

A method for converting C1-C4 alcohols into higher-value hydrocarbon compounds

Citation for published version (APA):

Boot, M. D. (2013). A method for converting C1-C4 alcohols into higher-value hydrocarbon compounds. (Patent No. NL2007067).

Document status and date:

Published: 08/01/2013

Document Version:

Publisher's PDF, also known as Version of Record (includes final page, issue and volume numbers)

Please check the document version of this publication:

- A submitted manuscript is the version of the article upon submission and before peer-review. There can be important differences between the submitted version and the official published version of record. People interested in the research are advised to contact the author for the final version of the publication, or visit the DOI to the publisher's website.
- The final author version and the galley proof are versions of the publication after peer review.
- The final published version features the final layout of the paper including the volume, issue and page numbers.

[Link to publication](#)

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal.

If the publication is distributed under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license above, please follow below link for the End User Agreement:

www.tue.nl/taverne

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us at:

openaccess@tue.nl

providing details and we will investigate your claim.

19



NL Octrooicentrum

11

2007067

12 C OCTROOI

21 Aanvraagnummer: **2007067**

51 Int.Cl.:
C10G 3/00 (2006.01) **C10L 1/182** (2006.01)
C07C 33/22 (2006.01)

22 Aanvraag ingediend: **07.07.2011**

43 Aanvraag gepubliceerd:
-

73 Octrooihouder(s):
Progression-Industry B.V. te Eindhoven.

47 Octrooi verleend:
08.01.2013

72 Uitvinder(s):
Michael Dirk Boot te Veldhoven.

45 Octrooischrift uitgegeven:
16.01.2013

74 Gemachtigde:
Ir. J.M.G. Dohmen c.s. te Eindhoven.

54 **A method for converting C1-C4 alcohols into higher-value hydrocarbon compounds.**

57 The present invention relates to a method for increasing the heating value of C1-C4 alcohols, wherein said method comprises the step of bonding said C1- C4 alcohols to hydrocarbon compounds having a higher heating value than said C1-C4 alcohols resulting in the formation of hydrocarbon bonded alcohols. The present method further relates to the use of the hydrocarbon bonded alcohols thus formed.

NL C 2007067

Dit octrooi is verleend ongeacht het bijgevoegde resultaat van het onderzoek naar de stand van de techniek en schriftelijke opinie. Het octrooischrift komt overeen met de oorspronkelijk ingediende stukken.

Title: A method for converting C1-C4 alcohols into higher-value hydrocarbon compounds.

5

The present invention relates to a method for converting C1-C4 alcohols into higher-value hydrocarbon compounds. In addition, the present method relates to the use of the products thus obtained in several applications, e.g. as octane booster in gasoline fuel or as soot reducing compound in diesel fuel.

10

The present inventor filed WO 2008/088212 and that International application relates to the use of a compound that suppresses the emission of soot particulates in a liquid fuel composition comprising a mixture of hydrocarbons for a compression-ignition engine, wherein that compound is a cyclic hydrocarbon compound whose ring contains at least five carbon atoms, which compound contains

15

at least one oxygen atom.

Known from U.S. Pat. No. 4,378,973 is a diesel fuel composition in which, in order to reduce the emission of soot particulates, is incorporated a mixture of cyclohexane with at least one oxygenated compound, e.g. isobutyl heptyl ketone, acetone, tetrahydrofuran, 1,2-butylene oxide, dimethyl ether, propionaldehyde,

20

ethanol, 2-ethylhexanol or a mixture of primary alcohols containing between 6 and 20 carbon atoms.

25

U.S. Pat. Nos. 6,458,176, 6,447,557 and 6,447,558 disclose a diesel fuel composition in which, in order to reduce the emission of soot particulates, is incorporated an oxygenated compound, e.g. saturated aliphatic monovalent primary, secondary or tertiary alcohols with an average of 9-20 carbon atoms, such as octanol, hexanone, nonanol, stearyl alcohol, in particular ketone compounds containing 5-21 carbon atoms.

30

JP 07 331262 relates to a fuel composition for a diesel engine that is capable of reducing particulate substances contained in the black smoke emitted to the atmosphere, which composition comprises an oxygenated compound such as a derivative of a carboxylic ester, a glycol ether or glycol ester or an oxygenated heterocyclic compound, the cyclic compound's ring structure consisting of four carbon atoms and two oxygen atoms, the oxygen atoms being separated from one

another by one or two carbon atoms.

