

Industria y Comercio
SUPERINTENDENCIA

Delegatura de propiedad Industrial
División de Nuevas Creaciones

PCT
SOLICITUD
PATENTE DE INVENCION

21. EXPEDIENTE No.

05-128932

54. TÍTULO

*PROCESO PARA LA PREPARACION DE CAPROLACTAMA POR MEZCLA DE
CICLOHEXANONA OXIMA A UNA MEZCLA DE REACCION.*

51. CLASIFICACIÓN INTERNACIONAL

C 07 D 201/04

71. SOLICITANTE

DSM IP Assets B.V.

DOMICILIO

HEERLEN, HOLANDA.

74. APODERADO

JIMENA ESCOBAR URIBE

22. BOGOTÁ, D. C., **Dic. 22-2005**



FORMULARIO ÚNICO DE SOLICITUD DE PATENTE
PCT
ENTRADA EN FASE NACIONAL

SOLICITUD DE:

☒

Patente de Invención

☐

Patente de Modelo de Utilidad

☒

Capítulo I

☐

Capítulo II

2
SOLICITANTE
(71)

Nombre **DSM IP Assets B.V.**
Dirección **Het Overloon 1, NL-6411 TE,
Heerlen, Holanda**
Nacionalidad o Domicilio **Heerlen, Holanda**
Lugar de Constitución **Holanda**
Teléfono **Fax**
E-mail

IDENTIFICACIÓN

C C

☐

NIT

☐

C.E.

☐

Otro

☐

Número

3
REPRESENTANTE
O APODERADO
(74)

Nombre **JIMENA ESCOBAR URIBE**
Dirección **Cra 11A No 94-76 (Of 305)**
Teléfono **6 162051/61 Fax 6 161889**
E-mail **tm-patent@escobaruribe.com**

IDENTIFICACIÓN

C C

☒

NIT

☐

C E

☐

Otro

☐

Numero 39 779 452 T P 68228

4
INVENTOR (ES)
(72)

Nombre **VER ANEXOS**
Dirección
Nacionalidad o domicilio

5
PCT (86)

Solicitud Internacional No. **PCT/EP2004/005338** Fecha **17 de mayo de 2004**

Publicación Internacional No. **WO 2004/113287 A1** Fecha **29 de diciembre de 2004**

6 TÍTULO (54) **PROCESO PARA LA PREPARACIÓN DE CAPROLACTAMA POR MEZCLA DE
CICLOHEXANONA OXIMA A UNA MEZCLA DE REACCIÓN**

7 Clasificación Internacional (51) **C07D 201/04**

8 Prioridad

SI ☒ NO ☐

(33) País de Origen

Oficina de Patentes Europea
Oficina de Patentes Europea
Oficina de Patentes Europea
Oficina de Patentes Europea
" " " "

(32) Fecha

23 de mayo de 2003
23 de mayo de 2003
23 de mayo de 2003
23 de mayo de 2003

(31) Numero de Solicitud

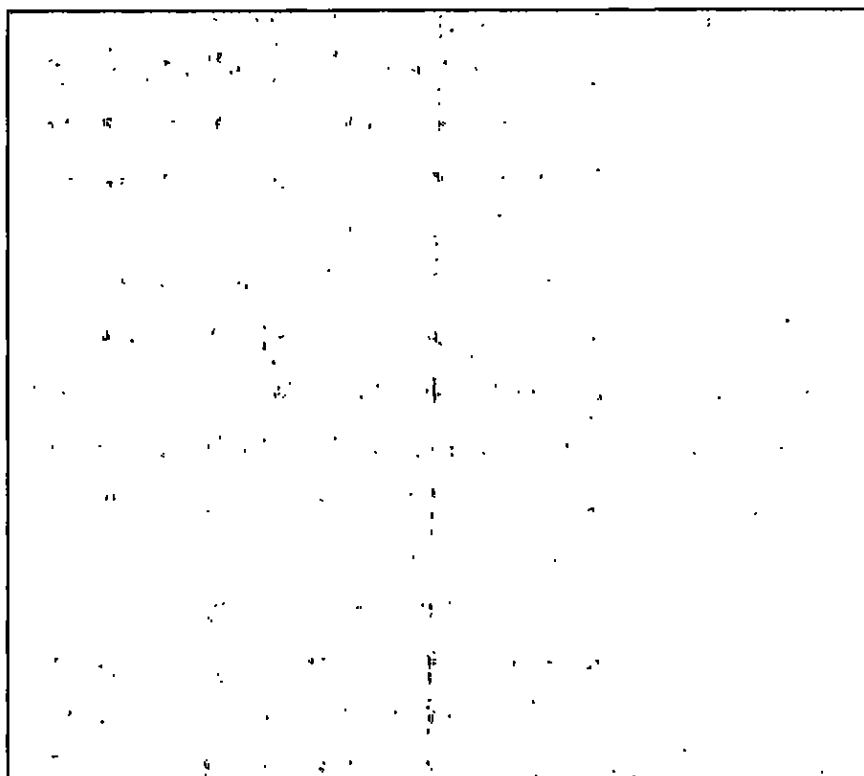
03076590 3
03076591 1
03076589 5
03076592 9

9 Comprobante de pago No. **05-92071**

Fecha **02 de diciembre de 2005**

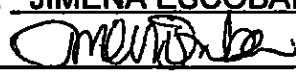
- ☐ Comprobante de pago de la tasa de presentación de la solicitud
- ☐ Documento que acredita la existencia y representación legal cuando el solicitante sea persona jurídica
- ☐ Poderes si fuere el caso
- ☐ Documento de cesión del inventor al solicitante o a su causante
- ☐ Declaraciones
- ☐ Copia de la solicitud internacional. (Resumen, descripción, reivindicaciones, dibujos)
- ☐ Traducción de la solicitud internacional al castellano. (Resumen, descripción, reivindicaciones, dibujos)
- ☐ Copia del examen preliminar internacional efectuado por la Autoridad Internacional de Examen Preliminar (IPEA).
- ☐ Traducción del examen preliminar internacional efectuado por la IPEA
- ☐ De ser el caso copia de contrato de acceso.
- ☐ De ser el caso, documento que acredite la licencia o autorización de uso de conocimientos tradicionales de las comunidades indígenas
- ☐ De ser el caso, certificado de depósito del material biológico
- ☐ Arte final 12 X 12 .
- ☐ De ser el caso, información sobre otras solicitudes de patente o títulos obtenidos en el extranjero por el mismo titular o su causante, relacionadas parcial o totalmente con la invención de esta solicitud.
- ☐ De ser el caso, modificaciones efectuadas a la solicitud internacional
- ☐ Otros "Opinión escrita".

11 FIGURA CARACTERÍSTICA



12 Solicito la concesión de la patente

NOMBRE: JIMENA ESCOBAR URIBE

FIRMA: 

C.C. 39.779.452 DE Usaquén T.P. 68.228

As. 2906/PCT

SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO
 Radicacion : 05128932 00000000 Folios: 69
 Fecha (AMB): 2005-12-22 14:19:45
 Trámite : 011 PCT-PATENT 379 FASE NACI 411 PRESENTAC
 Dependencia: 2020 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

SUPERINTENDENCIA DE INDUSTRIA Y COMERCIO

NIT : 800176089-2

RECIBO OFICIAL DE CAJA : 05 - 92,071
 FECHA : DICIEMBRE 2 DE 2005

***** CONSIGNACION *****

DEPOSITANTE	TIPO PAGO	BANCO	CUENTA	No. PAGO	FECHA PAGO	Vr. PAGO
ESCOBAR URIBE ASOCIADOS	CONSIGNACION	BANCO POPULAR	050-00110-6	42211424	02/12/2005	8,462,000.00

***** CONCEPTO *****

CANT.	RENTISTICO	CONCEPTO	TOTAL CONCEPTO
1	50005-01-01 SOLICITUDES	1 TRAMITES DE SOL. DE PATENTE DE IN	443,000.00
		TOTAL.:	\$ 443,000.00

SON: CUATROCIENTOS CUARENTA Y TRES MIL PESOS

RESPONSABLE : _____

RECIBO DE CAJA APLICADO AL EXPEDIENTE No. _____

POWER OF ATTORNEY

The undersigned
acting on behalf of and representing
DSM IP ASSETS B.V.

domiciled at **Het Overloon 1, 6411 TE Heerlen, The Netherlands**

hereby appoints

JIMENA ESCOBAR-URIBE and/or IGNACIO ESCOBAR-URIBE

domiciled at **Bogota, Colombia**

CARRERA 11 A No. 94-76 OF. 305-306

as our true and legal attorneys with the necessary powers: 1. to apply to the administrative, judicial and police authorities of the Republic of Colombia, in any instance or appeal, for obtaining registration of patents, utility models, industrial designs, commercial ensigns and names, trademarks, domain names, copyrights and neighbouring rights, plant varieties, health licenses as well as their assignments, extensions, renewals, changes of name and domicile; 2. to prepare, apply for, obtain, execute and register contracts, licenses, authorizations and registrations of any kind; 3. to intervene as plaintiffs or defendants, in any instance or appeal, before any judge, court, tribunal, corporation, public officer or authority in any judicial, administrative or police action, such as: actions dealing with commercial ensigns and names; oppositions against trademark registrations; caducity and nullity actions; recovery actions, actions arising from obtainment and working of license agreements; actions dealing with unfair competition; criminal actions; actions claiming indemnity for damages, complaints or remarks on all sort of industrial property matters; the performance of precautionary measures, and in any other similar action, measure or appeal related to industrial property matters, copyrights and neighbouring rights and obtentor of plant varieties rights. To this effect, we hereby authorize them to file applications, make descriptions, amendments, protests, declarations, oppositions, cancellations, appeals and claims; to pay taxes, quotas and liens as provided by law; to waive or abandon granted rights or rights in process of being granted, to receive all kind of documents and securities; to issue the respective releases and, in general to take, before said authorities, pertinent steps to the above-mentioned purposes and take all measures they may deem advisable to protect our interests, with all other necessary legal faculties, and we hereby declare as good and valid whatever the attorneys should do to our benefit.

This power comprises the authority to ratify or confirm on our behalf any action, as well as the faculty of receiving, desisting, transacting, compromising, conciliating, substituting and revoking substitutions, taking notifications and appointing judicial or extra-judicial attorneys.

Signed at Heerlen
on 27 May 2003


Emil Rudolf Antonius MATULEWICZ, proxy-holder

DOCUMENTO DE PODER

El suscrito
obrando en nombre y representación de con
DSM IP ASSETS B.V.

domicilio en **Het Overloon 1, 6411 TE Heerlen, Holanda**

nombra a

JIMENA ESCOBAR-URIBE y/o IGNACIO ESCOBAR-URIBE

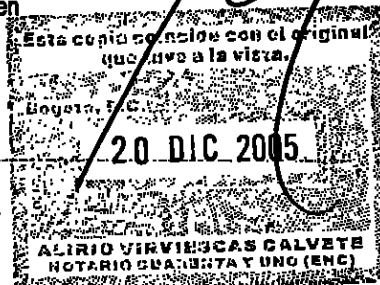
domiciliados en **Bogotá, Colombia**

CARRERA 11 A No. 94-76 OF. 305-306

apoderados verdaderos y legales con poder especial, amplio y suficiente: 1. para recabar de las oficinas y autoridades colombianas administrativas, judiciales y de policía en cualquier instancia o recurso, la obtención de patentes de invención, modelos de utilidad, diseños industriales, registro de marcas, nombres de dominio, registro de derechos de autor y derechos conexos, registro de variedades vegetales, depósito de nombres comerciales y enseñas, registros sanitarios, así como sus traspasos, prórrogas, renovaciones, cambios de nombre y de domicilio; 2. elaborar, tramitar, solicitar, obtener, realizar, ejecutar y registrar contratos, licencias, autorizaciones y registros de cualesquiera clase; 3. intervenir como demandante o como demandado en cualquier instancia y recurso, y ante cualquier juez, entidad, corporación, funcionario público o autoridad en acciones judiciales, administrativas y de policía, tales como acciones derivadas del nombre o enseña comerciales; observaciones u oposición al registro de marcas; acciones de caducidad y nulidad; acciones reivindicatorias; acciones derivadas de la obtención o explotación de licencias; acciones de competencia desleal; demandas penales y civiles; acciones de indemnización de perjuicios, reclamos u observaciones a cualquier asunto sobre propiedad industrial; el ejercicio de medidas cautelares y cualesquiera otras acciones, medidas o recursos similares relacionados con la propiedad industrial, los derechos de autor y derechos conexos y los derechos de obtentor de variedades vegetales. A este efecto, los facultamos para elevar solicitudes, formular descripciones, enmiendas, protestas, declaraciones, oposiciones, cancelaciones, apelaciones y reclamos; pagar impuestos, cuotas y gravámenes prescritos por la ley; renunciar o desistir a derechos concedidos o en curso de concesión; recibir toda clase de documentos y valores dando el descargo respectivo, y, en general, para dar ante dichas autoridades todos los pasos necesarios al efecto indicado y tomar todas las medidas que creyeren conducentes al resguardo de nuestros intereses, con todas las demás facultades necesarias y por este documento desde ahora declaramos válido y bueno todo cuanto los apoderados hicieren en nuestro beneficio.

Este poder comprende la facultad de ratificar o confirmar en nuestro nombre lo actuado, así como la facultad de desistir, transigir, comprometer, conciliar, sustituir y revocar sustituciones, recibir notificaciones y nombrar apoderados judiciales o extrajudiciales.

