



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 10 2006 060 348 A1** 2007.07.19

(12)

Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2006 060 348.6**

(22) Anmeldetag: **20.12.2006**

(43) Offenlegungstag: **19.07.2007**

(51) Int Cl.⁸: **C07D 301/10** (2006.01)

C07D 303/04 (2006.01)

C07D 317/26 (2006.01)

C07C 29/10 (2006.01)

C07C 31/20 (2006.01)

C07C 41/02 (2006.01)

C07C 43/13 (2006.01)

C07C 213/04 (2006.01)

C07C 215/08 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

60/752,974 22.12.2005 US

(71) Anmelder:

**Shell Internationale Research Maatschappij B.V.,
Den Haag, NL**

(74) Vertreter:

**WUESTHOFF & WUESTHOFF Patent- und
Rechtsanwälte, 81541 München**

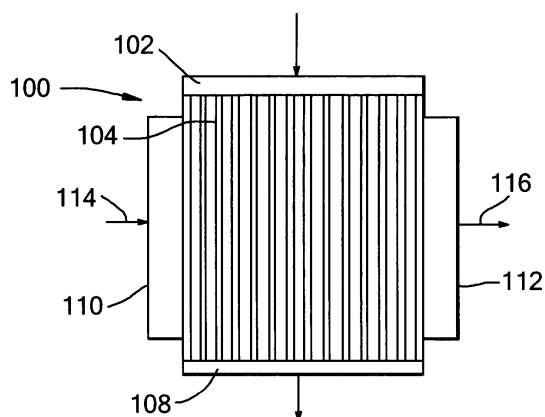
(72) Erfinder:

**Bolk, Jeroen Willem, Amsterdam, NL; Bos,
Aloisius Nicolaas Renée, Amsterdam, NL; Evans,
Wayne Errol, Richmond, Tex., US; Lockemeyer,
John Robert, Sugar Land, Tex., US; McAllister,
John Michael, Houston, Tex., US; Ramakers,
Bernardus Franciscus Josef Marie, Amsterdam,
NL; Rekers, Dominicus Maria, Amsterdam, NL;
Slapak, Mathias Jozef Paul, Amsterdam, NL**

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

(54) Bezeichnung: **Verfahren zur Herstellung eines Olefinoxids oder einer Chemikalie, die von einem Olefinoxid ableitbar ist**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein verbessertes Epoxidierungsverfahren und einen verbesserten Epoxidierungsreaktor. Die vorliegende Erfindung macht von einem Reaktor Gebrauch, der eine Mehrzahl von Mikrokanälen umfasst. Solche Prozessmikrokanäle können so angepasst sein, dass die Epoxidierung und wahlweise andere Prozesse in den Mikrokanälen stattfinden können und dass sie in einer Wärmeaustauschbeziehung mit Kanälen stehen, die angepasst sind, ein Wärmeaustauschfluid zu enthalten. Ein Reaktor, der solche Prozessmikrokanäle umfasst, wird als ein "Mikrokanalreaktor" bezeichnet. Die Erfindung stellt ein zuverlässiges Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins und ein Verfahren zur Herstellung einer Chemikalie, die von einem Olefinoxid ableitbar ist, bereit.



Beschreibung

Gebiet der Erfindung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins. Die Erfindung betrifft ebenfalls ein Verfahren zur Herstellung einer Chemikalie, die von einem Olefinoxid ableitbar ist. Insbesondere kann solch eine Chemikalie ein 1,2-Diol, ein 1,2-Diolether, ein 1,2-Carbonat oder ein Alkanolamin sein.

Hintergrund der Erfindung

[0002] Ethylenoxid und andere Olefinoxide sind wichtige gewerbliche Chemikalien, die als Ausgangsmaterial für die Erzeugung solcher Chemikalien wie Ethylenglykol, Propylenglykol, Ethylenglykolethern, Ethylencarbonat, Ethanolaminen und Detergenzien verwendet werden. Ein Verfahren zur Herstellung eines Olefinoxids besteht in der Olefinepoxidierung, das heißt der katalysierten partiellen Oxidation des Olefins mit Sauerstoff, wobei das Olefinoxid erhalten wird. Das so hergestellte Olefinoxid kann mit Wasser, einem Alkohol, Kohlendioxid oder einem Amin zur Reaktion gebracht werden, um ein 1,2-Diol, einen 1,2-Diolether, ein 1,2-Carbonat oder ein Alkanolamin herzustellen. Eine solche Herstellung eines 1,2-Diols, 1,2-Diolethers, 1,2-Carbonats oder Alkanolamins wird im Allgemeinen getrennt von der Herstellung des Olefinoxids durchgeführt, in jedem Fall werden die zwei Prozesse normalerweise in getrennten Reaktoren durchgeführt.

[0003] Bei der Olefinepoxidierung wird ein Zustrom, der das Olefin und Sauerstoff enthält, über ein Katalysatorbett geleitet, das sich innerhalb einer Reaktionszone befindet, die bei bestimmten Reaktionsbedingungen gehalten wird. Ein kommerzieller Epoxidierungsreaktor hat im Allgemeinen die Form eines ummantelten Rohrbündelwärmeaustauschers, in dem eine Mehrzahl von im Wesentlichen parallel verlängerten, relativ engen Rohren mit Katalysatorformteilchen gefüllt ist, um ein Festbett zu bilden, und in dem der Mantel ein Kühlmittel enthält. Unabhängig von der Art des verwendeten Epoxidierungskatalysators liegt der innere Rohrdurchmesser bei kommerziellem Betrieb häufig im Bereich von 20 bis 40 mm und die Anzahl an Rohren pro Reaktor kann in den Tausenden liegen, beispielsweise bei bis zu 12 000

[0004] Eine Olefinepoxidierung wird im Allgemeinen bei relativ geringem Olefinumsatz und Sauerstoffumsatz durchgeführt. Normalerweise erfolgt eine Rückführung von nicht umgesetztem Olefin und Sauerstoff, um die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens zu erhöhen. Im Allgemeinen umfasst der Zustrom zusätzlich eine große Menge an sogenanntem Ballastgas, um einen Betrieb außerhalb der Explosionsgrenzen zu erleichtern. Ballastgas umfasst gesättigte Kohlenwasserstoffe, insbesondere Methan und Ethan. Infol-

ge dessen ist die Rückführung im Allgemeinen mit der Handhabung großer Mengen an Prozessströmen verbunden, die das nicht umgesetzte Olefin, nicht umgesetzten Sauerstoff und das Ballastgas umfassen. Die Verarbeitung des Rückführungsstroms, wie sie normalerweise in einer Olefinepoxidierungsanlage erfolgt, ist außerdem ziemlich komplex, da sie mit einer Rückgewinnung von Olefinoxid, einer Entfernung von Kohlendioxid, einer Entfernung von Wasser und einem Wiederunterdrucksetzen verbunden ist. Die Verwendung von Ballastgas trägt nicht nur zu den Kosten der Verarbeitung bei, sie reduziert auch die Reaktionsgeschwindigkeit der Epoxidierung.

[0005] Der Epoxidierungskatalysator enthält im Allgemeinen die katalytisch aktive Spezies, üblicherweise ein Metall der Gruppe 11 (insbesondere Silber) und Promotorkomponenten auf einem Trägerformmaterial. Trägerformmaterialien werden im Allgemeinen sorgfältig ausgewählt, um den Erfordernissen hinsichtlich beispielsweise der Festigkeit und Widerstandsfähigkeit gegen Abnutzung, der Oberfläche und der Porosität zu genügen. Die Trägerformmaterialien werden im Allgemeinen dadurch hergestellt, dass ausgewählte anorganische Materialien soweit gesintert werden, dass sie die gewünschten Eigenschaften besitzen.

[0006] Während der Epoxidierung unterliegt der Katalysator einem Rückgang der Leistungsfähigkeit, der sich in einem Verlust an Aktivität des Katalysators und an Selektivität bei der Bildung des gewünschten Olefinoxids zeigt. Als Reaktion auf den Verlust an Aktivität kann die Reaktionstemperatur der Epoxidierung erhöht werden, so dass die Herstellungsgeschwindigkeit des Olefinoxids gehalten wird. Der Betrieb kommerzieller Reaktoren ist normalerweise hinsichtlich der Reaktionstemperatur begrenzt und wenn das maßgebliche Temperaturlimit erreicht worden ist, muss die Herstellung des Olefinoxids für einen Austausch der vorhandenen Ladung an Epoxidierungskatalysator durch eine frische Ladung unterbrochen werden.

[0007] Es wäre von großem Wert, wenn verbesserte Epoxidierungsverfahren und verbesserte Epoxidierungsreaktoren verfügbar werden würden.

Zusammenfassung der Erfindung

[0008] Die vorliegende Erfindung stellt solche verbesserte Epoxidierungsverfahren und verbesserte Epoxidierungsreaktoren bereit. Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung machen von einem Reaktor Gebrauch, der eine Mehrzahl an Mikrokanälen (im Folgenden "Prozessmikrokanäle") umfasst. Die Prozessmikrokanäle können so angepasst sein, dass die Epoxidierung und wahlweise andere Prozesse in den Mikrokanälen stattfinden können, und dass sie in einer Wärmeaustauschbeziehung mit Kanälen ste-

hen, die angepasst sind, ein Wärmeaustauschfluid zu enthalten (im Folgenden "Wärmeaustauschkanäle"). Ein Reaktor, der Prozessmikrokanäle umfasst, wird hier mit dem Ausdruck "Mikrokanalreaktor" bezeichnet. Der Ausdruck "Gruppe 11", wie er hier verwendet wird, bezieht sich auf die Gruppe 11 des Periodensystems der Elemente.

[0009] In einer Ausführungsform stellt die Erfindung ein Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins bereit, das umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, um dadurch ein erstes Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst,
- das Abschrecken des ersten Gemisches, und
- die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, um ein zweites Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst.

[0010] Üblicherweise umfasst das Verfahren ein Abschrecken des ersten Gemisches durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid.

[0011] In einer bevorzugten Ausführungsform stellt die Erfindung ein Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins bereit, das umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, der in einem ersten Abschnitt von einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors enthalten ist, um dadurch ein erstes Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst,
- das Abschrecken des ersten Gemisches in einem ersten Zwischenabschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt, und
- die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches in einem zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle, der stromabwärts von dem ersten Zwischenabschnitt liegt, um ein zweites Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst.

[0012] In den Fällen, dass das zweite Gemisch zumindest teilweise in Gasform gebildet wird, kann das Verfahren zusätzlich das Kondensieren von mindestens einem Teil des zweiten Gemisches umfassen, das das Olefinoxid und das 1,2-Carbonat umfasst, wobei dieses Kondensieren vorzugsweise in einem dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle durchgeführt werden kann, der stromabwärts von dem zweiten Abschnitt liegt. In den Fällen, dass das zweite Gemisch Wasser zumindest teilweise in Gasform umfasst, kann das Verfahren zusätzlich ein Kondensieren, vorzugsweise im dritten Abschnitt, von mindestens einem Teil dieses Wassers umfassen, das in dem zweiten Gemisch vorliegt.

[0013] In einer anderen Ausführungsform stellt die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung eines 1,2-Diols, 1,2-Diolethers, 1,2-Carbonats oder Alkanolamins bereit, wobei das Verfahren umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, um dadurch ein erstes Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst,
- das Abschrecken des ersten Gemisches,
- die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, um ein zweites Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst, und
- die Umsetzung des zweiten Gemisches mit Wasser, einem Alkohol, Kohlendioxid oder einem Amin, um das 1,2-Diol, den 1,2-Diolether, das 1,2-Carbonat oder das Alkanolamin zu bilden.

[0014] Das zweite Gemisch wird vorzugsweise mit Wasser umgesetzt, um das 1,2-Diol zu bilden.

Beschreibung der Abbildungen

[0015] [Fig. 1](#) zeigt eine schematische Darstellung eines Mikrokanalreaktors und seiner Hauptbestandteile.

[0016] [Fig. 2](#) zeigt eine schematische Darstellung eines typischen Beispiels einer sich wiederholenden Einheit, die Prozessmikrokanäle und Wärmeaustauschkanäle umfasst, und deren Betrieb, wenn sie bei der Ausführung der Erfindung verwendet wird. Ein Mikrokanalreaktor dieser Erfindung kann eine Mehrzahl solcher sich wiederholenden Einheiten umfassen.

Detaillierte Beschreibung der Erfindung

[0017] In Übereinstimmung mit dieser Erfindung wird die Olefinepoxidierung durchgeführt und mitgebildetes Kohlendioxid wird mit mindestens einem Teil des hergestellten Olefinoxids umgesetzt. Wahlweise wird ein flüssiges, üblicherweise wässriges, Gemisch, das nicht umgesetztes Olefinoxid und das 1,2-Carbonat umfasst, kondensiert. Bezüglich seiner Zusammensetzung eignet sich ein restlicher gasförmiger Strom, der nicht umgesetztes Ethylen und Sauerstoff umfassen kann, zur Rückführung. Ein Vorteil besteht darin, dass eine Verringerung der Komplexität der Handhabung von Produktströmen und Rückführungsströmen erzielt werden kann, verglichen mit der Handhabung solcher Ströme in einem herkömmlichen Olefinepoxidierungsverfahren, insofern als kein Bedarf beispielsweise an einer Einheit zur Rückgewinnung von Olefinoxid und einer Einheit zur Entfernung von Kohlendioxid besteht.

[0018] Jede Art von Reaktor kann eingesetzt werden, und die Schritte des Verfahrens können in mehr als einer Anlage durchgeführt werden. Beispielswei-

se können ein oder mehrere Rohrbündelwärmeaustauschreaktoren, Rührkesselreaktoren, Mikrokanalreaktoren, Blasensäulen oder Kondensationsvorrichtungen anstelle von oder zusätzlich zu einem Mikrokanalreaktor eingesetzt werden. Die vorliegende Erfindung umfasst daher die Verwendung verschiedener Arten von Reaktoren oder Kondensationsvorrichtungen, oder die Verwendung einer Mehrzahl von Reaktoren oder Kondensationsvorrichtungen bei diesen Verfahren. Die Reaktionsbedingungen und die Typen von Katalysatoren, wie sie hier beschrieben sind, können in dem Bewusstsein eingesetzt werden, dass die Katalysatoren in partikulärer Form oder in Form wohlbekannter Formkörper vorliegen können oder auch nicht. Andererseits ist vorzuziehen, die Vorteile des Einsatzes eines Mikrokanalreaktors, der Prozessmikrokanäle aufweist, wie hier beschrieben, in diesen Verfahren zu nutzen.

