

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 513 826**

51 Int. Cl.:

**C07D 201/04** (2006.01)

**C07D 225/02** (2006.01)

**C07B 61/00** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **19.11.2008** **E 08853278 (3)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **24.09.2014** **EP 2223911**

54 Título: **Método para la producción de lauro lactama**

30 Prioridad:

**29.11.2007 JP 2007308746**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

**27.10.2014**

73 Titular/es:

**UBE INDUSTRIES, LTD. (100.0%)  
1978-96, OAZA KOGUSHI  
UBE-SHI, YAMAGUCHI 755-8633, JP**

72 Inventor/es:

**KUGIMOTO, JUNICHI;  
KAWAI, JOJI;  
SHIMOMURA, HIDEO;  
YASUMATSU, RYOUTA y  
II, NOBUHIRO**

74 Agente/Representante:

**CARVAJAL Y URQUIJO, Isabel**

**ES 2 513 826 T3**

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

## DESCRIPCIÓN

Método para la producción de lauro lactama

## CAMPO TÉCNICO

5 La presente invención se refiere a un procedimiento para producir lauro lactama a partir de ciclododecanona e hidroxilamina mediante un procedimiento industrialmente práctico.

## TÉCNICA PRECEDENTE

10 Un procedimiento industrial común para producir un compuesto de amida implica la trasposición de Beckmann de un compuesto de oxima correspondiente. Por ejemplo,  $\epsilon$ -caprolactama que es industrialmente útil se produce mediante la trasposición de Beckmann de oxima de ciclohexanona. Catalizadores de trasposición usados son generalmente ácido sulfúrico concentrado y ácido sulfúrico fumante. Puesto que estos ácidos fuertes se deben usar en cantidades estequiométricas o mayores, forman una gran cantidad de sulfato amónico como un subproducto durante la neutralización. Aunque la lauro lactama, que es una materia prima para Nylon 12, también se produce de un modo similar, el procedimiento es más complejo debido a que la oxima de ciclododecanona como un producto intermedio tiene un alto punto de fusión. Al producir  $\epsilon$ -caprolactama, tanto la oxima de ciclohexanona como la  $\epsilon$ -caprolactama tienen un punto de ebullición relativamente inferior, de modo que la formación de oxima o la trasposición se pueden efectuar en un sistema libre de disolvente, pero la producción de lauro lactama requiere un disolvente de reacción. Este disolvente de reacción debe ser capaz de disolver sustancialmente oxima de ciclododecanona y ser inerte al ácido sulfúrico concentrado o el ácido sulfúrico fumante, y por lo tanto la selección del disolvente está considerablemente restringida.

20 Solo se conocen dos procedimientos para producir industrialmente lauro lactama a partir de ciclododecanona y una solución acuosa de hidroxilamina. Uno es un procedimiento desarrollado comercialmente por Degussa Company. Este método es como sigue. La ciclododecanona se convierte en una oxima usando isopropilciclohexano como un disolvente y después separando las capas, una solución resultante de oxima de ciclododecanona en isopropilciclohexano se añade lentamente a ácido sulfúrico concentrado a una temperatura baja para preparar una solución de un aducto de sulfato de oxima de ciclododecanona en ácido sulfúrico. Después de separar y recuperar isopropilciclohexano, la solución residual de aducto de sulfato de oxima de ciclododecanona en ácido sulfúrico se calienta para iniciar la trasposición de Beckmann de la oxima. Después de la reacción de trasposición, se añade agua al sistema para diluir el ácido sulfúrico y, a continuación, la lauro lactama producida se extrae con un disolvente orgánico. Aquí, el disolvente de extracción puede ser isopropilciclohexano o ciclododecanona. El disolvente de extracción se recupera mediante la destilación de la solución de extracción resultante y a continuación la lauro lactama del residuo se purifica mediante destilación (véase la Referencia de Patente N° 1).

35 Este procedimiento no genera sulfato amónico como un subproducto en la etapa de reacción de trasposición, pero requiere instalaciones y energía enormemente grandes para tratar una gran cantidad de ácido sulfúrico diluido en el residuo. Por otra parte, puesto que la ciclododecanona reacciona con ácido sulfúrico concentrado para formar un subproducto, la reacción de formación de oxima se debe completar para eliminar ciclododecanona residual, pero debido a la hidrofobia del isopropilciclohexano, la velocidad de transferencia de masa es baja en una interfase aceite-agua, conduciendo a una reacción de formación de oxima más prolongada. En conjunto, el procedimiento implica muchas etapas de separación, recuperación y reciclado de disolventes y, por lo tanto, requiere unos costes de equipo y una energía considerablemente grandes.

40 Otro procedimiento industrial es el que está desarrollado comercialmente por Ube Industries-EMS. Este procedimiento utiliza el hecho de que la oxima de ciclohexanona y la caprolactama son buenos disolventes para la oxima de ciclododecanona y la lauro lactama, respectivamente (por ejemplo, véase la Referencia de Patente 2). Específicamente, una mezcla de ciclododecanona y ciclohexanona se combina con una solución acuosa de hidroxilamina para producir oximas. La oxima de ciclohexanona producida tiene un bajo punto de fusión y es un buen disolvente para la oxima de ciclododecanona, de modo que la reacción se puede efectuar a 100°C o menos y a presión ambiente. Por otra parte, la oxima de ciclohexanona es adecuadamente hidrófila para que la reacción de formación de oxima avance rápidamente, y la mezcla se transfiere a la etapa de trasposición sin ciclohexanona o ciclododecanona residuales. Un catalizador de trasposición usado es ácido sulfúrico concentrado o ácido sulfúrico fumante. Considerando que la lauro lactama producida tiene un alto punto de fusión, es muy soluble en caprolactama que tiene un bajo punto de fusión. Por lo tanto, la reacción se puede llevar a cabo a una temperatura de 100°C o inferior. La solución de la reacción de trasposición resultante se neutraliza con agua amoniacal y a continuación se extrae con un disolvente orgánico. La caprolactama se puede disolver en agua hasta algún punto, pero se extrae en un disolvente orgánico debido al efecto de desalado del sulfato amónico. A continuación, se añade una gran cantidad de agua a la solución que contiene lauro lactama extraída y caprolactama, y la caprolactama se extrae en la fase acuosa. A partir de la fase orgánica separada, el disolvente orgánico se recupera y la lauro lactama se purifica mediante destilación. La fase acuosa se concentra y, después de retirar las impurezas, la caprolactama se purifica.

Este procedimiento es excelente ya que se pueden producir conjuntamente lauro lactama y caprolactama. Sin embargo, como un procedimiento para producir lauro lactama, tiene los siguientes problemas; (1) la separación y la purificación de caprolactama requiere grandes cantidades de gastos de equipo, que dan como resultado una baja eficacia de inversión y el procedimiento implica operaciones de baja eficacia energética tales como la concentración de una solución acuosa de caprolactama; (2) hay una restricción hasta una relación de producción de lauro lactama/caprolactama; y (3) la caprolactama es un producto de bajo valor añadido en comparación con la lauro lactama y la eficacia de uso de la hidroxilamina es baja.