Firmado el Heerlen
en 27 May 2003



I, the undersigned, hereby certify that DSM IP Assets B.V. with full address at Het Overloon 1, 6411 TE Heerlen, The Netherlands, was at the day the foregoing instrument was signed, duly organized, registered and existing under the Laws of The Netherlands, and that Mr. Emil Rudolf Antonius MATULEWICZ, who signed the foregoing instrument, was at that day a lawful representative of the Corporation, and duly authorized to sign the documents relating to trademarks, including this Certificate, Power of Attorney and other documents concerning the recordation of certain rights and changes thereof, on behalf of the Corporation.

Delft, The Netherlands, by me
Izaak Kijlstra, LL.M., Notary,
practising at Delft, The Netherlands



on this 17th day of November 2003

A P O S T I L L E

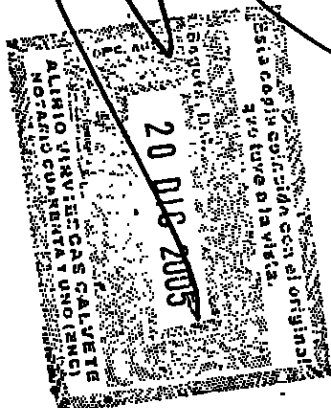
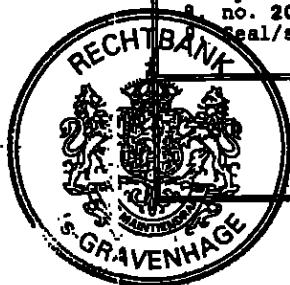
(Convention de La Haye du 5 octobre 1961)

1. Country: THE NETHERLANDS
This public document
2. has been signed by Mr. I. Kijlstra
3. acting in the capacity of notary at Delft
4. bears the seal/stamp of aforesaid notary

Certified

5. at 's-GRAVENHAGE
6. the 21 november 2003
7. by the registrar of the court (rechtbank)
8. no. 2003/3694
9. Seal/stamp:

10. Signature:



BOGOTA D.C. DICIEMBRE 12, 2003

TRADUCCIÓN OFICIAL LEGALIZACIÓN PODER DE
DSM IP ASSETS B.V. A JIMENA ESCOBAR-URIBE y/o IGNACIO ESCOBAR-URIBE

NOTA DE TRADUCCIÓN) SE TRATA DE UN PODER DE FECHA MAYO 27, 2003, CONFERIDO POR DSM IP ASSETS B.V. A JIMENA ESCOBAR-URIBE Y/O IGNACIO ESCOBAR-URIBE. ESTE PODER ESTA EN IDIOMAS INGLES Y CASTELLANO.

YO, EL SUSCRITO CON EL PRESENTE CERTIFICO QUE DSM IP ASSETS B.V. CON DIRECCIÓN COMPLETA EN HET OVERLOON 1, 6411 TE HEERLEN, PAISES BAJOS, ESTABA PARA EL DIA EN QUE EL ANTERIOR INSTRUMENTO FUE FIRMADO, DEBIDAMENTE ORGANIZADA, REGISTRADA Y EXISTIENDO BAJO LAS LEYES DE LOS PAISES BAJOS, Y QUE EL SR. EMIL RUDOLF ANTONIUS MATULEWICZ, QUIEN FIRMO EL ANTERIOR DOCUMENTO, ERA EN ESE DIA EL REPRESENTANTE LEGAL DE LA CORPORACIÓN, Y DEBIDAMENTE AUTORIZADO PARA FIRMAR LOS DOCUMENTOS RELACIONADOS CON NOMBRES COMERCIALES, INCLUYENDO ESTE CERTIFICADO, PODER, Y OTROS DOCUMENTOS CONCERNIENTES AL REGISTRO DE CIERTOS DERECHOS Y CAMBIOS EN LOS MISMOS, EN NOMBRE DE LA CORPORACIÓN.

DELFT, PAISES BAJOS, POR MI,
ISAAC KIJLSTRA, LL.M. NOTARIO
EJERCIENDO EN DELFT, LOS PAISES BAJOS

HOY NOVIEMBRE 17, 2003
(SELLO) Mr. I. KIJLSTRA, NOTARIO DELFT.

APOSTILLE

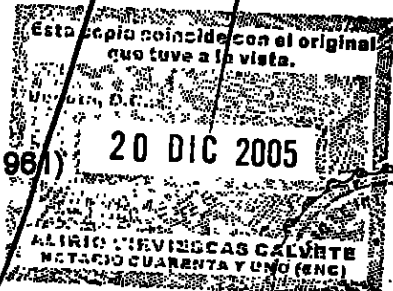
(Convención de la Haya, Octubre 5, 1961)

1. PAIS: LOS PAISES BAJOS

ESTE DOCUMENTO PUBLICO

2. HA SIDO FIRMADO POR MR. I. KIJLSTRA

3. ACTUANDO EN SU CALIDAD DE NOTARIO EN DELFT



5

02. CONT. TRADUCCIÓN OFICIAL LEGALIZACIÓN PODER DE
DSM IP ASSETS B.V. A JIMENA ESCOBAR-URIBE y/o IGNACIO ESCOBAR-URIBE

4. LLEVA EL SELLO/ESTAMPILLA DEL MENCIONADO NOTARIO
CERTIFICADO

5. EN 'S-GRAVENHAGE.

6. EL 21 NOVIEMBRE 2003

7. POR EL REGISTRADOR DE LA CORTE (RECHTBANK)

8. NR. 2003/3694

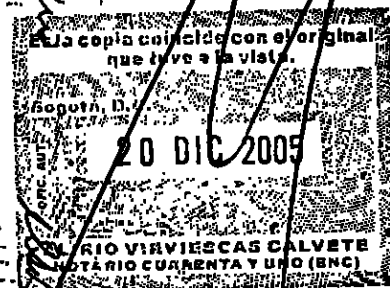
10. FIRMA (HAY UNA FIRMA)

(SELLO) RECHTBANK, 'S-GRAVENHAGE

Fidel Murcia
FIDEL ANTONIO MURCIA MURCIA

Traductor e Interprete Oficial

Resolución No. 488/94 Ministerio de Justicia



ANEXOS

INVENTORES

1.) **SMEETS, Theodorus, Maria**
(Burgemeester Eussenstraat 6, Holanda-6181 BP Elslloo, Holanda);
2.) **LEMMENS, Joannes, Albertus, Wilhelmus**
(Willem II Singel 70, Holanda-6041 HV Roermond, Holanda);
3.) **MOSTERT, Frank**
(Meendaal 71, Holanda-6228 GG Maastricht, Holanda);
4.) **CHENG, Peter, Wei-Hae**
(1208 Glenwood Drive, Augusta, Georgia 30904, Estados Unidos de América).

Solicito expresamente a nombre de la sociedad **DSM IP Assets B.V.**, sociedad constituida de conformidad con las leyes de Holanda, domiciliada en Het Overloon 1, NL-6411 TE, Heerlen, Holanda, el otorgamiento de Patente para la invención titulada " **PROCESO PARA LA PREPARACIÓN DE CAPROLACTAMA POR MEZCLA DE CICLOHEXANONA OXIMA A UNA MEZCLA DE REACCIÓN**".

Clase: C07D 201/04


JIMENA ESCOBAR URIBE
C.C. 39.779.452 de Usaquen.
T.P. 68.228

RESUMEN

- 5 La invención se refiere a un proceso para preparar caprolactama por la mezcla de ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción que comprende caprolactama y ácido sulfúrico usando un dispositivo de mezclado, dicho dispositivo de mezclado, comprende (i) un tubo a través del cual la mezcla de reacción puede fluir, y (ii) canales dispuestos alrededor del tubo, dichos canales
- 10 abiertos en el tubo, dicho proceso comprende: pasar la mezcla de reacción a través del tubo, y alimentar la ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción a través de uno o más de dichos canales, donde $Re > 5000$, Re que es el número de Reynolds definido por $\rho \cdot V \cdot D / \eta$, donde:
- ρ = densidad (en $Kg./m^3$) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo.
- 15 V = velocidad de la mezcla en reacción, V se define como W/A , donde W es la tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo y A es el área de la sección transversal del tubo (en m^2) en el nivel donde dichos canales se abren en el tubo.
- D = Diámetro del tubo en el nivel donde dichos canales se abren en el tubo (en m)
- 20 η = viscosidad de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo (en $Pa \cdot s$)

10
9

PROCESO PARA LA PREPARACIÓN DE CAPROLACTAMA POR MEZCLA DE
CICLOHEXANONA OXIMA A UNA MEZCLA DE REACCIÓN.

La invención se refiere a un proceso y un aparato para preparar
5 caprolactama por mezcla de ciclohexanona oxima a una mezcla de reacción que
comprende caprolactama, ácido sulfúrico y opcionalmente SO₃ libre.

La caprolactama se puede preparar por el reordenamiento de Beckmann de
ciclohexanona oxima. Tal reordenamiento de Beckmann se puede llevar a cabo
10 por mezcla de ciclohexanona oxima a una mezcla de reacción que comprende
caprolactama, ácido sulfúrico y opcionalmente SO₃ libre. En tal proceso el ácido
sulfúrico y el SO₃ libre opcional catalizan la conversión de ciclohexanona oxima
hacia caprolactama.

15 US-A-3601318 describe la importancia de las condiciones de mezcla para
obtener caprolactama de la pureza deseada. Se divulga un dispositivo de
mezclado que comprende un tubo a través del cual un líquido de proceso puede
fluir, el tubo, visto en la dirección del flujo, se estrecha a una garganta, y el cual se
ensancha más allá de la garganta. Una pluralidad de canales que están
20 dispuestos alrededor del tubo y abiertos en el tubo, a través de los canales un
líquido de alimentación se puede mezclar al líquido del proceso. Se describe que
el dispositivo de mezclado es adecuado particularmente para situaciones donde el
líquido debe estar fuerte y completamente mezclado en la ausencia virtual de

cualquier turbulencia. Una de tales situaciones se describe que es el reordenamiento de Beckmann de cetoximas cíclicas en la presencia de ácido sulfúrico o de ácidos fosfórico o polifosfóricos

5 Encontramos que el uso del dispositivo de mezclado como se prescribe en US-A- 3601318, i.e., bajo condiciones de flujo laminar, para la preparación de caprolactama resulta en un bajo rendimiento.

La meta de la invención es la de mejorar el rendimiento.

10

Esta meta se alcanza de acuerdo con la invención proporcionando un proceso para preparar caprolactama por mezcla de ciclohexanona oxima a una mezcla de reacción que comprende caprolactama, ácido sulfúrico y usando un dispositivo de mezclado, dicho dispositivo de mezclado comprende (i) un tubo a
15 través del cual la mezcla de reacción puede fluir, y (ii) canales dispuestos alrededor del tubo, dichos canales abiertos en el tubo, dicho proceso comprende: pasar la mezcla de reacción a través del tubo, y alimentar la ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción a través de uno o más de dichos canales, donde $Re > 5000$, Re es el número de Reynolds definido por $\rho \cdot V \cdot D / \eta$, donde:

20 ρ = densidad (en Kg/m^3) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo.

V = velocidad de la mezcla en reacción, V se define como W/A , donde W es la tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo y A es el

área de la sección transversal del tubo (en m^2) en el nivel donde dichos canales se abren en el tubo.

D = Diámetro del tubo en el nivel donde dichos canales se abren en el tubo (en m)

η = viscosidad de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo (en Pa·s).

- 5 Se ha encontrado que el rendimiento se incrementa cuando el incremento del número de Reynolds se aplica de acuerdo con la invención. Mas aún, se alcanza una alta pureza.

10 El proceso se distingue del proceso de US-A-3601318 en que la corriente principal de US-A-3601318 es un flujo laminar. El número de Reynolds correspondiente al flujo laminar no es más grande de 2100

15 De acuerdo con la invención $Re > 5000$. Además se alcanza ventajosamente un aumento del rendimiento aplicando los valores aumentados de Re. Preferiblemente, $Re > 10.000$, más preferiblemente $Re > 15000$, más preferiblemente $Re > 20000$, más preferiblemente $Re > 25000$. Por razones prácticas, Re es generalmente < 100.000 .

20 Los valores deseados para Re de acuerdo con la invención se pueden lograr ventajosamente seleccionando una combinación adecuada de ρ , V, D, y η .

De acuerdo con la invención, la mezcla de reacción se pasa a través del tubo. Se puede usar cualquier tubo adecuado a través del cual puede pasar el

líquido. Preferiblemente, el tubo tiene generalmente forma cilíndrica. Preferiblemente, el tubo, visto en la dirección del flujo, se estrecha, en una primera parte en una garganta, y, opcionalmente, los ensanchamiento van más allá de la garganta en la segunda parte. Preferiblemente, los canales abiertos en la primera

5 parte, la garganta en la segunda parte del tubo, más preferiblemente en la garganta. Como se usa aquí, la garganta se refiere a la parte del tubo mas allá de la primera parte (visto en la dirección del flujo) que tiene la más pequeña área de sección transversal. El ángulo con el cual la primera parte se estrecha (el ángulo entre la pared de la primera parte y el eje del tubo) es preferiblemente más de 5°.

10 El ángulo con el cual la segunda parte se ensancha es preferiblemente más de 5° (el ángulo entre la pared de la segunda parte y el eje del tubo).

De acuerdo con la invención, los canales están dispuestos alrededor del tubo. Los canales pueden tener cualquier abertura adecuada a través de las

15 cuales la ciclohexanona oxima se puede alimentar a la mezcla de reacción. Los canales pueden tener cualquier diámetro adecuado. El diámetro de los canales es preferiblemente de al menos 2 mm. Esto reduce el riesgo de taponamiento de los canales. El número de canales que se disponen alrededor del tubo puede variar, y puede por ejemplo estar entre 2 y 32, preferiblemente entre 4 y 24.