[0019] Die Verwendung eines Mikrokanalreaktors in Übereinstimmung mit bevorzugten Ausführungsformen dieser Erfindung führt zu einem oder mehreren der folgenden Vorteile. Die Durchführung der Olefinepoxidierung innerhalb der Prozessmikrokanäle ermöglicht das Abschrecken innerhalb derselben Prozessmikrokanäle und die Umsetzung des mitgebildeten Kohlendioxids mit mindestens einem Teil des hergestellten Olefinoxids und wahlweise das Kondensieren eines flüssigen, üblicherweise wässrigen, Gemisches, das nicht umgesetztes Olefinoxid und das 1,2-Carbonat umfasst. Ein Abschrecken innerhalb der Prozessmikrokanäle verringert die Bildung von Nebenprodukten wie etwa Aldehyden und Carbonsäuren. Ein Abschrecken ermöglicht auch die Erhöhung der Gesamtmenge an dem Olefinoxid und Sauerstoff im Zustrom des Epoxidierungsprozesses und das Weglassen des Ballastgases oder die Verringerung der Menge an Ballastgas im Zustrom des Epoxidierungsverfahrens.

[0020] Mikrokanalreaktoren, die zur Verwendung in dieser Erfindung geeignet sind, und deren Betrieb sind 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 und US-A-6192596 beschrieben worden, auf die hier Bezug genommen und deren Inhalt hier einbezogen wird. Verfahren, durch welche der Mikrokanalreaktor hergestellt, mit Katalysator beladen und betrieben werden kann, wie sie in diesen Quellen beschrieben sind, können allgemein bei der Ausführung der vorliegenden Erfindung anwendbar sein.

[0021] Bezugnehmend auf **Fig. 1** kann der Mikrokanalreaktor **100** einen Prozess-Kopfbereich **102**, eine Mehrzahl an Prozessmikrokanälen **104** und einen Prozess-Fußbereich **108** umfassen. Der Prozess-Kopfbereich **102** stellt einen Durchgang für Flu-

id bereit, um in die Prozessmikrokanäle **104** hinein zu fließen. Der Prozess-Fußbereich **108** stellt einen Durchgang für Fluid bereit, um aus den Prozessmikrokanälen **104** heraus zu fließen.

[0022] Die Anzahl an Prozessmikrokanälen, die in einem Mikrokanalreaktor enthalten sind, kann sehr groß sein. Zum Beispiel kann die Anzahl bis zu 10^5 oder sogar bis zu 10^6 oder bis zu 2×10^6 betragen. Normalerweise kann die Anzahl an Mikrokanälen mindestens 10 oder mindestens 100 oder sogar mindestens 1000 betragen.

[0023] Die Prozessmikrokanäle sind üblicherweise parallel angeordnet, beispielsweise können sie eine Anordnung planarer Mikrokanäle bilden. Die Prozessmikrokanäle können mindestens eine innere Ausdehnung in Höhe oder Breite von bis zu 15 mm, beispielsweise von 0,05 bis 10 mm, insbesondere von 0,1 bis 5 mm, noch spezieller von 0,5 bis 2 mm haben. Die andere innere Ausdehnung in Höhe oder Breite kann beispielsweise 0,1 bis 100 cm, insbesondere 0,2 bis 75 cm, noch spezieller 0,3 bis 50 cm betragen. Die Länge der Prozessmikrokanäle kann beispielsweise 1 bis 500 cm, insbesondere 2 bis 300 cm, noch spezieller 3 bis 200 cm oder 5 bis 100 cm betragen.

[0024] Der Mikrokanalreaktor **100** umfasst zusätzlich Wärmeaustauschkanäle (nicht in **Fig. 1** dargestellt), die in Wärmeaustauschkontakt mit den Prozessmikrokanälen **104** stehen. Die Wärmeaustauschkanäle können ebenfalls Mikrokanäle sein. Der Mikrokanalreaktor ist so angepasst, dass Wärmeaustauschfluid von dem Wärmeaustausch-Kopfbereich **110** durch die Wärmeaustauschkanäle zum Wärmeaustausch-Fußbereich **112** fließen kann. Die Wärmeaustauschkanäle können so ausgerichtet sein, dass sie für einen Fluss in die gleiche Richtung, in Gegenrichtung oder, vorzugsweise, in Querstromrichtung bezüglich eines Flusses in den Prozessmikrokanälen **104** sorgen. Die Querstromrichtung ist so, wie durch die Pfeile **114** und **116** angedeutet wird.

[0025] Die Wärmeaustauschkanäle können mindestens eine innere Ausdehnung in Höhe oder Breite von bis zu 15 mm, beispielsweise von 0,05 bis 10 mm, insbesondere von 0,1 bis 5 mm, noch spezieller von 0,5 bis 2 mm haben. Die andere innere Ausdehnung in Höhe oder Breite kann beispielsweise 0,1 bis 100 cm, insbesondere 0,2 bis 75 cm, noch spezieller 0,3 bis 50 cm betragen. Die Länge der Wärmeaustauschkanäle kann beispielsweise 1 bis 500 cm, insbesondere 2 bis 300 cm, noch spezieller 3 bis 200 cm oder 5 bis 100 cm betragen.

[0026] Der Abstand zwischen einem Prozessmikrokanal **104** und dem nächsten benachbarten Wärmeaustauschkanal kann im Bereich von 0,05 mm bis 5 mm, insbesondere von 0,2 bis 2 mm liegen.

[0027] In einigen Ausführungsformen dieser Erfindung sind erste Wärmeaustauschkanäle und zweite Wärmeaustauschkanäle vorgesehen, oder erste Wärmeaustauschkanäle, zweite Wärmeaustauschkanäle und dritte Wärmeaustauschkanäle, oder sogar bis zu fünften Wärmeaustauschkanälen, oder sogar weitere Wärmeaustauschkanäle. Somit gibt es in solchen Fällen eine Mehrzahl an Sätzen von Wärmeaustauschkanälen und dementsprechend kann es eine Mehrzahl von Wärmeaustausch-Kopfbereichen **110** und Wärmeaustausch-Fußbereichen **112** geben, wobei die Sätze von Wärmeaustauschkanälen angepasst sein können, Wärmeaustauschfluid von einem Wärmeaustausch-Kopfbereich **110** aufzunehmen und Wärmeaustauschfluid in einen Wärmeaustausch-Fußbereich **112** zu leiten.

[0028] Der Prozess-Kopfbereich **102**, der Prozess-Fußbereich **108**, der Wärmeaustausch-Kopfbereich **110**, der Wärmeaustausch-Fußbereich **112**, die Prozessmikrokanäle **104** und die Wärmeaustauschkanäle können unabhängig voneinander aus jeglichem Baustoff gefertigt sein, der ausreichend Festigkeit, Formstabilität und Wärmeleiteigenschaften bietet, um den Betrieb der Verfahren gemäß dieser Erfindung zu ermöglichen. Geeignete Baustoffe umfassen beispielsweise Stahl (zum Beispiel Edelstahl und Kohlenstoffstahl), Monel, Titan, Kupfer, Glas und Polymerzusammensetzungen.

[0029] Die Art des Wärmeaustauschfluids ist für die vorliegende Erfindung nicht entscheidend, und das Wärmeaustauschfluid kann aus einer großen Vielzahl ausgewählt werden. Geeignete Wärmeaustauschfluide umfassen Dampf, Wasser, Luft und Öle. In Ausführungsformen der Erfindung, die eine Mehrzahl an Sätzen von Wärmeaustauschkanälen umfassen, können diese Sätze von Wärmeaustauschkanälen mit verschiedenen Wärmeaustauschfluiden oder mit Wärmeaustauschfluiden, die verschiedene Temperaturen haben, betrieben werden.

[0030] Ein Mikrokanalreaktor gemäß der Erfindung kann eine Mehrzahl von sich wiederholenden Einheiten umfassen, welche einen oder mehrere Prozessmikrokanäle und einen oder mehrere Wärmeaustauschkanäle umfassen. Dabei wird jetzt auf **Fig. 2** Bezug genommen, die eine typische sich wiederholende Einheit und deren Betrieb zeigt.

[0031] Die Prozessmikrokanäle **210** haben ein stromaufwärts gelegenes Ende **220** und ein stromabwärts gelegenes Ende **230** und können einen ersten Abschnitt **240** umfassen, der einen Katalysator (nicht dargestellt), beispielsweise einen Epoxidierungskatalysator, enthalten kann. Der erste Abschnitt **240** kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem ersten Wärmeaustauschkanal **250** stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem ersten Abschnitt **240** von Prozessmikrokanal **210** und dem ersten

Wärmeaustauschkanal **250** ermöglicht wird. Die sich wiederholende Einheit kann einen ersten Zufuhrkanal **260** umfassen, der in dem ersten Abschnitt **240** durch eine oder mehrere erste Öffnungen **280** endet. Üblicherweise können eine oder mehrere erste Öffnungen **280** stromabwärts bezüglich einer anderen ersten Öffnung **280** liegen. Während des Betriebs kann Zustrom, der das Olefin und Sauerstoff umfasst, in einen ersten Abschnitt **240** von Prozessmikrokanal **210** durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** und/oder durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** gelangen.

[0032] Die Prozessmikrokanäle **210** können einen zweiten Abschnitt **340** umfassen, der angepasst sein kann oder nicht, einen Katalysator zu enthalten. Der zweite Abschnitt **340** kann oder kann nicht einen Katalysator enthalten, wie hier beschrieben. Der zweite Abschnitt **340** liegt stromabwärts von dem ersten Abschnitt **240**. Der zweite Abschnitt **340** kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem zweiten Wärmeaustauschkanal **350** stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem zweiten Abschnitt **340** von Prozessmikrokanal **210** und dem zweiten Wärmeaustauschkanal **350** ermöglicht wird. Die sich wiederholende Einheit kann einen zweiten Zufuhrkanal **360** umfassen, der in dem zweiten Abschnitt **340** durch eine oder mehrere Öffnungen **380** endet. Während des Betriebs kann ein Zustrom von stromaufwärts im Prozessmikrokanal **210** und durch einen zweiten Zufuhrkanal **360** und eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** in den zweiten Abschnitt **340** gelangen. Üblicherweise können eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** stromabwärts bezüglich einer anderen zweiten Öffnung **380** liegen. Der zweite Abschnitt **340** ist angepasst, dass darin die Umsetzung von Olefinoxid zu 1,2-Carbonat stattfinden kann. Der Zustrom, der während des Betriebs durch den zweiten Zufuhrkanal **360** und eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** eindringt, kann beispielsweise Wasser oder Kohlendioxid umfassen. Katalysator kann ebenfalls durch einen zweiten Zufuhrkanal **360** und eine oder mehrere zweite Öffnungen **380** zugeführt werden. Falls wünschenswert, kann ein getrennter Satz von zweiten Zufuhrkanälen (nicht dargestellt) mit einer oder mehreren zweiten Öffnungen (nicht dargestellt) vorhanden sein, um eine getrennte Zufuhr von Zustrom und Katalysator zu ermöglichen.

[0033] Die ersten und zweiten Zufuhrkanäle **260** oder **360** in Verbindung mit ersten und zweiten Öffnungen **280** oder **380**, wobei eine oder mehrere erste oder zweite Öffnungen **280** oder **380** stromabwärts von einer anderen ersten bzw. zweiten Öffnung **280** bzw. **380** liegen, ermöglichen ein Nachfüllen eines Edukts. Das Nachfüllen eines Edukts ist ein Merkmal in einigen Ausführungsformen dieser Erfindung.

[0034] Die Prozessmikrokanäle **210** können einen

Zwischenabschnitt **440** umfassen, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt **240** und stromaufwärts von dem zweiten Abschnitt **340** liegt. Der Zwischenabschnitt **440** kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem dritten Wärmeaustauschkanal **450** stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem Zwischenabschnitt **440** von Prozessmikrokanal **210** und dem dritten Wärmeaustauschkanal **450** ermöglicht wird. Der Zwischenabschnitt **440** ist dazu angepasst, das im ersten Abschnitt **240** erhaltene und aus diesem aufgenommene Olefinoxid durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid im dritten Wärmeaustauschkanal **450** abzuschrecken. Das Abschrecken kann stufenweise durch Vorliegen einer Mehrzahl von dritten Wärmeaustauschkanälen **450**, beispielsweise zwei oder drei oder vier, erreicht werden. Solch eine Mehrzahl von dritten Wärmeaustauschkanälen **450** kann dazu angepasst sein, Wärmeaustauschfluide zu enthalten, die verschiedene Temperaturen haben, insbesondere derart, dass im stromabwärts gelegenen Bereich von Zwischenabschnitt **440** ein Wärmeaustausch mit einem dritten Wärmeaustauschkanal **450** stattfindet, der ein Wärmeaustauschfluid enthält, das eine geringere Temperatur hat.

[0035] Bei einigen Ausführungsformen kann Prozessmikrokanal **210** einen dritten Abschnitt (nicht dargestellt) stromabwärts von dem zweiten Abschnitt **340** und wahlweise einen zweiten Zwischenabschnitt (nicht dargestellt) stromabwärts von dem zweiten Abschnitt **340** und stromaufwärts von dem dritten Abschnitt umfassen. Der dritte Abschnitt kann in Wärmeaustauschkontakt mit einem vierten Wärmeaustauschkanal (nicht dargestellt) stehen, wodurch ein Wärmeaustausch zwischen dem dritten Abschnitt des Prozessmikrokanals **210** und dem vierten Wärmeaustauschkanal ermöglicht wird.

[0036] Die Zufuhrkanäle können Mikrokanäle sein. Sie können mindestens eine innere Ausdehnung in Höhe oder Weite von bis zu 15 mm, zum Beispiel von 0,05 bis 10 mm, insbesondere von 0,1 bis 5 mm, noch spezieller von 0,5 bis 2 mm haben. Die andere innere Ausdehnung in Höhe oder Weite kann beispielsweise 0,1 bis 100 cm, insbesondere 0,2 bis 75 cm, noch spezieller 0,3 bis 50 cm betragen. Die Länge der Zufuhrkanäle kann beispielsweise 1 bis 250 cm, insbesondere 2 bis 150 cm, und noch spezieller 3 bis 100 cm oder 5 bis 50 cm betragen.

