem bisherigen Stand der Technik wurde der Konzentrationsgrad von Verdünnungsmitteln wie Argon und Stickstoff durch ein weniger teures Spülsystem gesteuert, d. h. einen Entlüftungs- oder Ablasschritt, der leider auch zum Verlust einer beträchtlichen Ethylenmenge führt und somit eine geringere Ausbeute an Ethylenoxid ergibt.

Eine wesentliche Voraussetzung für die Bildung einer geeigneten Zusammensetzung des Reaktionsgases, das praktisch aus einem größeren Anteil von Verdünnungsbestandteilen zusammen mit O_2 und C_2H_4 besteht, ist die Bildung einer Zusammensetzung, bei der sehr hohe und unbeständige Konzentrationen

von Sauerstoff und/oder Ethylen vermieden werden. Anderenfalls kann eine vollständige Verbrennung des Ethylenanteils unter Bildung von CO_2 und Wasser als Reaktionsprodukte, sowie die Gefahr einer durch die Überschreitung der Entflammbarkeitsgrenze der Gaszusammensetzung hervorgerufenen Explosion auftreten. Die in dem Gas vorhandene Argonmenge ist hinsichtlich der Entflammbarkeitsfrage besonders wichtig, weil Argon ein besonders unwirksamer Bestandteil für die Verringerung der Entflammbarkeit des Gasgemisches ist. Daher wurde eine Methode für die selektive Überwachung und wirtschaftliche Entfernung bestimmter Komponenten, vor allem Argon, ohne nennenswerten Verlust an Reaktionsmittelgas, vor allem Ethylen, schon seit langem im Fachgebiet als eine Notwendigkeit angesehen.

US-PS 3.083.213 ist eine frühe Veröffentlichung über die unerwünschte Anwesenheit von Argon, vor allem hinsichtlich des Entflammbarkeitsfaktors, in einem offenbarten Ethylenoxidverfahren. US-PS 3.119.837 beschreibt, daß Methan unter bestimmten Umständen ein geeignetes Verdünnungsmittel in einem Ethylenoxidprozeß sein kann. GB-PS 1.321.095 betrifft ein Ethylenoxidverfahren, in dem Ethylenmengen bis zu 40 bis 80 Volumen% zulässig sind, und bei dem verschiedene Verdünnungsmittel mit Hilfe eines Entlüftungsmechanismus gesteuert werden.

In einer der vorliegenden Erfindung verwandten Erfindung wird die Verwendung von semipermeablen Membranen für die selektive Entfernung von CO_2 und Argon aus einem Ethylenoxid-Kreislaufstrom beschrieben; bei dem Verfahren der verwandten Erfindung wird ein Einsatzstrom von Sauerstoff geringer Reinheit verwendet und vorzugsweise kein anderer Anlagenarbeitsvorgang zur Entfernung von CO_2 aus dem System ausgeführt.

Ziel der Erfindung:

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur selektiven Entfernung von Argon aus dem Ethylen-Sauerstoff-Kreislaufgasgemisch zur Verfügung zu stellen.

Eine weitere erfindungsgemäße Aufgabe betrifft ein Verfahren zur Entfernung von Argon, bei dem gleichzeitig in dem Prozeß-kreislaufgas erwünschte Argonkonzentrationen aufrechterhalten werden, ohne daß damit ein erheblicher Verlust an Ethylen aus dem Kreislaufgas verbunden ist.