20 Preferiblemente, el dispositivo de mezclado comprende una cámara de alimentación, dicha cámara de alimentación se dispone alrededor del tubo, desde la cámara de alimentación los canales se abren en el tubo. La cámara de alimentación puede estar conectada a la fuente de ciclohexanona oxima, y la

ciclohexanona oxima se puede alimentar desde la cámara de alimentación, a través de los canales en el tubo.

De acuerdo con la invención la ciclohexanona oxima se alimenta a la
5 mezcla de reacción que comprende caprolactama, ácido sulfúrico y opcionalmente SO_3 . Como resultado la ciclohexanona oxima se convierte en caprolactama por el reordenamiento de Beckmann. Tal conversión se conoce que ocurre casi instantáneamente.

10 La mezcla de reacción comprende caprolactama, ácido sulfúrico y opcionalmente SO_3 . Preferiblemente, la relación M definida como $(n_{\text{SO}_3} + n_{\text{H}_2\text{SO}_4}) / n_{\text{cap}}$ está entre 1 y 2.2, más preferiblemente entre 1.1 y 1.9 donde n_{SO_3} = cantidad de SO_3 en la mezcla de reacción (en moles), $n_{\text{H}_2\text{SO}_4}$ = cantidad de H_2SO_4 en la mezcla de reacción (en moles), n_{cap} = cantidad de caprolactama en la mezcla de
15 reacción (en moles). La mezcla de reacción preferiblemente comprende SO_3 , el contenido de SO_3 preferiblemente es al menos 1% en peso, más preferiblemente al menos 2% en peso, más preferiblemente al menos 4% en peso, más preferiblemente al menos 6% en peso de SO_3 , más preferiblemente al menos 8% en peso de SO_3 , más preferiblemente al menos 10% en peso de SO_3 , más
20 preferiblemente al menos 12% en peso de SO_3 . Por razones prácticas, el contenido de SO_3 de la mezcla de reacción es generalmente menos de 20% en peso, por ejemplo menos de 18% , en peso, por ejemplo menos de 17%, en peso, Como se usa aquí, el contenido de SO_3 se refiere al peso de SO_3 relativo al peso

de la mezcla de reacción. En una incorporación preferida, M está entre 1.0 y 1.4, preferiblemente entre 1.15 y 1.4, el contenido de SO₃ en la mezcla de reacción es al menos 2% en peso de SO₃, más preferiblemente al menos 4% en peso de SO₃, más preferiblemente al menos 6% en peso de SO₃, más preferiblemente al menos 8% en peso de SO₃, más preferiblemente al menos 10% en peso de SO₃, más preferiblemente al menos 11% en peso de SO₃. Un valor de M entre 1.0 y 1.4, preferiblemente entre 1.15 y 1.4, en combinación con valores aumentados del contenido de SO₃ tiene la ventaja de que cantidades relativamente pequeñas de sulfato de amonio se forman durante la subsiguiente neutralización, a la vez que se encuentra que el rendimiento aumenta con el aumento del contenido de SO₃. Como se usa aquí, los valores de M y las concentraciones de SO₃ y la temperatura de la mezcla de reacción se refieren en particular a los valores en la mezcla de reacción obtenidos después de la alimentación de la ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción al dejar el dispositivo de mezcla.

Los valores de M y del contenido de SO₃ se pueden obtener de cualquier manera adecuada. En una incorporación preferida, el proceso es un proceso continuo que comprende mantener la mezcla de reacción en circulación, alimentar una mezcla que comprende ácido sulfúrico y SO₃, por ejemplo oleum o una mezcla de reacción que comprende caprolactama, ácido sulfúrico y SO₃ a la mezcla de reacción circulante, y produciendo parte de la mezcla de reacción circulante. La cantidad de mezcla comprende ácido sulfúrico y SO₃, el contenido de SO₃ de ella y la cantidad de ciclohexanona oxima se alimenta a la mezcla de

16
15

reacción circulante, se puede escoger tal que M y el contenido de SO_3 de la mezcla de reacción tenga los valores preferidos. El oleum puede ser de cualquier concentración adecuada de SO_3 , por ejemplo 18 a 35% en peso de SO_3 .

- 5 La temperatura en la mezcla de reacción puede tener cualquier valor adecuado. Preferiblemente, la temperatura en la mezcla de reacción está entre 50 y 130°C, preferiblemente entre 70 y 120°C.

- 10 La tasa de flujo de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo y la tasa de flujo de la ciclohexanona oxima que se alimenta a la mezcla de reacción puede tener cualquier valor adecuado. Preferiblemente, la relación $w/W < 0.1$, preferiblemente, $w/W < 0.05$, donde, w =tasa de flujo (en m^3/s) de la ciclohexanona oxima que se alimenta a la mezcla de reacción a través de uno o más de dichos canales, y W =tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que pasa a través del tubo. Usando los valores bajos para la relación w/W se encuentra que resulta en una mejora del rendimiento y de la pureza. Ventajosamente, $w/W < 0.04$, preferiblemente $w/W < 0.03$. No hay un límite bajo específico para w/W . En la practica, w/W puede ser > 0.01 .

- 20 La velocidad a la cual se alimenta la ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción y la mezcla de reacción pueden tener cualquier valor adecuado. Preferiblemente, v/V está entre 0.1 y 30, donde v = la velocidad (en m/s) a la cual la ciclohexanona oxima se alimenta a la mezcla de reacción, V = velocidad de la

mezcla de reacción en el nivel donde dichos canales están abiertos en el tubo, V se define como W/A , donde W es la tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo y A es el área de la sección transversal del tubo (en m^2) en el nivel donde dichos canales están abiertos en el tubo. La relación v/V puede ser < 15 , por ejemplo < 10 , por ejemplo < 5 , por ejemplo < 2 , por ejemplo < 1.8 , por ejemplo < 1.5 . La relación v/V puede ser > 0.2 , por ejemplo > 0.5 .

Los valores preferidos para v/V se pueden seleccionar de cualquier manera adecuada. En una incorporación preferida, el dispositivo de mezcla comprende uno o más cierres, uno o más de los canales se pueden cerrar con un cierre. Preferiblemente cada uno de los canales se cierra con un cierre. Como cierre se puede usar cualquier cierre adecuado esto significa que un canal puede ser cerrado o abierto, por ejemplo por un tapón. Preferiblemente se usan un cierre o un tapón que tienen una punta en forma complementaria con la forma del canal. Preferiblemente, los cierres o tapones tienen una punta complementaria en forma a los canales. Esta es una manera efectiva de cerrar un canal.

En una incorporación preferida se provee un sistema de circulación que comprende (i) el dispositivo de mezcla, (ii) un enfriador para enfriar la mezcla de reacción, (iii) un circuito que conecta a través del cual la mezcla de reacción puede fluir desde el dispositivo de mezcla al enfriador, y desde la parte posterior del enfriador al dispositivo de mezclado, el proceso comprende la circulación de la mezcla de reacción desde el dispositivo de mezclado al enfriador y desde la parte

posterior del enfriador al dispositivo de mezclado. La mezcla de reacción se puede mantener en circulación de cualquier manera adecuada. Preferiblemente, el sistema de circulación comprende (iv) una bomba para mantener la mezcla de reacción en circulación. Preferiblemente, la bomba esta corriente abajo del dispositivo de mezcla y corriente arriba del enfriador, vista en la dirección de flujo de la mezcla de reacción. Este arreglo se encuentra para facilitar que se alcance un alto número de Reynolds.

En una incorporación preferida, el proceso comprende coleccionar la mezcla de reacción que deja el tubo en un recipiente coleccionador. En el recipiente coleccionador puede tener lugar una conversión adicional de ciclohexanona oxima. Preferiblemente, se proporciona un vaso coleccionador arreglado para recibir la mezcla de reacción que deja el tubo; y el proceso comprende coleccionar la mezcla de reacción que deja el tubo en el recipiente coleccionador. Preferiblemente, el sistema de circulación comprende el recipiente coleccionador, el recipiente coleccionador preferiblemente esta corriente arriba de la bomba visto en la dirección de flujo de la mezcla de reacción. Se encuentra que esto facilita alcanzar un alto número de Reynolds.

En una incorporación preferida, el dispositivo de mezcla comprende cierres ajustables, el tubo puede ser conducido a través de la pared del vaso coleccionador en un punto corriente abajo de los cierres vistos en la dirección del flujo de la mezcla de reacción, en esta incorporación se alcanzan las ventajas del recipiente coleccionador, a la vez que aún es posible operar los cierres de una manera simple. Por lo tanto,

en otro aspecto la invención también proporciona un aparato, dicho aparato comprende (a) un dispositivo de mezcla, dicho dispositivo de mezcla comprende (i) un tubo a través del cual puede fluir un primer líquido (ii) canales dispuestos alrededor del tubo, a través de estos canales se puede adicionar un segundo líquido al primer líquido, dichos canales están abiertos en el tubo (iii) cierres ajustables asociados con uno o más de los canales; y (b) un recipiente colector para coleccionar el primer líquido que deja el tubo, dicho recipiente colector tiene una pared, donde el tubo se conduce a través de la pared del vaso colector en un punto corriente abajo de los cierres como se ve en la dirección del flujo de la mezcla de reacción.

El tubo puede comprender una tercera parte más allá de la segunda parte vista en la dirección del flujo, dicha tercera parte está conectada a la segunda parte, el proceso comprende la mezcla de reacción que deja la segunda parte del tubo a través de la tercera parte del tubo.

El proceso de acuerdo con la invención es preferiblemente un proceso continuo.

En una incorporación preferida, el proceso comprende a) alimentar (i) oleum y (ii) ciclohexanona oxima en una primera mezcla de reacción que comprende caprolactama, ácido sulfúrico y SO_3 ; y b) alimentar (iii) una porción de la primera mezcla de reacción y (iv) ciclohexanona oxima en una segunda mezcla de

reacción que comprende caprolactama, ácido sulfúrico y SO_3 , donde dicha alimentación de dicha ciclohexanona oxima en la primera mezcla de reacción y dicha alimentación de dicha ciclohexanona oxima en la segunda mezcla de reacción se lleva a cabo de acuerdo con el proceso de acuerdo con la invención.

5 En otra incorporación preferida, el proceso además comprende alimentar (v) una porción de la segunda mezcla de reacción y (vi) ciclohexanona oxima en una tercera mezcla de reacción que comprende caprolactama, ácido sulfúrico y SO_3 y donde dicha alimentación de dicha ciclohexanona oxima en la tercera mezcla de reacción se lleva de acuerdo con la invención.

10

Preferiblemente, la primera mezcla de reacción, la segunda mezcla de reacción y/o dicha tercera mezcla de reacción se mantienen en circulación.

La primera mezcla de reacción, la segunda mezcla de reacción, y la
15 opcional tercera mezcla de reacción comprende caprolactama, ácido sulfúrico y SO_3 . La relación molar M definida como $(n_{\text{SO}_3} + n_{\text{H}_2\text{SO}_4}) / n_{\text{cap}}$ donde n_{SO_3} = cantidad de SO_3 en la mezcla de reacción, en moles, $n_{\text{H}_2\text{SO}_4}$ = cantidad de H_2SO_4 en la mezcla de reacción, en moles, n_{cap} = cantidad de caprolactama en la mezcla de reacción, en moles, es preferiblemente diferente en cada mezcla de
20 reacción. La relación molar M en la primera, la segunda y la tercera mezclas de reacción, como se usarán aquí, se refieren como M(1), M(2) y M(3) respectivamente. La concentración de SO_3 en la primera, la segunda y la tercera mezclas de reacción, como se usarán aquí, son referidas como $C_{\text{SO}_3}(1)$, $C_{\text{SO}_3}(2)$

y C_{SO_3} (3). Como se usa aquí, la concentración de SO_3 será dada en %, en peso, relativo al peso de la mezcla de reacción. La temperatura en la primera, la segunda y la tercera mezclas de reacción, como se usarán aquí, se refieren como T(1), T(2) y T(3) respectivamente. Como se usa aquí, los valores de M, la
5 concentración de SO_3 y la temperatura se refieren, en particular, al valor de la mezcla de reacción obtenida después de la alimentación de la ciclohexanona oxima en la mezcla de reacción, en particular en la mezcla de reacción que deja que deja el dispositivo de mezclado.

Los valores preferidos de M y de la concentración de SO_3 se pueden
10 obtener alimentando ciclohexanona oxima a las diferentes etapas en las cantidades apropiadas, y aplicando las cantidades apropiadas de oleum de la concentración apropiada de SO_3 .

Preferiblemente, M(2) es más bajo que M(1). Preferiblemente M(3) es más
15 bajo que M(2).

En una incorporación preferida, M(1) está entre 1.2 y 2.2, preferiblemente entre 1.4 y 1.85, más preferiblemente entre 1.5 y 1.7. Preferiblemente, $C_{SO_3}(1)$ está entre 3 y 20%, en peso, preferible más alto que 4%, en peso, preferiblemente más alto que 6%, en peso, más preferiblemente más alto que 8%, en peso, más
20 preferiblemente más alto que 10%, en peso, más preferiblemente más alto que 12%, en peso. Valores aumentados de $C_{SO_3}(1)$ tienen la ventaja que la $C_{SO_3}(2)$ se puede mantener alta en la segunda mezcla de reacción sin tener que alimentar

oleum en la segunda mezcla de reacción. $C_{SO_3}(1)$ puede ser menos de 18%, en peso, preferible menos de 17%, en peso. Preferiblemente T (1) está entre 50 y 130°C, preferible entre 70 y 130°C, más preferible entre 70 y 120°C.