U.S. Pat. No. 3,594,138 relates to a liquid fuel composition comprising a Group II-A metal salt of an alkanolic acid and an alkyl ether of glycol with 3 to 10 carbon atoms, which metal salt is present in an amount of about 0.01 to 2
5 wt.%, relative to the total weight of the fuel mixture. Barium, strontium and calcium are mentioned as suitable metals.

U.S. Pat. No. 5,931,977 relates to a compound intended for use as an additive for a diesel fuel, the additive containing 30-55% alcohol, 25-35% ketone compounds and 3-10% silicon compounds, the alcohol consisting of methanol,
10 n-butanol and benzyl alcohol, and the ketone compound being 20-25% cyclohexanone and 6-10% methyl ethyl ketone.

Korean patent application KR 100 321 477 relates to a fuel composition that contains 1,3-dioxane derivatives for the purpose of the removal of particulates emitted by a diesel engine. The dioxane compounds mentioned in the
15 aforementioned Korean publication can be described as cyclic hexagonal compounds, with the ring structure containing two oxygen atoms and four carbon atoms.

European patent application EP 1 321 502 relates to a diesel fuel composition that contains an additive, notably at least a glycerol acetal, the acetal
20 compounds being characterised by a cyclic compound consisting of five atoms, with the ring structure of the cyclic compound containing two oxygen atoms in addition to three carbon atoms, or a cyclic compound consisting of six atoms, with the ring structure of the cyclic compound containing four carbon atoms in addition to two oxygen atoms.

European patent application EP 1 188 812 relates to a diesel fuel that contains a tetrahydrofurfuryl derivative that is characterised by a cyclic
25 compound whose ring structure contains an oxygen atom in addition to four carbon atoms..

Known from International application WO 01/18155 is a fuel
30 composition, between 5 and 100% of which consists of a group of nine oxygen-containing organic compounds, which fuel composition must always contain at least four different oxygen-containing functional groups chosen from the aforementioned group of nine members, which groups must be divided between at

least two different oxygen-containing compounds.

European patent application EP 0 905 217 relates to an unleaded gasoline for a gasoline engine that contains an oxygen-containing compound with 2-15 carbon atoms, with butyl lactone being mentioned as the oxygen-containing compound.

International application WO 95/20637 relates to a very broad, generally defined hydrocarbon composition, but it is not unambiguously specified what compounds are to be regarded as essential components.

International application WO 01/53437 relates to a method of reducing the vapour pressure of a fuel mixture for spark-ignition engines, notably gasoline engines, according to which an oxygen-containing compound is added to the fuel in an amount of at least 0.05 vol.% of the total fuel mixture.

The present inventor noticed that C1-C4 (bio-) alcohols have a relatively high O₂ content and therefore low energy density. Due to their short chain, low molecular weight and high polarity, blending with conventional fossil fuels is complicated and potentially expensive (e.g. need for additives to secure prolonged blend stability). Another aspect is their low flashpoint and poor lubricity properties which complicates use in jet fuel and diesel engines, respectively. Furthermore, a high propensity to attract water, which may lead to corrosion of metallic engine/tank parts and/or may promote bacterial growth.

The aim of the present invention is therefore to provide a method for converting C1-C4 (bio) alcohols to higher value hydrocarbon compounds.

Another aim of the present invention is to provide several applications for the hydrocarbon products thus obtained.

The present invention is characterised by the characterizing portion of claim 1. Preferred embodiments have been disclosed in the sub claims.

One or more of the aforementioned aims can be met by using the present method for increasing the heating value of C1-C4 alcohols, wherein the method comprises the step of bonding said C1- C4 alcohols to hydrocarbon compounds having a higher heating value than said C1-C4 alcohols resulting in the formation of hydrocarbon bonded alcohols. The present inventors found that adding a cyclic molecule to the C1-C4 alcohols results in the formation of hydrocarbon compounds having a lower reactivity, better mixing properties, better lubricity,

amongst others.