[0037] Die Länge der Abschnitte der Prozessmikrokanäle kann unabhängig voneinander ausgewählt sein, in Übereinstimmung mit beispielsweise der benötigten Wärmeaustauschkapazität oder der Menge an Katalysator, die in dem Abschnitt enthalten sein kann. Die Längen der Abschnitte betragen vorzugsweise mindestens 1 cm oder mindestens 2 cm oder mindestens 5 cm. Die Längen der Abschnitte betragen vorzugsweise höchstens 250 cm oder höchstens

150 cm oder höchstens 100 cm oder höchstens 50 cm. Andere Ausdehnungen der Abschnitte werden durch die entsprechenden Ausdehnungen von Prozessmikrokanal **210** vorgegeben.

[0038] Der Mikrokanalreaktor dieser Erfindung kann unter Verwendung bekannter Methoden hergestellt werden, beispielsweise durch herkömmliche mechanische Bearbeitung, Laserschneiden, Gießen, Stanzen und Ätzen sowie deren Kombinationen. Der Mikrokanalreaktor dieser Erfindung kann durch Ausbilden von Platten mit daraus entfernten Bereichen, die den Durchfluss ermöglichen, hergestellt werden. Ein Stapel solcher Platten kann unter Verwendung bekannter Methoden zusammengebaut werden, um eine integrierte Vorrichtung zu bilden, beispielsweise durch Diffusionsverbindung, Laserschweißen, Kaltschweißen, Diffusionslöten und deren Kombinationen. Der Mikrokanalreaktor dieser Erfindung umfasst geeignete Kopfbereiche, Fußbereiche, Ventile, Leitungsrohre und andere Einrichtungen, um den Eintritt von Edukten, den Austritt von Produkt und den Fluss von Wärmeaustauschfluiden zu regulieren. Diese sind nicht in den Abbildungen dargestellt, sie können aber leicht durch Fachleute bereitgestellt werden. Auch können weitere Wärmeaustauschanlagen (nicht in den Abbildungen dargestellt) zur Temperaturregulation des Zustroms, insbesondere zum Erhitzen des Zustroms oder von Komponenten des Zustroms, bevor dieser in die Prozessmikrokanäle gelangt oder zur Temperaturregulation des Produkts, insbesondere zum Abschrecken des Produkts, nachdem es die Prozessmikrokanäle verlassen hat, vorhanden sein. Solche weiteren Wärmeaustauschanlagen können Bestandteil des Mikrokanalreaktors sein, es ist jedoch üblicher, dass es sich dabei um getrennte Anlagen handelt. Diese sind nicht in den Abbildungen dargestellt, sie können jedoch leicht durch Fachleute bereitgestellt werden. Eine Wärmeintegration kann erfolgen, beispielsweise durch Verwendung von Reaktionswärme des Epoxidierungsprozesses zum Erhitzen von Komponenten des Zustroms oder für andere Heizzwecke.

[0039] Üblicherweise sind die Epoxidierungskatalysatoren unter den Bedingungen der Epoxidierungsreaktion Feststoffkatalysatoren. Solch ein Epoxidierungskatalysator und andere Feststoffkatalysatoren, soweit angemessen, können mittels jeder bekannten Methode in den dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle eingebracht werden. Die Katalysatoren können ein Festbett in dem dafür vorgesehenen Abschnitt des Prozessmikrokanals bilden und/oder sie können eine Beschichtung an mindestens einem Teil der Wand des dafür vorgesehenen Abschnitts der Prozessmikrokanäle bilden. Dem Fachmann ist klar, dass die Beschichtung an der Innenseite der Wand der Prozessmikrokanäle zu liegen hat. Alternativ oder zusätzlich dazu können einer oder mehrere der Katalysatoren in Form einer Be-

schichtung auf Einsätzen vorliegen, die in den dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle gebracht werden können. Die Beschichtungen können durch jedes Abscheidungsverfahren hergestellt werden, wie etwa Waschbeschichtung oder Aufdampfen. In einigen Ausführungsformen kann der Epoxidierungskatalysator unter den Bedingungen der Epoxidierung kein Feststoffkatalysator sein, wobei in diesem Fall der Epoxidierungskatalysator dem dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle zusammen mit einer oder mehreren Komponenten des Zustroms der Epoxidierung zugeführt werden kann und zusammen mit dem Reaktionsgemisch der Epoxidierung durch die Prozessmikrokanäle fließen kann.

[0040] Der Epoxidierungskatalysator, der in dieser Erfindung verwendet werden kann, ist üblicherweise ein Katalysator, der ein oder mehrere Metalle der Gruppe 11 umfasst. Die Metalle der Gruppe 11 können ausgewählt sein aus der Gruppe bestehend aus Silber und Gold. Vorzugsweise umfasst das Metall der Gruppe 11 Silber. Insbesondere umfasst das Metall der Gruppe 11 Silber in einer Menge von mindestens 90 Gew.-%, noch spezieller mindestens 95 Gew.-%, beispielsweise mindestens 99 Gew.-% oder mindestens 99,5 Gew.-%, berechnet als das Gewicht an metallischem Silber bezogen auf das Gesamtgewicht des Metalls der Gruppe 11 als Metall. Üblicherweise umfasst der Epoxidierungskatalysator zusätzlich eine oder mehrere Promotorkomponenten. Noch üblicher umfasst der Epoxidierungskatalysator das Metall der Gruppe 11, eine oder mehrere Promotorkomponenten und zusätzlich eine oder mehrere Komponenten, die ein oder mehrere weitere Elemente umfassen. In einigen Ausführungsformen kann der Epoxidierungskatalysator ein Trägermaterial umfassen, auf dem das Metall der Gruppe 11, Promotorkomponenten und Komponenten, die ein oder mehr weitere Elemente umfassen, abgeschieden sein können. Geeignete Promotorkomponenten und geeignete Komponenten, die ein oder mehrere weitere Elemente umfassen, sowie geeignete Trägermaterialien können derart sein, wie sie im Folgenden beschrieben sind.

[0041] In einer Ausführungsform umfasst ein Verfahren des Einbringens eines Epoxidierungskatalysators in einen oder mehrere Prozessmikrokanäle eines Mikrokanalreaktors das Einleiten einer Dispersion des Epoxidierungskatalysators, der in einem im Wesentlichen nichtwässrigen Verdünnungsmittel dispergiert ist, in den einen oder die mehreren Prozessmikrokanäle, sowie das Entfernen des Verdünnungsmittels.

[0042] Das im Wesentlichen nichtwässrige Verdünnungsmittel kann eine Flüssigkeit sein, oder es kann gasförmig sein. Wie hier verwendet, bedeutet "im Wesentlichen nichtwässrig" bei flüssigen Verdün-

nungsmitteln, dass der Wassergehalt des Verdünnungsmittels höchstens 20 Gew.-%, insbesondere höchstens 10 Gew.-%, noch spezieller höchstens 5 Gew.-%, beispielsweise höchstens 2 Gew.-% oder sogar höchstens 1 Gew.-% oder höchstens 0,5 Gew.-% bezüglich des Gewichts des Verdünnungsmittels beträgt. Bei gasförmigen Verdünnungsmitteln bedeutet "im Wesentlichen nichtwässrig" insbesondere, dass sich das Verdünnungsmittel, wie es in den Prozessmikrokanälen vorliegt, oberhalb des Taupunkts befindet. Die weitgehende oder völlige Abwesenheit von flüssigem Wasser in dem Verdünnungsmittel ermöglicht dem Katalysator, während des Einbringens seine Integrität hinsichtlich einem oder mehreren aus seiner Morphologie, Zusammensetzung und Eigenschaften besser zu bewahren, als wenn ein wässriges Verdünnungsmittel eingesetzt wird. Geeignete im Wesentlichen nichtwässrige flüssige Verdünnungsmittel umfassen organische Verdünnungsmittel, beispielsweise Kohlenwasserstoffe, halogenierte Kohlenwasserstoffe, Alkohole, Ketone, Ether und Ester. Geeignete Alkohole umfassen beispielsweise Methanol und Ethanol. Die Menge an Katalysator, die in dem flüssigen Verdünnungsmittel vorliegen kann, kann im Bereich von 1 bis 50 Gew.-%, insbesondere von 2 bis 30 Gew.-% bezüglich des Gewichts der Summe von dem Katalysator und dem flüssigen Verdünnungsmittel liegen.

[0043] Geeignete im Wesentlichen nichtwässrige gasförmige Verdünnungsmittel umfassen beispielsweise Luft, Stickstoff, Argon und Kohlendioxid. Die Menge an Katalysator, die in dem gasförmigen Verdünnungsmittel vorliegen kann, kann im Bereich von 10 bis 500 g/l, insbesondere von 22 bis 300 g/l liegen, berechnet als das Gewicht an Katalysator bezüglich des Volumens des gasförmigen Verdünnungsmittels.

[0044] Der Epoxidierungskatalysator, der in der Dispersion enthalten ist, kann durch Zerkleinern eines herkömmlichen Formkatalysators und wahlweise nachfolgendes Sieben erhalten werden. Die Teilchengröße des Katalysators, der in der Dispersion enthalten ist, liegt üblicherweise so, dass der d_{50} -Wert im Bereich von 0,1 bis 100 μm , insbesondere von 0,5 bis 50 μm liegt. Wie hier verwendet, ist die durchschnittliche Teilchengröße, hier als " d_{50} -Wert" bezeichnet, der Wert, wie er mittels eines Horiba LA900-Teilchengrößenmessgeräts gemessen wird, und stellt einen Teilchendurchmesser dar, bei dem gleiche kugelförmige Äquivalenzvolumina an Teilchen, die größer sind, und an Teilchen, die kleiner sind als die angegebene durchschnittliche Teilchengröße, vorliegen. Das Verfahren der Messung umfasst das Dispergieren der Teilchen durch Ultraschallbehandlung, wodurch sekundäre Teilchen in primäre Teilchen aufbrechen. Diese Ultraschallbehandlung wird solange fortgesetzt, bis keine weitere Änderung des d_{50} -Werts festgestellt wird, was üblicherweise 5 Minuten Ultraschall erfordert, wenn das

Horiba LA900-Teilchengrößenmessgerät verwendet wird. Vorzugsweise umfasst der Epoxidierungskatalysator Teilchen, die eine Größe aufweisen, so dass sie einen Sieb passieren, dessen Durchgänge eine Weite von höchstens 50 %, insbesondere von höchstens 30 % der kleinsten Ausdehnung des Prozessmikrokanals aufweisen.

[0045] Herkömmliche Epoxidierungsformkatalysatoren umfassen üblicherweise Metall der Gruppe 11, eine oder mehrere Promotorkomponenten und wahlweise eine oder mehrere Komponenten, die ein weiteres Element umfassen, dispergiert auf einem Trägerformmaterial. Geeignete Trägermaterialien, geeignete Promotorkomponenten, geeignete Komponenten, die ein weiteres Element umfassen, und geeignete Katalysatorzusammensetzungen hinsichtlich der Mengen an Metall der Gruppe 11, Promotorkomponenten und Komponenten, die ein weiteres Element umfassen, können derart sein, wie sie im Folgenden beschrieben sind.

[0046] Alternativ und vorzugsweise wird der Epoxidierungskatalysator, der in der Dispersion enthalten ist, wie hier beschrieben erzeugt.

[0047] Die Dispersion des Katalysators kann so eingeleitet werden, dass ein Katalysatorfestbett in dem dafür vorgesehenen Abschnitt von einem oder mehreren der Prozessmikrokanäle gebildet wird, oder alternativ so, dass mindestens ein Teil der Wände dieser Abschnitte mit dem Katalysator bedeckt ist. Im ersten Fall kann vor dem Einleiten der Dispersion des Katalysators eine Stützvorrichtung, beispielsweise ein Sieb oder ein abgestuftes partikuläres Material, in den stromabwärts gelegenen Teil des dafür vorgesehenen Abschnitts des einen oder der mehreren der Prozessmikrokanäle gebracht worden sein, um den Katalysator zu tragen und zu verhindern, dass er weiter stromabwärts wandert. Im letzteren Fall kann der Katalysator an den Wänden der Prozessmikrokanäle vor oder nach dem Zusammenbau der Prozessmikrokanäle abgeschieden werden, oder der Katalysator kann auf Einsätzen vorliegen, die in den dafür vorgesehenen Abschnitt der Prozessmikrokanäle gebracht werden.

[0048] Die Gesamtmenge an Metall der Gruppe 11, die in dem ersten Abschnitt der Prozessmikrokanäle vorliegt, ist für die Erfindung nicht entscheidend und kann aus weiten Bereichen ausgewählt sein. Üblicherweise kann die Gesamtmenge an Metall der Gruppe 11 im Bereich von 10 bis 500 kg/m³, noch üblicher von 50 bis 400 kg/m³, insbesondere von 100 bis 300 kg/m³ Reaktorvolumen liegen, wobei das Reaktorvolumen das Gesamtvolumen ist, das durch die Querschnittsfläche und die Gesamtlänge der Teile der Prozessmikrokanäle definiert ist, die durch den Epoxidierungskatalysator belegt sind, durch Vorliegen eines Festbetts und/oder durch das Vorliegen

des Epoxidierungskatalysators an der Wand. Um Zweifel zu vermeiden: das so definierte Reaktorvolumen umfasst nicht Teile des Prozessmikrokanals, die keinen Epoxidierungskatalysator umfassen. In Ausführungsformen der Erfindung, in denen der Zustrom das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von mindestens 50 Mol-% umfasst, kann die Gesamtmenge an Metall der Gruppe 11 im Bereich von 5 bis 250 kg/m³, noch üblicher von 20 bis 200 kg/m³, insbesondere von 50 bis 150 kg/m³ Reaktorvolumen, wie zuvor definiert, liegen.

[0049] In einer Ausführungsform stellt die Erfindung ein Verfahren der Herstellung eines partikulären Epoxidierungskatalysators bereit, wobei das Verfahren das Abscheiden von Metall der Gruppe 11 und einer oder mehrerer Promotorkomponenten auf einem partikulären Trägermaterial umfasst, das eine Porengrößenverteilung aufweist, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm mindestens 70 % des Gesamtporenvolumens darstellen.