Recientemente, se han investigado intensivamente catalizadores de trasposición que no requieran una gran cantidad de ácido sulfúrico o ácido sulfúrico fumante. Como un sistema que contiene un ácido fuerte, se han presentado una mezcla de sal amónica de peróxido de renio y ácido trifluorometanosulfónico (Referencia No Relacionada con las Patentes 1), triflato de indio (Referencia No Relacionada con las Patentes 2) y triflato de iterbio (Referencia No Relacionada con las Patentes 3). Métodos conocidos que utilizan un sistema que contiene un ácido y un agente deshidratante incluyen un método para efectuar una reacción de trasposición que usa pentóxido de fósforo o un compuesto de ácido fosfórico condensado y un anhídrido sulfónico o anhídrido sulfocarboxílico libre de flúor en un compuesto de amida N,N-disustituido como un disolvente (Referencias de Patente 3 y 4) y un método que usa un catalizador de zeolita pretratado con una solución acuosa que contiene ácido (Referencia de Patente 5). Como métodos que no usan ácidos, se han sugerido un método para efectuar la reacción de trasposición en presencia de un compuesto de renio y un compuesto heterocíclico que contiene nitrógeno (Referencias de Patente 6 y 7) y un método para usar óxido de cinc (Referencia de Patente 8). La Referencia de Patente 9 ha divulgado un método para hacer reaccionar una oxima y un ácido carboxílico en un disolvente de ácido carboxílico usando cloruro cianúrico (triclorotriacina) como un agente deshidratante, produciendo de ese modo un éster que a continuación se somete a una reacción de trasposición. La Referencia de Patente 10 ha divulgado un método en el que un hidrocloreto de oxima se somete a trasposición usando cloruro cianúrico (triclorotriacina) como un iniciador.

Aunque algunos de estos catalizadores y procedimientos de fabricación pueden proporcionar un alto rendimiento de trasposición, estos métodos emplean catalizadores y/o disolventes especiales, para los que no se divulga un procedimiento de recuperación o reciclado y, por lo tanto, no están establecidos como un procedimiento industrial.

La Referencia de Patente 11 ha descrito la trasposición de Beckmann de un compuesto de oxima en un disolvente polar, en la que un catalizador de trasposición usado es un compuesto aromático (1) que contiene, como miembro del anillo aromático, al menos un átomo de carbono que tiene un grupo saliente, (2) que contiene al menos tres miembros del anillo aromático que son cualquiera o ambos de heteroátomos o/y átomos de carbono que tienen un grupo aceptor de electrones, y (3) en la que dos de los heteroátomos y/o átomos de carbono que tienen un grupo aceptor de electrones están en la posición orto o para con respecto al átomo de carbono que tiene un grupo aceptor de electrones. Una descripción similar se puede encontrar en la Referencia No Relacionada con las Patentes 4. La Referencia No Relacionada con las Patentes 5 divulga que una sal de ácido fosfórico que tiene una estructura heterocíclica similar a la de la Referencia de Patente 11 es activa para la trasposición de Beckmann.

El catalizador divulgado en la Referencia de Patente N° 11 es muy activo para una reacción de trasposición de oxima de ciclododecanona para proporcionar lauro lactama con un alto rendimiento y, por lo tanto, es adecuado como un catalizador para una reacción de trasposición para producir lauro lactama. Sin embargo, los disolventes usados en la reacción de trasposición son disolventes polares, específicamente, un nitrilo que está recomendado como un disolvente no se puede usar para una reacción de formación de oxima debido a que reacciona con hidroxilamina para formar una amidoxima. Por otra parte, puesto que es propenso a la hidrólisis, la pérdida del catalizador se produce inevitablemente en la etapa de retirada del catalizador y similares. Puesto que es muy miscible con agua, el procedimiento para deshidratar los materiales para la trasposición se vuelve complejo. Por lo tanto, para establecer un procedimiento industrial prácticamente viable, se deben seleccionar los disolventes y los procedimientos, teniendo en cuenta las etapas individuales desde las materias primas hasta un producto final incluyendo una etapa de formación de oxima.

Referencia de Patente 1: publicación de patente japonesa examinada n° S52-033118 (1977-033118).

Referencia de Patente 2: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público n° H05-4964 (1993-4964).

Referencia de Patente 3: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público n° 2001-302602.

Referencia de Patente 4: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público n° 2001-302603.

Referencia de Patente 5: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público n° 2001-072658.

Referencia de Patente 6: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público n° H09-301951 (1997-301951).

Referencia de Patente 7: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público nº H09-301952 (1997-301952).

Referencia de Patente 8: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público nº 2001-019670.

Referencia de Patente 9: publicación de patente japonesa examinada nº S46-23740 (1971-23740).

5 Referencia de Patente Nº 10: publicación de patente japonesa examinada nº S47-18114 (1972-18114).

Referencia de Patente Nº 11: publicación de patente japonesa abierta a consulta por el público nº 2006-219470.

Referencia No Relacionada con las Patentes 1: K. Narasaka, y cols., Chemistry Letter, pp. 489-492 (1993).

Referencia No Relacionada con las Patentes 2: J. S. Sandhu, y cols., Indian Journal of Chemistry, pp. 154-156 (2002).

10 Referencia No Relacionada con las Patentes 3: J. S. Yadav, y cols., Journal of Chemical Research(S), pp. 236-238 (2002).

Referencia No Relacionada con las Patentes 4: K. Ishihara, y cols., Journal of American Chemical Society, pp. 11240-11241 (2005).

Referencia No Relacionada con las Patentes 5: M. Zhu, y cols., Tetrahedron Letters, pp. 4861-4863 (2006).

15 DIVULGACIÓN DE LA INVENCIÓN

ASUNTO A RESOLVER POR LA INVENCIÓN

Un objetivo de la presente invención es proporcionar un procedimiento para producir eficazmente lauro lactama a partir de ciclododecanona e hidroxilamina mediante un procedimiento práctico. Otro objetivo de la presente invención es proporcionar un procedimiento para producir lauro lactama usando una combinación de instalaciones económicas.

20 MEDIOS PARA RESOLVER EL ASUNTO

La presente invención se refiere a los siguientes puntos.

1. Un procedimiento para producir lauro lactama que comprende las etapas de:

25 (a) hacer reaccionar ciclododecanona con hidroxilamina en una solución acuosa en presencia de un disolvente orgánico (en lo sucesivo denominado en la presente "disolvente de formación de oxima") para producir oxima de ciclododecanona (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de formación de oxima");

(b) separar la mezcla de reacción obtenida después de la etapa de formación de oxima en fases oleosa y acuosa y recoger una solución de oxima de ciclododecanona de la fase oleosa (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de separación de fases oleosa/acuosa");

30 (c) retirar el disolvente de formación de oxima y el agua disuelta mediante destilación de la solución de oxima de ciclododecanona que se recoge como una fase oleosa en la etapa de separación de fases oleosa/acuosa, preparando de ese modo una solución de oxima de ciclododecanona deshidratada que contiene un disolventes que se va a usar en una reacción de trasposición en la etapa de trasposición (en lo sucesivo denominado en la presente "disolvente de trasposición") y la oxima de ciclododecanona, en donde el disolvente de trasposición tiene un punto de ebullición superior que el punto de ebullición del disolvente de formación de oxima, una porción del disolvente de trasposición se retira mediante la destilación, y en donde el contenido de agua residual en la solución de oxima de ciclododecanona deshidratada que se va a alimentar a la etapa de trasposición se reduce hasta 1.000 ppm o menos (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de deshidratación/preparación del disolvente");

40 (d) producir lauro lactama a partir de oxima de ciclododecanona mediante una reacción de trasposición usando triclorotriacina como un catalizador de trasposición (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de trasposición"); y

(e) separar y retirar el disolvente de trasposición y el catalizador de trasposición de la mezcla de reacción obtenida después de la etapa de trasposición, y purificar la lauro lactama (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de separación/purificación").

6. El procedimiento para producir lauro lactama según el punto 5 anterior, en el que en la etapa de deshidratación/preparación del disolvente, el contenido de agua residual en la solución de oxima de ciclododecanona que se va a alimentar a la etapa de trasposición se reduce hasta 100 ppm o menos.

5 7. El procedimiento para producir lauro lactama según uno cualquiera de los puntos 1 a 6 anteriores, en el que el disolvente de trasposición es un disolvente no polar.

8. El procedimiento para producir lauro lactama según el punto 7 anterior, en el que el disolvente de trasposición es uno o más disolventes seleccionados del grupo que consiste en un hidrocarburo alicíclico, un hidrocarburo aromático y un producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados.