By bonding the C1-C4 (bio-) alcohols to aromatic or naphthenic hydrocarbon produced from fossil (e.g. oil, coal) and/or bio (e.g. lignin, cellulose) feedstock the resulting hydrocarbon compounds, also called cyclic oxygenates, show an improved performance. Examples thereof are as follows: a higher energy density, a better match for fossil fuel with respect to molecular structure and polarity, better lubricating properties and a higher flashpoint. In addition the products obtained by the present method provide requisite swell and lubrication properties for jet fuel and diesel fuel, respectively. Furthermore, the hydrocarbon products obtained have a lower propensity towards water attraction. The aforementioned properties are compared against the original C1-C4 (bio)alcohols as starting materials.

Apart from favorable behavior in engines, the present cyclic oxygenates can also be used as anti-microbial agents (e.g. as enabler for biodiesel) and, mainly the aromatic oxygenates, as building blocks for phenolic-based polymers and/or directly as odorant, aroma, fragrance and/or flavor agent in cosmetics and/or food and beverage industry. The C1-C4 alcohols are currently produced on a large scale from biomass, mainly from sugar (1st generation biomass), but increasingly also from cellulose (2nd generation biomass). The C1-C4 alcohols to be used in the present method can also originate from synthetic methods, e.g. gas-, coal-, biomass-to-liquid- or via synthetic photo-synthesis direct from sunlight processes. Examples of engines are combustion engines, e.g. compression-ignition (CI), spark-ignition (SI), jet turbines, or burners, e.g. domestic for heating.

Aromatic and/or naphthenic rings are abundantly present fossil feedstocks such as oil and coal.

The present hydrocarbon compound suppressing the emission of soot particulates must be soluble in the liquid fuel composition. It is also desirable for the cyclic hydrocarbon compound to show boiling behaviour that is comparable with that of the fuel composition in which the compound is dissolved. The following can be mentioned as suitable liquid fuel compositions in which the present cyclic hydrocarbon compound can be used: diesel fuel, jet fuel, kerosine, gasoline, bunker fuel and mixtures hereof. Synthetic or Fischer-Tropsch fuels can also be mentioned as liquid fuel compositions, and also vegetable oils and so-termed biofuels.

The liquid fuel composition according to the present invention may

contain one or more of the usual additives, such as agents affecting flow at low temperatures, agents suppressing the precipitation of waxy components, stabilisers, antioxidants, agents for improving the cetane number, agents for promoting combustion, detergents, defoaming agents, lubricants, antifoaming agents, antistatic agents, agents for promoting conductivity, corrosion-suppressing agents, fragrances, pigments, friction-reducing agents and the like. The additives commonly used to reduce the emission of nitrogen oxides may also be used in the present liquid fuel.

The present invention relates to the application of the hydrocarbon bonded alcohols obtained according to the present invention as fuel, either in neat form or blended to other fuels, in combustion engines (e.g. compression-ignition, spark-ignition, jet turbines) or burners (e.g. domestic for heating), as well enhancing compound in jet fuel, as octane booster in gasoline fuel, as soot reducing compound in diesel fuel, as building blocks for phenolic-based polymers, as antimicrobial / preservative / antiseptic agents, as odorant, aroma, fragrance and/or flavor agent in cosmetics (e.g. perfume) and/or food and beverage industry, as solvents (e.g. for inks, paints) or detergents.

The present invention will now be explained by way of examples. These examples are merely illustrative for the invention and should not be interpreted as a limitation to the scope of protection.

The sole figure shows the effect of the percentage addition (vol.%) on the soot reduction (%).

Example 1: Conversion of ethanol (=C2 alcohol) to 2-phenylethanol

In a first step: converting ethanol in to ethylene oxide according to the method disclosed in *Catalysis Today, Volume 154, Issues 1-2, 1 September 2010, Pages 127-132.*

And in a second step 2: bonding ethylene oxide of step (1) and benzene in to 2-phenyl ethanol according to the method disclosed in *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical Volume 239, Issues 1-2, 14 September 2005, Pages 215-221.* The heating value of ethanol as starting material and the resulting benzene is approximately 22.8 MJ/liter and 35.2 MJ/liter respectively.

A preferred application of 2-phenylethanol is as perfume ingredient, as antimicrobial compound, or as soot reducing compound in diesel fuel:

Example 2: Conversion of methanol (= C1 alcohol) to benzyl alcohol

The method comprise the steps of converting methanol as starting material in to formaldehyde according to the method disclosed in *Ind. Eng. Chem., 1952, 44 (7), pp 1508–1518.* The thus obtained formaldehyde is reacted with benzene in to benzyl alcohol according to the method disclosed in *Journal of Catalysis Volume 184, Issue 1, 15 May 1999, Pages 294-297.* The heating value of methanol and benzene is approximately 15.78 MJ/liter and 35.2 MJ/liter respectively.