Darlegung des Wesens der Erfindung:

Die Erfindung betrifft daher ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Ethylenoxid, das folgende Schritte umfaßt: die Umsetzung von Ethylen mit einem im wesentlichen reinen, z. B. mindestens 95 Mol%, vorzugsweise 99+%, Sauerstoffeinsatzstrom in Gegenwart eines geeigneten Katalysators auf Silberbasis, in einer Reaktionszone unter geeigneten Temperaturen, z. B. etwa 200 bis 300 °C, und überatmosphärischen Drücken, z. B. etwa 100 bis 400 psia, wobei die Reaktion in Gegenwart eines weiteren geeigneten Reaktionsgasgemischs erfolgt, d. h. etwa 5 bis 50 Mol% Ethylen, 5 bis 9 Mol% O₂, 1 bis 25 Mol% Ar, 2 bis 15 Mol% CO₂, 0,2 bis 1 Mol% H₂O und 20 bis 60 Mol% kombiniert CH₄ und N₂; Entfernung des Ethylenoxidproduktes aus dem Reaktions-Auslaufgasgemisch, z. B. in einer Waschzone; Entfernung einer erwünschten Menge von CO₂, d. h. wobei die durchschnittliche Entfernungsgeschwindigkeit vorzugsweise gleich der durchschnittlichen Geschwindigkeit ist, mit der CO₂ während des Prozesses gebildet wird, aus dem Reaktionsgasgemisch, vorzugsweise durch chemische Absorptionstechniken; selektive Entfernung einer erwünschten Argonmenge, d. h. bei einer durchschnittlichen Geschwindigkeit, die im

wesentlichen gleich der Durchschnittsgeschwindigkeit ist, mit der Argon in den Einsatzsauerstoffstrom eintritt, z. B. Entfernung etwa 0,01 bis 0,5 Mol% des gesamten Reaktionsgasgemischs; wobei die Entfernung dadurch erfolgt, daß eine geeignete Menge, z. B. etwa 0,5 bis 25 %, vorzugsweise 2 bis 5 %, des Reaktionsgasgemischs durch eine geeignete semipermeable Membranvorrichtung geleitet wird, d. h. eine auf einer Druckdifferenz von 10 bis 400 psi, vorzugsweise etwa 100 bis 250 psi, gehaltene Membranvorrichtung; Ersetzen des erschöpften Reaktionsmittelgasgemischs durch frisches Einsatzgut, d. h. O_2 und C_2H_4 , und Wiederholung des Prozeßkreislaufes.

In Fig. 1 wird eine kurze Darstellung des bevorzugten Verfahrens der beschriebenen Erfindung gezeigt.

Ethylenoxid wird heute großtechnisch durch die silber-katalysierte unvollständige Dampfphasenoxydation von Ethylen mit molekularem Sauerstoff erzeugt. Im allgemeinen stellt das Produkt-Ethylenoxid im allgemeinen nur einen verhältnismäßig geringen Prozentanteil des die Oxydationsreaktionszone verlassenden Gesamtauslaufstromes dar, z. B. etwa 1 bis 3 Mol%. Den Rest des Reaktorauslaufstromes bilden verschiedene Verdünnungsmittel und Reaktionsnebenprodukte; die Verdünnungsmittel haben die Aufgabe, die Möglichkeit von Explosionen und von unerwünschten Verbrennbarkeitswerten, die während der Reaktion auftreten können, auszuschalten. Wenn die sogenannte Entflammbarkeitsgrenze, d. h. der Punkt, an dem die vollständige und schnelle Oxydation von Ethylen zu CO_2 und Wasser erfolgen kann, überschritten ist, wird die Möglichkeit einer gefährlichen Explosion zu einem sehr realen Faktor. Natürlich will man unter Bedingungen arbeiten, durch die die Umwandlung von Ethylen zu Ethylenoxidein Maximum aufweist, jedoch Sicherheitsprobleme unter Einhaltung einer industriell akzeptablen Reaktionsgeschwindigkeit vermieden werden. In dem Bestreben, eine solche optimale Umgebung zu ermitteln, werden Gase wie

Stickstoff und Methan absichtlich zugeführt und zusammen mit dem Reaktionsnebenprodukt, Kohlendioxid, und Argon, das als eine Verunreinigung in das Sauerstoff-Einsatzgut gelangt, auf vorbestimmten Konzentrationen in dem Kreislaufreaktionsgas gehalten. Das Ziel einer solchen Festlegung der Zusammensetzung besteht darin, ein optimales Gemisch zu finden, das die sichere Umsetzung von maximalen Konzentrationen von Sauerstoff und Ethylen zur Bildung von Ethylenoxid ermöglicht, wodurch die Selektivität des vorhandenen Ethylens zu Ethylenoxid erhöht wird.