10 9. El procedimiento para producir lauro lactama según el punto 7 u 8 anterior, en el que antes de la etapa de separación de fases oleosa/acuosa se añade el disolvente de trasposición.

#### EFFECTO DE LA INVENCION

15 Puesto que la presente invención no emplea ácido sulfúrico concentrado o ácido sulfúrico fumante, no se producen subproductos tales como sulfato amónico, y las etapas requeridas, tales como neutralización, extracción/separación y destilación/recogida se reducen significativamente en comparación con los métodos convencionales y por lo tanto se consigue un procedimiento práctico para producir lauro lactama.

Puesto que los disolventes adecuados para cada reacción también se seleccionan como el disolvente de formación de oxima y el disolvente de trasposición, la reacción de formación de oxima y la de trasposición se pueden completar en un tiempo breve, y se puede obtener lauro lactama con un alto rendimiento.

20 Puesto que, por otra parte, se emplea un disolvente orgánico no polar estable térmicamente y químicamente para el disolvente de trasposición en una realización preferida de la presente invención, el disolvente se puede recoger fácilmente con un alto rendimiento y reciclarse.

#### BREVE DESCRIPCION DE LOS DIBUJOS

La Figura 1 es un diagrama de flujo que muestra los flujos de procedimiento de los Ejemplos 1 a 4.

La Figura 2 es un diagrama de flujo que muestra el flujo de procedimiento del Ejemplo 5.

#### 25 DESCRIPCION DETALLADA DE LA INVENCION

En lo sucesivo, la presente invención se explicará con detalla. En el procedimiento para producir lauro lactama, es de vital importancia seleccionar el catalizador de trasposición y el disolvente de trasposición. En la presente invención, además de que se selecciona un sistema de reacción eficaz, se considera adicionalmente la optimización total como un procedimiento industrial. En lo sucesivo en la presente memoria, se explicará cada etapa.

30 La etapa de formación de oxima es una etapa para producir oxima de ciclododecanona haciendo reaccionar ciclododecanona con una solución acuosa de hidroxilamina en un equivalente molar.

35 La ciclododecanona usada para una materia prima puede estar disponible fácilmente como un agente industrial. Por ejemplo, Invista Company comercializa una mezcla de ciclododecanona y ciclododecanol y, por lo tanto, después de que el ciclododecanol de la mezcla se convierta mediante deshidrogenación en ciclododecanona, el producto se puede usar.

40 La otra materia prima, la hidroxilamina, que es inestable, se produce y se comercializa como una solución acuosa de una sal de hidroxilamina tal como sulfato de hidroxilamina y carbonato de hidroxilamina. Antes de la reacción, una base tal como agua amoniaca se añade a la solución para liberar hidroxilamina, que se va a usar. Una solución acuosa de hidroxilamina en la que la hidroxilamina ya se ha liberado se puede alimentar a la etapa de formación de oxima, pero, generalmente, una solución acuosa de una sal de hidroxilamina (preferiblemente, sulfato) y una base (preferiblemente, agua amoniaca) se alimentan a un reactor de formación de oxima para liberar hidroxilamina en el reactor.

45 Puesto que la oxima de ciclododecanona producida tiene un alto punto de fusión, la reacción de formación de oxima requiere un disolvente. Uno de los requisitos como un disolvente de reacción es una solubilidad superior para disolver oxima de ciclododecanona. Cuando un parámetro de solubilidad como el definido por la siguiente ecuación se usa como un índice, un disolvente que tiene el parámetro de 7,5 a 13,0, particularmente de 8,0 a 12,5, exhibe una gran solubilidad para disolver oxima de ciclododecanona.

- 5 Aquí, un parámetro de solubilidad indica la intensidad de una fuerza de unión intermolecular tal como un enlace de hidrógeno, y generalmente el parámetro superior muestra la polaridad superior. Los compuestos que tienen valores del parámetro de solubilidad cercanos exhiben una gran compatibilidad. Este parámetro se puede calcular a partir de  $\Delta H^V$ , un punto de ebullición estándar y datos de densidad, y  $\Delta H^V$  se puede estimar a partir de una estructura molecular. En la presente, algunos disolventes se midieron con respecto a una solubilidad de oxima de ciclododecanona y la compararon con un parámetro de solubilidad calculado para determinar un índice.

$$\delta = ((\Delta H^V - RT)/V)^{1/2}$$

en donde  $\delta$ : parámetro de solubilidad,  $\Delta H^V$ : cambio de entalpía de evaporación, R: constante de los gases, T: temperatura absoluta, V: volumen molar.

- 10 Los disolventes que sean reactivos con ciclododecanona y/o hidroxilamina se deben excluir aunque sean un disolvente que exhiba un alto poder de disolución para oxima de ciclododecanona. Por ejemplo, las cetonas o los aldehídos no se pueden usar debido a que reaccionan con hidroxilamina para formar cetoximas o aldoximas, respectivamente. El nitrilo reacciona con hidroxilamina para formar amidoximas. Las amidas también reaccionan con hidroxilamina para formar aductos con la hidroxilamina. Por otra parte, las aminas reaccionan con ciclododecanona para formar bases de Schiff. Estos disolventes se excluyen, aunque exhiban alta solubilidad para disolver oxima de ciclododecanona.

- 15 Disolventes utilizables para la formación de oximas son los que exhiben alta solubilidad para disolver oxima de ciclododecanona y son inertes para ciclododecanona y/o hidroxilamina. Sin embargo, los disolventes muy hidrófobos conducen a una velocidad de formación de oxima lenta y así a un tiempo de reacción más prolongado. Por otra parte, los disolventes muy hidrófilos son solubles en una fase acuosa y así se deben recuperar de las fases tanto oleosa como acuosa, lo que es desventajoso en los aspectos de las instalaciones y la energía. Por ejemplo, debido a la razón anterior, son desventajosos hidrocarburos de cadena tales como n-hexano, n-octano, isooctano, n-decano y n-dodecano, alcoholes y éteres solubles en agua que tienen de 1 a 2 átomos de carbono tales como metanol, etanol y etilenglicol.

- 25 Por lo tanto, el disolvente de formación de oxima incluye preferiblemente, por ejemplo, un hidrocarburo alicíclico, un producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados, un hidrocarburo aromático, alcoholes medios y superiores, éteres, glimes, ésteres y similares. Según sea necesario, se puede añadir a estos disolventes un tensioactivo y similares para incrementar la velocidad de formación de oxima.

- 30 Si se seleccionan los que tienen una hidrofilia moderada, es posible usar alcoholes medios y superiores, éteres, glimes (poliéter obtenido condensando etilenglicol), ésteres y similares sin añadir tensioactivo y similares.

Como los alcoholes medios y superiores, se da preferencia a monoalcoholes que tienen de 3 a 12 carbonos y estos alcoholes se prefieren debido a su buen equilibrio entre hidrofilia e hidrofobia. Incluyen, por ejemplo, 1-propanol, 2-propanol, 1-butanol, 2-butanol, alcohol isobutílico, alcohol terc-butílico, alcohol amílico, alcohol isoamílico, hexanol, pentanol, heptanol, octanol, decanol, dodecanol, ciclohexanol, ciclooctanol, ciclododecanol y similares.

- 35 Como éteres, se da preferencia a los que tienen un parámetro de solubilidad no menor de 7,5 e incluyen, por ejemplo, anisol, anetol, alil-etil-éter, alil-fenil-éter, cresol-metil-éter, metoxinaftaleno, etoxinaftaleno y benzofurano.

Como glimes (diésteres glicólicos), se hace un uso preferible de ellos, excepto los que tienen una solubilidad extremadamente alta con agua e incluyen, por ejemplo, monoglime, t-butilglime, butildiglime, triglime y tetraglime.