En una incorporación preferida M(2) está entre 1.0 y 1.6, preferiblemente, más alto que 1.1, más preferible más alta que 1.2, preferiblemente menos de 1.5, más preferible menos de 1.4. Preferiblemente, $C_{SO_3}(2)$ está entre 0.5 y 20%, en peso, más preferible más alto que 1%, en peso, más preferible más alto que 2%, en peso, más preferible más alto que 4%, en peso, más preferible más alto que 6%, en peso, más preferible más alto que 8%, en peso, más preferible más alto que 10%, en peso, más preferible más alto que 12%, en peso. Aumentando las concentraciones de $C_{SO_3}(2)$ en los intervalos arriba mencionados de M(2) sorprendentemente se encontró que producían rendimientos significativamente más altos. Preferiblemente T (2) está entre 70 y 130°C, preferible entre 80 y 130°C., más preferible entre 80 y 120°C.

15

En una incorporación preferida M(3) está entre 1.0 y 1.4, preferible entre 1.1 y 1.35, más preferible entre 1.15 y 1.35. Preferiblemente, $C_{SO_3}(3)$ está entre 0.5 y 18%, en peso, preferiblemente más alto que 1%, en peso, preferible más alto que 2%, en peso, más preferible más alto que 4%, en peso, preferible más alto que 6%, en peso, más preferiblemente más alto que 8%, en peso, más preferible más alto que 10%, en peso, mas preferible que más alto que 12%, en peso, Se encontraron sorprendentemente rendimientos significativamente mas altos

20

aumentando las concentraciones de C_{SO_3} (2) entre los intervalos mencionados anteriormente para M(3). Preferiblemente T(3) esta entre 70 y 130°C, preferiblemente entre 80 y 130°C, mas preferiblemente entre 80 y 120°C.

5 El oleum se puede alimentar a la mezcla de reacción de cualquier manera adecuada. Preferiblemente todo el oleum aplicado se alimenta a la primera mezcla de reacción. Preferible, la cantidad de ciclohexanona oxima que se alimenta a la primera mezcla de reacción es mayor que la cantidad de ciclohexanona oxima que se alimenta a la segunda mezcla de reacción, y, si es aplicable, preferiblemente la

10 cantidad de ciclohexanona oxima que se alimenta a la segunda mezcla de reacción es mayor que la cantidad de ciclohexanona oxima que se alimenta a la tercera mezcla de reacción. Preferiblemente, de 60 a 95%, en peso, de la cantidad total de ciclohexanona oxima que se alimenta a la primera, segunda, y si se aplica a la tercera mezcla de reacción, se alimenta a la primera mezcla de reacción.

15 Preferiblemente de 5 a 40%, en peso, del total de la ciclohexanona oxima que se alimenta a la primera, segunda y, si se aplica, la tercera mezcla de reacción se alimenta a la segunda mezcla de reacción. Si es aplicable, preferiblemente, de 2 a 15%, en peso de la cantidad total de ciclohexanona oxima que se alimenta a la primera, segunda, y tercera mezcla de reacción se alimenta a la tercera mezcla de

20 reacción.

Preferiblemente, una parte, en volumen, de ciclohexanona oxima se introduce continuamente en por lo menos 10 partes en volumen, más preferible por lo menos 20 partes en volumen de la mezcla de reacción.

- 5 Preferiblemente, $w1/W1 < 0.01$, preferiblemente $w1/W1 < 0.05$. Preferiblemente, $w2/W2 < 0.01$, preferiblemente $w2/W2 < 0.05$, preferiblemente, $w3/W3 < 0.01$, preferiblemente $w3/W3 < 0.05$, donde $w1, w2, w3$ = tasa de flujo (en m^3/s) de ciclohexanona oxima a la cual se alimenta a través de uno o más de dichos primeros canales, segundos canales y terceros canales, respectivamente;
- 10 y $W1, W2, W3$ = tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que se pasa a través del primer tubo, el segundo tubo, y del tercer tubo, respectivamente

Un proceso continuo de acuerdo con la invención, preferiblemente involucra alimentar una porción de la primera mezcla de reacción a la segunda mezcla de reacción. Un proceso continuo de acuerdo con la invención, preferiblemente,

15 involucra sacar una porción de la segunda mezcla de reacción. Un proceso continuo de acuerdo con la invención, puede involucrar alimentar una porción de la segunda mezcla de reacción a la tercera mezcla de reacción. Un proceso continuo de acuerdo con la invención, puede involucrar sacar una porción de la tercera mezcla de reacción.

20

Una porción de la segunda mezcla de reacción y/o de la tercera mezcla de reacción se puede sacar de cualquier manera adecuada. La

caprolactama se puede recuperar de la segunda o de la tercera mezcla de reacción por los métodos conocidos, por ejemplo, por neutralización con amoníaco, y purificación de la fase acuosa obtenida que contiene caprolactama.

- 5 De acuerdo con la invención, se alimenta ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción. La ciclohexanona oxima que se alimenta a la mezcla de reacción puede comprender agua, por ejemplo menos de 7%, en peso,. Preferiblemente, la ciclohexanona oxima que se alimenta a la mezcla de reacción tiene un contenido de agua de menos de 2%, en peso, más preferiblemente menos de 1%, en peso,
- 10 más preferiblemente menos de 0.2%, en peso, más preferiblemente menos de 0.1%, en peso. Alimentar ciclohexanona oxima que tenga un bajo contenido de agua es ventajoso como una manera efectiva para lograr que la mezcla de reacción tenga alto contenido de SO_3 .
- 15 Una manera de obtener ciclohexanona oxima que tenga un contenido de agua de menos de 2%, en peso, es secar ciclohexanona oxima con alto contenido de agua por ejemplo con un gas inerte. Una manera preferida de obtener ciclohexanona que tenga un contenido de agua de menos de 2%, en peso es un proceso en el cual la ciclohexanona oxima se obtiene por
- 20 a) preparar un medio orgánico que comprende ciclohexanona oxima disuelta en un solvente orgánico, y
- b) separar por destilación, ciclohexanona oxima de dicho medio orgánico.

La preparación un medio orgánico que comprende ciclohexanona oxima disuelto en un solvente orgánico, preferiblemente se lleva a cabo por contacto en una zona de reacción en un flujo en contra-corriente de una corriente de una solución de ciclohexanona en un solvente orgánico que también es solvente para la ciclohexanona oxima y una corriente de un amortiguador de fosfato, una solución acuosa de hidroxilamonio; y sacando de la zona de reacción un medio orgánico de ciclohexanona oxima disuelto en dicho solvente orgánico. Los solventes particularmente adecuados para uso en el proceso para preparar ciclohexanona oxima son tolueno y benceno. Preferiblemente se usa tolueno como solvente orgánico. El medio acuoso de la reacción amortiguado con fosfato preferiblemente se recicla continuamente entre la zona de síntesis de hidroxilamonio y una zona de síntesis de ciclohexanona oxima. En la zona de síntesis de hidroxilamonio el hidroxilamonio se forma por reducción catalítica de iones nitrato u óxido nítrico con hidrógeno. En la zona de síntesis de la ciclohexanona oxima, el hidroxilamonio formado en la zona de síntesis del hidroxilamonio reacciona con ciclohexanona para formar ciclohexanona oxima. La ciclohexanona oxima se puede separar del medio acuoso de reacción el cual se recicla a la zona de síntesis del hidroxilamonio. Un medio orgánico que comprende la ciclohexanona oxima formada, disuelta en dicho solvente orgánico, se saca de la zona de reacción, y se destila para recuperar ciclohexanona oxima que tiene un contenido de agua de menos de 1 % en peso y aun menos de 0.1% en peso.

La recuperación de la caprolactama obtenida de la mezcla de reacción se puede realizar por métodos conocidos. Preferiblemente, la mezcla de reacción obtenida en la última etapa del reordenamiento de Beckmann, se neutraliza con amoníaco en agua y el sulfato de amonio así formado se remueve de la solución de caprolactama. La solución de caprolactama se puede purificar por procedimientos conocidos.

La invención también proporciona un aparato para llevar a cabo el proceso de acuerdo con la invención, dicho aparato comprende un dispositivo de mezclado para mezclar ciclohexanona oxima con la mezcla de reacción, dicho dispositivo de mezclado comprende (i) un tubo a través del cual la mezcla de reacción puede fluir, (ii) canales dispuestos alrededor del tubo a través de los cuales se puede alimentar ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción, dichos canales abiertos en el tubo; un enfriador para enfriar la mezcla de reacción: una bomba; y un circuito conector a través del cual la mezcla de reacción que deja el dispositivo de mezclado puede fluir desde el dispositivo de mezclado a la bomba, de la bomba al enfriador (D) y desde la parte posterior del enfriador al dispositivo de mezclado. Se encuentra que cuando la bomba está corriente abajo del dispositivo de mezclado y corriente arriba del enfriador se alcanza ventajosamente el número de Reynolds de acuerdo con la invención.

La invención también proporciona un aparato para llevar a cabo el proceso de acuerdo con la invención, dicho aparato comprende: un dispositivo de mezclado

28
27

para mezclar ciclohexanona oxima con la mezcla de reacción, dicho dispositivo de mezclado comprende (i) un tubo a través del cual puede fluir la mezcla de reacción, (ii) canales dispuestos al rededor del tubo a través de los cuales la ciclohexanona oxima se puede alimentar a la mezcla de reacción, dichos canales
5 abiertos en el tubo; un recipiente colector, un enfriador para enfriar la mezcla de reacción; un circuito conector a través del cual la mezcla de reacción puede fluir desde el dispositivo de mezclado al recipiente colector, del recipiente colector al enfriador, y desde el enfriador al dispositivo de mezclado. Se encuentra que en particular, cuando la salida para la mezcla de reacción que pasa a través del
10 circuito conector al enfriador, está en la parte baja del recipiente colector, e.g., por debajo de 50% de la altura del recipiente colector, el número de Reynolds se alcanza ventajosamente de acuerdo con la invención.

En una incorporación preferida, en el dispositivo de mezclado
15 preferiblemente se extienden a través de la pared de recipiente colector uno o más cierres, uno o más de los canales que se pueden cerrar con un cierre y el tubo, tal que los cierres aún están afuera del vaso colector. Esto facilita el uso de los cierres.

20 Preferiblemente, el tubo, visto en la dirección del flujo, se estrecha en una primera parte, a una garganta, y el tubo, opcionalmente, se ensancha más allá de la garganta en una segunda parte. Esto también facilita alcanzar un alto número de Reynolds de acuerdo con la invención.

En otro aspecto a invención también proporciona un aparato para preparar caprolactama, dicho aparato comprende:

- 5 a) un primer sistema de circulación para mantener una primera mezcla de reacción en circulación, dicho primer sistema de circulación comprende un primer dispositivo de mezclado para mezclar ciclohexanona oxima a la primera mezcla de reacción, dicho primer dispositivo de mezclado comprende:
- 10 (a1) Un primer tubo a través del cual puede fluir la primera mezcla de reacción;
- (a2) los primeros canales dispuestos alrededor del primer tubo a través de los cuales se puede alimentar ciclohexanona oxima a la primera mezcla de reacción, dichos primeros canales abiertos en el primer tubo; y
- 15 (a3) uno o mas de los primeros cierres, uno o más de los primeros canales se pueden cerrar con un primer cierre; y
- 20 b) Un segundo sistema de circulación para mantener en circulación una segunda mezcla de reacción, dicho segundo sistema de circulación comprende un segundo dispositivo de mezclado para mezclar

ciclohexanona oxima a la segunda mezcla de reacción, dicho segundo dispositivo de mezclado comprende:

(b1) un segundo tubo a través del cual puede fluir la segunda mezcla de reacción;

5 (b2) los segundos canales dispuestos alrededor del segundo tubo y a través de éstos segundos canales se puede alimentar ciclohexanona oxima a la segunda mezcla de reacción, dichos segundos canales abiertos en el segundo tubo; y

(b3) uno o más de los segundos cierres, uno o más de los segundos canales se pueden cerrar con un segundo cierre.

10 Este aparato es una incorporación preferida para permitir que las condiciones de mezclado se seleccionen por etapa.

En una incorporación preferida, el aparato además comprende:

15 c) Un tercer sistema de circulación para mantener en circulación una tercera mezcla de reacción, dicho tercer sistema de circulación comprende un tercer dispositivo de mezclado para mezclar ciclohexanona oxima a la tercera mezcla de reacción, dicho tercer dispositivo de mezclado comprende:

20 (c1) un tercer tubo a través del cual puede fluir la tercera mezcla de reacción;

(c2) los terceros canales dispuestos alrededor del tercer tubo y a través de éstos terceros canales se puede alimentar ciclohexanona oxima a la tercer mezcla de reacción, dichos terceros canales abiertos en el tercer tubo; y

34
30

(c3) uno o más de los terceros cierres, uno o más de los terceros canales se pueden cerrar con un tercer cierre.

Además, incorporaciones preferidas para el aparato son descritas en
5 la especificación completa y en las reivindicaciones.

En otro aspecto de la invención también se proporciona un proceso para preparar caprolactama, dicho proceso comprende:

- 10 a) pasar una primera mezcla de reacción a través del primer tubo, y mantener la primera mezcla de reacción en circulación, dicha primera mezcla de reacción comprende caprolactama, ácido sulfúrico y SO_3 .
- 15 b) Alimentar ciclohexanona oxima a la primera mezcla de reacción a través de las primeras aberturas.
- c) pasar una segunda mezcla de reacción a través del segundo tubo, y mantener la segunda mezcla de reacción en circulación, dicha segunda mezcla de reacción comprende caprolactama, ácido sulfúrico y SO_3 libre;
- 20 d) alimentar a la segunda mezcla de reacción ciclohexanona oxima y una porción de la primera mezcla de reacción, dicha ciclohexanona oxima se alimenta a la segunda mezcla de reacción a través de las segundas aberturas.