Einige der in dem Kreislaufgas vorhandenen Verdünnungsmittel führen infolge ihrer Herkunft zu einer allmählichen Ansammlung von Verunreinigungen, die in dem Reaktionsmittelgas-Einsatzströmen vorhanden sind. Das ist vermutlich bei Argon der Fall, das als die Hauptverunreinigung, die in dem Sauerstoff-Einsatzstrom vorhanden ist, in das System gelangt. Nach dem bisherigen Stand der Technik war es nicht möglich, eine andere selektive Maßnahme zur Entfernung von überschüssigem Argon zu finden, das sich in dem System ansammelt, als durch einfaches Ausspülen einer bestimmten Menge des Kreislaufgasgemischs durch einen Ablaßstrom, der dann verworfen wird. Ein solches Spülgas enthält leider auch eine hohe Ethylenkonzentration und führt zu einem erheblichen Ethylenverlust, z. B. von etwa 0,1 bis 5,0 Mol% des Gemischs, dessen Höhe von der Argonkonzentration im Sauerstoffeinsatz- und dem Kreislaufgasstrom abhängt.

Überraschenderweise wurde gefunden, daß durch den Einbau einer geeigneten Semipermeablen Membranvorrichtung, z. B. entweder einer einfachen Vorrichtung oder einer Mehrstufen-Membranausführung, mit einer typischen Separatorvorrichtung, die in einem Druckbehälter in einer einem Röhrenwärmeaustauscher analogen Weise installiert ist, das Argon wirksam und selektiv aus

dem übrigen Kreislaufgemisch extrahiert werden kann. Das Einsatzgas, d. h. eine vorgesehene Menge des Kreislaufgasstromes, wird zuerst der Mantelseite des Separators zugeführt. Da eine erhebliche Druckdifferenz, z. B. von etwa 20 bis 400 psi, und vorzugsweise von etwa 100 bis 250 psi, zwischen den Außen- und Innenseiten des aus Fasern bestehenden Membranrohres herrscht, kann die Argonkomponente, die abgetrennt werden soll, leichter durch den Membranfilm permeieren, wenn der Gasstrom die Länge des Bündels durchströmt. Durch die resultierende selektive Trennung ergibt sich ein Permeatstrom mit einem beträchtlich höheren, z. B. von etwa 1,5 zu 1 bis 50 zu 1, Molverhältnis von Argon zu Ethylen an der Innenseite des Membranrohres oder der Faser als in dem Nicht-Permeat-, mit Ethylen angereicher- ten Strom an der Mantelseite. Die relative Permeationsgeschwin- digkeit jeder in dem Gasgemisch vorhandenen Komponente ist im allgemeinen eine Funktion der Partialdruckdifferenz der einzel- nen Komponente an der Faserwandung, sowie der Löslichkeit und des Diffusionsvermögens der Komponente in der Faser. Eine breite Palette anderer derartiger Membranvorrichtungen, wie sie dem mit Membranen vertrauten Fachmann bekannt sind, liegen im Gel- tungsbereich der Erfindung.

Das erfindungsgemäße Verfahren ist von der Art, bei der im we- sentlichen reiner molekularer Sauerstoff, im Gegensatz zu weni- ger reinem Sauerstoff oder Luft, als Zusatzeinsatzgut zur Er- gänzung des bei der Reaktion verbrauchten Sauerstoffs verwen- det wird. Gereinigter Sauerstoff, mit einem Sauerstoffgehalt von mindestens 95 Mol% wird als Zusatzstrom in das System ge- leitet, wobei der Sauerstoff vorzugsweise mit einer zwischen etwa 99,0 und 99,9 Mol% liegenden Reinheit vorhanden ist. Es ist gleichfalls zu empfehlen, im Bereich hoher Ethylenkonzen- trationen zu arbeiten, um eine hohe Ethylenselektivität zu Ethylenoxid zu erzielen, weil das ganz selbstverständlich für großtechnischen Betrieb ist, und daher können Ethylenkonzentra- tionen bis zu etwa 40 bis 50 Mol% im Kreislaufgasgemisch vor-