A preferred application of benzyl alcohol is as preservative in personal care products, or as detergent.

Example 3. The use of 2-phenylalcohol as s soot reducing compound on Mercedes 300 SD

Over the last decades vehicles have already become cleaner and more efficient. However, soot (and NO_x) emissions are still a problem in diesel vehicles. For short-term improvements, research is performed on the optimal fuel for diesel engines. Herein is found that a lower cetane number and oxygen atoms in the molecule are favourable for reducing soot emissions. One such a fuel is 2-phenylethanol.

A Mercedes-Benz 300 SD test vehicle is used on a chassis dynamometer. This vehicle has a 5 cylinder, turbocharged 3.0L engine with an

automatic gearbox. Before the experiments, the engine is warmed up to operating temperature.

Subsequently, first measurements are performed with commercially available diesel. Thereafter, the fuel was replaced by a mixture of 2-phenylethanol and diesel, 10/90 and 25/75 volume percent respectively. The measurements were performed under constant loads: Idling in neutral, idling in drive, 50, 80 and 120 km/h. The soot reduction of the blends are shown in the figure.

In the sole figure can be seen that by an addition of 10% of 2-phenylethanol the soot emissions drop with 15-25% under idling conditions. At higher loads the soot reductions are between 35 and 43%. With 25% of 2-phenylethanol the soot reduction is approximately 35% in all conditions.

It can be concluded that the lower cetane number and available oxygen in 2-phenylethanol results in a reduction of soot emissions. This can be seen under all conditions. However, it is striking that when adding 10% of 2-phenylethanol the soot emission is drastically reduced up to 43% and when 25% 2-phenylethanol is added the emissions stays almost constant to that of the 10% addition.

CONCLUSIES

1. Werkwijze voor het verhogen van de energiewaarde van C1-C4-alcoholen, met het kenmerk, dat de werkwijze de stappen omvat van het binden van
5 voornoemde C1-C4-alcoholen aan koolwaterstofverbindingen voorzien van een hogere energiewaarde dan voornoemde C1-C4-alcoholen, resulterend in de vorming van koolwaterstof gebonden alcoholen.
2. Werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de koolwaterstofverbindingen worden gekozen uit de groep van nafteenachtige en
10 aromatische verbindingen, of mengsels hiervan.
3. Werkwijze volgens conclusie 2, met het kenmerk, dat de koolwaterstofverbinding benzeen is.
4. Werkwijze volgens conclusie 2, met het kenmerk, dat de koolwaterstofverbinding cyclohexaan is.
- 15 5. Werkwijze volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de C1-C4-alcoholen afkomstig zijn van bio gebaseerde alcohol.
6. Werkwijze volgens een of meer van de conclusies 1-4, met het kenmerk, dat de C1-C4-alcoholen afkomstig zijn op fossiele brandstof gebaseerde alcoholen.
- 20 7. Werkwijze volgens een of meer van de conclusies 1-4, met het kenmerk, dat de C1-C4-alcoholen zijn verkregen door een synthetische route, gekozen uit de groep van gas-, kolen-, biomassa-in-vloeistof-, of via synthetische fotosynthese direct uit zonlichtprocessen.
- 25 8. Toepassing van een verbinding verkregen volgens de werkwijze volgens een of meer van de voorgaande conclusies in mengsel met een dieselbrandstof voor het onderdrukken van de uitstoot van roetdeeltjes in een compressie-ontstekingsmotor onder toepassing van voornoemde brandstof.
9. Toepassing van een verbinding verkregen volgens de werkwijze volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-7 in mengsel met een
30 vliegtuigbrandstof als geur verbeterende verbinding.
10. Toepassing van een verbinding verkregen volgens de werkwijze volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-7 in mengsel met een benzinebrandstof voor het verhogen van het octaangetal van voornoemde brandstof.
11. Toepassing van een verbinding verkregen volgens de werkwijze

2007067

volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-7 als bouwsteen voor op fenol gebaseerde polymeren.