Preferiblemente el proceso comprende:

- 5 e) pasar una tercera mezcla de reacción a través del tercer tubo, y
 mantener la tercera mezcla de reacción en circulación, dicha
 tercera mezcla de reacción comprende caprolactama, ácido
 sulfúrico y SO₃ libre.

 Además otras incorporaciones preferidas del proceso
10 de acuerdo con la invención se describen en la especificación
 completa y en las reivindicaciones.

Descripción de una incorporación preferida

15 La figura 1 muestra una incorporación preferida para llevar a cabo el
 proceso de acuerdo con la invención.

 Refiriéndose a la figura 1, la mezcla de reacción se mantiene en
 circulación en la dirección de la flecha en un sistema de circulación que
20 comprende un dispositivo de mezclado A, un recipiente colector B, una
 bomba C y un enfriador D. El dispositivo de mezclado A comprende el tubo
 que se abre en el recipiente colector B. Al dispositivo de mezclado A se
 alimenta la mezcla de reacción vía la línea 1 y ciclohexanona oxima vía la

línea 2. La mezcla de reacción que deja el dispositivo de mezclado A se colecta en un vaso colector B. Parte de la mezcla de reacción se saca del vaso colector B vía la línea 3. Otra parte de la mezcla de reacción se saca del vaso colector B vía la línea 4, y, juntas con el oleum (o una mezcla de reacción que se saca de otro sistema de circulación) se suministra vía la línea 5, alimentando a la bomba C. La mezcla de reacción que deja la bomba C entra al enfriador D vía la línea 6 y se recicla al dispositivo de mezclado A vía la línea 1.

La figura 2 muestra una incorporación preferida para el dispositivo de mezclado.

El dispositivo de mezclado A como se ilustra en la figura 2, comprende un tubo cilíndrico 101 que en la primera parte 101a se estrecha a una garganta 101b, y más allá de la garganta 101b se ensancha en una segunda parte 101c. La segunda parte 101c del tubo se conecta a la tercera parte 102. Los canales 103, que están en conexión con la cámara de alimentación 104 abiertos en el tubo 101. La ciclohexanona oxima se suministra vía la cámara de alimentación 104, y se alimenta a la mezcla de reacción a través de los canales 103. El dispositivo de mezclado comprende cierres 105 con los cuales los canales 103 se pueden abrir o cerrar independientemente.

El tubo se abre en el recipiente colector B, que tiene paredes 110. El dispositivo de mezclado también comprende una placa de desviación 106 opuesta a la salida del tubo 101.

5 La figura 3 muestra unas condiciones preferidas para un reordenamiento en tres etapas que comprende un primer sistema de circulación, un segundo sistema de circulación y un tercer sistema de circulación. El primer sistema de circulación comprende un dispositivo de mezclado A1, un recipiente colector B1, una bomba C1 y un enfriador D1, y
10 una primera mezcla de reacción se mantiene en circulación vía la línea 1.

El segundo sistema de circulación comprende un dispositivo de mezclado A2, un recipiente colector B2, una bomba C2 y un enfriador D2, y una segunda mezcla de reacción se mantiene en circulación vía la línea 11. El tercer
15 sistema de circulación comprende un dispositivo de mezclado A3, un recipiente colector B3, una bomba C3 y un enfriador D3, y una tercera mezcla de reacción se mantiene en circulación vía la línea 21. La ciclohexanona oxima y el oleum son alimentados a la primera mezcla de
20 reacción vía la línea 2 y la línea 3 respectivamente. Una porción de la primera mezcla de reacción se saca del vaso colector B1 vía la línea 4 y se alimenta a la segunda mezcla de reacción. Ciclohexanona oxima se alimenta a la segunda mezcla de reacción vía la línea 12. Una porción de una segunda mezcla de reacción se saca del recipiente colector B2 vía la línea 14 y se

alimenta a la tercera mezcla de reacción. Se alimenta ciclohexanona oxima a la tercera mezcla de reacción vía la línea 24 una porción de la tercera mezcla de reacción, se saca del recipiente colector B3 vía la línea 34. El proceso se lleva a cabo continuamente.

5

Los siguientes ejemplos específicos son contruidos como meramente ilustrativos, y no limitantes, para lo que queda de la divulgación.

Experimento comparativo y ejemplos

10

En el experimento comparativo y el ejemplo el rendimiento de caprolactama (cantidad de caprolactama formada por cantidad de ciclohexanona oxima alimentada a la mezcla de reacción) se determinó como sigue. Las muestras se tomaron a la salida 111. A una primera parte (0.2 g) de cada muestra se adicionó ácido sulfúrico concentrado (20 ml, 96%, en peso) como también 15 g de K_2SO_4 y 0.7 de HgO . El contenido de nitrógeno de la mezcla ácida resultante se determinó usando el método Kjeldahl, a partir del cual se calculó la concentración molar de nitrógeno en la primera parte de la muestra (TN). Una segunda parte de la muestra se extrajo con cloroformo. Este método se basa en el hecho que la caprolactama entra en la fase de cloroformo. Las impurezas permanecen en la fase de agua. El extracto de la fase acuosa se analiza para su contenido de nitrógeno por el método Kjeldahl, a partir del cual se calcula la concentración molar de

15

20

nitrógeno en la segunda parte de la muestra (RN). El rendimiento se calcula como sigue:

$$\% \text{ rendimiento} = (1 - \text{RN/TN}) \times 100$$

5

La absorbancia a 290 nm (E_{290} nm), utilizada como especificación de calidad de la caprolactama obtenida, se determinó como sigue:

La mezcla de reacción que deja la salida 111 se neutralizó con amoníaco, y la caprolactama contenida fase acuosa se separó. La absorbancia de caprolactama contenida en fase acuosa se midió a una longitud de onda de 290 nm en una celda de 1 cm (calculada para un 705 de solución de caprolactama).

10

15

Experimento comparativo A

Se usaron unas condiciones como se representan en las figuras 1 y 2. El dispositivo de mezclado tenía las siguientes dimensiones: diámetro del tubo antes del estrechamiento 101a: 2600mm, ángulo α 17°, diámetro de la garganta 101b: 100mm, ángulo β : 11° placa de desviación 106 no aplica. La mezcla de reacción circulante contiene 7% SO₃ en peso, siendo M 1.6 (medido en el vaso colector B). La viscosidad de la mezcla de reacción que se alimenta al mezclador fue 0.18 Pa·s, la densidad 1400 Kg/m³. La

20

temperatura en el vaso colector fue 115° C. La temperatura en la mezcla de reacción que deja el enfriador y se alimenta al mezclador fue 75° C. La tasa de flujo de la mezcla de reacción fue 73 m³ por hora, correspondiente a una velocidad de 2.5 m/s. El número de Reynolds resultante en la garganta es 2000. El dispositivo de mezclado se proporcionó con 12 canales (diámetro 3 mm). La ciclohexanona oxima se alimentó a través de 3 canales (9 de los canales estando en posición cerrada). La tasa de flujo de la ciclohexanona oxima fue 3 ton/hr ($\rho = 850 \text{ kg/m}^3$).

El rendimiento fue 95%, en peso. La E_{290} fue 6.3.

Ejemplo 1

El experimento comparativo A se repitió con la diferencia, que la garganta del dispositivo de mezclado tuvo un diámetro de 51mm. Las otras dimensiones del mezclador, incluyendo ángulo α : y ángulo β : 11° se mantuvieron los mismos. La tasa de flujo de la mezcla de reacción fue 82 m³ por hora, correspondiente a una velocidad de 11.4 m/s. La temperatura en la mezcla de reacción que deja el enfriador y se alimenta al mezclador fue 82°C (viscosidad 0.12 Pa·s). El número de Reynolds es 6800. El rendimiento que se determinó fue 96.7%. La E_{290} fue 3.3. Este ejemplo muestra que un aumento del número de Reynolds de 6000 a 6800 resulta en un rendimiento aumentado y una pureza aumentada.

Ejemplo 2

El ejemplo 1 se repitió con la diferencia de que la tasa de flujo de la mezcla reaccionante se aumento de 83m³/s a 300 m³/s, y que la ciclohexanona oxima se alimentó a través de 8 canales (cuatro de los canales están en posición cerrada), siendo la tasa de flujo de la ciclohexanona oxima 8 ton/hr. El enfriamiento fue arreglado tal que la temperatura en el vaso colector permaneció en 115°C. La velocidad resultante de la mezcla de reacción en la garganta fue 41 m/s, correspondiente a un número de Reynolds de 29200. El rendimiento se determinó como 99.5%. La E₂₉₀ fue 0.43. Este ejemplo indica que un incremento adicional del número de Reynolds desde 6800 a 29200 resulta en un aumento en el rendimiento y un aumento en la pureza.

La tabla 1 da una visión general de los resultados.

Tabla 1

	Re	V	v	v/V	Rendimiento	E ₂₉₀
<u>Comp A</u>	2000	2.5 m/s	23 m/s	9	95%	6.3
<u>Ejemplo1</u>	6800	11.4 m/s	46.2 m/s	4	96.7%	3.3
<u>Ejemplo2</u>	29200	41 m/s	46.2 m/s	1.1	99.5%	0.43

REIVINDICACIONES

1. Un proceso para preparar caprolactama por mezcla de ciclohexanona oxima a una mezcla de reacción que comprende caprolactama y ácido sulfúrico usando un dispositivo de mezclado, dicho dispositivo de mezclado, comprende (i) un tubo a través del cual la mezcla de reacción puede fluir, y (ii) canales dispuestos alrededor del tubo, dichos canales abiertos en el tubo, dicho proceso comprende: pasar la mezcla de reacción a través del tubo, y alimentar la ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción a través de uno o más de dichos canales, donde $Re > 5000$, Re es el número de Reynolds definido por $\rho \cdot V \cdot D / \eta$, donde:

ρ = densidad (en Kg./m^3) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo

- 15 V = velocidad de la mezcla en reacción, V se define como W/A , donde W es la tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo y A es el área de la sección transversal del tubo (en m^2) en el nivel donde dichos canales se abren en el tubo.

- 20 D = Diámetro del tubo en el nivel donde dichos canales se abren en el tubo (en m)

η = viscosidad de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo (en $\text{Pa}\cdot\text{s}$)

2. Un proceso de acuerdo con la reivindicación 1, donde $Re > 10.000$

40
39

3. Un proceso de acuerdo con la reivindicación 1 o la reivindicación 2, donde $w/W < 0.05$, en donde
- w = tasa de flujo (en m^3/s) de la ciclohexanona oxima que se alimenta a la mezcla de reacción a través de uno o más de dichos canales, y
- W =tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que se pasa a través del tubo.
4. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en donde la relación v/V está entre: 0.1 y 20, donde
- v = la velocidad (en m/s) a la cual la ciclohexanona oxima se alimenta a la mezcla de reacción,
- V = velocidad de la mezcla de reacción en el nivel donde dichos canales están abiertos en el tubo, V se define como W/A , donde W es la tasa de flujo (en m^3/s) de la mezcla de reacción que se alimenta al tubo y A es el área de la sección transversal del tubo (en m^2) en el nivel donde dichos canales están abiertos en el tubo.
5. Un proceso de acuerdo con la reivindicación 4, donde v/V está entre 0.2 y 1.8.

6. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, donde el dispositivo de mezclado comprende uno o más cierres, uno o más de los canales se pueden cerrar con un cierre, y donde el proceso comprende seleccionar v/V ajustando el número de canales que se cierran con dichos cierres.
7. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, donde el tubo visto en la dirección del flujo, se estrecha, en una primera parte, a una garganta, y el tubo opcionalmente, se ensancha más allá de la garganta en una segunda parte.
8. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7, donde se proporciona un sistema de circulación, dicho sistema de circulación comprende (i) el dispositivo de mezclado, (ii) un enfriador para enfriar la mezcla de reacción, (iii) un circuito conector a través del cual la mezcla de reacción puede fluir desde el dispositivo de mezclado al enfriador, y desde la parte posterior del enfriador al dispositivo de mezclado y (iv) una bomba para mantener la mezcla de reacción en circulación, donde dicha bomba está corriente abajo del dispositivo de mezclado y corriente arriba del enfriador, visto en la dirección de flujo de la mezcla de reacción; y donde el proceso comprende la circulación de la mezcla de reacción del dispositivo

42
41

de mezclado al enfriador y de la parte posterior del enfriador al dispositivo de mezclado.

5 9. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 8, donde el proceso comprende coleccionar la mezcla de reacción que deja el tubo en un recipiente coleccionador.

10 10. Un proceso de acuerdo con la reivindicación 9 en donde el dispositivo de mezclado comprende cierres ajustables, y donde el tubo se conduce a través de la pared del recipiente coleccionador en un punto corriente abajo de los cierres visto en la dirección de flujo de la mezcla de reacción.

15 11. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 10, donde la relación M se define como $(n_{SO_3} + n_{H_2SO_4}) / n_{cap}$ está entre 1 y 2.2, donde

n_{SO_3} = cantidad de SO_3 en la mezcla de reacción, en moles,

$n_{H_2SO_4}$ = cantidad de H_2SO_4 en la mezcla de reacción, en moles,

20

n_{cap} = cantidad de caprolactama en la mezcla de reacción, en moles

12. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 11,
donde la mezcla de reacción comprende SO_3 .
13. Un proceso de acuerdo con la reivindicación 12, donde el contenido de
5 SO_3 en la mezcla de reacción es al menos 2% en peso.
14. Un proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 13,
donde la temperatura de la mezcla de reacción está entre 50 y 130°C.
- 10 15. Un aparato para llevar a cabo el proceso de acuerdo con cualquiera de las
reivindicaciones 1 a 14, dicho aparato comprende:
- Un dispositivo de mezclado (A) para mezclar ciclohexanona oxima a la
mezcla de reacción, dicho dispositivo de mezclado comprende (i) un tubo a
15 través del cual puede fluir la mezcla de reacción (ii) canales dispuestos
alrededor del tubo a través de los cuales se puede alimentar ciclohexanona
oxima a la mezcla de reacción, dichos canales abiertos en el tubo;
- Un enfriador (D) para enfriar la mezcla de reacción:
- Una bomba (C); y
- 20 Un circuito conector a través del cual la mezcla de reacción que deja el
dispositivo de mezclado puede fluir desde el dispositivo de mezclado (A)
hasta la bomba (C), desde la bomba (C) hasta el enfriador (D), y desde el
enfriador (D) a la parte posterior del dispositivo de mezclado (A).