[0050] Die Trägermaterialien zur Verwendung in dieser Erfindung können natürliche oder künstlich erzeugte anorganische Materialien sein und sie können feuerfeste Materialien, Siliziumcarbid, Tone, Zeolithe, Kohle und Erdalkalimetallcarbonate, beispielsweise Calciumcarbonat, umfassen. Feuerfeste Materialien wie etwa Aluminiumoxid, Magnesiumoxid, Zirkoniumoxid und Siliziumoxid werden bevorzugt. Das am meisten bevorzugte Material ist α -Aluminiumoxid. Üblicherweise umfasst das Trägermaterial mindestens 85 Gew.-%, noch üblicher mindestens 90 Gew.-%, insbesondere mindestens 95 Gew.-% α -Aluminiumoxid, häufig bis zu 99,9 Gew.-% α -Aluminiumoxid bezüglich des Gewichts des Trägers. Andere Komponenten des α -Aluminiumoxids können beispielsweise Siliziumoxid, Alkalimetall-Komponenten, beispielsweise Natrium- und/oder Kaliumkomponenten, und/oder Erdalkalimetall-Komponenten, beispielsweise Calcium- und/oder Magnesiumkomponenten, umfassen.

[0051] Die Oberfläche des Trägermaterials kann in geeigneter Weise mindestens 0,1 m²/g, vorzugsweise mindestens 0,3 m²/g, weiter bevorzugt mindestens 0,5 m²/g, und insbesondere mindestens 0,6 m²/g bezüglich des Gewichts des Trägers betragen; und die Oberfläche kann in geeigneter Weise höchstens 10 m²/g, vorzugsweise höchstens 5 m²/g und insbesondere höchstens 3 m²/g bezüglich des Gewichts des Trägers betragen. Die "Oberfläche", wie hier verwendet, wird als die Oberfläche verstanden, wie sie nach dem B.E.T. (Brunauer, Emmett und Teller)-Verfahren bestimmt wird, wie es in Journal of the American Chemical Society 60 (1938), S. 309–316 beschrieben ist. Trägermaterialien mit großer Oberfläche, insbesondere wenn sie ein α -Aluminiumoxid sind, das wahlweise zusätzlich Siliziumoxid, Alkalimetall- und/oder Erdalkalimetall-Komponenten um-

fasst, sorgen für eine verbesserte Leistungsfähigkeit und Betriebsstabilität.

[0052] Die Wasserabsorption des Trägermaterials liegt üblicherweise im Bereich von 0,2 bis 0,8 g/g, vorzugsweise im Bereich von 0,3 bis 0,7 g/g. Eine höhere Wasserabsorption kann von Vorteil sein angesichts einer effizienteren Abscheidung von Metall der Gruppe 11, Promotorkomponenten und Komponenten, die ein oder mehrere Elemente umfassen. Wie hier verwendet, ist die Wasserabsorption der Wert, der in Übereinstimmung mit ASTM C20 gemessen wird, und die Wasserabsorption wird als das Gewicht des Wassers, das in den Poren des Trägers absorbiert werden kann, bezüglich des Gewichts des Trägers ausgedrückt.

[0053] Das partikuläre Trägermaterial kann eine Porengrößenverteilung aufweisen, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm mindestens 70 % des Gesamtporenvolumens darstellen. Solch eine relativ enge Porengrößenverteilung kann zu einem oder mehreren aus Aktivität, Selektivität und Langlebigkeit des Katalysators beitragen. Die Langlebigkeit kann bezüglich des Aufrechterhaltens der Katalysatoraktivität und/oder des Aufrechterhaltens der Selektivität bestehen. Wie hier verwendet, sind die Porengrößenverteilung und die Porenvolumina Größen, die durch Eindringen von Quecksilber bei einem Druck von $3,0 \times 10^8$ Pa unter Verwendung eines Micromeretics Autopore 9200-Modells gemessen werden (Kontaktwinkel 130°, Quecksilber mit einer Oberflächenspannung von 0,473 N/m und mit einer Korrektur für die Kompression des Quecksilbers).

[0054] Vorzugsweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass die Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm mehr als 75 %, insbesondere mehr als 80 %, weiter bevorzugt mehr als 85 %, am meisten bevorzugt mehr als 90 % des Gesamtporenvolumens darstellen. Häufig ist die Porengrößenverteilung derart, dass die Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm weniger als 99,9 %, noch häufiger weniger als 99 % des Gesamtporenvolumens darstellen.

[0055] Vorzugsweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass die Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,3 bis 10 µm mehr als 75 %, insbesondere mehr als 80 %, weiter bevorzugt mehr als 85 %, am meisten bevorzugt mehr als 90 %, insbesondere bis zu 100 % des Porenvolumens darstellen, das in den Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,2 bis 10 µm enthalten ist.

[0056] Üblicherweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass Poren mit einem Durchmesser von weniger als 0,2 µm weniger als 10 %, insbesondere weniger als 5 % des Gesamtporenvolumens darstellen.

Häufig stellen die Poren mit einem Durchmesser von weniger als 0,2 µm mehr als 0,1 %, noch häufiger mehr als 0,5 % des Gesamtporenvolumens dar.

[0057] Üblicherweise ist die Porengrößenverteilung derart, dass Poren mit einem Durchmesser von mehr als 10 µm weniger als 20 %, insbesondere weniger als 10 %, noch spezieller weniger als 5 % des Gesamtporenvolumens darstellen. Häufig stellen die Poren mit einem Durchmesser von mehr als 10 µm mehr als 0,1 %, insbesondere mehr als 0,5 % des Gesamtporenvolumens dar.

[0058] Der Epoxidierungskatalysator, der ein oder mehrere Metalle der Gruppe 11 umfasst, die auf einem Trägermaterial dispergiert sind, zeigt eine nennenswerte katalytische Aktivität, wenn der Gehalt an Metall der Gruppe 11 mindestens 10 g/kg bezüglich des Gewichts des Katalysators beträgt. Vorzugsweise umfasst der Katalysator das Metall der Gruppe 11 in einer Menge von 50 bis 500 g/kg, weiter bevorzugt von 100 bis 400 g/kg.

[0059] Die Promotorkomponente kann ein oder mehrere Elemente umfassen, die ausgewählt sind aus Rhenium, Wolfram, Molybdän, Chrom und deren Gemischen. Vorzugsweise umfasst die Promotorkomponente als eines ihrer Elemente Rhenium.

[0060] Die Promotorkomponente kann üblicherweise im Epoxidierungskatalysator in einer Menge von mindestens 0,05 mmol/kg, noch üblicher von mindestens 0,5 mmol/kg, und vorzugsweise von mindestens 1 mmol/kg, berechnet als die Gesamtmenge des Elements (das heißt Rhenium, Wolfram, Molybdän und/oder Chrom) bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Die Promotorkomponente kann in einer Menge von höchstens 250 mmol/kg, vorzugsweise von höchstens 50 mmol/kg, weiter bevorzugt von höchstens 25 mmol/kg, berechnet als die Gesamtmenge des Elements bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Die Form, in der die Promotorkomponente abgeschieden werden kann, ist für die Erfindung nicht entscheidend. Beispielsweise kann die Promotorkomponente in geeigneter Weise als ein Oxid oder als ein Oxyanion, beispielsweise als ein Rhenat, Perrhenat oder Wolframat, in Form von Salz oder Säure, bereitgestellt werden.

[0061] Wenn der Epoxidierungskatalysator eine Rhenium enthaltende Promotorkomponente umfasst, kann das Rhenium üblicherweise in einer Menge von mindestens 0,5 mmol/kg, noch üblicher von mindestens 2,5 mmol/kg, und vorzugsweise von mindestens 5 mmol/kg, insbesondere von mindestens 7,5 mmol/kg, berechnet als die Menge des Elements bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Rhenium liegt üblicherweise in einer Menge von höchstens 25 mmol/kg, vorzugsweise von

höchstens 15 mmol/kg, weiter bevorzugt von höchstens 10 mmol/kg, insbesondere von höchstens 7,5 mmol/kg auf derselben Grundlage vor.

[0062] Wenn der Epoxidierungskatalysator eine Rhenium enthaltende Promotorkomponente umfasst, kann der Katalysator weiterhin vorzugsweise einen Rhenium-Copromotor als weitere Komponente umfassen, die auf dem Träger abgeschieden ist. In geeigneter Weise kann der Rhenium-Copromotor ausgewählt sein aus Komponenten, die ein Element umfassen, das ausgewählt ist aus Wolfram, Chrom, Molybdän, Schwefel, Phosphor, Bor und deren Gemischen. Vorzugsweise ist der Rhenium-Copromotor ausgewählt aus Komponenten, die Wolfram, Chrom, Molybdän, Schwefel und deren Gemische umfassen. Es wird insbesondere bevorzugt, dass der Rhenium-Copromotor als ein Element Wolfram umfasst.

[0063] Der Rhenium-Copromotor kann üblicherweise in einer Gesamtmenge von mindestens 0,05 mmol/kg, noch üblicher von mindestens 0,5 mmol/kg und vorzugsweise von mindestens 2,5 mmol/kg, berechnet als das Element (d.h. die Summe von Wolfram, Chrom, Molybdän, Schwefel, Phosphor und/oder Bor) bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vorliegen. Der Rhenium-Copromotor kann in einer Gesamtmenge von höchstens 200 mmol/kg, vorzugsweise von höchstens 50 mmol/kg, weiter bevorzugt von höchstens 25 mmol/kg auf derselben Basis vorliegen. Die Form, in der der Rhenium-Copromotor abgeschieden werden kann, ist für die Erfindung nicht entscheidend. Beispielsweise kann er in geeigneter Weise als ein Oxid oder als ein Oxyanion, beispielsweise als ein Sulfat, Borat oder Molybdat, in Form von Salz oder Säure, bereitgestellt werden.

[0064] Der Epoxidierungskatalysator umfasst vorzugsweise Metall der Gruppe 11, die Promotorkomponente und eine Komponente, die ein weiteres Element umfasst. In Frage kommende weitere Elemente können ausgewählt sein aus der Gruppe aus Stickstoff, Fluor, Alkalimetallen, Erdalkalimetallen, Titan, Hafnium, Zirkonium, Vanadium, Thallium, Thorium, Tantal, Niobium, Gallium und Germanium sowie deren Gemischen. Vorzugsweise sind die Alkalimetalle ausgewählt aus Lithium, Kalium, Rubidium und Cäsium. Am meisten bevorzugt ist das Alkalimetall Lithium, Kalium und/oder Cäsium. Vorzugsweise sind die Erdalkalimetalle ausgewählt aus Calcium und Barium. Üblicherweise liegt das weitere Element im Epoxidierungskatalysator in einer Gesamtmenge von 0,05 bis 2500 mmol/kg, noch üblicher von 0,25 bis 500 mmol/kg, berechnet als das Element bezüglich des Gewichts des Metalls der Gruppe 11, vor. Die weiteren Elemente können in jeglicher Form bereitgestellt werden. Beispielsweise eignen sich Salze eines Alkalimetalls oder eines Erdalkalimetalls.

[0065] Wie hier verwendet, gilt als Menge an Alkalimetall, die in dem Epoxidierungskatalysator vorliegt, die Menge, die aus dem Epoxidierungskatalysator mit entionisiertem Wasser bei 100 °C extrahiert werden kann. Das Extraktionsverfahren geht mit dem dreimaligen Extrahieren einer 10 g-Probe des Katalysators durch deren Erhitzen in 20 ml-Portionen entionisiertem Wasser für 5 Minuten bei 100 °C und dem Bestimmen der relevanten Metalle in den vereinten Extrakten unter Verwendung eines bekannten Verfahrens, beispielsweise der Atomabsorptionsspektroskopie, einher.

[0066] Wie hier verwendet, gilt als Menge an Erdalkalimetall, die in dem Epoxidierungskatalysator vorliegt, die Menge, die aus dem Epoxidierungskatalysator mit 10 Gew.-% Salpetersäure in entionisiertem Wasser bei 100 °C extrahiert werden kann. Das Extraktionsverfahren geht mit dem Extrahieren einer 10 g-Probe des Katalysators durch deren Kochen mit einer 100 ml-Portion 10 Gew.-% Salpetersäure für 30 Minuten (1 atm, d.h. 101,3 kPa) und dem Bestimmen der relevanten Metalle in den vereinten Extrakten unter Verwendung eines bekannten Verfahrens, beispielsweise der Atomabsorptionsspektroskopie, einher. Dabei sei auf US-A-5801259 verwiesen, deren Inhalt hier einbezogen wird.

[0067] Verfahren zur Abscheidung von Metall der Gruppe 11, der einen oder mehreren Promotorkomponenten und der einen oder mehreren Komponenten, die ein weiteres Element umfassen, auf einem Trägermaterial sind der Fachwelt bekannt und solche Verfahren können bei der Ausführung dieser Erfindung angewendet werden. Dabei kann auf US-A-5380697, US-A-5739075, EP-A-266015 und US-B-6368998 verwiesen werden, deren Inhalt hier einbezogen wird. Die Verfahren umfassen in geeigneter Weise das Imprägnieren der partikulären Trägermaterialien mit einem flüssigen Gemisch, das kationische Gruppe 11-Metall-Amin-Komplexe und ein Reduktionsmittel umfasst.

[0068] Die Erfindung betrifft Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins, die die Reaktion eines Zustroms, der das Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators wie hier zuvor beschrieben, der in einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors enthalten ist, umfassen.

[0069] Das Olefin zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung kann ein aromatisches Olefin, beispielsweise Styrol, oder ein Diolefin, ob konjugiert oder nicht, beispielsweise 1,9-Decadien oder 1,3-Butadien sein. Ein Gemisch von Olefinen kann verwendet werden. Üblicherweise ist das Olefin ein Monoolefin, beispielsweise 2-Buten oder Isobuten. Vorzugsweise ist das Olefin ein Mono- α -olefin, beispielsweise 1-Buten oder Propylen. Das am meisten bevorzugte

Olefin ist Ethylen.