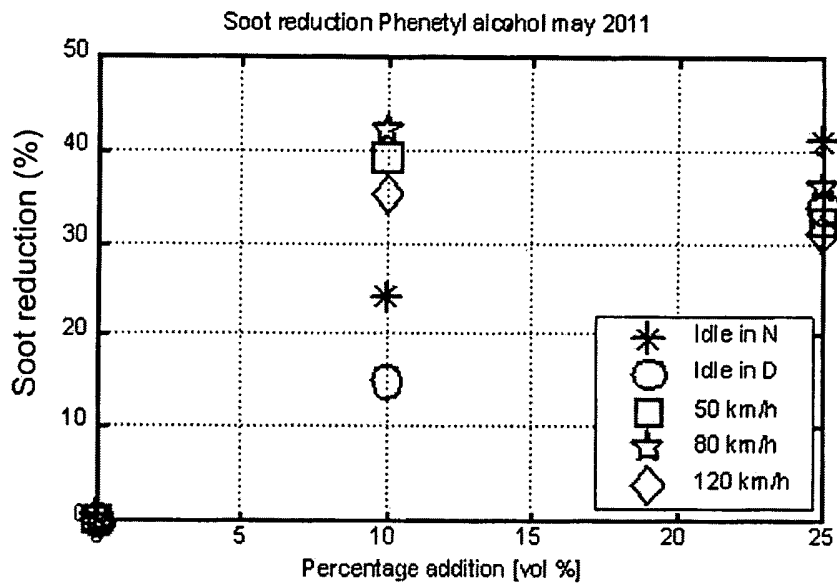
12. Toepassing van een verbinding verkregen volgens de werkwijze volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-7 als antimicrobeel middel.

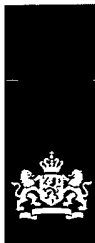
5 13. Toepassing van een verbinding verkregen volgens de werkwijze volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-7 als geurmiddel.

14. Toepassing van een verbinding verkregen volgens de werkwijze volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-7 als oplosmiddel.

10

Fig.





RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK
Octrooiaanvraag 2007067

Classificatie van het onderwerp ¹ : C10G3/00, C10L1/182, C07C33/22	Onderzochte gebieden van de techniek ¹ : C10G, C07C, C10L
Computerbestanden: EPODOC, WPI	Omvang van het onderzoek: niet volledig
Datum van de onderzochte conclusies:	Niet onderzochte conclusies ² : 8-14 (niet eenheid van uitvinding)

Van belang zijnde literatuur

Categorie ³	Vermelding van literatuur met aanduiding, voor zover nodig, van speciaal van belang zijnde tekstgedeelten of figuren.	Van belang voor conclusie(s) nr.:
X	US5104504 A (AGENCY IND SCIENCE TECHN) , 14 april 1992 * abstract, voorbeeld 1 *	1-7

Y, D	I. Kirm, F. Medina, X. Rodríguez, Y. Cesteros, P. Salagre, J.E. Sueiras, Preparation of 2-phenylethanol by catalytic selective hydrogenation of styrene oxide using palladium catalysts, Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, Volume 239, Issues 1-2, 14 September 2005, Pages 215-221, ISSN 1381-1169, DOI:10.1016/j.molcata.2005.06.032 * inleiding *	1-7

Y, D	M.J. Lippits, B.E. Nieuwenhuys, Direct conversion of ethanol into ethylene oxide on copper and silver nanoparticles: Effect of addition of CeOx and Li2O, Catalysis Today, Volume 154, Issues 1-2, 1 September 2010, Pages 127-132, ISSN 0920-5861, DOI: 10.1016/j.cattod.2010.03.019 * abstract *	1-3, 4-7

Y	GB 354992 A (IG FARBENINDUSTRIE), 20 augustus 1931 * het gehele document *	1-7
Datum waarop het onderzoek werd voltooid: 11 januari 2011		De bevoegde ambtenaar: Dr. M.W. de Lange NL Octrooiencentrum

>> Als het gaat om octrooien

¹ Gedefinieerd volgens International Patent Classification (IPC).

² Voor motivering zie toelichting in de schriftelijke opinie.

³ Verklaring van de categorie-aanduiding: zie apart blad.

