

429854

13 NOV



P.- 58.571

F 2116-K35
(NISHOKU)/HF

MEMORIA DESCRIPTIVA

C07D, B01J

para solicitar PATENTE DE INVENCION EN ESPAÑA por 20 años

a nombre de NIPPON SHOKUBAI KAGAKU KOGYO CO., LTD.

entidad japonesa

establecida en 1,5-chome, Koraibashi, Higashi-ku, Osaka,
Japón

por: "UN PROCEDIMIENTO MEJORADO PARA PREPARAR OXIDO DE
ETILENO"

(Clase Internacional C07d)

5-11-74.



Esta invención se refiere a un procedimiento para preparar óxido de etileno mediante oxidación catalítica en fase vapor de etileno con oxígeno molecular, así como también al catalizador usado en este procedimiento.

El catalizador usado en la preparación comercial de óxido de etileno por oxidación catalítica de etileno en fase vapor con oxígeno molecular, debe ser uno que posea no sólo alta actividad y elevada selectividad sino también una vida catalítica larga. Habitualmente se usa un catalizador que consta de un material de soporte adecuado, sobre el que ha sido depositada plata mediante un procedimiento tal como electrólisis, recubrimiento o impregnación. Aún cuando en los métodos conocidos hay casos en que se usa plata sola como catalizador, en la mayor parte de los casos se usan catalizadores de plata que contienen, como activador, diversos compuestos tales como, por ejemplo, compuestos de zinc, compuestos de paladio, compuestos de platino, compuestos de elementos alcalinotérreos y compuestos de elementos del grupo VIII. Y existen numerosas comunicaciones que se refieren a catalizadores con estos activadores incorporados. Por ejemplo, se ha descrito un catalizador que consta de plata y compuestos de metales alcalinotérreos, en la Patente de EE.UU. 3.725.307, un ca

5-11-74.



talizador que consta de plata y compuestos de metales del Grupo II B, en la Patente de EE.UU. 3.420.784, y un catalizador que consta de plata y compuestos de metales del grupo VIII, en la Patente Británica 1.243.105.

5 Sin embargo, aun cuando estos catalizadores conocidos actúan bastante bien en su conversión de etileno, selectividad para óxido de etileno y vida catalítica, no pueden ser considerados como totalmente satisfactorios. En especial, en el caso de los catalizadores que contienen un activador, todos no demuestran necesariamente la selectividad deseable (es decir, la capacidad de convertir preferentemente etileno en óxido de etileno). Esto indica que si bien muchos de los activadores pueden mejorar la conversión de etileno, ellos no pueden convertir selectivamente el etileno en óxido de etileno. En otras palabras, cuando se usan estos catalizadores, la reacción en que se forman dióxido de carbono y agua, es decir, la reacción secundaria, prevalece sobre la reacción principal en la que se forma óxido de etileno, con la consecuencia de que no puede prepararse óxido de etileno con buen rendimiento.

10

15

20

Aparte de éstas, se han hecho otras numerosas sugerencias con vistas a obtener catalizadores adecuados para usar en la preparación comercial de óxido de etileno, incluyendo sugerencias que se relacionan

25

5-11-74.



con la preparación de plata o compuestos de plata, la adición de activadores, la elección del material de soporte, la deposición del catalizador sobre el soporte, así como también las condiciones de la reacción y el
5 tratamiento, etc. Sin embargo, todas estas sugerencias están llenas de problemas a resolver, y, por consiguiente, no han alcanzado todavía la fase en que son útiles, desde el punto de vista práctico.

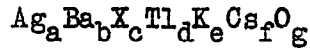
Por tanto, un objeto de la presente inven
10 ción es mejorar los defectos de los catalizadores conocidos para la preparación de óxido de etileno, anteriormente descritos, y proporcionar un catalizador que tiene una alta actividad y selectividad elevada, así como también vida larga.