[0070] Der Zustrom für das Epoxidierungsverfahren dieser Erfindung umfasst das Olefin und Sauerstoff. Wie hier verwendet, wird der Zustrom zu einem Prozess so verstanden, dass er die Summe an Edukten und anderen Komponenten darstellt, die dem Abschnitt der Prozessmikrokanäle zugeführt wird, in dem der fragliche Prozess stattfindet. Einige der Komponenten des Zustroms können dem Epoxidierungsprozess durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** von Prozessmikrokanälen **210** zugeführt werden. Einige der Komponenten des Zustroms können durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** zugeführt werden. Beispielsweise kann eine olefinreiche Komponente des Zustroms durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle zugeführt werden, und eine sauerstoffreiche Komponente des Zustroms kann durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Alternativ kann die sauerstoffreiche Komponente des Zustroms durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle zugeführt werden, und die olefinreiche Komponente des Zustroms kann durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Gewisse Komponenten des Zustroms können durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle und durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Beispielsweise kann das Olefin teilweise durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle und teilweise durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden. Als ein weiteres Beispiel kann Sauerstoff teilweise durch die Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle und teilweise durch den ersten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren ersten Öffnungen zugeführt werden.

[0071] Ein organisches Halogenid kann als Reaktionsmodifizierer zur Erhöhung der Selektivität im Zustrom vorliegen, wodurch die unerwünschte Oxidation des Olefins oder des Olefinoxids zu Kohlendioxid und Wasser relativ zur erwünschten Bildung des Olefinoxids unterdrückt wird. Das organische Halogenid kann als Flüssigkeit oder als Dampf zugeführt werden. Das organische Halogenid kann getrennt oder zusammen mit anderen Komponenten des Zustroms durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** der Prozessmikrokanäle **210** oder durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** zugeführt werden. Ein Aspekt der Zuführung des organischen Halogenids durch eine Mehrzahl erster Öffnungen besteht darin, dass dies zu einem Anstieg des Niveaus der Menge an organischem Halogenid entlang dem Epoxidierungskatalysator führen kann, wodurch die Aktivität und/oder

Selektivität des Epoxidierungskatalysators manipuliert werden kann, in Übereinstimmung mit der Lehre von EP-A-352850, auf die hier Bezug genommen und deren Inhalt hier einbezogen wird. Beispielsweise kann, wenn ein Rhenium enthaltender Epoxidierungskatalysator verwendet wird, die Aktivität des Epoxidierungskatalysators entlang dem Epoxidierungskatalysator erhöht werden. Dies kann eine bessere Nutzung des Epoxidierungskatalysators in Bereichen ermöglichen, in denen Sauerstoff oder das Olefin verarmt ist relativ zu den Bereichen, in denen Sauerstoff und das Olefin eingespeist werden.

[0072] Organische Halogenide sind insbesondere organische Bromide und noch spezieller organische Chloride. Bevorzugte organische Halogenide sind Chlorkohlenwasserstoffe oder Bromkohlenwasserstoffe. Es wird weiter bevorzugt, dass sie ausgewählt sind aus der Gruppe aus Methylchlorid, Ethylchlorid, Ethylendichlorid, Ethylendibromid, Vinylchlorid oder einem Gemisch aus diesen. Am meisten bevorzugt sind Ethylchlorid und Ethylendichlorid.

[0073] Zusätzlich zu einem organischen Halogenid kann eine organische oder anorganische Stickstoffverbindung als Reaktionsmodifizierer eingesetzt werden, dies wird jedoch im Allgemeinen weniger bevorzugt. Unter den Betriebsbedingungen des Epoxidierungsprozesses werden die Stickstoff enthaltenden Reaktionsmodifizierer als Vorstufen von Nitraten oder Nitriten betrachtet (vgl. z.B. EP-A-3642 und US-A-4822900, auf die hier Bezug genommen und deren Inhalt hier einbezogen wird). Organische Stickstoffverbindungen und anorganische Stickstoffverbindungen können eingesetzt werden.

[0074] Geeignete organische Stickstoffverbindungen sind Nitroverbindungen, Nitrosoverbindungen, Amine, Nitrate und Nitrite, beispielsweise Nitromethan, 1-Nitropropan oder 2-Nitropropan. Geeignete anorganische Stickstoffverbindungen sind beispielsweise Stickoxide, Hydrazin, Hydroxylamin oder Ammoniak. Geeignete Stickoxide fallen unter die allgemeine Formel NO_x , wobei x im Bereich von 1 bis 2 liegt, und umfassen zum Beispiel NO , N_2O_3 und N_2O_4 .

[0075] Die organischen Halogenide und die organischen oder anorganischen Stickstoffverbindungen wirken im Allgemeinen als Reaktionsmodifizierer, wenn sie in geringer Gesamtkonzentration eingesetzt werden, beispielsweise von bis zu 0,01 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms. Es wird bevorzugt, dass das organische Halogenid in einer Konzentration von höchstens 50×10^{-4} Mol-%, insbesondere von höchstens 20×10^{-4} Mol-%, noch spezieller von höchstens 15×10^{-4} Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms vorliegt, und vorzugsweise von mindestens $0,2 \times 10^{-4}$ Mol-%, insbesondere von mindestens $0,5 \times 10^{-4}$ Mol-%, noch spezieller von mindestens 1×10^{-4} Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms.

[0076] Zusätzlich zu dem Olefin, Sauerstoff und dem organischen Halogenid kann der Zustrom außerdem eine oder mehrere weitere Komponenten umfassen, beispielsweise gesättigte Kohlenwasserstoffe als Ballastgas, Inertgase und Kohlendioxid. Die eine oder mehreren weiteren Komponenten können getrennt oder zusammen mit anderen Komponenten des Zustroms durch eine Öffnung am stromaufwärts gelegenen Ende **220** der Prozessmikrokanäle **210** oder durch einen ersten Zufuhrkanal **260** und eine oder mehrere erste Öffnungen **280** zugeführt werden.

[0077] Die Olefinkonzentration im Zustrom kann aus einem weiten Bereich ausgewählt werden. Üblicherweise wird die Olefinkonzentration im Zustrom höchstens 80 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms betragen. Vorzugsweise wird sie im Bereich von 0,5 bis 70 Mol-%, insbesondere von 1 bis 60 Mol-% auf derselben Basis liegen.

[0078] Die Sauerstoffkonzentration im Zustrom kann aus einem weiten Bereich ausgewählt werden. Üblicherweise wird die eingesetzte Konzentration an Sauerstoff im Bereich von 1 bis 15 Mol-%, noch üblicher von 2 bis 12 Mol-% des gesamten Zustroms liegen.

[0079] Die gesättigten Kohlenwasserstoffe umfassen beispielsweise Methan und Ethan. Solange hier nichts anderes angegeben ist, können gesättigte Kohlenwasserstoffe in einer Menge von bis zu 80 Mol-%, insbesondere von bis zu 75 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms vorliegen, und häufig liegen sie in einer Menge von mindestens 30 Mol-%, häufiger noch von mindestens 40 Mol-% auf derselben Basis vor.

[0080] Kohlendioxid kann im Zustrom vorhanden sein, da es als Ergebnis einer unerwünschten Oxidation des Olefins und/oder des Olefinoxids gebildet wird, und es kann dementsprechend in den Komponenten des Zustroms vorhanden sein, die in einem Rückführungsstrom vorkommen. Kohlendioxid hat im Allgemeinen eine ungünstige Wirkung auf die Katalysatoraktivität. Die Menge an Kohlendioxid liegt zweckmäßig beispielsweise unterhalb 2 Mol-%, vorzugsweise unterhalb 1 Mol-% oder im Bereich von 0,2 bis 1 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms.

[0081] Die Inertgase umfassen beispielsweise Stickstoff oder Argon. Solange hier nichts anderes angegeben ist, können die Inertgase im Zustrom in einer Konzentration von 30 bis 90 Mol-%, üblicherweise von 40 bis 80 Mol-% vorliegen.

[0082] Das Epoxidierungsverfahren dieser Erfindung kann auf Luft oder auf Sauerstoff basieren, siehe "Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology", 3. Aufl., Band 9, 1980, S. 445-447. In dem auf Luft basierenden Verfahren wird Luft oder Luft, die

mit Sauerstoff angereichert ist, als Quelle des Oxidationsmittels eingesetzt, während in den auf Sauerstoff basierenden Verfahren Sauerstoff hoher Reinheit (mindestens 95 Mol-%) als Quelle des Oxidationsmittels eingesetzt wird. Zur Zeit basieren die meisten Epoxidierungsanlagen auf Sauerstoff und dies wird bei der Ausführung gewisser Ausführungsformen dieser Erfindung bevorzugt. Es ist ein Vorteil anderer Ausführungsformen dieser Erfindung, dass Luft als Quelle des Oxidationsmittels dem Prozess zugeführt werden kann.

[0083] Das Epoxidierungsverfahren kann unter Verwendung von Reaktionstemperaturen durchgeführt werden, die aus einem weiten Bereich ausgewählt sind. Vorzugsweise liegt die Reaktionstemperatur im Bereich von 150 bis 340 °C, weiter bevorzugt im Bereich von 180 bis 325 °C. Üblicherweise kann die Wärmetransferflüssigkeit, die in den ersten Wärmeaustauschkanälen vorliegt, eine Temperatur haben, die 0,5 bis 10 °C geringer ist als die Reaktionstemperatur.

[0084] Das Epoxidierungsverfahren wird vorzugsweise bei einem Druck im Bereich von 1000 bis 3500 kPa durchgeführt, gemessen am stromaufwärts gelegenen Ende **220** der Prozessmikrokanäle **210**.

[0085] Das Olefinoxid, das den Abschnitt der Prozessmikrokanäle, der den Epoxidierungskatalysator enthält, verlässt, ist in einem Reaktionsgemisch enthalten, das außerdem nicht reagiertes Olefin, nicht reagierten Sauerstoff und andere Reaktionsprodukte wie etwa Kohlendioxid umfasst. Üblicherweise liegt der Gehalt an Olefinoxid im Reaktionsprodukt im Allgemeinen im Bereich von 1 bis 25 Mol-%, noch üblicher von 2 bis 20 Mol-%, insbesondere von 2 bis 5 Mol-%.

[0086] In einer Ausführungsform umfasst das Epoxidierungsverfahren die Reaktion eines Zustroms, der das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von mindestens 50 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms umfasst. In dieser Ausführungsform können das Olefin und Sauerstoff im Zustrom in einer Gesamtmenge von mindestens 80 Mol-%, insbesondere von mindestens 90 Mol-%, noch spezieller von mindestens 95 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms und üblicherweise bis zu 99,5 Mol-%, insbesondere bis zu 99 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms vorliegen. Das molare Verhältnis von Olefin zu Sauerstoff kann im Bereich von 3 bis 100, insbesondere von 4 bis 50, noch spezieller von 5 bis 20 liegen. Die gesättigten Kohlenwasserstoffe und die Inertgase können im Wesentlichen nicht vorhanden sein. Wie hier verwendet, bedeutet "im Wesentlichen nicht vorhanden" in diesem Zusammenhang, dass die Menge an gesättigten Kohlenwasserstoffen im Zustrom höchstens 10 Mol-%, insbesondere höchstens 5 Mol-%, noch spezieller höchstens 2 Mol-% be-

züglich des gesamten Zustroms beträgt, und dass die Menge an Inertgasen im Zustrom höchstens 10 Mol-%, insbesondere höchstens 5 Mol-%, noch spezieller höchstens 2 Mol-% bezüglich des gesamten Zustroms beträgt. In dieser speziellen Ausführungsform können solche Prozessbedingungen angewendet werden, dass die Menge an Olefinoxid im Reaktionsgemisch der Epoxidierung im Bereich von 4 bis 15 Mol-%, insbesondere von 5 bis 12 Mol-%, beispielsweise von 6 bis 10 Mol-% liegt. Vorzugsweise wird das Reaktionsgemisch der Epoxidierung, das das Olefinoxid umfasst, wie hier beschrieben abgeschreckt.

[0087] Bei der Ausführung dieser Erfindung wird das Reaktionsprodukt, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst, abgeschreckt, üblicherweise durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid. Üblicherweise kann die Temperatur des Reaktionsprodukts, das das Olefinoxid umfasst, auf eine Temperatur von höchstens 250 °C, noch üblicher von höchstens 225 °C, vorzugsweise in den Bereich von 20 bis 200 °C, weiter bevorzugt von 50 bis 190 °C, insbesondere von 80 bis 180 °C verringert werden. Das Abschrecken kann eine Verringerung der Temperatur um einen Betrag im Bereich von 50 bis 200 °C, insbesondere von 70 bis 160 °C bewirken. Das Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins gemäß dieser Erfindung umfasst vorzugsweise

- die Reaktion eines Zustroms, der das Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, der in einem ersten Abschnitt **240** von einem oder mehreren Prozessmikrokanälen **210** eines Mikrokanalreaktors enthalten ist, um dadurch ein erstes Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst, wie hier zuvor beschrieben,
- das Abschrecken des ersten Gemisches in einem Zwischenabschnitt **440** des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle **210**, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt **240** liegt, durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid auf die gleiche Art und Weise, wie hier zuvor beschrieben, und
- die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches in einem zweiten Abschnitt **340** des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle **210**, der stromabwärts von dem Zwischenabschnitt **440** liegt, um ein zweites Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst.

[0088] Die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst, um das zweite Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst, ist üblicherweise mit der Reaktion von mindestens einem Teil des Olefinoxids, das in dem ersten Gemisch vorliegt, mit mindestens einem Teil des Kohlendioxids, das in dem ersten Gemisch vorliegt, verbunden, um das 1,2-Carbonat zu bilden. Üblicherweise ist das Koh-

lendioxid, das in dem ersten Gemisch vorliegt, Kohlendioxid, welches bei der Epoxidierungsreaktion mitgebildet wurde. Die molare Menge an Kohlendioxid, die in dem ersten Gemisch vorliegt, kann im Bereich von 0,01 bis 1 Mol, insbesondere von 0,02 bis 0,8 Mol, noch spezieller von 0,05 bis 0,6 Mol-% pro Mol des Olefinoxids, das in dem ersten Gemisch vorliegt, liegen. Üblicherweise wird mindestens 50 Mol-%, insbesondere mindestens 80 Mol-%, noch spezieller mindestens 90 Mol-%, des Kohlendioxids umgesetzt, beispielsweise mindestens 98 %, und bei der Ausführung dieser Erfindung wird häufig höchstens 99,9 Mol-% umgesetzt. Zusätzliches Kohlendioxid kann dem zweiten Abschnitt zugeführt werden, was jedoch häufig keine bevorzugte Ausführungsform darstellt.