- 40 Como ésteres, se da preferencia a un éster de carboxilato e incluye, por ejemplo, acetato de metilo, acetato de etilo, acetato de propilo, acetato de hexilo, acetato de bencilo, propionato de metilo, propionato de etilo, isovalerato de metilo, isovalerato de etilo, isobutirato de metilo, octanoato de etilo, succinato de dietilo, succinato de dimetilo, oxalato de dietilo, glutarato de dietilo, benzoato de metilo, benzoato de etilo, ftalato de dietilo y ftalato de dibutilo.

- 45 Aunque el hidrocarburo alicíclico, el producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados y el hidrocarburo aromático son un disolvente no polar, son utilizables y se puede añadir un tensioactivo según sea necesario. Puesto que el hidrocarburo aromático, el producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados y el hidrocarburo alicíclico que tiene una cadena o cadenas laterales y similares también son utilizables como el disolvente de trasposición descrito más tarde, se prefieren por lo que se refiere a la simplificación de las etapas.

Como el hidrocarburo aromático, se da preferencia a benceno, tolueno, xileno, etilbenceno, propilbenceno, butilbenceno, trimetilbenceno, tetrametilbenceno y ciclohexilbenceno, y se da una preferencia particular a benceno,

5 tolueno, xileno. Como el producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados, se da preferencia a tetralina, decalina y dihidronaftaleno, y se da preferencia particular a tetralina y decalina. Además, como el hidrocarburo alicíclico, se da preferencia a un hidrocarburo alicíclico que tiene una cadena o cadenas laterales y se da preferencia a isopropilciclohexano, metilciclohexano, dimetilciclohexano y etilciclohexano, se da preferencia al isopropilciclohexano.

En el disolvente de formación de oxima, puede estar presente el disolvente de trasposición descrito más tarde y se puede mezclar con el disolvente de formación de oxima a menos que reaccione con ciclododecanona y/o hidroxilamina.

10 Aunque la reacción de formación de oxima se puede efectuar a una temperatura alta, la reacción a una temperatura de 100°C o más requiere un recipiente presurizado debido a que la hidroxilamina se usa como una solución acuosa. Por lo tanto, la reacción se efectúa preferiblemente a 100°C o menos y bajo presión ambiente. Por otra parte, la reacción a una temperatura inferior conduce a una reducción en la velocidad de reacción. Por lo tanto, la temperatura es preferiblemente 60°C o más, más preferiblemente 75°C o más.

15 El tiempo de reacción de la reacción de formación de oxima varía dependiendo del disolvente de formación de oxima y su temperatura. Sin embargo, el tiempo es de 0,5 horas a 10 horas, preferiblemente de 1 hora a 6 horas en el caso de efectuar la reacción usando el susodicho monoalcohol que tiene de 3 a 12 carbonos como el disolvente a 75°C. En el caso de un tiempo de reacción más corto, quedaría hidroxilamina y ciclododecanona sin reaccionar. Aunque las materias primas sin reaccionar se pueden reciclar hasta una etapa para producir las materias primas y similares, se requeriría una instalación de reciclado, lo que no se prefiere. En el caso de un tiempo de reacción más  
20 prolongado, no se prefiere debido a que el equipo para la reacción de formación de oxima se haría más largo y más grande.

25 Un reactor de formación de oxima puede ser un reactor común tal como un reactor discontinuo, un reactor semicontinuo, un reactor tubular y un reactor de flujo de depósito, y particularmente es adecuado un reactor de flujo de depósito agitado continuo (CSTR, por sus siglas en inglés). Cuando se usa un CSTR, una solución acuosa de hidroxilamina se alimenta a un primer reactor y una solución de ciclododecanona se alimenta al reactor final, y es deseable que una fase acuosa se transfiera al último reactor y una fase oleosa se transfiera al primer reactor secuencialmente de modo que los reaccionantes se hagan reaccionar completamente sin dejar reaccionantes sin reaccionar.

30 En la etapa de separación de fases oleosa/acuosa posterior, una mezcla de reacción después de la etapa de formación de oxima se separa en una fase oleosa y una fase acuosa para obtener la fase oleosa en la que está disuelta la oxima de ciclododecanona. En la etapa, también se prefiere añadir el disolvente de trasposición (con la premisa de que pase a la fase oleosa) y llevar a cabo la separación de fases oleosa/acuosa, lo que se explicará con detalle para la etapa de deshidratación/preparación del disolvente. La fase oleosa y la fase acuosa se pueden  
35 separar mediante un método de separación usado comúnmente tal como separación por reposo, separación por centrifugación y separaciones con ciclones, pero en un procedimiento industrial continuo, una mezcla de reacción se transfiere desde un reactor de formación de oxima a un separador, donde las fases oleosa y acuosa se separan y se drenan. Dependiendo del tipo del reactor de formación de oxima, la fase oleosa y la fase acuosa se pueden drenar separadamente del reactor. Cuando la formación de oxima se efectúa usando una solución acuosa de sulfato de hidroxilamina (hidroxilamina preparada mediante el método de Rashig, también llamado método del sulfato amónico, en el que una solución acuosa de nitrato amónico se reduce mediante dióxido de azufre en presencia de iones de sulfato de hidrógeno, hasta N,N-disulfato de dihidroxiamida, que a continuación se hidroliza para obtener sulfato de hidroxilamina) y agua amoniacal, se obtiene sulfato amónico como un subproducto a partir de la fase acuosa  
40 separada. Este sulfato amónico se denomina sulfato amónico de oxima, que se purifica más fácilmente que el sulfato amónico como un subproducto en la etapa de trasposición descrita en "TÉCNICA PRECEDENTE" (llamado sulfato amónico de trasposición) y así se puede vender en el mercado. Cuando se usa hidroxilamina preparada mediante el método de HPO en el que se prepara fosfato de hidroxilamina, no se forma sulfato amónico ni siquiera en la etapa de formación de oxima. Por otra parte, con el propósito de recuperar el disolvente de formación de oxima disuelto en la fase acuosa, el disolvente de formación de oxima y la oxima de ciclododecanona se pueden extraer con un disolvente hidrófobo de la fase acuosa.

50 La posterior etapa de deshidratación/preparación del disolvente es una etapa para retirar el disolvente de formación de oxima y agua disuelta en la solución de oxima de ciclododecanona que se ha recogido como una fase oleosa en la etapa de separación de fases oleosa/acuosa, y para convertir el disolvente de la solución de oxima de ciclododecanona en un sistema disolvente adecuado para la posterior etapa de reacción de trasposición. La retirada del disolvente de formación de oxima y el agua disuelta se efectúa mediante destilación. El destilado del disolvente  
55 de formación de oxima se recoge y se recicla a la etapa de formación de oxima, y se usa como el disolvente de la solución de ciclododecanona que se va a aportar a la reacción de formación de oxima. El agua también se retira de modo que la concentración del contenido de agua en la solución de oxima de ciclododecanona que se va a transferir a la etapa de trasposición se haga de 1.000 ppm o menos, preferiblemente 100 ppm o menos.

El disolvente de trasposición se puede añadir después de retirar el disolvente de formación de oxima (por ejemplo, por medio de destilación según se describe anteriormente) o antes de la retirada. En el caso de añadir el disolvente de trasposición antes de retirar el disolvente de formación de oxima, el disolvente de trasposición tiene un punto de ebullición superior al del disolvente de formación de oxima, y, por otra parte, cuando el disolvente de trasposición es hidrófobo, preferiblemente un disolvente no polar, se puede añadir al disolvente de formación de oxima antes de la separación de las fases oleosa/acuosa. Después de la separación de las fases oleosa/acuosa, por medio de destilación, el disolvente de formación de oxima con un punto de ebullición inferior se destila y se retira, y al mismo tiempo el agua disuelta se retira mediante destilación. En esta etapa, una porción del disolvente de trasposición se separa por destilación. El disolvente de la solución de oxima de ciclododecanona como el residuo de esta etapa es ahora sustantivamente el disolvente de trasposición, y la concentración de agua en la solución se ajusta para que sea 1.000 ppm o menos, preferiblemente 100 ppm o menos, según se describe en lo precedente. A continuación, el disolvente como tal se transfiere a la etapa de trasposición.