handen sein. Es wird bevorzugt, und ist eigentlich für eine effektive Arbeitsweise wichtig, daß das in dem Sauerstoff-Zusatzeinsatzgut vorhandene Argon nicht über den Bereich von etwa 0,1 bis 5,0 Mol%, im allgemeinen etwa 0,5 Mol%, des Sauerstoffeinsatzgutes hinausgeht.

Das aus dem Kreislauf-Reaktionsgasstrom außer den Einsatzgasen und den verschiedenen Verunreinigungen bestehende Gasgemisch enthält auch erhebliche Mengen bestimmter Reaktionsprodukte, z. B. das als Hauptnebenprodukt gebildete CO_2 , das nicht entfernt worden ist, Wasser und eine kleine Menge nicht entferntes Ethylenoxid.

Ausführungsbeispiel:

Die Erfindung soll nachstehend an einem Beispiel erläutert werden. Die dazugehörige Zeichnung zeigt eine Anlage für die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens.

Das System besteht aus einer Reaktoranlage 2, die einen geeigneten, auf Silbermetall basierenden Katalysator enthält, der den Fachleuten bekannt ist, z. B. wie er in der US-PS 3.725.307 beschrieben wird, sowie viele andere, und durch den ein Ethylen und Sauerstoff enthaltendes, durch Leitung 4 eintretendes Gemisch geleitet wird, wobei frisches Zusatzethylen und Sauerstoff vorher in Leitung 4 geleitet worden sind. Ein Reaktor- auslaufstrom, der aus Ethylenoxid, nicht umgesetzten Einsatzgutkomponenten, verschiedenen Verdünnungsmitteln und Reaktionsnebenprodukten besteht, wird durch Leitung 6 aus der Reaktoranlage 2 abgezogen und geht, nachdem er vorzugsweise in dem Wärmeaustauscher 8 vorzugsweise durch Erwärmen des eintretenden Reaktoreinsatzgemischs in Leitung 4 gekühlt wurde, in eine Waschanlage (oder eine andere geeignete Trennvorrichtung) 10, in der das Gasgemisch gewaschen wird, indem es mit

einem wäßrigen Strom oder einem anderen geeigneten Ethylenoxid-Waschmittel zusammengebracht wird, das durch Leitung 12 eintritt und die Anlage schließlich durch Leitung 14 verläßt und das absorbierte Ethylenoxid enthält, wobei aus diesem Strom das Ethylenoxid schließlich als Produkt extrahiert wird. Der von Ethylenoxid freie Auslaufstrom fließt durch Leitung 16 aus der Waschanlage aus und geht durch einen Sprühseparator 18, in dem vorhandene mitgeführte Flüssigkeit entfernt wird. Das gewaschene Gas von dem Separator 18 strömt durch Leitung 20 aus und gelangt in eine Verdichtervorrichtung 22, in der es auf den verlangten Druck gebracht wird, z. B. etwa 240 bis 340 psia. Der nun verdichtete Gasstrom geht durch Leitung 24, wobei er im allgemeinen etwa 5 bis 15 Mol% Argon und 5 bis 15 Mol% CO_2 enthält, worauf der Kreislaufstrom geteilt wird, um überschüssiges CO_2 und überschüssiges Argon zu entfernen, wobei im allgemeinen etwa 10 bis 20 % durch Leitung 26 in die CO_2 -Entfernungseinrichtung 28 gehen, etwa 0,5 bis 25 % durch Leitung 30 in die semipermeable Membranvorrichtung 32 gelangen, während der übrige Gasstrom durch die zurück zum Reaktor führende Umgehungsleitung 34 strömt.