15 Se encuentra que el objeto anterior de la presente invención puede ser conseguido mediante una composición catalítica obtenida incorporando o bien en plata o en su compuesto, en proporciones específicas, bario o su compuesto, al menos un metal del grupo que
20 consta de estaño y antimonio o uno de sus compuestos, y al menos un metal del grupo que consta de talio, potasio y cesio, o uno de sus compuestos.

Así pues, se proporciona según esta in-
25 vención una composición catalítica cuyos elementos metálicos constituyentes y proporciones atómicas se expresan
5-11-74.



san mediante la fórmula general



en la que X representa por lo menos un elemento metálico del grupo que consta de estaño y antimonio, a, b, d, e, f y g, son los números de átomos de plata, bario, talio, potasio, cesio y oxígeno, respectivamente, y c, es la suma del número de átomos de un elemento metálico, por lo menos, del grupo que consta de estaño y antimonio; y cuando a es 100, b es 0 - 100, c es 0,001 - 0,15, de preferencia 0,01 - 0,15, d es 0 - 0,1, e es 0 - 0,1, f es 0 - 0,1, con la condición de que $0 < d + e + f \leq 0,3$, preferiblemente $0,005 < d + e + f \leq 0,2$, y g es un número determinado por los requisitos de valencia de los otros elementos presentes; así como también un procedimiento para preparar óxido de etileno mediante la oxidación catalítica en fase vapor de etileno con oxígeno molecular, en presencia de una de tales composiciones catalíticas. El contenido de oxígeno de la composición de la presente invención se determina por la cantidad de oxígeno poseída por los óxidos metálicos u óxidos metálicos complejos que se forman durante la preparación de la composición.

Como se ha indicado anteriormente en esta Memoria, el catalizador según la presente invención demuestra sus excelentes propiedades sólo cuando está

5-11-74.

13 NOV 1974



constituido por elementos metálicos específicos y además, cuando los elementos metálicos constituyentes se encuentran presentes dentro de una proporción atómica específica. Como llegará a ser evidente de los experimentos testigo proporcionados más adelante en esta Memoria, aún cuando los elementos metálicos que constituyan un catalizador sean los mismos que en el caso del catalizador de la invención, si las proporciones de varios elementos metálicos con respecto a la plata, se desvían de los límites indicados por la presente invención, tiene lugar una reducción en la selectividad para óxido de etileno. De nuevo, también es evidente de los experimentos de control que cuando las condiciones limitativas especificadas por la presente invención no son satisfechas por los elementos metálicos que constituyen el catalizador, existe una marcada disminución en la selectividad para óxido de etileno, aún cuando la proporción respecto a la plata de cada uno de los elementos metálicos que constituyen el catalizador sea la misma. Por ejemplo, como resulta evidente del Testigo 2 dado más adelante en esta Memoria, cuando no está contenido estaño y/o antimonio en el catalizador de la invención, la selectividad para óxido de etileno es sólo de 73,0%, aún cuando estén contenidos talio, potasio y/o cesio y el número de átomos de los elementos metálicos consti-

5-11-74.



tuyentes esté dentro de los intervalos especificados en esta invención. Aún cuando un catalizador que no contiene estaño y/o antimonio, manifiesta algunos efectos que dependen del contenido de bario, su duración es mala.

5 Además, como puede apreciarse del Testigo 1 proporcionado más adelante en esta Memoria, en el caso de un catalizador que no contiene talio, potasio y/o cesio, la selectividad para óxido de etileno es sólo de 73,9%, aún cuando contiene estaño y/o antimonio y el número de átomos de los elementos metálicos constituyentes está comprendido dentro del intervalo especificado en la presente invención.