[0089] Geeignete Katalysatoren für die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid können beispielsweise Harze sein, die quartäre Phosphoniumhalogenid-Gruppen oder quartäre Ammoniumhalogenid-Gruppen auf einer Styrol/Divinylbenzol-Copolymermatrix umfassen, wobei das Halogenid insbesondere Chlorid oder Bromid sein kann. Solche Katalysatoren für diese Umsetzung sind aus T. Nishikubo, A. Kameyama, J. Yamashita und M. Tomoi, Journal of Polymer Science, Teil A. Polymer Chemist, 31, 939–947 (1993) bekannt, auf das hier Bezug genommen und dessen Inhalt hier einbezogen wird. Geeignere Katalysatoren umfassen ein Metallsalz, das in einem festen Träger immobilisiert ist, wobei das Metallsalz ein Kation eines Metalls umfassen kann, das ausgewählt ist aus jenen der dritten Periode und Gruppe 2, der vierten Periode und den Gruppen 2 und 4–12, der fünften Periode und den Gruppen 2, 4–7, 12 und 14, und der sechsten Periode und den Gruppen 2 und 4–6 des Periodensystems der Elemente, und wobei der Träger ein quartäres Ammonium-, quartäres Phosphonium-, quartäres Arsonium-, quartäres Stibonium- oder ein quartäres Sulfonium-Kation enthält, wobei das Kation vom Gerüst des Trägers durch eine Spacer-Gruppe der allgemeinen Formel $-(CH_2-O)_m-(CN_2)_n-$ getrennt sein kann, wobei m und n ganze Zahlen sind mit beispielsweise n höchstens 10, zum Beispiel 1, 2, 3 oder 6, wenn m 0 ist, und n von 1 bis 8, zum Beispiel 2 oder 4 ist, wenn m 1 ist. Das Metallsalz kann insbesondere ausgewählt sein aus den Halogeniden, Acetaten, Lauraten, Nitraten und Sulfaten von einem oder mehreren, die ausgewählt sind aus Magnesium, Calcium, Zink, Kobalt, Nickel, Mangan, Kupfer und Zinn, beispielsweise Zinkbromid, Zinkiodid, Zinkacetat oder Kobaltbromid. Der feste Träger zum Immobilisieren des Metallsalzes kann beispielsweise Siliziumoxid, ein Silizium-Aluminium-Oxid oder ein Zeolith sein, oder es kann ein Harz mit einem Gerüst aus Polystyrol/Divinylbenzol-Copolymer oder einem auf Siliziumoxid basierenden, polymeren Gerüst, wie etwa in Polysiloxanen, oder ein Harz, in das quartäre Vinylpyridin-Monomere eingefügt sind, sein. Andere geeignete Katalysatoren für die Umsetzung des Olefinoxids

mit Kohlendioxid sind beispielsweise quartäre Phosphoniumhalogenide, quartäre Ammoniumhalogenide und gewisse Metallhalogenide. Ein Beispiel ist Methyltributylphosphoniumiodid. Noch geeigneter sind Katalysatoren, die eine organische Base umfassen, die mit einem Halogenwasserstoff neutralisiert ist, wobei die organische Base einen pK_a -Wert größer als 8 hat und eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält. Der Halogenwasserstoff kann Bromwasserstoff oder Iodwasserstoff sein. Beispiele solcher organischen Basen, die einen pK_a -Wert größer als 8 haben, sind 2-tert-Butylimino-2-diethylamino-1,3-dimethylperhydro-1,3,2-diazaphosphorin, als solches oder auf Polystyrol, 1,1,3,3-Tetramethylguanidin und Triethanolamin. In diesem Zusammenhang bedeutet der Ausdruck "neutralisiert", dass die organische Base und der Halogenwasserstoff in den jeweiligen Mengen miteinander reagiert haben, so dass eine wässrige Lösung des Reaktionsprodukts im Wesentlichen neutral ist, d.h. einen pH-Wert zwischen 6 und 8 hat.

[0090] Ein anderer geeigneter Katalysator für die Umsetzung des Olefinoxids mit Kohlendioxid umfasst 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, einer organischen Base und 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, des Salzes der organischen Base und eines Halogenwasserstoffs, wobei die organische Base eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält, und einen pK_a -Wert hat, der hoch genug ist, dass sie in der Lage ist, Kohlendioxid unter den Reaktionsbedingungen zu binden. Der Halogenwasserstoff kann Bromwasserstoff oder Iodwasserstoff sein. Beispiele solcher organischer Basen, die die Fähigkeit besitzen, Kohlendioxid zu binden, sind 2-tert-Butylimino-2-diethylamino-1,3-dimethylperhydro-1,3,2-diazaphosphorin, als solches oder auf Polystyrol, 1,1,3,3-Tetramethylguanidin und Triethanolamin. Ein beispielhafter Katalysator kann auf 1,1,3,3-Tetramethylguanidin, Iodwasserstoff und Molybdäntrioxid in einem molaren Verhältnis von etwa 6,6:4,71 1 basieren. Wenn diese Katalysatoren in Gegenwart von Wasser und Kohlendioxid verwendet werden, kann das gebildete 1,2-Carbonat zumindest teilweise in situ in das entsprechende 1,2-Glykol umgesetzt werden.

[0091] Der Katalysator kann, wenn er unter den Bedingungen der Reaktion als Feststoff vorliegt, in den zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle mittels bekannter Verfahren eingebracht werden, und anwendbare Verfahren umfassen beispielsweise das Füllen von mindestens einem Teil des zweiten Abschnitts, um ein Festbett zu bilden, oder das Bedecken von mindestens einem Teil der Wände des zweiten Abschnitts mit dem Katalysator,

beispielsweise durch Waschbeschichtung. Einige der Verfahren, die das Einbringen eines Epoxidierungskatalysators betreffen, wie hier zuvor dargelegt, können für diese Katalysatoren in einer analogen Weise anwendbar sein. Die Verwendung eines Katalysators, der unter den Bedingungen der Reaktion als Feststoff vorliegt, wird weniger bevorzugt. In Ausführungsformen, in denen der Katalysator unter den Bedingungen der Reaktion selbst als eine Flüssigkeit vorliegt, kann der Katalysator in den zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle durch den zweiten Zufuhrkanal und die eine oder mehreren zweiten Öffnungen zugeführt werden, in geeigneter Weise zusammen mit Zustrom, der Wasser, den Alkohol, Kohlendioxid und/oder das Amin umfasst. Wenn die Umsetzung eine thermische Umsetzung ist, kann die Temperatur im Bereich von 100 bis 300 °C, insbesondere von 150 bis 250 °C liegen. Wenn die Umsetzung eine katalytische Umsetzung ist, kann die Temperatur im Bereich von 30 bis 200 °C, insbesondere von 50 bis 150 °C liegen. Das molare Verhältnis der Summe von Wasser, dem Alkohol, Kohlendioxid und dem Amin zu dem Olefinoxid kann mehr als 10 betragen, beispielsweise höchstens 20, oder höchstens 30. Wie jedoch hier zuvor bereits beschrieben, ist es ein Vorteil dieser Erfindung, dass eine adäquate Regulierung der Temperatur erreicht werden kann, wenn das molare Verhältnis der Summe von Wasser, dem Alkohol, Kohlendioxid und dem Amin relativ gering gehalten wird, wenngleich die Selektivität für das gewünschte Produkt abnehmen kann. Das molare Verhältnis der Summe von Wasser, dem Alkohol, Kohlendioxid und dem Amin zu dem Olefinoxid kann höchstens 10, insbesondere im Bereich von 1 bis 8, noch spezieller von 1,1 bis 6, beispielsweise von 1,2 bis 4 liegen. Der Zustrom, der dem zweiten Abschnitt der Prozessmikrokanäle zugeführt wird, kann eine Gesamtmenge von dem Olefinoxid und Wasser, dem Alkohol, Kohlendioxid und dem Amin von mindestens 60 Gew.-%, insbesondere mindestens 80 Gew.-%, noch spezieller mindestens 90 Gew.-%, beispielsweise mindestens 95 Gew.-% bezüglich des Gesamtgewichts dieses Zustroms umfassen. Der Druck kann im Bereich von 500 bis 3500 kPa liegen, gemessen am zweiten Zufuhrkanal wie hier zuvor beschrieben. Die Reaktionsbedingungen können so gewählt werden, dass die Umsetzung des Olefinoxids mindestens 50 Mol-%, insbesondere mindestens 80 Mol-%, noch spezieller mindestens 90 Mol-%, beispielsweise mindestens 95 Mol-% beträgt. Geeignete Alkohole für die Umsetzung des Olefinoxids können Methanol, Ethanol, Propanol, Isopropanol, 1-Butanol und 2-Butanol sein. Methanol ist ein bevorzugter Alkohol. Gemische von Alkoholen und Gemische aus Wasser und einem oder mehreren Alkoholen können verwendet werden. Geeignete Amine für die Umsetzung des Olefinoxids zu Alkanolaminen können Ammoniak oder ein primäres Amin oder ein sekundäres Amin sein. Geeignete primäre Amine sind beispielsweise Methylamin, Ethylamin, 1-Propy-

lamin, 2-Propylamin und 1-Butylamin. Geeignete sekundäre Amine sind beispielsweise Dimethylamin, Diethylamin, Ethylmethylamin, Methyl(1-propyl)amin, Di(2-propyl)amin und Di(1-butyl)amin. Gemische von Alkoholen, Gemische von Aminen und Gemische aus Wasser und einem oder mehreren Alkoholen oder einem oder mehreren Aminen können verwendet werden.

[0092] Die Temperatur des Reaktionsgemisches der Epoxidierung, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst, kann reguliert werden bevor das Olefinoxid in den zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle gelangt, so dass das Olefinoxid und Kohlendioxid die gewünschte Temperatur für die Umsetzung zum 1,2-Carbonat annehmen können. So können der eine oder die mehreren Prozessmikrokanäle zusätzlich einen Zwischenabschnitt stromabwärts von dem ersten Abschnitt und stromaufwärts von dem zweiten Abschnitt umfassen, wobei dieser Zwischenabschnitt angepasst ist, die Temperatur des Olefinoxids zu regulieren. Insbesondere kann der Reaktor zusätzlich einen oder mehrere dritte Wärmeaustauschkanäle umfassen, die angepasst sind, Wärme mit dem Zwischenabschnitt der besagten Prozessmikrokanäle auszutauschen.

[0093] In Ausführungsformen, in denen das zweite Gemisch in Gasform gebildet wird, kann das Verfahren zusätzlich das Kondensieren von mindestens einem Teil des zweiten Gemisches, das das Olefinoxid und das 1,2-Carbonat umfasst, üblicherweise in einem dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle umfassen, wobei der dritte Abschnitt stromabwärts von dem zweiten Abschnitt liegt. Üblicherweise ist das Kondensieren von mindestens einem Teil des zweiten Gemisches mit der Entfernung von Wärme durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid verbunden. Solch ein Wärmeaustauschfluid kann üblicherweise in einem vierten Wärmeaustauschkanal vorliegen, wie hier zuvor beschrieben. Üblicherweise wird mindestens 50 Mol-%, insbesondere mindestens 80 Mol-%, noch spezieller mindestens 90 Mol-% der Summe aus dem Olefinoxid und dem 1,2-Carbonat, die in dem zweiten Gemisch vorliegen, kondensiert, beispielsweise mindestens 98 %, und bei der Ausführung dieser Erfindung wird häufig höchstens 99,9 Mol-% kondensiert. Vorzugsweise kann in Fällen, in denen das zweite Gemisch Wasser umfasst, das zumindest teilweise gasförmig ist, das Verfahren zusätzlich das Kondensieren von mindestens einem Teil dieses Wassers, das üblicherweise in dem zweiten Gemisch vorliegt, im dritten Abschnitt umfassen. Üblicherweise ist das Wasser, das in dem zweiten Gemisch vorliegt, falls vorhanden, Wasser, welches bei der Epoxidierungsreaktion mitgebildet wurde. Die molare Menge an Wasser, das in dem zweiten Gemisch vorliegt, kann im Bereich von 0,01 bis 1 Mol, insbesondere von 0,02 bis 0,8 Mol, noch spezieller von 0,05 bis 0,6 Mol-%

pro Mol der Gesamtmengen von dem Olefinoxid und dem 1,2-Carbonat, die in dem zweiten Gemisch vorliegen, liegen. Üblicherweise wird mindestens 50 Mol-%, insbesondere mindestens 80 Mol-%, noch spezieller mindestens 90 Mol-%, der Summe des Wassers, das in dem zweiten Abschnitt vorliegt, kondensiert, beispielsweise mindestens 98 Mol-%, und bei der Ausführung dieser Erfindung wird häufig höchstens 99,9 Mol-% kondensiert.

[0094] Das Olefinoxid und das 1,2-Carbonat können auf herkömmliche Art und Weise unter Verwendung herkömmlicher Verfahren und herkömmlicher Anlagen getrennt und verarbeitet werden oder auch nicht. Es ist jedoch anzuerkennen, dass die Ausführung dieser Erfindung ermöglicht, auf die Anwendung einer oder mehrerer der herkömmlichen Verfahren und/oder auf das Einbringen von mindestens einem Teil der herkömmlichen Anlagen zu verzichten und/oder zu ermöglichen, dass die herkömmlichen Anlagen in einem geringeren Umfang vorliegen. Ein Trennsystem kann für die Trennung des Olefinoxids von nicht umgesetztem Olefin, nicht umgesetztem Sauerstoff, Ballastgas und Kohlendioxid sorgen. Ein wässriges Extraktionsfluid wie etwa Wasser kann verwendet werden, um diese Komponenten zu trennen. Das angereicherte Extraktionsfluid, das das Olefinoxid enthält, kann zur Rückgewinnung des Olefinoxids weiterverarbeitet werden. Das hergestellte Olefinoxid kann aus dem angereicherten Extraktionsfluid beispielsweise durch Destillation oder Extraktion zurückgewonnen werden. Ein Gemisch, das nicht umgesetztes Olefin, nicht umgesetzten Sauerstoff, Ballastgas und Kohlendioxid umfasst und das arm an Olefinoxid ist, kann einer Extraktion unterzogen werden, um zumindest teilweise Kohlendioxid zu entfernen. Das erhaltene kohlendioxidarme Gemisch, kann wieder unter Druck gesetzt, getrocknet und als eine Komponente des Zustroms in das Epoxidierungsverfahren dieser Erfindung zurückgeführt werden.