Categorie van de vermelde literatuur:

- X: op zichzelf van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- Y: in samenhang met andere geciteerde literatuur van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- A: niet tot de categorie X of Y behorende van belang zijnde stand van de techniek
- O: verwijzend naar niet op schrift gestelde stand van de techniek
- P: literatuur gepubliceerd tussen voorrrangs- en indieningsdatum
- T: niet tijdig gepubliceerde literatuur over theorie of principe ten grondslag liggend aan de uitvinding
- E: octrooiliteratuur gepubliceerd op of na de indieningsdatum van de onderhavige aanvraag en waarvan de indieningsdatum of de voorrrangsdatum ligt voor de indieningsdatum van de onderhavige aanvraag.
- D: in de aanvraag genoemd
- L: om andere redenen vermelde literatuur
- &: lid van dezelfde octrooifamilie; corresponderende literatuur

AANHANGSEL BEHORENDE BIJ HET RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK, UITGEVOERD IN OCTROOIAANVRAGE NR. 2007067

Het aanhangsel bevat een opgave van elders gepubliceerde octrooiaanvragen of octrooien (zogenaamde leden van dezelfde octroofamilie), die overeenkomen met octrooigeschriften genoemd in het rapport. De opgave is samengesteld aan de hand van gegevens uit het computerbestand van het Europees Octrooibureau per 30 januari 2012

De juistheid en volledigheid van deze opgave wordt noch door het Europees Octrooibureau, noch door NL Octrooicentrum gegarandeerd; de gegevens worden verstrekt voor informatiedoeleinden.

In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)		datum van publicatie
US5104504	A	1992-04-14	JP3109338	A	1991-05-09
GB354992	A	1931-08-20			

SCHRIFTELIJKE OPINIE
Octrooiaanvraag 2007067

Indieningsdatum:
7 juli 2011

Voorrangsdatum:

Classificatie van het onderwerp¹:
C10G3/00, C10L1/182, C07C33/22

Aanvrager:
Progression-Industry B.V.

Deze schriftelijke opinie bevat een toelichting op de volgende onderdelen:

- Onderdeel I Basis van de schriftelijke opinie
- Onderdeel II Voorrang
- Onderdeel III Vaststelling nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid niet mogelijk
- Onderdeel IV De aanvraag heeft betrekking op meer dan één uitvinding
- Onderdeel V Gemotiveerde verklaring ten aanzien van nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid
- Onderdeel VI Andere geciteerde documenten
- Onderdeel VII Overige gebreken
- Onderdeel VIII Overige opmerkingen

De bevoegde ambtenaar:

Dr. M.W. de Lange

NL Octrooiencentrum

¹ Gedefinieerd volgens International Patent Classification (IPC).

Onderdeel I Basis van de schriftelijke opinie

Deze schriftelijke opinie is opgesteld op basis van de meest recente conclusies ingediend voor aanvang van het onderzoek.

Onderdeel IV De aanvraag heeft betrekking op meer dan één uitvinding

Vastgesteld is dat de octrooiaanvraag betrekking heeft op meer dan één uitvinding.

Wat de conclusies gemeenschappelijk hebben zijn de volgens conclusie 1 verkregen koolwaterstof gebonden alcoholen. Deze zijn echter niet nieuw (zie onderdeel V). Daarom kunnen de volgende verschillende uitvindingen worden onderscheiden:

- 1) Werkwijze voor de vorming van koolwaterstof gebonden alcoholen volgens conclusies 1-7.
- 2) Toepassing van koolwaterstof gebonden alcoholen voor het onderdrukken van de uitstoot van roetdeeltjes in een compressie-ontstekingsmotor volgens conclusie 8.
- 3) Toepassing van koolwaterstof gebonden alcoholen in mengsel met een vliegtuigbrandstof als geur verbeterende verbinding volgens conclusie 9.
- 4) Toepassing van koolwaterstof gebonden alcoholen in mengsel met een benzinebrandstof voor het verhogen van het octaangetal volgens conclusie 10.
- 5) Toepassing van koolwaterstof gebonden alcoholen als bouwsteen voor op fenol gebaseerde polymeren volgens conclusie 11.
- 6) Toepassing van koolwaterstof gebonden als antimicrobieel middel volgens conclusie 12.
- 7) Toepassing van koolwaterstof gebonden alcoholen als geurmiddel volgens conclusie 13.
- 8) Toepassing van koolwaterstof gebonden alcoholen als oplosmiddel volgens conclusie 14.

Het onderzoek naar de stand van de techniek is beperkt tot de eerstgenoemde uitvinding in de conclusies en betreft conclusies 1-7.