In der Membranvorrichtung 32, deren bevorzugte Konstruktion oben beschrieben wurde, wird ein kleiner mit Argon angereicherter und an Ethylen armer Permeatstrom (dessen Argongehalt etwa 0,001 bis 0,1 Mol%, vorzugsweise etwa 0,01 % des gesamten Reaktionsgasgemisches beträgt) von dem eintretenden Gasgemisch abgetrennt und am besten durch Leitung 33 abgeführt, z. B. indem er zu dem Verbrennungsofen oder dergleichen geleitet wird, während der Nicht-Permeat-Strom, dessen Argonkonzentration vorzugsweise nur schwach reduziert ist, durch Leitung 36 aus der Membranvorrichtung austritt. Gleichzeitig wird die Fraktion des Kreislaufgasgemisches, die in die CO_2 -Entfernungseinrichtung 28 gelangt, vorzugsweise behandelt, um CO_2 in einer großtechnischen Anlage durch herkömmliche Maßnah-

men, die zu einem geringen Ethylenverlust führen, z. B. ein heißes Carbonatwaschsystem oder dergleichen, zu entfernen, wobei der extrahierte, an CO_2 reiche Strom vorzugsweise durch Leitung 29 abgeblasen oder in anderer geeigneter Form abgeleitet wird. Die behandelte, an CO_2 reduzierte Fraktion verläßt die Entfernungsvorrichtung 28 durch Leitung 38 und vereinigt sich vorzugsweise wieder mit dem umgeleiteten Strom in Leitung 34 und dem austretenden Gas von der Membranvorrichtung 32 (Leitung 36), um das resultierende in Leitung 4 vorhandene Kreislaufgas-Einsatzgemisch zu bilden. Etwa 5 bis 25 % des vorhandenen CO_2 werden im allgemeinen in dieser Weise aus dem System entfernt. Im allgemeinsten erfindungsgemäßen Ausführungsbeispiel kann die Entfernung von Argon oder CO_2 an jeder beliebigen Stelle des Prozeßkreislaufes erfolgen, beginnend mit der Entfernung von Ethylenoxidprodukt aus dem Gasstrom bis hin zur Zugabe eines Ethylenzusatzstromes, obwohl bevorzugt wird, in der oben beschriebenen Weise zu verfahren. Andere geeignete Stellen für die Argonentfernungs-Membraneinrichtung von besonderer Bedeutung sind an der Leitung, die den die CO_2 -Entfernungsvorrichtung verlassenden Gasstrom 38 enthält, und auch die Rückführung des Nicht-Permeat-Auslaufstromes von der Membranvorrichtung zur Verdichteransaugung (Leitung 20).

Das behandelte Kreislaufgasgemisch wird dann vorzugsweise durch Ethylen- und Sauerstoff-Zusatzströme 40 bzw. 42 ergänzt; wobei es einen weiten Spielraum hinsichtlich der genauen Einleitungsstelle gibt, und eine derartige Stelle bildet keinen Teil der Erfindung. Der Strom geht vorzugsweise wieder durch den Wärmeaustauscher 8 und gelangt in den Reaktor, und das Verfahren wird unendlich wiederholt.

Die gesteuerte Oxydationsreaktion kann bei zwischen 150 und 450 °C, vorzugsweise im Bereich von etwa 200 bis 300 °C, lie-

genden Temperaturen ausgeführt werden. Anwendbare Drücke reichen von etwa 100 psia bis etwa 400 psia, obwohl höhere Drücke auf Wunsch angewandt werden können. Es ist natürlich vorgesehen, daß die verschiedensten anderen Ausführungsformen neben der beschriebenen für die Anwendung bei der Erfindung geeignet sind.

