

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 545 898**

51 Int. Cl.:

**C07C 303/36** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **10.07.2014 E 14738816 (9)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **17.06.2015 EP 2841415**

54 Título: **Método para la preparación de compuestos de imidodisulfurilo**

30 Prioridad:

**11.07.2013 EP 13176189**  
**11.07.2013 US 201361844963 P**  
**28.03.2014 EP 14162217**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**16.09.2015**

73 Titular/es:

**LONZA LTD (100.0%)**  
**Lonzastrasse**  
**3930 Visp, CH**

72 Inventor/es:

**SCHNIDER, CHRISTIAN;**  
**ROBERGE, DOMINIQUE;**  
**GOTTSPONER, MICHAEL;**  
**KLEIN, ANDREAS;**  
**GRUETZNER, THOMAS;**  
**BITTEL, MICHAEL;**  
**TILLE, STEFAN;**  
**HORMES, ANNA-CHRISTINA y**  
**LEIGGENER, JANINE**

74 Agente/Representante:

**VALLEJO LÓPEZ, Juan Pedro**

**ES 2 545 898 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 preparación de compuestos de imidodisulfurilo

- 5 La invención se refiere a un método para la preparación de compuestos de imidodisulfurilo en una reacción continua a temperaturas elevadas.

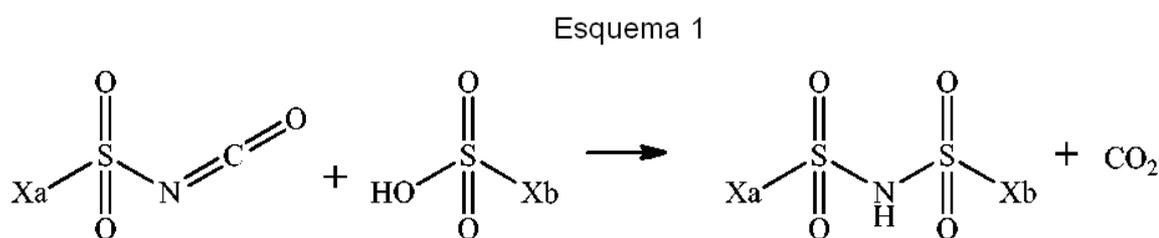
## Antecedentes de la invención

- 10 En el texto que sigue a continuación, si no se indica otra cosa, se usan los siguientes significados:

CSI isocianato de clorosulfonilo  
 CSOS ácido clorosulfónico  
 CISI bis(clorosulfonil)-imida  
 15 FSI isocianato de fluorosulfonilo  
 FSOS ácido fluorosulfónico  
 CA caudal  
 TA temperatura ambiente.

- 20 Los compuestos de imidodisulfurilo se usan para diversos fines. Un ejemplo es el uso de cloruro de imidodisulfurilo para la preparación de bis(fluorosulfonil)imida de litio, que se usa de nuevo como electrolito, por ejemplo, en baterías iónicas de litio, que se pueden usar, por ejemplo, en baterías para automoción, y se usa como agente antiestático en pantallas táctiles.
- 25 El documento de Patente DE 1 159 410 B desvela un método para la preparación de isocianatos de halosulfonilo mediante la reacción de ácido halosulfónico con urea. La reacción se lleva a cabo preferentemente a una temperatura de 100 a 180 °C. Se desvela específicamente la preparación de isocianato de clorosulfonilo a una temperatura de 120 a 150 °C.
- 30 El documento de Patente DE 1 143 495 B desvela un método para la preparación de fluoruro de imido-bis(sulfurilo) mediante la reacción de ácido fluorosulfónico con urea. La temperatura de reacción no se indica, aparentemente la reacción comienza a temperatura ambiente y en el curso de la reacción la mezcla de reacción se enfría cada cierto tiempo.
- 35 El documento de Patente CA 710255 A desvela un método para la preparación de imido-bis(cloruro de sulfurilo) mediante la reacción de ácido clorosulfónico con cloruro de triclorofosfazo-sulfurilo. Los métodos tales como los que se desvela en el documento de Patente CA 710255 tienen la desventaja de requerir química de fósforo que es bastante cara y medioambientalmente desventajosa de usar.
- 40 El documento de Patente WO 2009/123328 A1 desvela la preparación de CISI en un método discontinuo; se dan detalles en la sección de ejemplos de la presente invención.