El caso en que se usa el catalizador de esta invención se caracteriza por una elevada selectividad para óxido de etileno. Por ejemplo, como se pone de manifiesto en el Ejemplo 1 que se proporciona más adelante, cuando se usa una mezcla gaseosa inicial que consta de 7% en volumen de etileno, 6% en volumen de oxígeno, 87% en volumen de un gas inerte tal como dióxido de carbono o nitrógeno, y 0,2 ppm de dicloruro de etileno, y la reacción se lleva a cabo durante 240 horas a una temperatura de reacción de 237°C, una presión de 20 kg/cm² y una velocidad espacial de 7000 hr⁻¹, se obtienen resultados excelentes, siendo la conversión de etileno del 29,9% y la selectividad para óxido de

25
5-11-74.

13 NOV 1974



etileno de 77,2%.

Así pues, si bien las particularidades del mecanismo de la reacción catalítica no están claras, el catalizador de la presente invención difiere claramente en sus efectos del catalizador obtenido añadiendo los elementos de metal alcalino o los elementos de metal alcalino-térreo, o sus compuestos, independientemente, a plata o compuestos de plata. Por tanto, en el caso del catalizador de la invención que consta de plata o un compuesto de plata, bario y por lo menos un elemento del grupo que consta de estaño y antimonio o sus compuestos, así como también por lo menos un elemento del grupo que consta de talio, potasio y cesio o sus compuestos, se cree que se demuestran resultados excelentes del catalizador, como resultado de que los diversos constituyentes actúan sinérgicamente.

Como plata o compuesto de plata usado como producto de partida de los elementos metálicos constituyentes del catalizador de esta invención, puede usarse cualquiera. Están incluidos aquellos productos tales como la plata denominada de valencia cero, por ejemplo plata reducida y plata electrolítica; óxidos de plata; las sales inorgánicas de plata tales como carbonato de plata y nitrato de plata; y las sales orgánicas de plata tales como oxalato de plata y lactato de plata.

5-11-74.

13 NOV 1971

Como bario, pueden usarse el óxido, hidróxido, sales inorgánicas y sales orgánicas, por ejemplo, óxido de bario, carbonato de bario, sulfato de bario, oxalato de bario y lactato de bario. Como estaño, pueden usarse los óxidos, hidróxidos, sales inorgánicas y sales orgánicas, por ejemplo, cloruros de estaño, nitratos de estaño, sulfatos de estaño, hidróxidos de estaño, y oxalato de estaño. Como antimonio, pueden usarse las sales inorgánicas, óxidos o sales orgánicas, por ejemplo, cloruros de antimonio, óxidos de antimonio, nitrato de antimonio y lactato de antimonio. El talio usable incluye las sales inorgánicas, óxidos, hidróxidos o sales orgánicas, por ejemplo, cloruros de talio, óxidos de talio, hidróxidos de talio y sulfatos de talio. Como potasio, pueden usarse las sales inorgánicas, óxidos, hidróxidos o sales orgánicas, por ejemplo, cloruro de potasio, óxidos de potasio, hidróxido de potasio, carbonato de potasio, sulfato de potasio, acetato de potasio, oxalato de potasio y lactato de potasio. Y como cesio, son usables las sales inorgánicas, óxidos e hidróxidos, o las sales orgánicas, por ejemplo cloruro de cesio, óxidos de cesio, nitrato de cesio, hidróxido de cesio, sulfato de cesio, hidrogenotartrato de cesio y lactato de cesio.

25

En calidad de catalizador usado en esta

5-11-74.



invención, se usa, de preferencia, uno soportado preparado por procedimientos tales como recubrimiento o impregnación sobre materiales de soporte inorgánicos, porosos, conocidos en la técnica. Como este material de soporte, se usan convenientemente aquellos tales como, por ejemplo, alúmina, alúmina fundida, silicato de aluminio y carburo de silicio, preferiéndose aquéllos de forma esférica u otra forma que tenga un área superficial de menos de 1,0 metro cuadrado por gramo, un tamaño de partícula de 4,8 - 7,9 mm, un diámetro de poro comprendido entre 10 y 300 micras y una porosidad de 20-45%.