16. Un aparato para llevar a cabo el proceso de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 14,

Dicho aparato comprende:

5

Un dispositivo de mezclado (A) para mezclar ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción, dicho dispositivo de mezclado comprende (i) un tubo a través del cual puede fluir la mezcla de reacción (ii) canales dispuestos alrededor del tubo a través de los cuales se puede alimentar ciclohexanona oxima a la mezcla de reacción, dichos canales abiertos en el tubo:

10

Un recipiente colector (B)

Un enfriador (D) para enfriar la mezcla de reacción:

Un circuito conector a través del cual la mezcla de reacción puede fluir del dispositivo de mezclado (A) al recipiente colector (B), del recipiente colector (B) al enfriador (D), y del enfriador (D) al dispositivo de mezclado (A).

15

17. Un aparato de acuerdo con la reivindicación 15 o la reivindicación 16 donde el sistema de circulación comprende una bomba (D), dicha bomba esta corriente abajo del recipiente colector y corriente arriba del enfriador, vista en la dirección del flujo de la mezcla de reacción.

20

18. Un aparato de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 15 a 17,
donde el sistema de mezclado comprende uno o mas cierres, uno o más
de los canales se pueden cerrar con un cierre.
- 5 19. Un aparato de acuerdo con la reivindicación 18, donde el tubo se extiende
a través de la pared del recipiente colector, tal que los cierres están todavía
fuera del recipiente colector.
- 10 20. Un aparato de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 15 a 19,
donde el tubo, visto en la dirección de flujo, se estrecha, en una primera
parte, a una garganta, y el tubo, opcionalmente, se ensancha más allá de la
garganta en una segunda parte.

15

20

45

Fig. 1

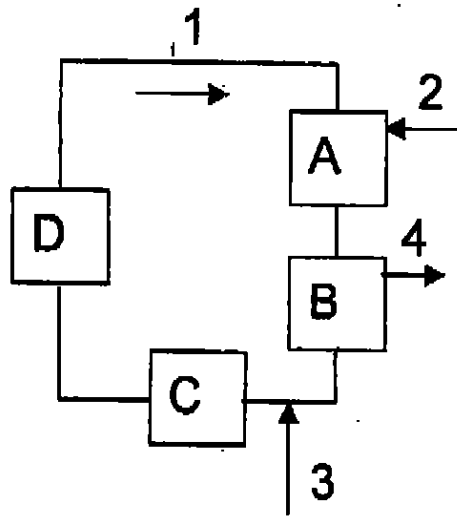
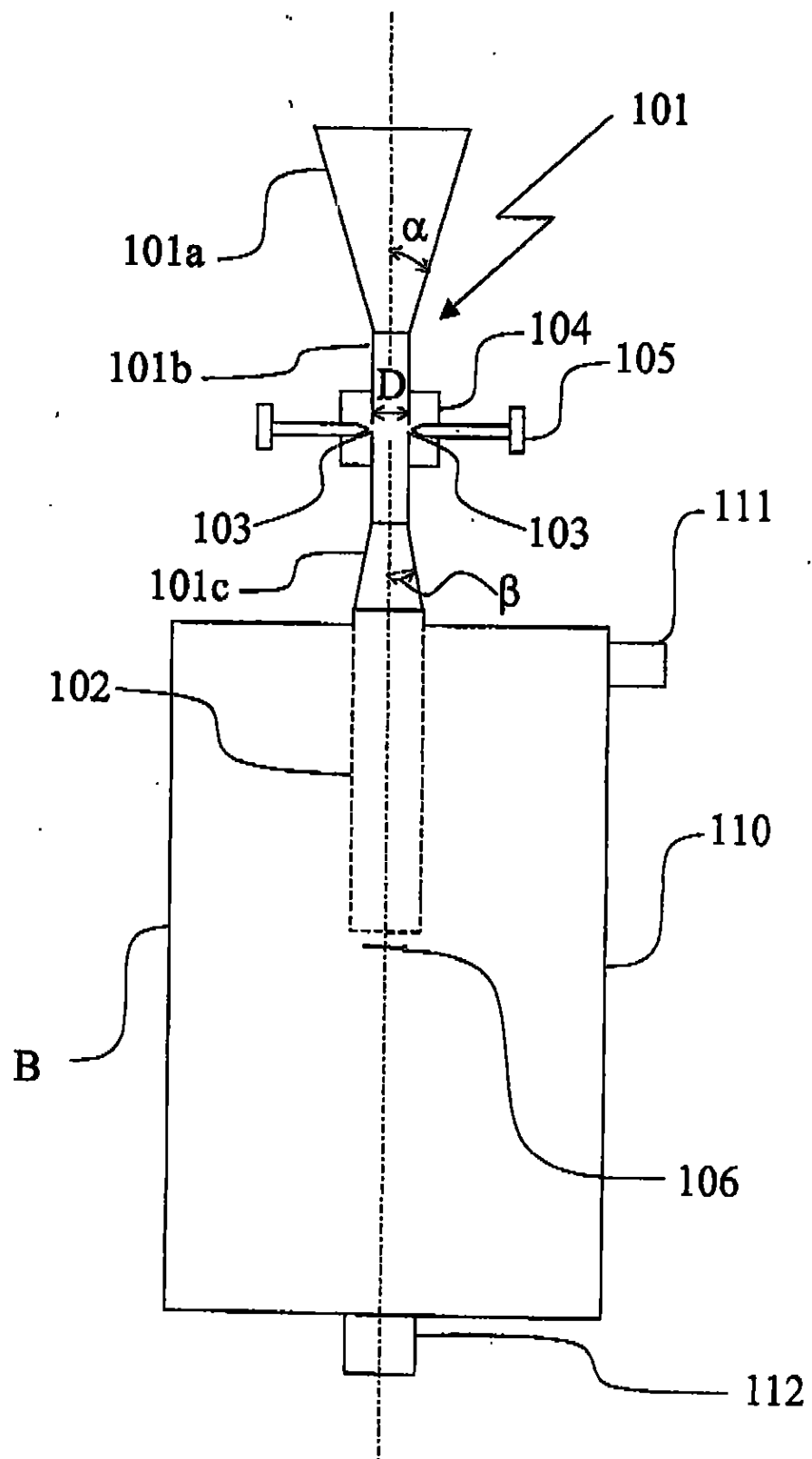


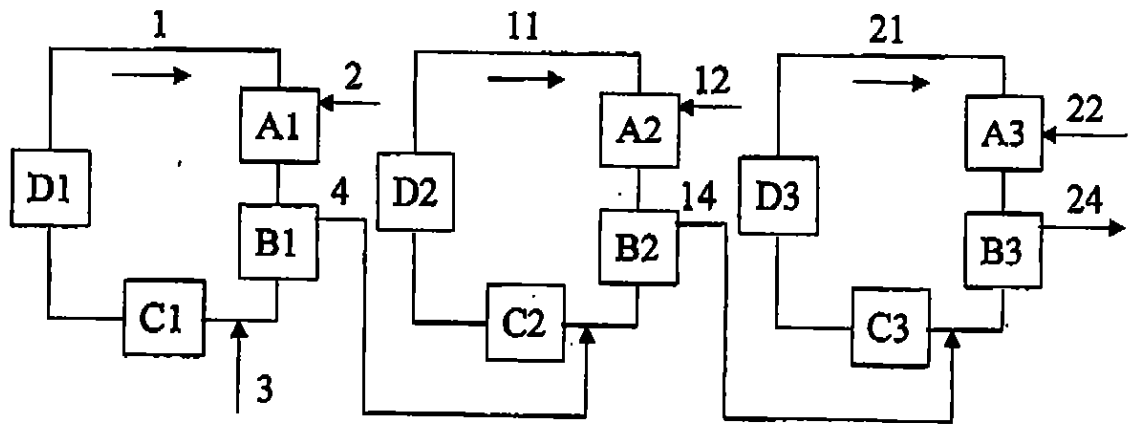
Fig. 2



45
47

Fig. 3

5



PCT
REQUEST

The undersigned requests that the present
international application be processed
according to the Patent Cooperation Treaty

MINUIT

For Receiving Office use only

International Application No.

International Filing Date

Name of receiving Office and "PCT International Application"

Applicant's or agent's file reference (if
desired) (12 characters maximum) 3778WO

Box No. I TITLE OF INVENTION

PROCESS FOR PREPARING CAPROLACTAM BY ADMIXTURE OF CYCLOHEXANONE OXIME TO A
REACTION MIXTURE

Box No. II APPLICANT

☐ This person is also inventor

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation.
The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this
Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

DSM IP Assets B.V.
Het Overloon 1
6411 TE Heerlen
the Netherlands

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality: NL

State (that is, country) of residence: NL

This person is applicant
for the purposes of:

☐

All designated
States

☒

all designated States except the
United States of America

☐

the United States of
America only

☐

the States indicated in
the Supplemental Box

Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation.
The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this
Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

SMEETS Theodorus Maria
Burgemeester Eussenstraat 6
6181 BP Elsloo
the Netherlands

DSM IP

1 8 MEI 2004

BA

Reg

Bericht nr.

73 5607

This person is:

☐

applicant only

☒

applicant and inventor

☐

inventor only (If this check-box
is marked, do not fill in below.)

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality: NL

State (that is, country) of residence: NL

This person is applicant
for the purposes of:

☐

All designated
States

☐

all designated States except the
United States of America

☒

the United States of
America only

☐

the States indicated in
the Supplemental Box

☒ Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.

Box No. IV AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE

The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf
Of the applicant(s) before the competent International Authorities as:

☒

agent

☐

common
representative

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation.
The address must include postal code and name of country.)

VERHAEGEN, Ilse Maria Michel
DSM Intellectual Property
P.O. Box 9
6160 MA Geleen
the Netherlands

Telephone No.

+31 (0)46 4760862

Facsimile No.

+31 (0)46 4761830

Teleprinter No.

Applicant's registration No. with the Office

☒ Address for correspondence: Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the
space above is used instead to indicate a special address to which correspondence should be sent..

1 8 MEI 2004

COH/L

Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

If none of the following sub-boxes is used, this sheet should not be included in the request

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

LEMMENS Joannes Albertus Wilhelmus
Willem II Singel 70
6041 HV Roermond
the Netherlands

This person is:

- ☐ applicant only
☒ applicant and inventor
☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality: NL

State (that is, country) of residence: NL

This person is applicant for the purposes of:

- ☐ All designated States ☐ all designated States except the United States of America ☒ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

MOSTERT Frank
Meendaal 71
6228 GG Maastricht
the Netherlands

This person is:

- ☐ applicant only
☒ applicant and inventor
☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality: NL

State (that is, country) of residence: NL

This person is applicant for the purposes of:

- ☐ All designated States ☐ all designated States except the United States of America ☒ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

CHENG Peter Wei-Hae
1208 Glenwood Drive
30904 Augusta
USA

This person is:

- ☐ applicant only
☒ applicant and inventor
☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality: USA

State (that is, country) of residence: USA

This person is applicant for the purposes of:

- ☐ All designated States ☐ all designated States except the United States of America ☒ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

This person is:

- ☐ applicant only
☐ applicant and inventor
☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality:

State (that is, country) of residence:

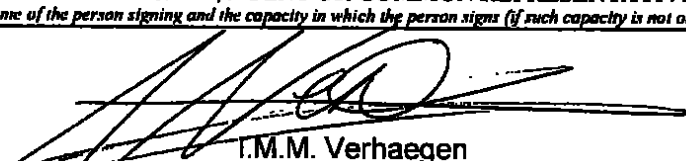
This person is applicant for the purposes of:

- ☐ All designated States ☐ all designated States except the United States of America ☐ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box



Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.