Cuando, de este modo, el disolvente de trasposición se añade antes de la separación de las fases oleosa/acuosa, la etapa de separación de fases oleosa/acuosa se solapa con la etapa de deshidratación/preparación del disolvente.

El agua disuelta se retira mediante destilación. Se prefiere usar dos o más columnas de destilación según sea necesario. Después de que la mayoría del disolvente de formación de oxima y el agua se separen por destilación en la primera columna de destilación, la parte líquida residual se transfiere a la segunda columna de destilación y el disolvente de formación de oxima y el agua, en particular el agua, se pueden retirar suficientemente mientras una porción del disolvente de trasposición se separa por destilación.

La solución de oxima de ciclododecanona deshidratada se transfiere a la etapa de trasposición. En la etapa de trasposición, se forma la lactama a partir de oxima de ciclododecanona mediante una reacción de trasposición usando el compuesto que contiene anillos aromáticos como un catalizador de trasposición.

Un compuesto que contiene anillos aromáticos usado como un catalizador de trasposición es preferiblemente un compuesto orgánico que tiene una estructura (1) que contiene al menos un átomo de carbono que tiene un grupo saliente como un miembro de anillo del anillo aromático y (2) que contiene al menos dos átomos de carbono que tienen un grupo aceptor de electrones como miembros de anillo del anillo aromático, y (3) en donde tres de los átomos de nitrógeno y/o los átomos de carbono que tienen un grupo aceptor de electrones, cada uno de los cuales es un miembro de anillo del anillo aromático, están en las posiciones orto y para con respecto al átomo de carbono que tiene un grupo saliente descrito en (1).

Ejemplos preferibles del anillo aromático incluyen anillos aromáticos monocíclicos o policíclicos tales como benceno, bifenilo, terfenilo y trifenilo; anillos aromáticos policíclicos condensados tales como naftaleno, antraceno, fluoreno, fenantreno, azuleno y pireno; y heterociclos aromáticos tales como pirrol, furano, tiofeno, imidazol, pirazol, triazol, tetrazol, oxazol, isoxazol, tiazol, isotiazol, furazanpiridina, piracina, pirimidina, piridacina y triacina; de forma particularmente preferible, benceno, piridina, pirimidina y triacina.

Ejemplos de un grupo saliente pueden incluir halógeno (flúor, cloro, bromo y yodo), sulfonilo (arilsulfonilo tal como bencenosulfonilo y p-toluenosulfonilo (tosilo) OTs; y alcanosulfonilo tal como metanosulfonilo OMs, trifluorometanosulfonilo (triflato) OTf, triclorometanosulfonilo y etanosulfonilo y similares), haluro de sulfonilo (cloruro de sulfonilo, bromuro de sulfonilo y similares), diazonio, y haluro de carbonilo (cloruro de carbonilo). Se prefiere particularmente un halógeno, especialmente cloro.

Un grupo aceptor de electrones puede ser cualquier grupo aceptor de electrones conocido sin limitaciones e incluye ciano, trifluorometilo, triclorometilo, nitro, haluro (halógeno), carbonilo y sulfonilo, preferiblemente ciano y nitro.

El catalizador de trasposición es triclorotriacina, que es muy activa y económica.

Además, ácidos tales como cloruro de hidrógeno se pueden añadir como un cocatalizador para mejorar la velocidad de la reacción de trasposición. En particular, es preferible un ácido de Lewis debido a que puede mejorar la velocidad de la reacción de trasposición sin acelerar la hidrólisis de la oxima de ciclododecanona. Ejemplos de un ácido de Lewis generalmente incluyen, pero no se limitan a, cloruro de cinc, cloruro de aluminio, pentacloruro de antimonio y tetracloruro de estaño, y se da preferencia al cloruro de cinc y el tetracloruro de estaño, y de forma particularmente preferible cloruro de cinc que es significativamente eficaz para mejorar la velocidad de reacción.

La reacción de trasposición se lleva a cabo en presencia del disolvente. En las descripciones anteriores y posteriores, el disolvente que se va a usar para la reacción de trasposición se denomina el disolvente de trasposición. Con más detalle, es el disolvente que disuelve la oxima de ciclododecanona cuando la solución de oxima de ciclododecanona se transfiere a la etapa de trasposición. Los requisitos necesarios para el disolvente de trasposición son (1) tiene una excelente solubilidad con oxima de ciclododecanona y la lactama; (2) disuelve el catalizador de trasposición y no reacciona con el catalizador de trasposición; y (3) se recoge y recicla fácilmente, y



tiene altas estabilidades térmicamente y químicamente.

5 Usando el susodicho parámetro de solubilidad como un índice con respecto a la solubilidad con oxima de ciclododecanona, se emplean los disolventes con el parámetro de solubilidad de 7,5 a 13,0, en particular de 8,0 a 12,5, en los que, sin embargo, se excluyen los que reaccionan con grupos de eliminación. En caso de que el grupo de eliminación sea, por ejemplo, un átomo de halógeno, no se pueden usar agua, alcoholes, aminas, mercaptanos, amidas y similares.

10 Otros disolventes diferentes a los disolventes excluidos anteriormente se pueden usar como la reacción de trasposición sin problema. Generalmente, se emplea un disolvente polar para disolver el catalizador de trasposición o el catalizador de trasposición y un cocatalizador y para elevar su acidez después de disolverlos para incrementar la velocidad de reacción de la trasposición. En la susodicha "Referencia de Patente N° 11," por ejemplo, se emplean nitrilos como un disolvente. Sin embargo, los nitrilos no se prefieren debido a que se hidrolizan para dar una amida correspondiente cuando se retira el catalizador, según se describe más tarde.

15 Los disolventes polares no se prefieren debido a que pueden reaccionar durante la retirada del catalizador y la recuperación del disolvente debido a su punto de ebullición superior y reactividad superior en comparación con disolventes no polares con el mismo número de átomos de carbono, conduciendo a una disminución en la relación de recuperación y una degradación de la calidad de la lauro lactama.

20 Por lo tanto, se da preferencia a disolventes no polares como el disolvente de trasposición. Los disolventes no polares facilitan la separación y la retirada del catalizador, y no tienen un efecto adverso sobre la calidad de la lauro lactama. También se prefieren debido a que se recuperan mediante destilación fácilmente y tienen poca pérdida en la recuperación. Entre los disolventes no polares, se da preferencia a un hidrocarburo aromático, un producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados y un hidrocarburo alicíclico (en particular, un hidrocarburo alicíclico que tiene una cadena o cadenas laterales). Como el hidrocarburo aromático, se da preferencia a benceno, tolueno, xileno, etilbenceno, propilbenceno, butilbenceno, trimetilbenceno, tetrametilbenceno y ciclohexilbenceno, y se da preferencia particular a benceno, tolueno, xileno. Como el producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados, se da preferencia a tetralina, decalina y dihidronaftaleno, y se da preferencia particular a tetralina y decalina. Además, como el hidrocarburo alicíclico que tiene una cadena o cadenas laterales, se da preferencia a isopropilciclohexano, metilciclohexano, dimetilciclohexano y etilciclohexano, y se da preferencia particular al isopropilciclohexano.

30 La cantidad del catalizador de trasposición varía dependiendo del contenido de agua en la oxima de ciclododecanona, y es de 0,01% en moles a 20% en moles, preferiblemente de 0,1% en moles a 5% en moles con respecto a la oxima de ciclododecanona. Si la cantidad del catalizador es demasiado pequeña, la velocidad de trasposición es tan baja que puede permanecer desfavorablemente la oxima de ciclododecanona sin reaccionar. En contraste, una cantidad excesiva del catalizador incrementa el coste del catalizador, e incrementa desfavorablemente los costes para un postratamiento (es decir, retirada) o reciclado del catalizador. La cantidad del cocatalizador es una cantidad molar de 0,1 a 10, preferiblemente una cantidad molar de 0,5 a 5 con respecto al catalizador. Una cantidad demasiado pequeña del cocatalizador es menos eficaz para mejorar la velocidad de trasposición mientras que una cantidad excesiva del cocatalizador no puede mejorar adicionalmente la velocidad de trasposición.