Hay disponibles diversos modos de poner en práctica el procedimiento de la invención para preparar el catalizador. Por ejemplo, se escogen como productos de partida las sales, óxidos o hidróxidos inorgánicos, las sales orgánicas, hidroxiácidos y sus sales correspondientes a los respectivos elementos metálicos que constituyen el catalizador y capaces de formar la composición catalítica al calcinar, y se disponen o bien en solución o dispersión por medio de agua o de un medio líquido que puede disiparse al calcinar. La solución o suspensión así preparada se deposita sobre el material de soporte o bien sumergiendo este último en la solución, dejando escurrir después el líquido y secando

5-11-74.

13 NOV 1974

el soporte impregnado (el método de impregnación), o recubriendo el material de soporte con el catalizador, añadiendo el soporte a la suspensión, agitando bien seguidamente la mezcla y secando después de ello el soporte recubierto (el método de recubrimiento), preparando así el catalizador de la invención.

5

10

15

20

25

Cuando ésto se describe más específicamente, en el caso del método de impregnación, se añade carbonato de bario a una solución acuosa de lactato de plata obtenida mediante la reacción de óxido de plata con ácido láctico, después de lo cual se añaden a la mezcla resultante soluciones acuosas de sulfato de estaño, lactato de antimonio, hidróxido de talio, sulfato de potasio e hidróxido de cesio, seguido a continuación por inmersión de alfa-alúmina como soporte, en la mezcla así obtenida, escurrido del líquido de la alfa-alúmina, secado y calentamiento, después de ello, durante 2 - 12 horas a 150 - 250°C, obteniendo de este modo un catalizador que contiene de 5 a 30 gramos de plata por 100 ml de soporte. Por otra parte, en el caso del método de recubrimiento, se añade carbonato de bario a óxido de plata de forma de pasta, después de lo cual se añaden a ello soluciones acuosas de sulfato de estaño, lactato de antimonio, hidróxido de talio, sulfato de potasio e hidróxido de cesio, seguido de buena

5-11-74.



agitación y adición de un soporte de alfa-alúmina para recubrir la superficie del soporte con la suspensión anterior. Después se seca el soporte recubierto de este modo, y se calienta durante 2 a 12 horas a 100 - 250°C para obtener el catalizador. El catalizador soportado, preparado por cualquiera de ambos métodos, el de impregnación o el de recubrimiento, se somete preferiblemente a calentamiento posterior y tratamiento con aire antes de usarle.

10 Las condiciones de reacción empleadas convenientemente para llevar a cabo la preparación de óxido de etileno partiendo de etileno, usando el catalizador de la presente invención, son una temperatura de 180-350°C, de preferencia de 200 - 300°C, una presión de 2 - 40 kg/cm², y una velocidad espacial de 3.000 - 10.000 hr⁻¹, de preferencia 5000 - 8500 hr⁻¹.

La mezcla gaseosa de partida que ha de hacerse pasar sobre el catalizador está compuesta, preferiblemente, de 0,5 - 20% en volumen de etileno, 3 - 10% en volumen de oxígeno, y 70 - 96,5% en volumen de gases inertes tales como dióxido de carbono, nitrógeno e hidrocarburos inferiores (por ejemplo metano, etano, etc.). Y todavía más preferido es el caso de que esta mezcla contenga además, como inhibidor, compuestos halogenados tales como dicloruro de etileno y cloruro de

5-11-74.

22 NOV 1974



difenilo, en cantidad de 0,01 a 10 ppm.

Como fuente de oxígeno molecular para usar en esta invención, pueden usarse con ventaja aire puro, oxígeno puro y aire enriquecido.

5 Si bien el catalizador de esta invención se usa habitualmente con un lecho fijo, también puede ser usado con un lecho fluidizado.