Box No. V DESIGNATIONS				
The filing of this request constitutes under Rule 4.9(a), the designation of all Contracting States bound by the PCT on the international filing date, for the grant of every kind of protection available and, where applicable, for the grant of both regional and national patents. However: ☐ DE Germany is not designated for any kind of national protection ☐ KR Republic of Korea is not designated for any kind of national protection ☐ RU Russian Federation is not designated for any kind of national protection				
Box No. VI PRIORITY CLAIM				
The priority of the following earlier application(s) is hereby claimed:				
Filing date of earlier application (day/month/year)	Number of earlier application	Where earlier application is:		
		national application: country or Member of WTO	regional application: * regional Office	International application: receiving Office
item (1) 23 May 2002	03076590.3		EP	
item (2) 23 May 2002	03076591.1		EP	
item (3) 23 May 2002	03076589.5		EP	
item (4) 23 May 2002	03076592.9		EP	
☐ Further priority claims are indicated in the Supplemental Box.				
The receiving Office is requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) (only if the earlier application was filed with the Office which for the purposes of this international application is the receiving Office) identified above as: ☒ all items ☐ item (1) ☐ item (2) ☐ item (3) ☐ other, see Supplemental box <i>*Where the earlier application is an ARIPO application, indicate at least one country party to the Paris Convention for the Protection of Industrial Property or one Member of the World Trade Organization for which that earlier application was filed (Rule 4.10(b)(ii)):</i>				
Box No. VII INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY				
Choice of International Searching Authority (ISA) (if two or more International Searching Authorities are competent to carry out the international search, indicate the Authority chosen; the two-letter code may be used): ISA / Request to use results of earlier search; reference to that search (if an earlier search has been carried out by or requested from the International Searching Authority): Date (day/month/year) Number Country (or regional Office)				
Box No. VIII DECLARATIONS				
The following declarations are contained in Boxes Nos. VIII (i) to (v) (mark the applicable check-boxes below and indicate in the right column the number of each type of declaration):				Number of declarations
☐	Box No. VIII (i)	Declaration as to the identity of the inventor	:	
☐	Box No. VIII (ii)	Declaration as to the applicant's entitlement, as at the international filing date, to apply for and be granted a patent	:	
☐	Box No. VIII (iii)	Declaration as to the applicant's entitlement, as at the international filing date, to claim the priority of the earlier application	:	
☐	Box No. VIII (iv)	Declaration of inventorship (only for the purposes of the designation of the United States of America)	:	
☐	Box No. VIII (v)	Declaration as to non-prejudicial disclosures or exceptions to lack of novelty	:	

Box No. IX CHECK LIST; LANGUAGE OF FILING	
This international application contains: (a) in paper form the following number of sheets: request (including) declaration sheets) : 4 description (excluding sequence listings and/or tables related thereto : 15 claims : 3 abstract : 1 drawings : 3 Sub-total number of sheets : 26 sequence listings : tables related thereto : (for both, actual number of sheets if filed in paper form, whether or not also filed in computer readable form; , see (b) below) Total number of sheets : 26 (b) ☐ only in computer readable form (Section 801(a)(i)) (i) ☐ sequence listings (ii) ☐ tables related thereto (c) ☐ also in computer readable form (Section 801(a)(ii)) (i) ☐ sequence listings (ii) ☐ tables related thereto Type and number of carriers (diskette, CD-ROM, CR-R or other) on which are Contained the ☐ sequence listings:..... ☐ tables related thereto:..... (additional copies to be indicated under item 9(ii) and/or 10(ii), in right column)	This international application is accompanied by the following item(s) (mark the applicable check-boxes below and indicate in right column the number of each item): 1. ☒ fee calculation sheet : 2. ☐ original separate power of attorney : 3. ☐ original general power of attorney : 4. ☒ copy of the general power of attorney; reference number, if any: : 5. ☐ statement explaining lack of signature : 6. ☐ priority document(s) identified in Box No. VI as item(s): : 7. ☐ translation of international application into (language): : 8. ☐ separate indications concerning deposited microorganism or other biological material : 9. ☐ sequence listing in computer readable form (indicate type and number of carriers) (i) ☐ copy submitted for the purposes of international search under Rule 13ter only (and not as part of the international application) : (ii) ☐ (only where check-box (b)(i) or (c)(i) is marked in left column) additional copies including, where applicable, the copy for the purposes of international search under Rule 13ter : (iii) ☐ together with relevant statement as to the identity of the copy or copies with the sequence listing part mentioned in left column : 10. ☐ tables in computer readable form related to sequence listings (indicate type and number of carriers) (i) ☐ copy submitted for the purposes of international search under Section 802(b-quarter) only (and not as part of the international application) : (ii) ☐ (only where check-box (b)(ii) or (c)(ii) is marked in left column) additional copies including, where applicable, the copy for the purposes of international search under Section 802(b-quarter) : (iii) ☐ together with relevant statement as to the identity of the copy or copies with the tables mentioned in left column : 11. ☐ other (specify): : Figure of the drawings which should be accompany the abstract: Language of filing of the International application: English
Box No. IX SIGNATURE OF APPLICANT, AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE Next to each signature, indicate the name of the person signing and the capacity in which the person signs (if such capacity is not obvious from reading the request).  I.M.M. Verhaegen	
1. Date of actual receipt of the purported International application: 3. Corrected date of actual receipt due to later but Timely received papers or drawings completing The purported international application: 4. Date of timely receipt of the required Corrections under PCT Article 11(2): 5. International Searching Authority (if two or more are competent): ISA /	For receiving Office use only 2. Drawings: ☐ received: ☐ not received: 6. ☐ Transmittal of search copy delayed until search fee is aid For International Bureau use only
Date of receipt of the record copy By the International Bureau:	

(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

(19) World Intellectual Property
Organization
International Bureau



(43) International Publication Date
29 December 2004 (29.12.2004)

PCT

(10) International Publication Number
WO 2004/113287 A1

(51) International Patent Classification⁷: C07D 201/04,
B01J 19/26

(74) Agent: VERHAEGEN, Ilse, Maria, Michel; DSM Intellectual Property, P.O. Box 9, NL-6160 MA Geleen (NL).

(21) International Application Number:
PCT/EP2004/005338

(22) International Filing Date: 17 May 2004 (17.05.2004)

(25) Filing Language: English

(26) Publication Language: English

(30) Priority Data:
03076590.3 23 May 2003 (23.05.2003) EP
03076591.1 23 May 2003 (23.05.2003) EP
03076589.5 23 May 2003 (23.05.2003) EP
03076592.9 23 May 2003 (23.05.2003) EP

(71) Applicant (for all designated States except US): DSM IP ASSETS B.V. [NL/NL]; Het Overloon 1, NL-6411 TE Heerlen (NL).

(72) Inventors; and

(75) Inventors/Applicants (for US only): SMEETS, Theodorus, Maria [NL/NL]; Burgemeester Bussenstraat 6, NL-6181 BP Elsloo (NL). LEMMENS, Joannes, Albertus, Wilhelmus [NL/NL]; Willem II Singel 70, NL-6041 HV Roermond (NL). MOSTERT, Frank [NL/NL]; Meendaal 71, NL-6228 GG Maastricht (NL). CHENG, Peter, Wei-Hae [US/US]; 1208 Glenwood Drive, Augusta, GA 30904 (US).

(81) Designated States (unless otherwise indicated, for every kind of national protection available): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Designated States (unless otherwise indicated, for every kind of regional protection available): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), Eurasian (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), European (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Published:

- with international search report
- before the expiration of the time limit for amending the claims and to be republished in the event of receipt of amendments

For two-letter codes and other abbreviations, refer to the "Guidance Notes on Codes and Abbreviations" appearing at the beginning of each regular issue of the PCT Gazette.

(54) Title: PROCESS FOR PREPARING CAPROLACTAM BY ADMIXTURE OF CYCLOHEXANONE OXIME TO A REACTION MIXTURE UNDER TURBULENT FLOW CONDITIONS

(57) Abstract: The invention relates to a process for preparing caprolactam by admixture of cyclohexanone oxime to a reaction mixture comprising caprolactam and sulfuric acid using a mixing device, said mixing device comprising (i) a tube through which the reaction mixture can flow, and (ii) channels disposed around the tube, said channels opening into the tube, said process comprising: passing the reaction mixture through the tube, and feeding the cyclohexanone oxime into the reaction mixture through one or more of said channels, wherein $Re > 5000$, Re being the Reynolds number as defined by $p \cdot V \cdot D / \eta$, wherein p = density (in kg/m^3) of the reaction mixture that is fed to the tube, V = velocity of the reaction mixture, V being defined as W/A , wherein W is the flow rate (in m^3/s) of the reaction mixture that is fed into the tube and A is the cross section area of the tube (in m^2) at the level where said channels open into the tube, D = diameter of the tube at the level where said channels open into the tube (in m), η = viscosity of the reaction mixture that is fed into the tube (in Pa.s).

WO 2004/113287 A1

DATA SHEET

3778

To be filed on or before: 23 November 2005

Title:

PROCESS FOR PREPARING CAPROLACTAM BY ADMIXTURE OF
CYCLOHEXANONE OXIME TO A REACTION MIXTURE UNDER TURBULENT
FLOW CONDITIONS

Applicant:

DSM IP Assets B.V.
Het Overloon 1
6411 TE HEERLEN
NETHERLANDS

Priority/priorities to be claimed:

European Application No. 03076590.3 Filed in EUROPEAN PROCEDURE on 23 May 2003

European Application No. 03076591.1 Filed in EUROPEAN PROCEDURE on 23 May 2003

European Application No. 03076589.5 Filed in EUROPEAN PROCEDURE on 23 May 2003

European Application No. 03076592.9 Filed in EUROPEAN PROCEDURE on 23 May 2003

Assignment:

The right to the invention is based on employment contracts between the inventor and the applicant.

Inventors:

1. SMEETS Theodorus Maria
Burgemeester Eussenstraat 6
6181 BP Elsloo
NETHERLANDS
Country of citizenship: NETHERLANDS

2. LEMMENS Joannes Albertus Wilhelmus
Willem II Singel 70
6041 HV Roermond
NETHERLANDS
Country of citizenship: NETHERLANDS

3. MOSTERT Frank
MEENDAAL 71
6228 GG MAASTRICHT
NETHERLANDS
Country of citizenship: NETHERLANDS

4. CHENG Peter Wei-Hae
1208 Glenwood Drive
30904 AUGUSTA GEORGIA
UNITED STATES OF AMERICA
Country of citizenship: UNITED STATES OF AMERICA

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

(PCT Article 18 and Rules 43 and 44)

Applicant's or agent's file reference 008WO	FOR FURTHER ACTION see Form PCT/ISA/220 as well as, where applicable, Item 5 below.	
International application No. PCT EP2004/005338	International filing date (day/month/year) 17/05/2004	(Earliest) Priority Date (day/month/year) 23/05/2002
Applicant IBM IP ASSETS B.V.		

This International Search Report has been prepared by this International Searching Authority and is transmitted to the applicant according to Article 18. A copy is being transmitted to the International Bureau.

This International Search Report consists of a total of 6 sheets.

☒ It is also accompanied by a copy of each prior art document cited in this report.

1. Basis of the report

- a. With regard to the language, the international search was carried out on the basis of the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.

☐ The international search was carried out on the basis of a translation of the international application furnished to this Authority (Rule 23.1(b)).

- b. ☐ With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, see Box No. I.

2. ☐ Certain claims were found unsearchable (See Box II).**3. ☒ Unity of invention is lacking (see Box III).****4. With regard to the title,**

☐ the text is approved as submitted by the applicant.

☒ the text has been established by this Authority to read as follows:

PROCESS FOR PREPARING CAPROLACTAM BY ADMIXTURE OF CYCLOHEXANONE OXIME TO A REACTION MIXTURE UNDER TURBULENT FLOW CONDITIONS

5. With regard to the abstract,

☒ the text is approved as submitted by the applicant.

☐ the text has been established, according to Rule 38.2(b), by this Authority as it appears in Box No. IV. The applicant may, within one month from the date of mailing of this international search report, submit comments to this Authority.

6. With regards to the drawings,

- a. the figure of the drawings to be published with the abstract is Figure No. _____

☐ as suggested by the applicant.

☐ as selected by this Authority, because the applicant failed to suggest a figure.

☐ as selected by this Authority, because this figure better characterizes the invention.

- b. ☒ none of the figures is to be published with the abstract.

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C07D201/04 B01J19/26

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C07D B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	GB 1 240 756 A (INVENTA AG) 28 July 1971 (1971-07-28)	1-14
X	claim 6 page 3 - page 4	15-20
Y	GB 1 105 805 A (INVENTA AG) 13 March 1968 (1968-03-13) examples figures 1,2	1-20
Y	US 3 914 217 A (SMITH JOSEPH A) 21 October 1975 (1975-10-21) examples 1,2	1-20
Y	US 3 553 204 A (SCHULTZE HANS-JOACHIM ET AL) 5 January 1971 (1971-01-05) examples 1-4	1-20
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

3 November 2004

Date of mailing of the international search report

11/11/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Kollmannsberger, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2004/00533857
56

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	GB 1 581 788 A (STAMICARBON) 17 December 1980 (1980-12-17) claim 1 figure 1 -----	1-20

57⁵⁸

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

This International Searching Authority found multiple (groups of) inventions in this international application, as follows:

1. claims: 1-14

process for the preparation of caprolactam

2. claims: 15-20

apparatus for the preparation of caprolactam

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2004/005338

58

Box II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Search Report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the International Application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful International Search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this International application, as follows:

see additional sheet

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this International Search Report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/005338

60

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 1240756	A	28-07-1971	CH 519448 A	29-02-1972
			BE 731358 A	15-09-1969
			DE 1918585 A1	02-09-1971
			ES 379889 A1	16-09-1972
			FR 2006073 A6	19-12-1969
			JP 54027579 B	11-09-1979
			NL 6905456 A	14-10-1969
			NL 7515196 A	29-04-1976
			US 3601318 A	24-08-1971
GB 1105805	A	13-03-1968	CH 454876 A	30-04-1968
			AT 267489 B	27-12-1968
			BE 692620 A	16-06-1967
			CS 188861 B2	30-03-1979
			DE 1695262 A1	18-06-1970
			DE 1918585 A1	02-09-1971
			DK 117423 B	27-04-1970
			ES 335540 A1	16-02-1968
			FR 1507921 A	29-12-1967
			NL 6700581 A ,B	17-07-1967
			SE 356298 B	21-05-1973
			US 3553204 A	05-01-1971
US 3914217	A	21-10-1975	DE 2547025 A1	26-05-1976
			FR 2291195 A1	11-06-1976
			IT 1048863 B	20-12-1980
			JP 51070787 A	18-06-1976
US 3553204	A	05-01-1971	CH 454876 A	30-04-1968
			AT 267489 B	27-12-1968
			BE 692620 A	16-06-1967
			CS 188861 B2	30-03-1979
			DE 1695262 A1	18-06-1970
			DE 1918585 A1	02-09-1971
			DK 117423 B	27-04-1970
			ES 335540 A1	16-02-1968
			FR 1507921 A	29-12-1967
			GB 1105805 A	13-03-1968
			NL 6700581 A ,B	17-07-1967
			SE 356298 B	21-05-1973
GB 1581788	A	17-12-1980	NL 7609749 A	06-03-1978
			BE 858331 A2	01-03-1978
			CH 631967 A5	15-09-1982
			DE 2739614 A1	09-03-1978
			JP 53053687 A	16-05-1978

PATENT COOPERATION TREATY

61
60

From the
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

To:

see form PCT/ISA/220

PCT

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY
(PCT Rule 43bis.1)

Date of mailing
(day/month/year) see form PCT/ISA/210 (second sheet)

Applicant's or agent's file reference
see form PCT/ISA/220

FOR FURTHER ACTION
See paragraph 2 below

International application No. PCT/EP2004/005338	International filing date (day/month/year) 17.05.2004	Priority date (day/month/year) 23.05.2003
--	--	--

International Patent Classification (IPC) or both national classification and IPC
C07D201/04, B01J19/26

Applicant
DSM IP ASSETS B.V.