Onderdeel V Gemotiveerde verklaring ten aanzien van nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid

1. Verklaring

Nieuwheid	Ja:	Conclusies	4-7
	Nee:	Conclusies	1-3
Inventiviteit	Ja:	Conclusies	
	Nee:	Conclusies	4-7
Industriële toepasbaarheid	Ja:	Conclusies	1-7
	Nee:	Conclusies	

2. Literatuur en toelichting

Schriftelijke Opinie

Octrooiaanvraag **2007067**

Conclusie 1 is niet duidelijk: Er staat dat de werkwijze stappen (meervoud) omvat maar er wordt er maar een genoemd: Het binden van de C1-C4 alcoholen aan koolwaterstofverbindingen.

Bovendien blijkt uit de voorbeelden in de beschrijving dat het niet de C1-C4 alcoholen zijn die binden aan koolwaterstofverbindingen maar afgeleiden van deze alcoholen (ethyleenoxide, formaldehyde). Dezerzijds is maar aangenomen dat men beoogd heeft brede bescherming te verkrijgen met een conclusie die zowel de direct als de indirecte omzetting van C1-C4 alcoholen naar koolwaterstof gebonden alcoholen omvat.

D1 = US5104504 A (AGENCY IND SCIENCE TECHN) , 14 april 1992

D2 = I. Kirm, F. Medina, X. Rodríguez, Y. Cesteros, P. Salagre, J.E. Sueiras, Preparation of 2-phenylethanol by catalytic selective hydrogenation of styrene oxide using palladium catalysts, Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, Volume 239, Issues 1–2, 14 September 2005, Pages 215-221, ISSN 1381-1169, DOI:10.1016/j.molcata.2005.06.032

D3 = M.J. Lippits, B.E. Nieuwenhuys, Direct conversion of ethanol into ethylene oxide on copper and silver nanoparticles: Effect of addition of CeO_x and Li₂O, Catalysis Today, Volume 154, Issues 1–2, 1 September 2010, Pages 127-132, ISSN 0920-5861, DOI: 10.1016/j.cattod.2010.03.019

D4 = GB 354992 A (IG FARBENINDUSTRIE), 20 augustus 1931

Uit D1 is bekend een werkwijze voor het vormen van koolwaterstof gebonden alcoholen uit alifatische alcoholen met tot 10 koolstofatomen en een niet-olefinische koolwaterstofverbinding, in het bijzonder de vorming van benzylalcohol uit isopropylalcohol en benzeen. Zie het abstract, voorbeeld 1. Conclusies 1-3 zijn niet nieuw in het licht van D1.

Conclusie 4 ligt binnen het bereik van de vakman omdat cyclohexaan een voor de hand liggende keuze is uit de uit D1 bekende groep van niet-olefinische koolwaterstofverbindingen. Conclusies 5-7 zijn voor de vakman niet bijzonder. Deze conclusies zijn daarom niet inventief.

Ten overvloede worden D2 en D3, genoemd in de aanvraag, en D4 besproken. Uit D2 is bekend een werkwijze voor de vorming van 2-phenylethanol uit benzeen en ethyleenoxide. Overigens noemt D2 niet meer in de inleiding dan dat 2-phenylethanol uit benzeen en ethyleenoxide middels Friedel-Craftsynthese kan worden bereid en is D2 voor het overige geheel gewijd aan een andere reactie, de hydrogenering van styreenoxide. Dit Friedel-Craftsproces is de traditionele methode voor de bereiding van 2-phenylethanol uit benzeen en ethyleenoxide, terug te vinden in handboeken en geoctrooieerd in de jaren '30, zie D4 (voorbeeld 1). Uit D2 en D4 is niet bekend de vorming van ethyleenoxide uit ethanol. Het objectieve probleem dat, conform de in het octrooirecht gebruikelijke 'problem-solution approach', kan worden geformuleerd is: Het verkrijgen van ethyleenoxide. De vakman die in zijn vakliteratuur zoekt naar een proces voor de vorming van ethyleenoxide zal stuiten op D3, waaruit bekend is de vorming van ethyleenoxide uit ethanol. De oplossing voor het probleem ligt daarom voor de hand. Conclusies 1-3 zijn daarom niet inventief in

Schriftelijke Opinie

Octrooiaanvraag **2007067**

het licht van D2 of D4 in combinatie met D3. Conclusie 4 is niet inventief omdat D4 ook noemt dat het proces toepasbaar is op cyclohexaan (blz.1 regel 26).