10 Los ejemplos y experimentos testigo siguientes servirán para ilustrar más específicamente la presente invención, pero no están destinados a limitarla en modo alguno, excepto en lo que se limita en las reivindicaciones que se acompañan.

15 Los grados de conversión y la selectividad usados en esta Memoria fueron calculados del modo siguiente:

$$\text{Conversión (\%)} = \frac{\text{Moles de etileno convertidos}}{\text{Moles de etileno alimentados}} \times 100$$

$$\text{Selectividad (\%)} = \frac{\text{Moles de óxido de etileno formados}}{\text{Moles de etileno que se han convertido}} \times 100$$

20

Ejemplo 1

A una solución acuosa de lactato de plata obtenida haciendo reaccionar 400 gramos de óxido de plata y 880 gramos de una solución acuosa al 40% de ácido láctico, se añadieron 67 gramos de carbonato de bario,

25

13-11-74.

13 NOV 1974

10 ml de una solución acuosa al 4,4% de sulfato de esta-
ño, 10 ml de una solución acuosa al 8% de lactato de an-
timonio, 10 ml de una solución acuosa al 4,6% de hidró-
xido de talio, 2 ml de una solución acuosa al 3,0% de
5 sulfato de potasio y 10 ml de solución acuosa al 2% de
hidróxido de cesio, y se agitó seguidamente la mezcla.
Se sumergió durante 10 minutos en la solución resultan-
te un litro de alundum esférico, de 4,8 mm de tamaño de
partícula y que tenía diámetros de poro de 20 - 200 mi-
10 cras y una porosidad de 35-45%, después de lo cual se
escurrió el líquido, y se secaron las partículas. Las
partículas fueron calcinadas después durante 3 horas a
150-200°C.

El catalizador obtenido de este modo se
15 introdujo en un tubo de reacción de acero inoxidable de
6 metros de largo y de 23 mm de diámetro interior, y se
calentó a 250°C mientras se dejaba pasar aire para des-
componer completamente la materia orgánica. Los elemen-
tos metálicos que constituyen este catalizador y el nú-
20 mero de átomos de los mismos se indican en la Tabla 1.

Seguidamente, se introdujo en el tubo de
reacción anterior, una mezcla gaseosa inicial constitu-
da por 7% en volumen de etileno, 6% en volumen de oxí-
geno, 87% en volumen de un gas inerte tal como dióxido
25 de carbono y nitrógeno, y 0,2 ppm de dicloruro de eti-

5-11-74.



lento, y se hizo reaccionar a una temperatura de reacción de 237°C, una presión de reacción de 20 kg/cm² y una velocidad espacial de 7000 hr⁻¹. Después de 240 horas de reacción, se obtuvo el resultado indicado en la

5 Tabla 1.

Testigo 1

Se llevó a cabo el experimento como en el Ejemplo 1, pero sin usar el carbonato de bario, lactato de antimonio, hidróxido de talio, sulfato de potasio e

10 hidróxido de cesio, obteniéndose un catalizador tal como se indica en la Tabla 1. Cuando se usó este catalizador y se llevó a cabo la reacción como en el Ejemplo 1 pero variando la temperatura de reacción, se obtuvo el resultado indicado en la Tabla 1.

15 Testigo 2

Se llevó a cabo el experimento como en el Ejemplo 1, pero sin usar el carbonato de bario, sulfato de estaño, lactato de antimonio e hidróxido de talio, obteniéndose un catalizador tal como el indicado en la

20 Tabla 1. Cuando se usó este catalizador y la reacción se llevó a cabo bajo condiciones idénticas a las del Ejemplo 1, con excepción de que se varió la temperatura de reacción, se obtuvo el resultado indicado en la Ta-

24 bla 1.

5-11-74.

5-11-74.