- 45 El esquema de reacción de la presente invención para la preparación de haluros de imidodisulfurilo, también denominados imidobis(haluros de sulfurilo), imidobishaluros de sulfurilo o bis(haluro de sulfonilo)imida, que también es aplicable para compuestos similares de la presente invención, se representa en el Esquema 1;



siendo Xa y Xb halógenos.

- 50 Los dos compuestos de partida, el isocianato y el ácido sulfónico, y el producto, la bis imida, son tóxicos y corrosivos. En el caso de que Xa y Xb sean Cl, el producto muestra una descomposición muy altamente exotérmica a temperaturas elevadas, haciendo necesario proporcionar medidas de seguridad adecuadas en la producción. El calor de reacción  $\Delta H$  es aproximadamente 100 kJ/mol, el inicio de la descomposición del cloruro de imidosulfurilo es aproximadamente 180 °C con un aumento de temperatura adiabático hasta temperaturas muy superiores a 400 °C. La reacción de CSI con FSOS y la reacción de FSI con CSOS muestran temperaturas similares para el inicio

de la descomposición. Por lo tanto, la temperatura de reacción en los procesos discontinuos de producción no es mayor de 150 °C para evitar el riesgo de explosión. Los tiempos de reacción para los procesos discontinuos varían de aproximadamente 8 h a 24 h.

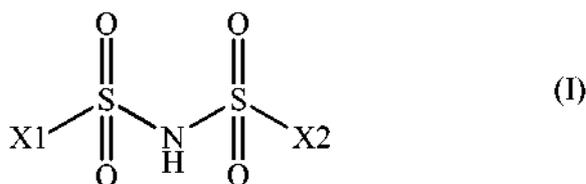
- 5 Por otra parte, el isocianato y el ácido sulfúrico solo reaccionan a temperaturas elevadas. Debido a estas circunstancias y consideraciones de seguridad, en el pasado los haluros de imidodisulfurilo se han preparado solo en pequeños lotes y a temperaturas bastante inferiores al inicio de la descomposición como se ha mencionado, lo que conduce a los largos tiempos de reacción mencionados.
- 10 Existe la necesidad de un método para la preparación de haluros de imidodisulfurilo, que no necesite química de fósforo, tenga tiempos de reacción cortos y elevados rendimientos, en el que el producto muestre una elevada pureza, y permita la manipulación segura de las sustancias y de la reacción, además a gran escala.

- 15 Inesperadamente, es posible hacer reaccionar isocianato de halosulfonilo con un ácido halosulfónico a temperaturas superiores a la temperatura de inicio de descomposición del producto de reacción, el haluro de imidodisulfurilo, sin la descomposición esperada del haluro de imidodisulfurilo deseado, y los rendimientos son elevados. Fue inesperado poder llevar a cabo la reacción de forma segura. Esto permite los tiempos de reacción cortos deseados.

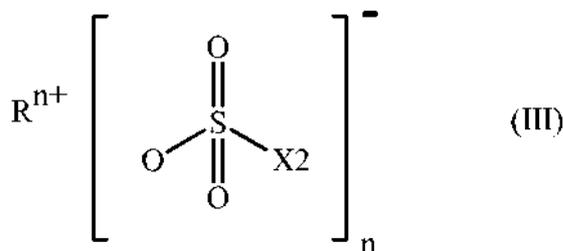
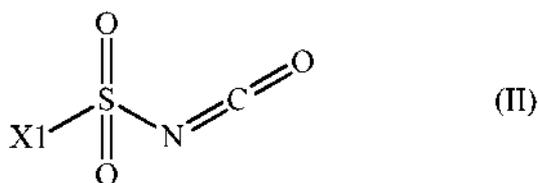
- 20 Además, se pueden llevar a cabo los tiempos de reacción cortos con un producto de elevada pureza, es decir, que no muestra la decoloración debida a las reacciones de descomposición o polimerización que tienen lugar habitualmente a temperaturas demasiado elevadas.