[0095] Das Olefinoxid, das bei dem Epoxidierungsverfahren der Erfindung hergestellt wird, kann mittels herkömmlicher Verfahren in ein 1,2-Diol, einen 1,2-Diolether, ein 1,2-Carbonat oder ein Alkanolamin umgesetzt werden.

[0096] Die Umsetzung zum 1,2-Diol oder zum 1,2-Diolether kann beispielsweise die Reaktion des Ethylenoxids mit Wasser in einem thermischen Verfahren oder unter Verwendung eines Katalysators, der ein saurer Katalysator oder ein basischer Katalysator sein kann, umfassen. Beispielsweise kann zur Erzeugung von überwiegend 1,2-Diol und weniger 1,2-Diolether das Olefinoxid mit einem zehnfachen molaren Überschuss an Wasser in einer Reaktion in flüssiger Phase in Gegenwart eines Säurekatalysators, z.B. 0,5–1,0 Gew.-% Schwefelsäure, basierend auf dem gesamten Reaktionsgemisch, bei 50–70 °C und 100 kPa absolutem Druck, oder in einer Reaktion

in der Gasphase bei 130–240 °C und 2000–4000 kPa absolutem Druck, vorzugsweise in Abwesenheit eines Katalysators, zur Reaktion gebracht werden. Das Vorliegen einer solch großen Menge an Wasser kann die selektive Bildung des 1,2-Diols begünstigen und kann als eine Senke für die Abwärme der Reaktion dienen, was dazu beiträgt, die Reaktionstemperatur zu regulieren. Wenn der Anteil an Wasser gesenkt wird, steigt der Anteil an 1,2-Diolethern im Reaktionsgemisch. Die so hergestellten 1,2-Diolether können ein Diether, Triether, Tetraether oder ein höherer Ether sein. Andere 1,2-Diolether können durch Umsetzung des Olefinoxids mit einem Alkohol, insbesondere einem primären Alkohol wie etwa Methanol oder Ethanol, durch Ersetzen von wenigstens einem Teil des Wassers durch den Alkohol hergestellt werden.

[0097] Das Olefinoxid kann in das weitere 1,2-Carbonat umgesetzt werden, indem es mit Kohlendioxid zur Reaktion gebracht wird. Falls erwünscht, kann ein 1,2-Diol durch anschließende Reaktion des 1,2-Carbonats mit Wasser oder einem Alkohol hergestellt werden, um das 1,2-Diol zu bilden. Bezüglich geeigneter Verfahren wird auf US-A-6080897 verwiesen, deren Inhalt hier einbezogen wird.

[0098] Die Umsetzung in das Alkanolamin kann die Reaktion des Olefinoxids mit einem Amin umfassen, wie etwa Ammoniak, einem Alkylamin oder einem Dialkylamin. Wasserfreier oder wässriger Ammoniak kann verwendet werden. Wasserfreier Ammoniak wird üblicherweise verwendet, um die Herstellung von Monoalkanolamin zu begünstigen. Bezüglich Verfahren, die bei der Umsetzung des Olefinoxids in das Alkanolamin anwendbar sind, kann beispielsweise auf US-A-4845296 verwiesen werden, deren Inhalt hier einbezogen wird.

[0099] Die 1,2-Diole und 1,2-Diolether, beispielsweise Ethylenglykol, 1,2-Propylenglykol und Ethylenglykolether, können in einer großen Vielzahl gewerblicher Anwendungen verwendet werden, beispielsweise auf den Gebieten Nahrungsmittel, Getränke, Tabakwaren, Kosmetika, thermoplastische Polymere, härtbare Harzsysteme, Detergenzien, Wärmeleitsysteme, usw. Die 1,2-Carbonate, beispielsweise Ethylencarbonat, können als ein Verdünnungsmittel, insbesondere als ein Lösungsmittel, verwendet werden. Ethanolamine können beispielsweise bei der Behandlung von Erdgas ("sweetening") verwendet werden.

[0100] Soweit nichts anderes angegeben ist, haben die organischen Verbindungen, die hier erwähnt sind, beispielsweise die Olefine, Alkohole, 1,2-Diole, 1,2-Diolether, 1,2-Carbonate, Ethanolamine und organischen Halogenide üblicherweise höchstens 40 Kohlenstoffatome, noch üblicher höchstens 20 Kohlenstoffatome, insbesondere höchstens 10 Kohlen-

stoffatome, noch spezieller höchstens 6 Kohlenstoffatome. Üblicherweise haben die organischen Verbindungen mindestens ein Kohlenstoffatom.

[0101] Wie hier definiert, umfassen die Zahlenbereiche der Kohlenstoffatome (d.h. die Anzahl an Kohlenstoffen) die Zahlenwerte, die für die Bereichsgrenzen angegeben sind.

[0102] Das folgende Beispiel soll der Veranschaulichung der Vorteile der vorliegenden Erfindung dienen und ist nicht dazu gedacht, den Umfang der Erfindung in unzulässiger Weise einzuschränken.

Beispiel

[0103] Dieses geplante Beispiel beschreibt, wie eine Ausführungsform dieser Erfindung in die Tat umgesetzt werden kann.

[0104] Ein Mikrokanalreaktor wird Prozessmikrokanäle, erste Wärmeaustauschmikrokanäle, zweite Wärmeaustauschmikrokanäle, dritte Wärmeaustauschmikrokanäle, erste Zufuhrkanäle und zweite Zufuhrkanäle umfassen. Die Prozessmikrokanäle werden ein stromaufwärts gelegenes Ende, einen ersten Abschnitt, einen ersten Zwischenabschnitt und einen zweiten Abschnitt umfassen.

[0105] Der erste Abschnitt wird angepasst sein, Wärme mit einem Wärmeaustauschfluid auszutauschen, das in den ersten Wärmeaustauschmikrokanälen fließt. Ein erster Zufuhrmikrokanal wird in dem ersten Abschnitt des Prozessmikrokanals durch erste Öffnungen enden. Die ersten Öffnungen werden im ersten Abschnitt zwischen dem stromaufwärts gelegenen Ende des Mikrokanals und bis zu zwei Drittel der Länge des ersten Abschnitts in ungefähr gleichen Abständen in Stromrichtung liegen, und in senkrechter Richtung werden die Öffnungen in ungefähr gleichen Abständen näherungsweise über die gesamte Breite des Prozessmikrokanals liegen. Zweite Öffnungen werden auf eine ähnliche Weise bezüglich des zweiten Abschnitts liegen und werden die zweiten Zufuhrmikrokanäle mit dem zweiten Abschnitt der Prozessmikrokanäle verbinden. Die zweiten Wärmeaustauschmikrokanäle werden einen Satz von zweiten Wärmeaustauschmikrokanälen umfassen, die angepasst sind, Wärme mit dem zweiten Abschnitt auszutauschen, so dass in dem zweiten Abschnitt eine gewählte Temperatur gehalten wird. Die dritten Wärmeaustauschmikrokanäle werden zwei Sätze an dritten Wärmeaustauschmikrokanälen umfassen, die dazu angepasst sind, Wärme mit dem ersten Zwischenabschnitt auszutauschen, auf eine Weise, dass in dem stromabwärts gelegenen Teil des ersten Zwischenabschnitts eine geringere Temperatur erreicht wird als in dem stromaufwärts gelegenen Teil des ersten Zwischenabschnitts.

[0106] Der erste Abschnitt wird einen Epoxidierungskatalysator umfassen, der gemäß der vorliegenden Erfindung Silber, Rhenium, Wolfram, Cäsium und Lithium, auf einem partikulären Trägermaterial abgeschieden, umfasst. Das partikuläre Trägermaterial wird ein α -Aluminiumoxid sein, das eine Oberfläche von $1,5 \text{ m}^2/\text{g}$, ein Gesamtporenvolumen von $0,4 \text{ ml/g}$ und eine Porengrößenverteilung aufweist, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von $0,2$ bis $10 \text{ }\mu\text{m}$ 95 % des Gesamtporenvolumens darstellen, und dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von $0,3$ bis $10 \text{ }\mu\text{m}$ mehr als 92 % des Porenvolumens darstellen, das in den Poren mit einem Durchmesser im Bereich von $0,2$ bis $10 \text{ }\mu\text{m}$ enthalten ist.

[0107] Der Mikrokanalreaktor wird gemäß Verfahren zusammengebaut, die aus WO-A-2004/099113 und darin zitierten Literaturstellen bekannt sind. Das Trägermaterial wird an den Wänden des ersten Abschnitts der Prozessmikrokanäle durch Waschbeschichtung abgeschieden. Danach werden die Prozessmikrokanäle zusammengebaut und nach dem Zusammenbau werden Silber, Rhenium, Wolfram, Cäsium und Lithium auf dem Trägermaterial unter Verwendung von Verfahren abgeschieden, wie sie als solche aus US-A-5380697 bekannt sind.

[0108] Als Alternative wird der Mikrokanalreaktor ohne vorherige Waschbeschichtung zusammengebaut und nach dem Zusammenbau wird der erste Abschnitt mit einem partikulären Epoxidierungskatalysator gefüllt, der durch Mahlen und Sieben eines im Handel erhältlichen HS-PLUS-Epoxidierungskatalysators hergestellt wird, der von CRI Catalyst Company, Houston, Texas, USA erhalten werden kann.

[0109] In jeder dieser Alternativen wird der erste Abschnitt durch Wärmeaustausch mit dem Wärmeaustauschfluid, das in dem ersten Wärmeaustauschmikrokanal fließt, auf $220 \text{ }^\circ\text{C}$ erhitzt, während Ethylen durch eine Öffnung zugeführt wird, die am stromaufwärts gelegenen Ende der Prozessmikrokanäle liegt. Ein Gemisch aus Sauerstoff und Ethylchlorid (3 Volumenteile pro Million) wird durch die Zufuhrkanäle zugeführt. Das molare Verhältnis von Sauerstoff zu Ethylen wird 1:1 betragen. Das den ersten Abschnitt verlassende und in den ersten Zwischenabschnitt der Prozessmikrokanäle gelangende Gemisch wird im ersten Zwischenabschnitt in zwei Schritten abgeschreckt, anfangs auf eine Temperatur von $150 \text{ }^\circ\text{C}$ und nachfolgend auf eine Temperatur von $80 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Temperatur und die Zufuhr rate von dem Ethylen und Sauerstoff werden so eingestellt, dass die Umsetzung von Ethylen 97 Mol-% beträgt. Anschließend wird die Menge an Ethylchlorid im Gemisch aus Sauerstoff und Ethylchlorid so eingestellt, dass die Selektivität für Ethylenoxid optimiert wird.

[0110] Das abgeschreckte, Ethylenoxid und Koh-

lendioxid umfassende Gemisch, das den ersten Zwischenabschnitt verlässt und in den zweiten Abschnitt gelangt, wird im zweiten Abschnitt in Gegenwart einer wässrigen Lösung von Methyltributylphosphoniumiodid reagieren, um ein Gemisch zu bilden, das Ethylenoxid und Ethylencarbonat umfasst. Die wässrige Lösung von Methyltributylphosphoniumiodid wird durch die zweiten Öffnungen in den zweiten Abschnitt gelangen. Die Temperatur im zweiten Abschnitt wird durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid, das in dem zweiten Wärmeaustauschmikrokanal fließt, bei $80 \text{ }^\circ\text{C}$ gehalten.

[0111] Das Gemisch, das Ethylenoxid und Ethylencarbonat umfasst, kann aufgetrennt werden, um Ethylenoxid und Ethylencarbonat bereitzustellen, die getrennt gereinigt werden können. Gereinigtes Ethylenoxid und wahlweise gereinigtes Ethylencarbonat können mit Wasser umgesetzt werden, um Ethylenglykol zu erhalten.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Epoxidierung eines Olefins, wobei das Verfahren umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, um dadurch ein erstes Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst,
- das Abschrecken des ersten Gemisches, und
- die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, um ein zweites Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst.

2. Verfahren wie in Anspruch 1 beansprucht, wobei das Verfahren umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, in Gegenwart eines Epoxidierungskatalysators, der in einem ersten Abschnitt von einem oder mehreren Prozessmikrokanälen eines Mikrokanalreaktors enthalten ist, um dadurch ein erstes Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und Kohlendioxid umfasst,
- das Abschrecken des ersten Gemisches in einem ersten Zwischenabschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle, der stromabwärts von dem ersten Abschnitt liegt, und
- die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches in einem zweiten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle, der stromabwärts von dem ersten Zwischenabschnitt liegt, um ein zweites Gemisch zu bilden, das das Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst.

3. Verfahren wie in Anspruch 1 oder 2 beansprucht, wobei der Epoxidierungskatalysator ein Metall der Gruppe 11 in einer Menge von 50 bis 500 g/kg bezüglich des Gewichts des Katalysators umfasst.

4. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–3 beansprucht, wobei der Epoxidierungskatalysator Silber umfasst, das in einem Trägermaterial abgeschieden ist.

5. Verfahren wie in Anspruch 4 beansprucht, wobei der Katalysator als Promotorkomponente(n) ein oder mehrere Elemente umfasst, die ausgewählt sind aus Rhenium, Wolfram, Molybdän, Chrom und deren Gemischen, und zusätzlich ein oder mehrere Alkalimetalle, die ausgewählt sind aus Lithium, Kalium und Cäsium.

6. Verfahren wie in Anspruch 4 oder 5 beansprucht, wobei das Trägermaterial ein Aluminiumoxid ist, das eine Oberfläche von mindestens $0,3 \text{ m}^2/\text{g}$ und höchstens $10 \text{ m}^2/\text{g}$ bezüglich des Gewichts des Trägers hat und eine Porengrößenverteilung aufweist, so dass Poren mit einem Durchmesser im Bereich von $0,2$ bis $10 \text{ }\mu\text{m}$ mehr als 80% des Gesamtporenvolumens darstellen.

7. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–6 beansprucht, wobei der Zustrom das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von mindestens $50 \text{ Mol-}\%$ bezüglich des gesamten Zustroms umfasst.