Tabla 1

Experimento Nº	Elementos metálicos constituyentes del catalizador (Proporciones atómicas)							Etileno (% en vol.)	Oxígeno (% en vol.)	Velocidad espacial (hr ⁻¹)	Temperatura de reacción (°C)	Conversión (%)	Selectividad (%)
	Ag	Ba	Sn	Sb	Tl	K	Cs						
Ejemplo 1	100	10	0,06	0,06	0,06	0,02	0,04	7	6	7000	237	29,9	77,2
Testigo 1	100	0	0,06	0	0	0	0	7	6	7000	228	21,5	73,9
Testigo 2	100	0	0	0	0	0,02	0,04	7	6	7000	251	19,7	73,0

22 NOV 1974



Ejemplos 2 - 33

Los experimentos fueron realizados como en el Ejemplo 1 para preparar catalizadores de diversas combinaciones y números de átomos de los elementos metálicos. Los catalizadores obtenidos de este modo fueron usados, y las reacciones fueron llevadas a cabo bajo condiciones indicadas en la Tabla 2, con los resultados que se muestran.

Testigos 3 - 4

Los experimentos fueron realizados como en el Ejemplo 1 para preparar catalizadores de diversas combinaciones y número de átomos de los elementos metálicos. Los catalizadores obtenidos de este modo fueron usados, y las reacciones fueron llevadas a cabo bajo las condiciones indicadas en la Tabla 2 con los resultados que se muestran.

5-11-74.

Tabla 2

	Elementos metálicos constituyentes del catalizador (Proporciones atómicas)									Etileno (% en vol.)	Oxígeno (% en vol.)	Velocidad espacial (hr^{-1})	Temperatura de reacción ($^{\circ}\text{C}$)	Conversión (%)	Selectividad (%)
	Ag	Ba	Sn	Sb	Tl	K	Cs								
Ejemplo 2	100	0	0,06	0	0	0	0,05	7	6	6000	240	24,0	78,0		
3	100	0	0,06	0	0,06	0	0	7	6	6000	250	22,1	78,9		
4	100	0	0	0,06	0,06	0	0	7	6	6000	247	28,5	78,1		
5	100	0	0	0,02	0,01	0	0	7	6	6000	238	27,1	78,5		
6	100	0	0	0,08	0	0	0,04	12	6	6000	229	16,7	77,8		
7	100	10	0,08	0	0,06	0	0	12	6	6000	246	17,1	76,9		
8	100	50	0,06	0	0,10	0	0	7	6	7000	245	23,5	77,4		
9	100	10	0,12	0	0	0,07	0	7	6	6000	252	28,6	76,9		
10	100	10	0,04	0	0	0	0,06	7	6	6000	237	28,9	77,0		
11	100	10	0	0,03	0,06	0	0	12	6	6000	230	17,2	77,9		
12	100	10	0	0,08	0	0,08	0	12	6	6000	229	18,0	77,3		
13	100	10	0	0,06	0	0	0,08	12	6	6000	232	16,5	77,1		
14	100	0	0,02	0,10	0	0,04	0	7	6	6000	230	29,7	77,4		
15	100	0	0,02	0,06	0	0	0,03	7	6	6000	241	29,1	77,0		
16	100	10	0,06	0	0,03	0,05	0	7	6	6000	246	29,9	76,1		

- continúa -





Tabla - 2 - (continuación)