### Sumario de la invención

- 25 El objetivo de la invención es un método para la preparación de un compuesto de fórmula (I);

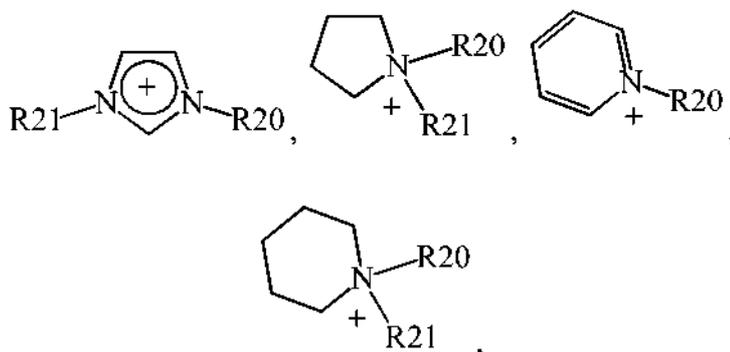


- 30 el método comprende tres etapas consecutivas, la etapa (EtapaS1), la etapa (EtapaS2) y la etapa (EtapaS3); la etapa (EtapaS1) comprende una reacción (ReacR1); la reacción (ReacS1) es una reacción del compuesto de fórmula (II) con el compuesto de fórmula (III);



- 35 en las que X1 y X2 son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en F, Cl, Br, J, perfluoroalquilo C<sub>1-6</sub>, y toliilo; R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>, Cu<sup>2+</sup>, Al<sup>3+</sup>, Ti<sup>3+</sup>, Fe<sup>2+</sup>, Fe<sup>3+</sup>, B<sup>3+</sup>,

40



$[N(R20)(R21)(R22)R23]^+$ , y  $[P(R20)(R21)(R22)R23]^+$ ;

- 5 R20, R21, R22 y R23 son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H, alquilo C<sub>1-8</sub>, cicloalquilo C<sub>5-6</sub>, fenilo, bencilo, vinilo y alilo;  
n es 1, 2 o 3;

la reacción (ReacS1) se lleva a cabo de forma continua;

- 10 en la etapa (EtapaS1) una mezcla del compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) pasa a través de un dispositivo (DispS1), el dispositivo (DispS1) es un dispositivo de funcionamiento continuo, en el dispositivo (DispS1) la mezcla del compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) se calienta a una temperatura (TempS1), la temperatura (TempS1) es de 180 a 300 °C, donde la reacción (ReacS1) tiene lugar, dando como resultado una mezcla de reacción,  
15 en la etapa (EtapaS2) la mezcla de reacción del dispositivo (DispS1) pasa a través de un dispositivo (DispS2), el dispositivo (DispS2) es un dispositivo para enfriar la mezcla de reacción;  
en la etapa (EtapaS3) la mezcla de reacción del dispositivo (DispS2) pasa a través de un dispositivo (DispS3), el dispositivo (DispS3) es un dispositivo para la regulación de la contrapresión;  
20 la mezcla de reacción se enfría a una temperatura (TempS2) mediante los efectos en la mezcla de reacción del dispositivo (DispS2) o del dispositivo (DispS3) o de una combinación del dispositivo (DispS2) y el dispositivo (DispS3), la temperatura (TempS2) es de 0 a 150 °C.

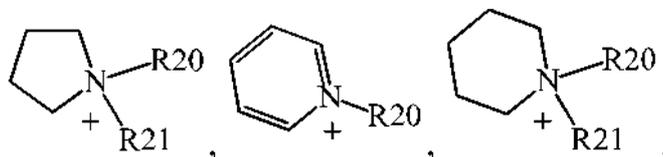
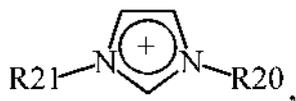
#### Descripción detallada de la invención

- 25 Preferentemente, el método comprende además una etapa (EtapaS4), que se lleva a cabo después de la etapa (EtapaS3), en la etapa (EtapaS4) la mezcla de reacción del dispositivo (DispS3) pasa a través de un dispositivo (DispS4), el dispositivo (DispS4) es un dispositivo para separar CO<sub>2</sub> de la mezcla de reacción.

- 30 Preferentemente, X1 y X2 son idénticos y se seleccionan entre el grupo que consiste en F, Cl, Br, perfluoroalquilo C<sub>1-6</sub> y toliilo;  
más preferentemente, X1 y X2 son idénticos y se seleccionan entre el grupo que consiste en F, Cl y perfluoroalquilo C<sub>1-6</sub>;  
incluso más preferentemente, X1 y X2 son idénticos y se seleccionan entre el grupo que consiste en F, Cl y CF<sub>3</sub>;  
especialmente, X1 y X2 son idénticos y son Cl o CF<sub>3</sub>;  
35 más especialmente, X1 y X2 son Cl.