16 894 58

Erfindungsanspruch:

1. Verfahren zur Herstellung von Ethylenoxid, das darin besteht, daß Ethylen mit Sauerstoff zur Bildung von Ethylenoxid in einer Reaktionszone in Gegenwart eines geeigneten, auf Silber basierenden Katalysators unter geeigneten Temperaturen und über atmosphärischen Drücken umgesetzt wird; wobei die Reaktion in der zusätzlichen Anwesenheit eines geeigneten Reaktionsgasgemischs, das eine CO_2 - und Argonkomponente enthält, erfolgt;

das gebildete Ethylenoxid aus dem Reaktionsauslauf-Gasgemisch entfernt wird; gekennzeichnet dadurch, daß

eine geeignete Menge Argon selektiv entfernt wird, indem eine entsprechende Menge des Reaktionsgasgemischs durch eine geeignete semipermeable Membranvorrichtung geleitet wird;

die verbrauchten Reaktionsmittelgase wieder ersetzt werden.

2. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß es sich bei dem dem Verfahren zugeführten Sauerstoff um einen im wesentlichen reinen O_2 -Strom handelt, der mindestens 95 Mol% O_2 enthält.

3. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß der Sauerstoff dem Verfahren als mindestens 99 Mol% O_2 zugeführt wird.

4. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß in dem Verfahren eine geeignete CO_2 -Menge selektiv aus dem Reaktionsgemisch entfernt wird.

5. Verfahren nach Anspruch 4, gekennzeichnet dadurch, daß die durchschnittliche Geschwindigkeit, mit der CO_2 aus dem Reak-

tionsgas entfernt wird, im wesentlichen gleich der durchschnittlichen Geschwindigkeit ist, mit der CO_2 während des Verfahrens gebildet wird.

6. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß die in dem Reaktionsgasgemisch vorhandene Argonkomponente dem Reaktionsgas im wesentlichen als ein Verdünnungsmittel in dem O_2 -Einsatzgasstrom zugeführt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß die Reaktionszone bei etwa 200 bis 300 °C und 690 bis 2758 kPa (100 bis 400 psia) gehalten wird.

8. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß das Reaktionsgasgemisch etwa 5 bis 50 Mol% Ethylen, 5 bis 9 % O_2 , 1 bis 25 % Argon, 2 bis 15 % CO_2 , 0,2 bis 1 % Wasser und 20 bis 60 % Methan und Stickstoff kombiniert enthält.

9. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß das Ethylenoxidprodukt in einer entsprechenden Abtriebszone aus dem Auslaufgasgemisch entfernt wird.

10. Verfahren nach Anspruch 4, gekennzeichnet dadurch, daß das CO_2 mit Hilfe chemischer Absorptionstechniken aus dem Reaktionsgasgemisch entfernt wird.

11. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß die durchschnittliche Geschwindigkeit, mit der Argon aus dem Gasgemisch entfernt wird, im wesentlichen gleich der durchschnittlichen Geschwindigkeit ist, mit der es in das Reaktionsgasgemisch in dem Einsatzsauerstoffstrom eintritt.

12. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß die aus dem Reaktionsgasgemisch entfernte Argonmenge etwa gleich 0,001 bis 0,1 Mol% des gesamten Reaktionsgasgemischs ist.

13. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß etwa 0,5 bis 25 Mol% des Reaktionsgasgemische durch die Membrantrenneinrichtung geleitet werden.

14. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß die Membraneinrichtung auf einer Druckdifferenz von etwa 138 bis 2758 kPa (20 bis 400 psi) gehalten wird.

15. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß die erschöpften Reaktionsmittelgase entsprechend mit frischem Einsatzgut ergänzt werden.

16. Verfahren nach Anspruch 15, gekennzeichnet dadurch, daß es sich bei den erschöpften Reaktionsmitteln um Ethylen und Sauerstoff handelt.

17. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß der Prozeßkreislauf kontinuierlich wiederholt wird.

18. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß das Verhältnis von Argon zu Ethylen in dem mit Argon angereicherten Permeatstrom im Vergleich zu dem mit Ethylen angereicherten Nicht-Permeatstrom von etwa 1,5 zu 1 bis 50 zu 1 reicht.

19. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß das Verfahren in der Dampfphase abläuft.

Hierzu 1 Blatt Zeichnung.