8. Verfahren wie in Anspruch 7 beansprucht, wobei der Zustrom das Olefin und Sauerstoff in einer Gesamtmenge von 80 bis $99,5 \text{ Mol-}\%$ bezüglich des gesamten Zustroms umfasst.

9. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–8 beansprucht, wobei der Zustrom gesättigte Kohlenwasserstoffe in einer Menge von höchstens $5 \text{ Mol-}\%$ bezüglich des gesamten Zustroms umfasst, und der Zustrom Inertgase in einer Menge von höchstens $5 \text{ Mol-}\%$ bezüglich des gesamten Zustroms umfasst.

10. Verfahren wie in Anspruch 9 beansprucht, wobei die Menge an gesättigten Kohlenwasserstoffen höchstens $2 \text{ Mol-}\%$ bezüglich des gesamten Zustroms beträgt und die Menge an Inertgasen höchstens $2 \text{ Mol-}\%$ bezüglich des gesamten Zustroms beträgt.

11. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–10 beansprucht, wobei das Abschrecken die Verringerung der Temperatur des ersten Gemisches auf eine Temperatur von höchstens $250 \text{ }^\circ\text{C}$ umfasst.

12. Verfahren wie in Anspruch 11 beansprucht, wobei dieses Abschrecken die Verringerung der Temperatur des ersten Gemisches auf eine Temperatur im Bereich von 20 bis $200 \text{ }^\circ\text{C}$ umfasst.

13. Verfahren wie in Anspruch 12 beansprucht, wobei dieses Abschrecken die Verringerung der Temperatur des ersten Gemisches auf eine Temperatur im Bereich von 50 bis $190 \text{ }^\circ\text{C}$ umfasst.

14. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–13 beansprucht, wobei das Verfahren das Abschrecken durch Wärmeaustausch mit einem Wärmeaustauschfluid umfasst.

15. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–14 beansprucht, wobei das Verfahren das Abschrecken in mehr als einem Schritt durch Wärmeaustausch mit einer Mehrzahl von Wärmeaustauschfluiden umfasst, die verschiedene Temperaturen haben.

16. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–15 beansprucht, wobei die molare Menge an Kohlendioxid, die in dem ersten Gemisch vorliegt, im Bereich von $0,01$ bis $1 \text{ Mol pro Mol des Olefinoxids}$, das in dem ersten Gemisch vorliegt, liegt.

17. Verfahren wie in Anspruch 16 beansprucht, wobei die molare Menge an Kohlendioxid, die in dem ersten Gemisch vorliegt, im Bereich von $0,02$ bis $0,8 \text{ Mol pro Mol des Olefinoxids}$, das in dem ersten Gemisch vorliegt, liegt.

18. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–17 beansprucht, wobei die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, um das zweite Gemisch zu bilden, die Umsetzung von Olefinoxid mit mindestens $80 \text{ Mol-}\%$ des Kohlendioxids umfasst, das in dem ersten Gemisch vorliegt, um $1,2\text{-Carbonat}$ zu bilden.

19. Verfahren wie in Anspruch 18 beansprucht, wobei mindestens $90 \text{ Mol-}\%$ des Kohlendioxids, das in dem ersten Gemisch vorliegt, umgesetzt werden.

20. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–19 beansprucht, wobei die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, um das zweite Gemisch zu bilden, die Umsetzung von Olefinoxid mit Kohlendioxid in das $1,2\text{-Carbonat}$ in Gegenwart eines Katalysators umfasst, der ausgewählt ist aus
– Harzen, die quartäre Phosphoniumhalogenid-Gruppen oder quartäre Ammoniumhalogenid-Gruppen auf einer Styrol/Divinylbenzol-Copolymermatrix umfassen;
– Katalysatoren, die ein Metallsalz umfassen, das in einem festen Träger immobilisiert ist, wobei das Metallsalz ein Kation eines Metalls umfasst, das ausgewählt ist aus jenen der dritten Periode und Gruppe 2, der vierten Periode und den Gruppen 2 und 4–12, der fünften Periode und den Gruppen 2, 4–7, 12 und 14, und der sechsten Periode und den Gruppen 2 und 4–6 des Periodensystems der Elemente, und wobei der Träger ein quartäres Ammonium-, quartäres Phosphonium-, quartäres Arsonium-, quartäres Stibonium- oder ein quartäres Sulfonium-Kation enthält, wobei das Kation von dem Gerüst des Trägers durch eine Spacer-Gruppe der allgemeinen Formel $-(\text{CH}_2\text{-O})_m\text{-(CH}_2)_n\text{-}$ getrennt sein kann oder auch nicht, wobei m und n ganze Zahlen sind mit n höchst-

tens 10, wenn m 0 ist, und n zwischen 1 und 8, wenn m 1 ist;

- quartären Phosphoniumhalogeniden, quartären Ammoniumhalogeniden und Metallhalogeniden;
- Katalysatoren, die eine organische Base umfassen, die mit einem Halogenwasserstoff neutralisiert ist, wobei die organische Base einen pK_a -Wert größer als 8 hat und eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält; und
- Katalysatoren, die 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, einer organischen Base und 10 bis 90 Mol-%, basierend auf dem Gemisch, des Salzes der organischen Base und eines Halogenwasserstoff umfassen, wobei die organische Base eine auf Kohlenstoff basierende Verbindung umfasst, die ein oder mehrere Stickstoff- und/oder Phosphoratome mit mindestens einem freien Elektronenpaar enthält, und die einen pK_a -Wert hat, der hoch genug ist, dass sie in der Lage ist, Kohlendioxid unter den Reaktionsbedingungen zu binden.

21. Verfahren wie in Anspruch 20 beansprucht, wobei

- das Metallsalz ein Metallsalz ist, das ausgewählt ist aus Halogeniden, Acetaten, Lauraten, Nitraten und Sulfaten von einem oder mehreren, die ausgewählt sind aus Magnesium, Calcium, Zink, Kobalt, Nickel, Mangan, Kupfer und Zinn, oder
- der feste Träger zum Immobilisieren des Metallsalzes ausgewählt ist aus einem Silizium-Aluminium-Oxid, einem Zeolith, einem Harz mit einem Gerüst aus Polystyrol/Divinylbenzol-Copolymer, einem auf Siliziumoxid basierenden polymeren Gerüst, und einem Harz, in das quartäre Vinylpyridin-Monomere eingefügt sind; oder
- der Katalysator Methyltributylphosphoniumiodid ist; oder
- die organische Base ausgewählt ist aus 2-tert-Butylimino-2-diethylamino-1,3-dimethylperhydro-1,3,2-diazaphosphorin, als solches oder auf Polystyrol, 1,1,3,3-Tetramethylguanidin und Triethanolamin.

22. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–21 beansprucht, wobei die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, um das zweite Gemisch zu bilden, die Umsetzung von Olefinoxid mit Kohlendioxid in das 1,2-Carbonat bei einer Temperatur im Bereich von 30 bis 200 °C umfasst.

23. Verfahren wie in Anspruch 22 beansprucht, wobei die Temperatur im Bereich von 50 bis 150 °C liegt.

24. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–23 beansprucht, wobei die Umsetzung des abgeschreckten ersten Gemisches, um das zweite Gemisch zu bilden, die Umsetzung von Olefinoxid mit Kohlendioxid in das 1,2-Carbonat bei einem Druck im

Bereich von 500 bis 3500 kPa umfasst.

25. Verfahren wie in einem der Ansprüche 1–24 beansprucht, wobei das Verfahren umfasst

- die Bildung des zweiten Gemisches, das mindestens teilweise in Gasform vorliegt, und
- das Kondensieren von mindestens einem Teil des zweiten Gemisches, das das Olefinoxid und das 1,2-Carbonat umfasst.

26. Verfahren wie in Anspruch 2 und Anspruch 25 beansprucht, wobei das Verfahren das Kondensieren von mindestens einem Teil des zweiten Gemisches in einem dritten Abschnitt des einen oder der mehreren Prozessmikrokanäle umfasst, der stromabwärts von dem zweiten Abschnitt liegt.

27. Verfahren wie in Anspruch 25 oder 26 beansprucht, wobei das Verfahren das Kondensieren von mindestens 80 Mol-% der Summe von dem Olefinoxid und dem 1,2-Carbonat, die in dem zweiten Gemisch vorliegen, umfasst.

28. Verfahren wie in Anspruch 27 beansprucht, wobei das Verfahren das Kondensieren von mindestens 90 Mol-% der Summe von dem Olefinoxid und dem 1,2-Carbonat, die in dem zweiten Gemisch vorliegen, umfasst.

29. Verfahren wie in einem der Ansprüche 25–28 beansprucht, wobei das Verfahren umfasst

- die Bildung des zweiten Gemisches, so dass es Wasser umfasst, das mindestens teilweise in Gasform vorliegt, und
- das Kondensieren von mindestens einem Teil dieses Wassers, das in dem zweiten Gemisch vorliegt.

30. Verfahren wie in Anspruch 26 und Anspruch 29 beansprucht, wobei das Verfahren das Kondensieren von Wasser in dem dritten Abschnitt umfasst.

31. Verfahren wie in Anspruch 29 oder 30 beansprucht, wobei das Verfahren das Kondensieren von mindestens 80 Mol-% der Summe des Wassers, das in dem zweiten Gemisch vorliegt, umfasst.

32. Verfahren wie in Anspruch 31 beansprucht, wobei das Verfahren das Kondensieren von mindestens 90 Mol-% der Summe des Wassers, das in dem zweiten Gemisch vorliegt, umfasst.

33. Verfahren zur Herstellung eines 1,2-Diols, 1,2-Diolethers, 1,2-Carbonats oder Alkanolamins, wobei das Verfahren umfasst

- die Reaktion eines Zustroms, der ein Olefin und Sauerstoff umfasst, durch ein Verfahren, wie es in einem der Ansprüche 1–32 beansprucht ist, um ein zweites Gemisch zu bilden, das ein Olefinoxid und ein 1,2-Carbonat umfasst, und
- die Umsetzung des zweiten Gemisches mit Was-

ser, einem Alkohol, Kohlendioxid oder einem Amin, um das 1,2-Diol, den 1,2-Diolether, das 1,2-Carbonat oder das Alkanolamin zu bilden.

34. Verfahren wie in Anspruch 33 beansprucht, wobei das zweite Gemisch mit Wasser umgesetzt wird, um das 1,2-Diol zu bilden.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

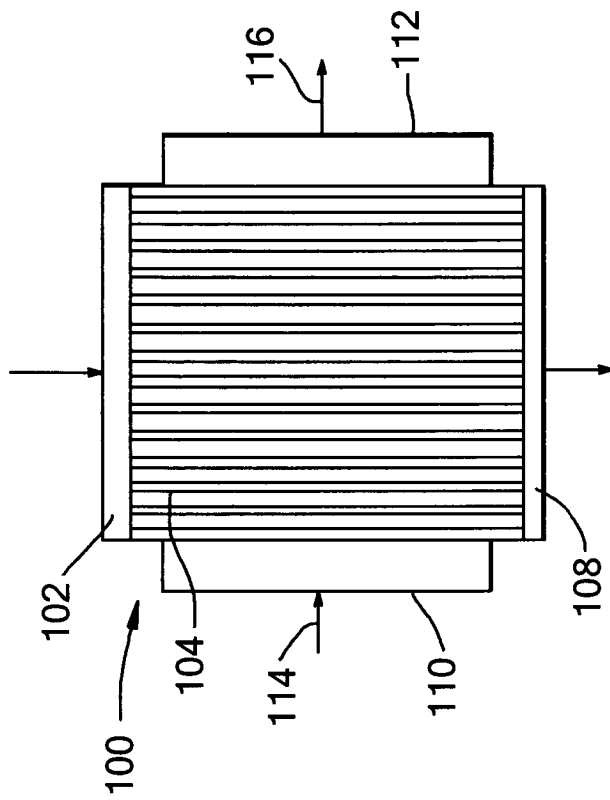


Fig. 1

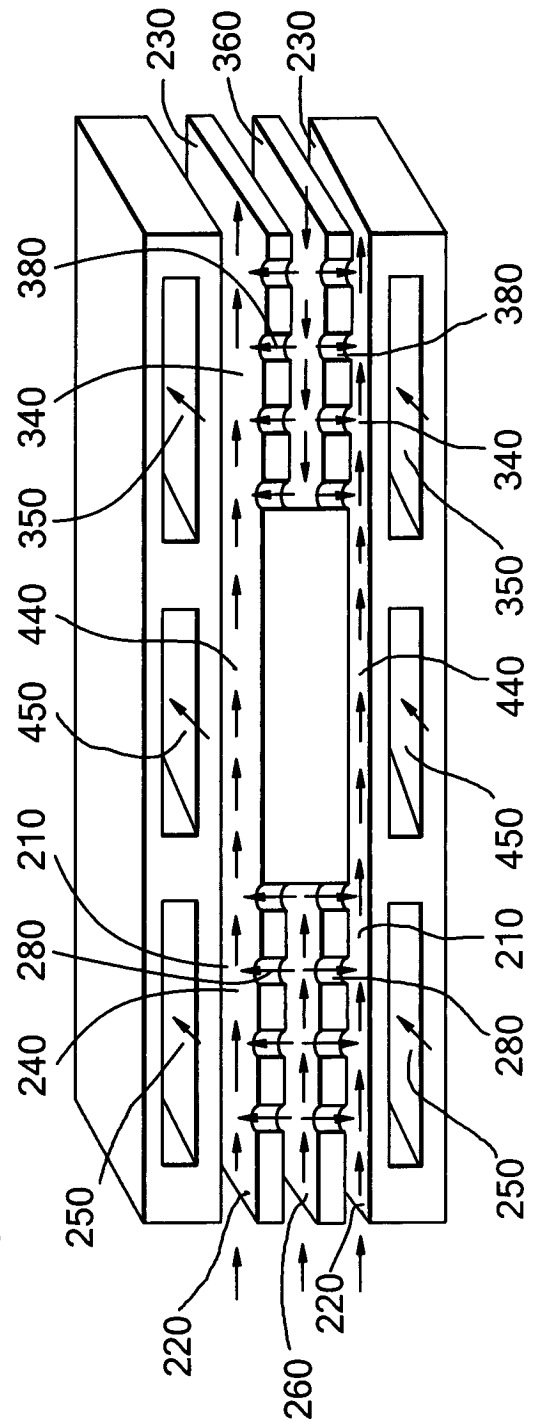


Fig. 2