Preferentemente,

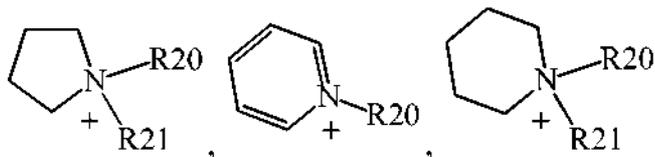
- 40 R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>,



5 R20, R21, R22 y R23 [N(R20)(R21)(R22)R23]<sup>+</sup>; son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H, alquilo C<sub>1-8</sub>, cicloalquilo C<sub>5-6</sub>, fenilo, bencilo, vinilo y alilo;

más preferentemente,

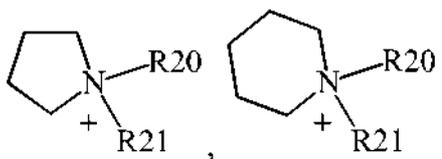
10 R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>,



15 R20, R21, R22 y R23 [N(R20)(R21)(R22)R23]<sup>+</sup>; son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H, alquilo C<sub>1-8</sub>, cicloalquilo C<sub>5-6</sub>, fenilo y bencilo;

incluso más preferentemente,

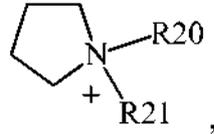
20 R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>,



25 R20, R21, R22 y R23 [N(R20)(R21)(R22)R23]<sup>+</sup>; son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H, alquilo C<sub>1-8</sub>, cicloalquilo C<sub>5-6</sub>, fenilo y bencilo;

especialmente,

30 R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>,



5 R20, R21, R22 y R23 [N(R20)(R21)(R22)R23]<sup>+</sup>; son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H, alquilo C<sub>1-8</sub>, cicloalquilo C<sub>5-6</sub>, fenilo y bencilo, más especialmente,

10 R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup> y



15 R20 y R21 y son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H y alquilo C<sub>1-8</sub>; incluso más especialmente,

20 R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup> y



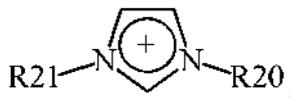
25 R20 y R21 y son idénticos o diferentes e independientemente entre sí alquilo C<sub>1-8</sub>; en particular,

30 R<sup>n+</sup> es H<sup>+</sup> o



35 R20 y R21 y son idénticos o diferentes e independientemente entre sí alquilo C<sub>1-4</sub>; más en particular,

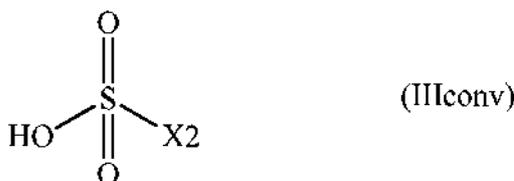
R<sup>n+</sup> es H<sup>+</sup> o



y

- 5 R20 y R21 son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en metilo, etilo y n-butilo.

10 Cuando R<sup>n+</sup> es H<sup>+</sup> entonces el compuesto de fórmula (III) también se puede presentar en la forma convencional, es decir, como el compuesto de fórmula (IIIconv).



- 15 Preferentemente, la reacción (ReacS1) se lleva a cabo en un reactor tubular. Durante el paso a través del dispositivo (DispS1), la mezcla alimentada inicialmente se convierte gradualmente en la mezcla de reacción mediante la reacción.

- 20 Preferentemente, el dispositivo (DispS1) se selecciona entre el grupo que consiste en tubo, microrreactor, intercambiador de calor de carcasa y tubo, intercambiador de calor de placa y cualquier dispositivo común cuyo fin sea intercambiar calor de una mezcla; más preferentemente es un tubo; incluso más preferentemente es un tubo en espiral.

- 25 Preferentemente, el dispositivo (DispS2) se selecciona entre el grupo que consiste en tubo, microrreactor, intercambiador de calor de carcasa y tubo, intercambiador de calor de placa y cualquier dispositivo común cuyo fin sea intercambiar calor de una mezcla de reacción; más preferentemente es un tubo; incluso más preferentemente es un tubo en espiral.

- 30 Especialmente, el dispositivo (DispS1) y el dispositivo (DispS2) son tubos en espiral.

Preferentemente, el dispositivo (DispS3) es un dispositivo de regulación de la contrapresión convencional.