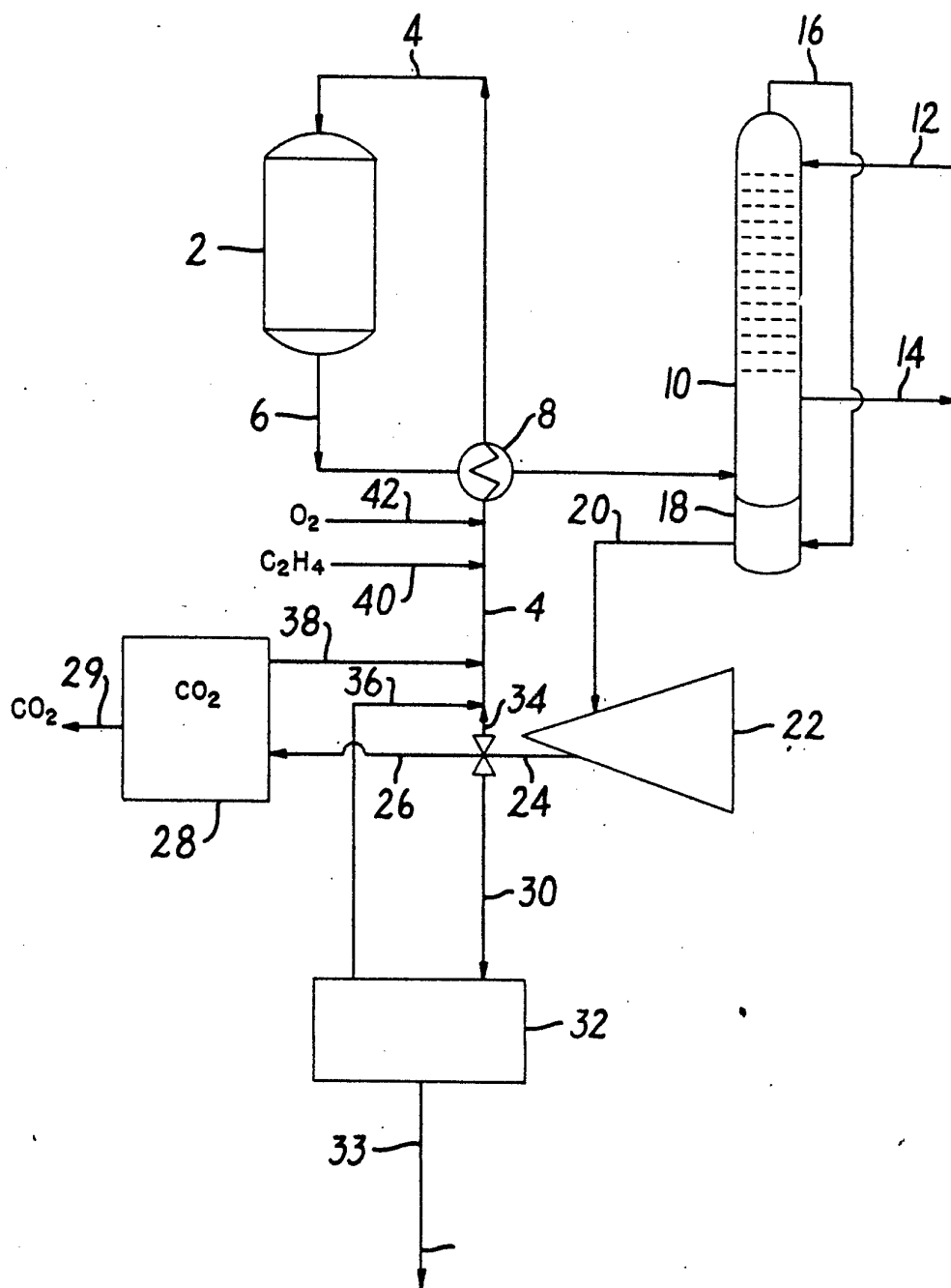


FIG. 1