40 La temperatura de reacción en la etapa de trasposición es de 50°C a 160°C, preferiblemente de 80°C a 110°C. Una temperatura de reacción demasiado baja es desfavorable debido a que la velocidad de reacción se reduce, conduciendo a un tiempo de reacción más prolongado. A una temperatura baja, la oxima de ciclododecanona es menos soluble en el disolvente de trasposición y la cantidad del disolvente que se va a recuperar o reciclar se incrementa. Por otra parte, una temperatura de reacción demasiado alta es desfavorable debido a que el calor generado en la reacción de trasposición exotérmica puede provocar un incremento rápido en la temperatura hasta el punto de que la reacción no se pueda controlar. Por otra parte, una temperatura de reacción demasiado alta conduce desfavorablemente a una disminución en el rendimiento de trasposición y un deterioro en la calidad del producto tal como un problema de coloración.

50 El tiempo de reacción de la etapa de trasposición es de 5 min. a 10 horas, preferiblemente de 20 min. a 4 horas. El tiempo de reacción varía dependiendo del tipo de catalizador, la concentración del catalizador y la temperatura de reacción, pero las condiciones de reacción anteriores se ajustan de modo que la reacción se pueda controlar fácilmente y no se requiera un volumen de reactor muy grande.

55 La reacción se puede efectuar bajo una presión reducida, una presión ambiente o una presión incrementada. Aunque no se recomienda mucho que la reacción se efectúe bajo una presión incrementada, la reacción se puede efectuar en un sistema cerrado, con lo que se evita que un componente eliminado del catalizador (por ejemplo, cuando el grupo saliente es halógeno, es un haluro de hidrógeno) se difunda hasta el exterior del sistema de reacción. Es preferible emplear un procedimiento cerrado debido a que se puede reducir una instalación para adsorber o retirar el compuesto originado a partir del grupo saliente y el propio compuesto originado a partir del

grupo saliente es un ácido que puede actuar como un cocatalizador que acelera la reacción de trasposición.

Un reactor de trasposición puede ser un reactor común tal como un reactor discontinuo, un reactor tubular y un reactor de flujo de depósito, y particularmente es adecuado un reactor de flujo de depósito agitado continuo (CSTR) a la luz de un control fácil de la temperatura de reacción y un funcionamiento simple.

- 5 La etapa de separación/purificación posterior es una etapa para separar y retirar el disolvente de trasposición y el catalizador de trasposición de la mezcla de reacción después de la etapa de trasposición para obtener lauro lactama purificada.

10 En primer lugar, hay un método de destilación y un método de extinción de adición de agua o álcali, como el método para separar y retirar el catalizador y el cocatalizador del líquido de reacción. Cuando el catalizador y el cocatalizador liberados tienen un punto de ebullición inferior al de la lauro lactama, se pueden recoger mediante destilación bajo presión reducida y reciclarse a la etapa de trasposición; sin embargo, se da preferencia a la retirada con extinción después de la terminación de la trasposición debido a que incluso una cantidad traza del catalizador que contaminara la lauro lactama degradaría su calidad. En el caso de la extinción añadiendo agua, el grupo saliente del catalizador se reemplaza por un grupo hidroxilo y el catalizador migra a la zona de la fase acuosa. Por ejemplo, 15 la triclorotriacina se convierte en ácido cianúrico y se disuelve en una fase acuosa. Puesto que los ácidos usados para el cocatalizador también son solubles en agua, no se pueden retirar lavando con agua. Para facilitar la retirada del catalizador, se puede usar una solución acuosa de álcali tal como amoníaco acuoso e hidróxido sódico acuoso.

20 La purificación adicional de lauro lactama implica típicamente operaciones de destilación (incluyendo obtener un producto como un destilado, obtener un producto como un producto de las colas del hervidor, rectificación, etc.), que preferiblemente se combinan como un procedimiento de múltiples fases. Puesto que el disolvente de trasposición generalmente tiene una temperatura de ebullición inferior que la lauro lactama, el residuo del hervidor que queda (producto de las colas del hervidor) después de recuperar el disolvente de trasposición mediante destilación se puede drenar y destilar una o más veces para que se purifique.

25 No hay restricciones particulares a las condiciones de destilación y el aparato de destilación en la etapa de separación/purificación, pero, para prevenir la apertura del anillo o la polimerización de la lauro lactama, es deseable que se efectúe la destilación a vacío a un vacío de 10 torr o menos de modo que la temperatura de las colas sea 250°C o inferior, preferiblemente 220°C o inferior.

30 Como está claro a partir de las descripciones anteriores, cada etapa en el procedimiento de producción de la presente invención puede ser una combinación de dos o más subetapas, o, si es posible, dos o más etapas se pueden efectuar en el mismo aparato o llevarse a cabo simultáneamente. Aunque la presente invención se utiliza preferiblemente en un procedimiento de producción continuo, por ejemplo, como en un procedimiento industrial, algunas o todas las etapas se pueden efectuar independientemente.

## EJEMPLOS

35 A continuación, la presente invención se explicará específicamente mediante ejemplos ilustrativos. Los presentes ejemplos pretenden mostrar un ejemplo de realizaciones de la presente invención, y la presente invención no está limitada por los presentes ejemplos. Además, los flujos de procedimiento de los Ejemplos 1 a 4, es decir, en el caso en el que el disolvente de formación de oxima difiere del disolvente de trasposición, se muestran en la Figura 1, y el flujo de procedimiento del Ejemplo 5, es decir, en el caso en el que el disolvente de formación de oxima es idéntico al disolvente de trasposición, se muestra en la Figura 2.

### 40 Ejemplo 1

Etapas de formación de oxima y separación de fases oleosa/acuosa

45 A un primer reactor tipo almohada para la formación de oximas con una zona para la fase líquida de 30 l que estaba dividida internamente en cuatro cámaras cada una de las cuales estaba equipada con una paleta de agitación se alimentó una solución acuosa al 15% en peso de sulfato de hidroxilamina (Wako Pure Chemical Industries, Ltd.) en 3 kg/h y la fase oleosa procedente de un segundo reactor para formación de oxima. La temperatura de reacción se fijó a 80°C y 25% en peso de amoníaco acuoso se alimentó a cada cámara a 63 g/h para llevar a cabo la reacción de formación de oxima. La mezcla de reacción se separó en fases de líquido después de que se añadiera tolueno a 1 kg/h, y la fase oleosa compuesta por ciclododecanona, 2-propanol y tolueno se transfirió a la etapa de deshidratación/preparación del disolvente mientras la fase acuosa se alimentaba al segundo reactor para la formación de oxima. El segundo reactor para la formación de oxima era un reactor tipo almohada de 15 l que estaba dividido internamente en cuatro cámaras, y al segundo reactor se alimentaron la fase acuosa anterior de la mezcla de reacción de formación de oxima de 25% en peso de ciclododecanona en solución de 2-propanol a 4 kg/h (cantidad equimolar con respecto al sulfato de hidroxilamina alimentado al primer reactor), la temperatura de reacción se fijó a

80°C y se alimento 25% en peso de amoníaco acuoso a cada cámara a 31 g/h para llevar a cabo la reacción de formación de oxima. La mezcla de reacción obtenida se separó en fases de líquido, y la fase oleosa se alimentó al primer reactor para la formación de oxima. Se añadió tolueno a la fase acuosa a 650 g/h y se recogieron 2-propanol y oxima de ciclododecanona disueltos en agua mediante una extracción en contracorriente, y se transfirieron a la etapa de deshidratación/preparación del disolvente.