- 35 Preferentemente, el dispositivo (DispS4) es un dispositivo capaz de separar CO<sub>2</sub> gaseoso de un líquido, se puede usar cualquier dispositivo conocido para este fin, más preferentemente el dispositivo (DispS4) es una columna o un separador ciclón.

- 40 El calentamiento en el dispositivo (DispS1) se puede llevar a cabo mediante cualquier medio conocido, preferentemente se lleva a cabo mediante calentamiento eléctrico o mediante calentamiento con un vehículo calentador fluido.

- El enfriamiento en el dispositivo (DispS2) se puede llevar a cabo mediante cualquier medio conocido, preferentemente se lleva a cabo mediante un medio refrigerador fluido.

- 45 Dependiendo de la escala de la reacción, y de ese modo de la escala del aparato en el que se lleva a cabo el método, el enfriamiento de la mezcla de reacción no solo se lleva a cabo por el efecto del dispositivo (DispS2) en la mezcla de reacción, es decir, durante el paso de la mezcla de reacción a través del dispositivo (DispS2), sino que además los efectos del dispositivo (DispS3) en la mezcla de reacción, es decir, el paso a través del dispositivo (DispS3) contribuye el enfriamiento. Este es el caso especialmente cuando la escala de la reacción es bastante pequeña, por ejemplo, cuando el método se realiza a escala de laboratorio, mientras que en el caso en el que el método se lleva a cabo a escala de producción, habitualmente el enfriamiento se llevará a cabo principalmente durante el paso a través del dispositivo (DispS2). En otra realización, especialmente a escala de producción, el enfriamiento también se puede conseguir mediante la expansión y la liberación de presión efectuada por el dispositivo (DispS3). Además, es posible una combinación de enfriamiento durante el paso a través del dispositivo (DispS2) con un enfriamiento mediante la expansión efectuada por el dispositivo (DispS3).

55

- Preferentemente, el calentamiento en el dispositivo (DispS1) y el enfriamiento en el dispositivo (DispS2) se lleva a cabo en forma de una configuración de tubo en tubo, en forma de una configuración de tubo en recipiente, en forma de un intercambiador de calor de carcasa y tubo, intercambiador de calor de placa, o cualquier dispositivo común cuyo fin sea intercambiar calor de una mezcla o una mezcla de reacción;
- 5 mas preferentemente con el calentamiento en el dispositivo (DispS1) y el enfriamiento en el dispositivo (DispS2) se lleva a cabo en forma de una configuración de tubo en tubo o en forma de una configuración de tubo en recipiente.
- La reacción (ReacS1) se desencadena en el dispositivo (DispS1) mediante el calentamiento de la mezcla en el dispositivo (DispS1) a la temperatura (TempS1).
- 10 La reacción (ReacS1) se interrumpe en el dispositivo (DispS2), y esto se lleva a cabo mediante el enfriamiento de la mezcla de reacción en el dispositivo (DispS2) a la temperatura (TempS2).
- Preferentemente, la temperatura (TempS1) es de 190 a 280 °C, más preferentemente de 200 a 260 °C, incluso más preferentemente de 210 a 255 °C, especialmente de 220 a 255 °C.
- 15 Preferentemente, la temperatura (TempS2) es 10 a 120 °C, más preferentemente de 15 a 100 °C, incluso más preferentemente de 15 a 90 °C, especialmente de 15 a 85 °C, más especialmente de 20 a 85 °C.
- 20 El punto de fusión del CISI puro es aproximadamente 35 °C, y por lo tanto el valor más bajo posible de la temperatura (TempS2) está gobernado por la conversión de la reacción, dado que el compuesto de fórmula (II) residual y el compuesto de fórmula (III) residual en la mezcla de reacción disminuyen de forma natural el punto de fusión de la mezcla de reacción después de la reacción y permiten valores inferiores de la temperatura (TempS2).
- 25 La reacción (ReacS1) se lleva a cabo una presión (PresS1). Preferentemente, la presión (PresS1) es de 10 a 1000 bar, más preferentemente de 20 a 600 bar, incluso más preferentemente de 50 a 500 bar, especialmente de 60 a 400 bar, más especialmente de 65 a 300 bar, incluso más especialmente de 65 a 200 bar, en particular de 65 a 150 bar.
- 30 La presión (PresS1) en el dispositivo (DispS1) y el dispositivo (DispS2) se controla y se mantiene mediante el dispositivo (DispS3).
- El tiempo (TiempoS1) este tiempo durante el que la mezcla se expone al calentamiento y a la temperatura (TempS1) en el dispositivo (DispS1). Durante el tiempo (TiempoS1) tiene lugar la reacción (ReacS1). El tiempo (TiempoS1) es por lo tanto un tiempo de residencia y es preferentemente el tiempo de residencia de la mezcla en el dispositivo (DispS1).
- 35 Preferentemente, el tiempo (TiempoS1) es de 0,5 s a 4 h, más preferentemente de 1 s a 2 h, incluso más preferentemente de 1 min a 1 h, especialmente de 2 min a 30 min, más especialmente de 2 min a 20 min, incluso más especialmente de 3 min a 17 min.
- 40 El tiempo (TiempoS2) es el tiempo durante el que la mezcla de reacción se enfría a la temperatura (TempS2). El enfriamiento se puede llevar a cabo mediante la acción del dispositivo (DispS2), mediante la acción del dispositivo (DispS3) o mediante la acción del dispositivo (DispS2) y el dispositivo (DispS3). El enfriamiento interrumpe la reacción. El tiempo (TiempoS2) es por lo tanto un tiempo de residencia y es preferentemente el tiempo de residencia de la mezcla de reacción en el dispositivo (DispS2) y en el dispositivo (DispS3).
- 45 Preferentemente, el tiempo (TiempoS2) es de 0,1 s a 2 h, más preferentemente de 0,5 s a 1 h, incluso más preferentemente de 1 s a 30 min, especialmente de 10 s a 30 min, más especialmente de 25 s a 25 min, incluso más especialmente de 1 min a 25 min.
- 50 Preferentemente, el tiempo (TiempoS2) es de 0,0001 a 0,5 veces el tiempo, más preferentemente de 0,001 a 0,3 veces el tiempo (TiempoS1).
- 55 Preferentemente, la cantidad molar del compuesto de fórmula (III) es de 0,5 a 1,5 veces, más preferentemente de 0,75 a 1,25 veces, incluso más preferentemente de 0,85 a 1,15 veces, la cantidad molar del compuesto de fórmula (II).
- 60 El compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) se pueden alimentar al dispositivo (DispS1) en forma de una mezcla premezclada o se pueden alimentar al dispositivo (DispS1) por separado y se mezclan en el dispositivo (DispS1).
- 65 Con el fin de mezclar antes o en el dispositivo (DispS1), se puede usar cualquier instalación adecuada para mezcla, que se conozca en el estado de la técnica, tal como una conexión ramificada común, por ejemplo una pieza en T o Y, o un dispositivo de mezcla estático.