1. This opinion contains indications relating to the following items:

- ☒ Box No. I Basis of the opinion
- ☐ Box No. II Priority
- ☐ Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- ☒ Box No. IV Lack of unity of invention
- ☒ Box No. V Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- ☐ Box No. VI Certain documents cited
- ☐ Box No. VII Certain defects in the international application
- ☒ Box No. VIII Certain observations on the international application

2. **FURTHER ACTION**

If a demand for international preliminary examination is made, this opinion will usually be considered to be a written opinion of the International Preliminary Examining Authority ("IPEA"). However, this does not apply where the applicant chooses an Authority other than this one to be the IPEA and the chosen IPEA has notified the International Bureau under Rule 66.1bis(b) that written opinions of this International Searching Authority will not be so considered.

If this opinion is, as provided above, considered to be a written opinion of the IPEA, the applicant is invited to submit to the IPEA a written reply together, where appropriate, with amendments, before the expiration of three months from the date of mailing of Form PCT/ISA/220 or before the expiration of 22 months from the priority date, whichever expires later.

For further options, see Form PCT/ISA/220.

23.03.2005

3. For further details, see notes to Form PCT/ISA/220.

Name and mailing address of the ISA:  European Patent Office D-80298 Munich Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4485	Authorized Officer Kollmannsberger, M Telephone No. +49 89 2399-7364 
---	---

62
61

Box No. 1 Basis of the opinion

- 1 With regard to the **language**, this opinion has been established on the basis of the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.
- ☐ This opinion has been established on the basis of a translation from the original language into the following language , which is the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rules 12.3 and 23.1(b)).
- 2 With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application and necessary to the claimed invention, this opinion has been established on the basis of:
- a. type of material:
- ☐ a sequence listing
- ☐ table(s) related to the sequence listing
- b. format of material:
- ☐ in written format
- ☐ in computer readable form
- c. time of filing/furnishing:
- ☐ contained in the international application as filed.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority for the purposes of search.
3. ☐ In addition, in the case that more than one version or copy of a sequence listing and/or table relating thereto has been filed or furnished, the required statements that the information in the subsequent or additional copies is identical to that in the application as filed or does not go beyond the application as filed, as appropriate, were furnished.
4. Additional comments:

63
62

Box No. IV Lack of unity of invention

1. ☐ In response to the invitation (Form PCT/ISA/206) to pay additional fees, the applicant has:
- ☐ paid additional fees.
 - ☐ paid additional fees under protest.
 - ☐ not paid additional fees.
2. ☒ This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose not to invite the applicant to pay additional fees.
3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rule 13.1, 13.2 and 13.3 is
- ☐ complied with
 - ☒ not complied with for the following reasons:
see separate sheet
4. Consequently, this report has been established in respect of the following parts of the international application:
- ☒ all parts.
 - ☐ the parts relating to claims Nos.

Box No. V Reasoned statement under Rule 43b/s.1(a)(i) with regard to novelty, Inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Yes: Claims	1-14,16
	No: Claims	15,17-20
Inventive step (IS)	Yes: Claims	
	No: Claims	1-20
Industrial applicability (IA)	Yes: Claims	1-20
	No: Claims	

2. Citations and explanations

see separate sheet

Box No. VIII Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

see separate sheet

69
63

Re Item IV

Lack of unity of invention

The application lacks unity (Rules 13.1. and 13.2. PCT).

The only common feature between the process claims 1-16 on the one hand and the apparatus claims 18-23 on the other hand is the mixing device (or its use) defined in the preamble of claim 1. However, this device is known (see D1 which is a family member of US 3,601,318 cited in the description), as also acknowledged in the description (see page 1 paragraph 3/4). The characterizing feature of the process claimed in claim 1 is apparently the use of turbulent flow conditions whereas the apparatus claims may have their characteristics in a particular arrangement of mixer, cooler, pump etc.

There is thus no (corresponding) technical feature present which could link the process claims on the one hand and the apparatus claims on the other hand to form a single general inventive concept. The application thus contains two different inventions. One of them will have to be excised from the claims, description and drawings.

Re Item V

**Reasoned statement with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
citations and explanations supporting such statement**

V-1. Prior Art

The following documents are considered relevant:

- D1: GB-A-1 240 756 (INVENTA AG) 28 July 1971 (1971-07-28)
- D2: GB-A-1 105 805 (INVENTA AG) 13 March 1968 (1968-03-13)
- D3: US-A-3 914 217 (SMITH JOSEPH A) 21 October 1975 (1975-10-21)
- D4: US-A-3 553 204 (SCHULTZE HANS-JOACHIM ET AL) 5 January 1971 (1971-01-05)
- D5: GB-A-1 581 788 (STAMICARBON) 17 December 1980 (1980-12-17)

V-2. Novelty (Art. 33(2) PCT):

ad invention 1:

Claims 1-14 are directed to a process for preparing caprolactam wherein cyclohexanone oxime is added to the reaction mixture (caprolactam and sulfuric acid) via channels into a tube through which the reaction mixture flows. The process is characterized in that the Reynolds number is >5000 , i. e. the flow is turbulent.

D1 discloses a similar process (e. g. claim 6 which refers to the process carried out in D2) where the Reynolds number is not measured. Since the D1 mentions laminar flow conditions (i. e. $Re < 2500$) the claimed process is considered novel over D1.

D2/D4/D5 differ in that the mixer is shaped differently. In D3 different type of mixers are described (see e. g. example 1, example 2) but the claimed one is not specifically disclosed.

Claims 1-14 are thus novel over the cited prior art.

ad invention 2:

Claim 15 defines an apparatus containing a mixer (essentially Venturi-type), a pump and a cooler connected by pipes where the reaction mixture can circulate in the above order. D1 (see claim 6) in combination with D2 (to which claim 6 refers) describe such an apparatus (see figures 1 and 2 of D2). Claim 15 and dependent claims 17-20 are not novel.

Claim 16 defines an apparatus containing a mixer (essentially Venturi-type), a collecting vessel and a cooler connected by pipes where the reaction mixture can circulate in the above order. D2-D5 differ in the nature of the mixer. The apparatus described in D1 (claim 6 in combination with D2) differs from the claimed arrangement in the bsence of the collecting vessel between the pumop and the cooler. Claim 16 is considered novel.

66
65

V-3. Inventive Step (Art. 33(3) PCT):

ad invention 1:

D1 is seen as the closest state of the art since the process carried out in D1 uses the same mixer (see e. g. claim 6). The only difference appears to be the use of a turbulent flow in the mixer tube. The problem to be solved in view of D1 is thus the provision of an improved process for the preparation of caprolactam.

The solution consists in the use of turbulent instead of laminar flow conditions. The applicant has shown (see comparative examples in the description) that the use of a turbulent flow results in the increase of the product yield. However, this result would have been expected by a man skilled in the art. It is clear that a turbulent flow will lead to better mixing of the two reactant streams (since e. g. the mass transport is dependent on the Reynolds number) and a man skilled in the art would have tried the claimed process with a reasonable expectation of success if faced with the above problem. This holds in particular because all prior art documents (see e. g. D2 paragraph bridging columns 1 and 2) state that rapid mixing of the reactants is of crucial importance for the outcome of the process.

Claims 1-14 do not fulfil Art. 33(3) PCT).

ad invention 2:

Since claims 15 and 17-20 are not novel they also do not fulfil Art. 33(3) PCT. Closest prior art for claim 16 is seen in D1 since the arrangement there uses the same mixer. The problem to be solved is to find an apparatus in which improved yields in caprolactam preparation can be achieved.

The difference of the claimed apparatus arrangement with respect to the obne disclosed in D1 lies in the presence of a collecting vessel between the mixer and the cooler. It is clear for a man skilled in the art that a collecting vessel can also be introduced after the mixer. Additionally it is clear from the description that the improvment in the yields is

67
66

**WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING
AUTHORITY (SEPARATE SHEET)**

International application No.

PCT/EP2004/005338

related to the use of turbulent as opposed to laminar flow conditions and has nothing to do with the possibly different arrangement of the pumps, collers and collecting vessels.

Claims 15-20 do not fulfil Art. 33(3) PCT.

Re Item VIII

Certain observations on the international application

It appears that the reference signs in the drawings do not correspond to the numbers given in the text of the description.

2

0

20
67

SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO

Radicacion : 05128932 00000000

Folios: 69

Fecha (AMD): 2005-12-22 14:19:45

Tramite : 011 PCT-PATENT 379 FASE NACI 411 PRESENTAC

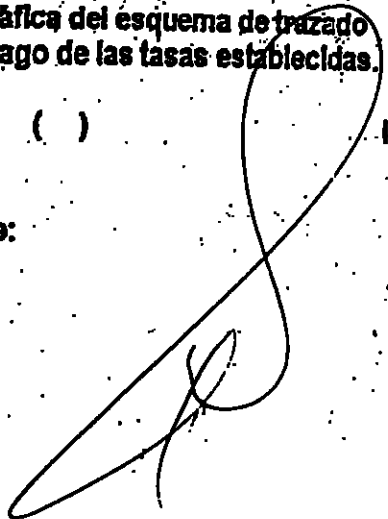
Dependencia: 2020 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

REQUISITOS NECESARIOS PARA PRESENTACION Y AGILIZACION DEL TRAMITE

	USUARIO	RADICADOR
PATENTE DE INVENCION <i>PCT</i> MODELO DE UTILIDAD	()	()
- Indicación de que se solicita la concesión de una patente.	()	()
- Datos de identificación del solicitante o de la persona que se presenta la solicitud.	()	()
- Descripción de la invención.	()	()
- Dibujos de ser estos pertinentes.	()	()
- Comprobante de Pago de las tasas establecidas.	()	()
COMPLETA () <i>(X)</i>	INCOMPLETA ()	()
DISEÑO INDUSTRIAL ()		
- Indicación de que se solicita el registro de Diseño Industrial	()	()
- Datos de identificación del solicitante o de la persona que presenta la solicitud.	()	()
- Representación gráfica o fotográfica del Diseño Industrial o muestra del Material que incorpora el diseño.	()	()
- Comprobante de pago de las tasas establecidas	()	()
COMPLETA ()	INCOMPLETA ()	()
ESQUEMA DE TRAZADO ()		
- Indicación de que solicita el registro de un Esquema de trazado.	()	()
- Datos de identificación del solicitante o de la persona que presenta la solicitud.	()	()
- Representación gráfica del esquema de trazado	()	()
- Comprobante de pago de las tasas establecidas.	()	()
COMPLETA ()	INCOMPLETA ()	()

Firma Responsable:

Fecha:



68

REPUBLICA DE COLOMBIA
SUPERINTENDENCIA DE INDUSTRIA Y COMERCIO

Bogotá,
2020

Doctor(a)
ESCOBAR URIBE JIMENA
Apoderado(a) y/o Representante de
DSM IP ASSETS B.V.

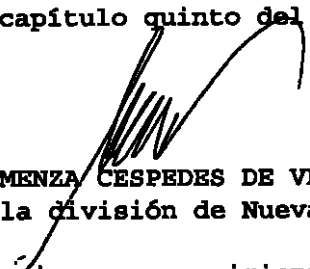
REFERENCIA	Radicación No.	5 128932
	Solicitud internacional	PCT/EP2004/005338
	Fecha inicio fase nacional	23/12/2005
	Trámite	11
	Evento	379
	Actuación	430
	Oficio No.	3349

Como resultado del examen de forma, realizado con fundamento en el artículo 38 de la Decisión 486 de la Comisión de la Comunidad Andina, artículo 27 del Tratado de Cooperación en Materia de Patentes (PCT), regla 51 bis del Reglamento y Circular Única de la Superintendencia de Industria y Comercio, se le comunica que:

1. La solicitud no contiene la copia del documento en que consta la cesión del derecho a la patente del inventor al solicitante o a su causante. (Art. 26-k) Decisión 486.

En cumplimiento de lo dispuesto por el artículo 39 de la Decisión 486, se le requiere para que dentro del término de dos meses siguientes a la fecha de notificación del presente oficio, complete los requisitos anteriormente enunciados. En caso de no dar cumplimiento al presente requerimiento, la solicitud se considerará abandonada y perderá su prelación.

Notifíquese el presente oficio conforme a lo dispuesto en el numeral 5.2, literal e), del capítulo quinto del título primero de la Circular Unica No.10 de 2001.


ALIX CARMENZA CESPEDES DE VERGEL
Jefe de la división de Nuevas Creaciones

El anterior requerimiento fue notificado por fijación en lista de
fecha 24 MAR. 2006
adpa11