La fase acuosa, de la que se recogieron 2-propanol y oxima de ciclododecanona, se concentró y, después de que se recogiera el sulfato amónico precipitado, se eliminó como agua residual.

#### Etapa de deshidratación/preparación del disolvente

Esta etapa está compuesta por dos equipos de destilación. Oxima de ciclododecanona obtenida en la etapa de separación de fases oleosa/acuosa se transfirió al primer equipo de destilación, y se separaron por destilación 2-propanol y agua disuelta. El destilado se recicló a la etapa de formación de oxima como el disolvente de ciclododecanona. El líquido residual (residuo del hervidor) del primer equipo de destilación se transfirió al segundo equipo de destilación, y una pequeña cantidad de agua que contenía tolueno y 2-propanol se separó por destilación de la parte superior de la columna y se recicló al primer equipo de destilación. Como resultado de analizar el líquido residual por medio de cromatografía de gases, no se detectaba 2-propanol. Como resultado de medir la concentración de agua mediante el método de Karl Fischer, también se encontró que era 50 ppm. El líquido residual se alimentó a la etapa de trasposición.

#### Etapa de trasposición

A un reactor de tipo almohada con una zona de fase líquida de 10 l que estaba dividido internamente en tres cámaras cada una de las cuales estaba equipada con una paleta agitadora se alimentaron la solución en tolueno de oxima de ciclododecanona obtenida en la etapa previa y solución al 3% en peso de triclorotriacina en tolueno, a 2.700 g/h y 1.000 g/h, respectivamente, y la reacción de trasposición se llevó a cabo a 90°C (tiempo de permanencia medio: 1,9 horas). Como resultado de recoger una porción de fluido efluente y analizarlo por medio de cromatografía de gases, se encontró que la cantidad de rendimiento de lauro lactama era 1.039 g/h y se encontró que el rendimiento de lauro lactama basado en la ciclododecanona era 96,2%.

#### Etapa de retirada del catalizador

La mezcla de reacción obtenida en la etapa de trasposición se introdujo en un depósito de lavado de tipo depósito agitado, y se lavó con el agua que se añadía en una cantidad de 0,2 veces (relación en peso) del líquido de trasposición y se separó en fases, se lavó adicionalmente con 10% en peso de hidróxido sódico acuoso que se añadía en una cantidad de 0,5 veces (relación en peso) y se llevó a cabo la separación de las fases oleosa/acuosa.

#### Etapa de recogida de ciclododecanona y purificación de lauro lactama

La fase oleosa separada se introdujo en un equipo de destilación a vacío continuo, y el agua, los subproductos ligeros y el tolueno del disolvente se retiraron en primer lugar. El residuo del depósito se introdujo en el segundo equipo de destilación y la lauro lactama se separó por destilación. El residuo del depósito se condujo al tercer equipo de destilación y un destilado que consistía en lauro lactama se recicló al segundo equipo de destilación, y parte del residuo del depósito se separó y su parte principal se recicló a la etapa de retirada del catalizador. Se efectuó una operación continua durante 8 horas para obtener lauro lactama con una pureza de 99,5%. Su rendimiento frente a la ciclododecanona consumida era 94,5% en moles.

#### Ejemplo 2

La reacción se llevó a cabo de un modo similar al Ejemplo 1, excepto que la velocidad de alimentación de solución de triclorotriacina al 3% en peso en tolueno en la etapa de trasposición se cambió a 330 g/h, y adicionalmente 10% en peso de cloruro de cinc en solución de tolueno/lauro lactama (la relación de tolueno/lauro lactama es 1/1 (peso/peso)) se alimentó a 75 g/h. El rendimiento de lauro lactama hasta la etapa de trasposición era 97,5%, el rendimiento de lauro lactama después de la destilación era 96,0% y su pureza era 99,98%.

#### Ejemplo 3

Después de que se llevara a cabo la reacción de formación de oxima de un modo similar al Ejemplo 1, excepto que las velocidades de alimentación de solución de ciclododecanona/(2-propanol, tolueno), solución acuosa de hidroxilamina y amoníaco acuoso en la etapa de formación de oxima se doblaban y la temperatura de reacción era 95°C, se llevaron a cabo la deshidratación y la sustitución del disolvente. Mientras que no se detectaba ciclododecanona sin reaccionar en el líquido residual después de la sustitución del disolvente, se detectaban 90 ppm de agua y 50 ppm de 2-propanol.

La reacción se llevó a cabo de un modo similar al Ejemplo 2, excepto que las velocidades de alimentación de la solución de oxima de ciclododecanona obtenida en la etapa de sustitución del disolvente, la solución de triclorotriacina y la solución de cloruro de cinc se doblaban y la temperatura de reacción era 100°C. Después de lavar con agua e hidróxido sódico acuoso cada uno en una cantidad doble a la del Ejemplo 2, se llevaron a cabo la destilación y la purificación. El rendimiento de laurólactama hasta la etapa de trasposición era 97,0%, el rendimiento de laurólactama después de la destilación era 95,8% y su pureza era 99,85%.

#### Ejemplo 4

La reacción se llevó a cabo de un modo similar al Ejemplo 2, excepto que el tolueno del Ejemplo 2 se reemplazó por isopropilciclohexano y el 2-propanol se reemplazó por 2-metil-2-propanol. Mientras que no se detectaba ciclododecanona sin reaccionar en el líquido residual después de la sustitución del disolvente, se detectaban 90 ppm de agua y 40 ppm de 2-metil-2-propanol. El rendimiento de laurólactama después de la reacción de trasposición era 96,5%, el rendimiento de laurólactama después de la destilación era 95,0% y su pureza era 99,8%

#### Ejemplo 5 (Ejemplo de referencia)

La formación de oxima se llevó a cabo sin usar alcohol como el disolvente de formación de oxima sino con tolueno como el disolvente. Las velocidades de alimentación de la solución en tolueno de ciclododecanona, la solución acuosa de sulfato de hidroxilamina y el amoníaco acuoso eran todas la mitad de la cantidad del Ejemplo 2, y la temperatura de reacción era 95°C. Después de la terminación de la reacción, el agua disuelta en la solución se retiró extrayendo tolueno a una velocidad de destilación de aproximadamente 650 g/h. La concentración de agua después de la deshidratación era 50 ppm, y la relación residual de ciclododecanona era 1,0% en moles. Las velocidades de alimentación a un depósito de reacción de trasposición de la solución de oxima de ciclododecanona, la solución de triclorotriacina y la solución de cloruro de cinc eran todas la mitad de la cantidad del Ejemplo 2, y se llevó a cabo la reacción de trasposición y se llevaron a cabo el lavado con agua y el lavado con hidróxido sódico acuoso. El rendimiento de laurólactama después de la reacción de trasposición era 95,1%, el rendimiento de laurólactama después de la destilación era 94,0% y su pureza era 99,3%.

#### Ejemplo comparativo 1

La reacción se llevó a cabo de un modo similar al Ejemplo 1, excepto que el disolvente de trasposición se reemplazó por benzonitrilo. A medida que pasaba el tiempo de operación se detectaba benzamidoxima que se generaba mediante la reacción de benzonitrilo contenido en el líquido reciclado a la etapa de formación de oxima con hidroxilamina. A medida que esto avanza, se incrementaba la cantidad de ciclododecanona debido a una disminución de la hidroxilamina que se va a usar para la reacción de formación de oxima. Aunque el rendimiento de laurólactama hasta la etapa de trasposición era inicialmente 96,0%, el rendimiento se reducía hasta 82% como resultado de la operación después de 8 horas. Además, el benzonitrilo se hidrolizaba para dar benzamida y similares durante el tratamiento con hidróxido sódico, y la pureza de laurólactama obtenida mediante destilación era 85%.