Ejemplo 17	100	10	0,06	0	0	0,02	0,04	7	6	6000	231	20,1	79,2
18	100	50	0	0,06	0,08	0,02	0	12	6	6000	234	17,1	78,2
19	100	10	0	0,06	0,05	0	0,03	12	6	6000	232	16,0	78,9
20	100	0	0,13	0	0,03	0	0,03	12	6	7000	249	15,9	77,3
21	100	0	0,08	0	0	0,02	0,04	7	6	7000	248	31,3	76,9
22	100	0	0	0,06	0,03	0,06	0	7	6	6000	239	21,4	78,4
23	100	0	0	0,12	0,01	0	0,02	12	6	7000	231	28,3	77,2
24	100	0	0	0,04	0	0,02	0,04	12	6	6000	233	16,9	78,3
25	100	0	0,06	0	0,04	0,02	0,04	12	6	7000	245	15,6	77,1
26	100	0	0,02	0,08	0,02	0,10	0	12	6	7000	248	17,5	77,3
27	100	0	0,04	0,06	0	0,04	0,10	12	6	7000	245	16,3	78,0
28	100	10	0,06	0,06	0,08	0	0	12	6	7000	236	16,5	77,9
29	100	10	0,06	0,06	0	0	0,08	7	6	6000	232	28,4	78,3
30	100	20	0,02	0,06	0,06	0	0,06	7	6	6000	239	27,9	77,7
31	100	10	0,06	0	0,04	0,04	0,04	7	6	6000	244	28,1	77,0
32	100	10	0	0,08	0,06	0,02	0,04	7	6	6000	243	29,0	77,1
33	100	0	0,06	0,08	0,03	0,06	0,03	7	6	6000	248	28,1	78,1
Testigo 3	100	10	0,20	0	0	0,02	0,04	7	6	7000	225	28,7	69,0
4	100	10	0,06	0	0	0	0,20	12	6	6000	255	17,3	68,2

5-11-74.



Ejemplo 34

5 Se añadieron diez ml de una solución acuosa de sulfato de estaño al 6,0% y 2 ml de una solución acuosa de sulfato de potasio al 9,0%, a una pasta acuosa que contenía 400 gramos de óxido de plata y agitada a fondo. A la mezcla resultante se añadió 1,8 litros de alundum esférico de 4,8 mm de tamaño de partícula, que tenía diámetros de poro comprendidos entre 20 y 200 micras y una porosidad del 35-45%, seguida por buena agitación de la mezcla. Esto fue seguido por desecación de las partículas de alundum y después de ello por calcinación de las partículas durante 2 horas a 100 -150°C.

15 El catalizador obtenido de este modo se introdujo en un tubo de reacción de acero inoxidable, de 6 metros de largo, que tenía un diámetro interior de 23 mm y se calentó a 250°C mientras se dejaba pasar aire para descomponer la materia orgánica. Los elementos metálicos constituyentes y el número de átomos de este catalizador se indican en la Tabla 3.

20 A continuación, se introdujo en el tubo de reacción anterior una mezcla gaseosa inicial constituida por 12% en volumen de etileno, 6% en volumen de oxígeno, 82% en volumen de un gas inerte tal como el dióxido de carbono o el nitrógeno, y 0,2 ppm de dicloruro de etileno, y se hizo reaccionar a una temperatura

25
5-11-74.



de reacción de 2389C, una presión de reacción de 20 kg/cm², y una velocidad espacial de 6000 hr⁻¹. Después de 240 horas de la reacción se obtuvieron los resultados indicados en la Tabla 3.

5 Ejemplos 35 - 45

Se repitió el Ejemplo 34 en la preparación de catalizadores que tenían diversas combinaciones de los elementos metálicos y número de átomos indicados en la Tabla 3. Los catalizadores así obtenidos fueron
10 usados, y las reacciones fueron llevadas a cabo bajo las condiciones indicadas en la Tabla 3, con los resultados que se muestran.

Testigos 5 - 6

Los experimentos fueron llevados a cabo
15 como en el Ejemplo 34 para obtener catalizadores de diferentes combinaciones de los elementos metálicos y número de átomos, como se indica en la Tabla 3. Estos catalizadores fueron usados para llevar a cabo las reacciones bajo las condiciones mostradas en la Tabla 3,
20 con los resultados indicados.

5-11-74.