#### Ejemplo comparativo 2

La reacción se llevó a cabo de un modo similar al Ejemplo 2, excepto que el disolvente de trasposición y el disolvente que disuelve la triclorotriacina y el cloruro de cinc eran 1-metil-2-pirrolidona. Como resultado de recoger la mezcla de reacción de trasposición y llevar a cabo el análisis cromatográfico de gases, el rendimiento de laurólactama era 27,2% y quedaba 70% de oxima de ciclododecanona. Aunque las velocidades de alimentación de la solución de oxima de ciclododecanona y la solución de triclorotriacina y cloruro de cinc se redujeran a la mitad, y su tiempo de permanencia se multiplocara por dos, la velocidad de conversión de oxima de ciclododecanona no se mejoraba.

#### Ejemplo comparativo 3

La reacción se llevó a cabo de un modo similar al Ejemplo 1, excepto que se empleaba meramente una columna de destilación para la etapa de deshidratación/preparación del disolvente. En la solución de oxima de ciclododecanona que se va a transferir a la etapa de trasposición, existían 1.500 ppm de agua y la hidrólisis de oxima de ciclododecanona se producía durante la etapa de trasposición para dar ciclododecanona. Los rendimientos hasta la etapa de trasposición eran 90% para la laurólactama y 6% para la ciclododecanona.

### APLICABILIDAD INDUSTRIAL

Se proporciona un procedimiento industrialmente ventajoso y simple para laurólactama.

50

**REIVINDICACIONES**

1. Un procedimiento para producir lauro lactama que comprende las etapas de:
- 5 (a) hacer reaccionar ciclododecanona con hidroxilamina en una solución acuosa en presencia de un disolvente orgánico (en lo sucesivo denominado en la presente "disolvente de formación de oxima") para producir oxima de ciclododecanona (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de formación de oxima");
- (b) separar la mezcla de reacción obtenida después de la etapa de formación de oxima en fases oleosa y acuosa y recoger una solución de oxima de ciclododecanona de la fase oleosa (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de separación de fases oleosa/acuosa");
- 10 (c) retirar el disolvente de formación de oxima y el agua disuelta mediante destilación de la solución de oxima de ciclododecanona que se recoge como una fase oleosa en la etapa de separación de fases oleosa/acuosa, preparando de ese modo una solución de oxima de ciclododecanona deshidratada que contiene un disolventes que se va a usar en una reacción de trasposición en la etapa de trasposición (en lo sucesivo denominado en la presente "disolvente de trasposición") y la oxima de ciclododecanona,
- 15 en donde el disolvente de trasposición tiene un punto de ebullición superior que el punto de ebullición del disolvente de formación de oxima,
- una porción del disolvente de trasposición se retira mediante la destilación, y
- en donde el contenido de agua residual en la solución de oxima de ciclododecanona deshidratada que se va a alimentar a la etapa de trasposición se reduce hasta 1.000 ppm o menos (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de deshidratación/preparación del disolvente");
- 20 (d) producir lauro lactama a partir de oxima de ciclododecanona mediante una reacción de trasposición usando triclorotriacina como un catalizador de trasposición (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de trasposición"); y
- 25 (e) separar y retirar el disolvente de trasposición y el catalizador de trasposición de la mezcla de reacción obtenida después de la etapa de trasposición, y purificar la lauro lactama (en lo sucesivo denominado en la presente "etapa de separación/purificación").
2. El procedimiento para producir lauro lactama según la reivindicación 1, en el que en la etapa de deshidratación/preparación del disolvente, el contenido de agua residual en la solución de oxima de ciclododecanona que se va a alimentar a la etapa de trasposición se reduce hasta 100 ppm o menos.
- 30 3. El procedimiento para producir lauro lactama según una cualquiera de las reivindicaciones 1 o 2, en el que el disolvente de trasposición es un disolvente no polar.
4. El procedimiento para producir lauro lactama según la reivindicación 3, en el que el disolvente de trasposición es uno o más disolventes seleccionados del grupo que consiste en un hidrocarburo alicíclico, un hidrocarburo aromático y un producto hidrogenado de anillos aromáticos condensados.
- 35 5. El procedimiento para producir lauro lactama según la reivindicación 3 o 4, en el que antes de la etapa de separación de fases oleosa/acuosa se añade el disolvente de trasposición.

FIG. 1

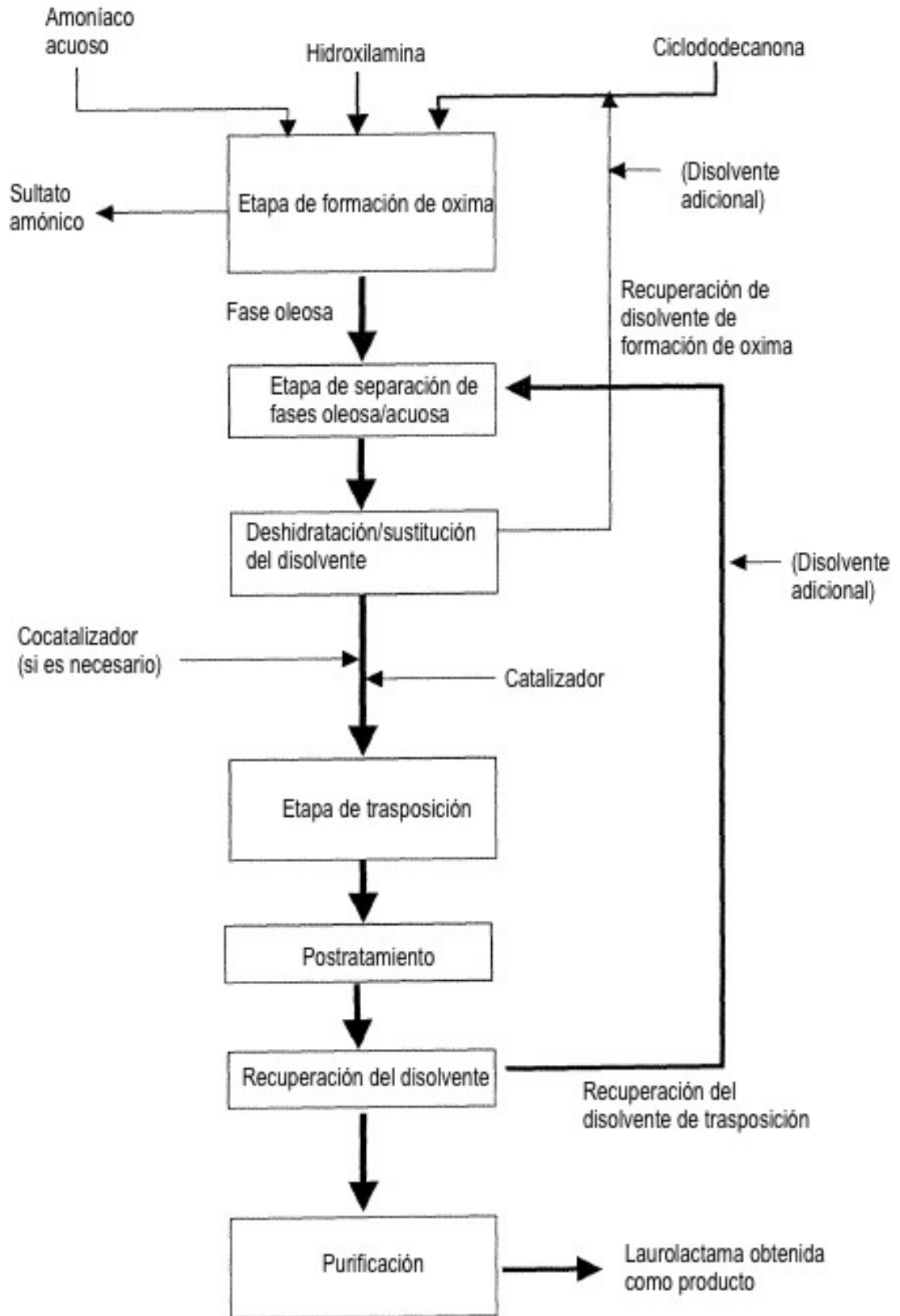


FIG. 2