Tabla 3

	Elementos metálicos constituyentes del catalizador (Proporciones atómicas)								Etileno (% en vol.)	Oxígeno (% en vol.)	Velocidad espacial (hr ⁻¹)	Temperatura de reacción (°C)	Conversión (%)	Selectividad (%)
	Ag	Ba	Sn	Sb	Tl	K	Cs							
Ejemplo 34	100	0	0,08	0	0	0,06	0	12	6	6000	238	16,3	76,7	
35	100	0	0	0,12	0,08	0	0	12	6	6000	251	16,8	77,9	
36	100	0	0	0,08	0	0,04	0	7	6	6000	237	18,2	78,2	
37	100	0	0,04	0,06	0,04	0	0	7	6	6000	241	28,9	78,1	
38	100	0	0,08	0	0,04	0,02	0	7	6	6000	249	28,1	77,1	
39	100	10	0,06	0,06	0	0,04	0	7	6	7000	228	29,4	76,9	
40	100	50	0,02	0	0,02	0	0,10	7	6	6000	238	29,0	77,0	
41	100	10	0	0,08	0	0,08	0,04	7	6	6000	241	29,0	76,8	
42	100	0	0,02	0,06	0,04	0	0,04	12	6	6000	244	16,8	77,1	
43	100	0	0	0,10	0,04	0,02	0,04	12	6	6000	250	16,8	78,3	
44	100	10	0,06	0,06	0,06	0,02	0	7	6	7000	235	29,1	77,5	
45	100	10	0,06	0,06	0	0,01	0,05	7	6	7000	231	28,7	77,4	
Testigo 5	100	10	0,06	0,06	0	0	0	7	6	7000	221	28,9	73,1	
6	100	0	0	0	0,06	0,04	0	12	6	6000	258	15,8	70,9	

13 NOV 1974



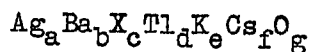
13 NOV 1974

La presente solicitud que corresponde a la presentada en Japón, el 7 de Septiembre de 1973, bajo el Nº 100326/73, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

REIVINDICACIONES

5 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los que se recogen en las reivindicaciones siguientes:

10 1a.- Un procedimiento mejorado para preparar óxido de etileno mediante la oxidación catalítica en fase vapor de etileno con oxígeno molecular, en presencia de un catalizador, en el que la mejora comprende usar como catalizador una composición catalítica cuyos elementos metálicos constituyentes y proporciones atómicas están representados mediante la fórmula general



16 en la que X representa por lo menos un elemento metálico

5-11-74.



10 ABR. 1975

5 co del grupo que consta de estaño y antimonio, a, b, d, e,
f y g son números de átomos de plata, bario, talio, pota-
sio, cesio y oxígeno, respectivamente, y c es la suma del
número de átomos de al menos un elemento metálico del gru-
10 po que consta de estaño y antimonio; y cuando a es 100, b
es un número de 0 a 100, c es un número de 0,001 a 0,15,
d es un número de 0 a 0,1, e es un número de 0 a 0,1, f
es un número de 0 a 0,1, con la condición de que sea sa-
tisfecha la relación $0 < d + e + f \leq 0,3$, y g es un núme-
ro determinado por los requisitos de valencia de los otros
elementos presentes.

2ª.- Un procedimiento según la reivindicación
1ª, que comprende usar como gas de partida una mezcla que
15 consta de 0,5 - 20% en volumen de etileno, 3 - 10% en vo-
lumen de oxígeno, 70 - 96,5% en volumen de un gas inerte
y 0,01 - 10 ppm de un compuesto halogenado, y efectuar la
reacción a una temperatura de 180 - 350°C, una presión de
2-40 kg/cm² y una velocidad espacial de 3000 - 10.000 hr⁻¹.

3ª.- Un procedimiento mejorado para preparar óxi-
20 do de etileno.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que an-
tecede y para los fines que se han especificado.

25

25

10 ABR 1975

Esta Memoria consta de veinticinco hojas escritas a máquina por una sola cara.

5

Madrid,

10 ABR. 1975

P. A.

Fernando de Elzaburu
Por Facer.

3-4-75
jui

- 25 -