Preferentemente, el calentamiento a la temperatura (TempS1) en el dispositivo (DispS1) se lleva a cabo solo después de que el compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) estén presentes en forma de una mezcla en el dispositivo (DispS1).

5 La alimentación del compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III), por separado o en forma de una mezcla, se lleva a cabo mediante el dispositivo (DispS0).

10 El dispositivo (DispS0) es un dispositivo de presurización usado convencionalmente para transportar un fluido contra la presión, tal como una bomba. Cuando el compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) se alimentan por separado al dispositivo (DispS1), entonces preferentemente el dispositivo (DispS0) tiene un dispositivo respectivo para cada compuesto.

15 Preferentemente, el dispositivo (DispS1) y el dispositivo (DispS2) están en conexión fluida permanente entre sí durante la operación y están ambos a presión (PresS1).

Preferentemente, el dispositivo (DispS0) es el dispositivo que crea la presión (PresS1) en el dispositivo (DispS1) y en el dispositivo (DispS2) contra el dispositivo (DispS3), que es necesaria para llevar a cabo la reacción (ReacS1) a la temperatura (TempS1).

20 Más preferentemente, el compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) se mezclan a presión ambiente y a temperatura ambiente y a continuación se alimentan al dispositivo (DispS1).

25 En el caso de que el dispositivo (DispS1) y/o el dispositivo (DispS2) sean tubos, especialmente tubos en espiral, debido a limitaciones de construcción y debido a fluctuaciones de densidad y similares, se pueden producir puntos calientes o puntos fríos a pesar de los esfuerzos para evitarlos. Por lo tanto, cualquier temperatura mencionada pretende ser una temperatura promedio en vista de los posibles puntos calientes o fríos.

30 Los dispositivos convencionales de regulación de contrapresión que se pueden usar para el dispositivo (DispS3), trabajan de forma discontinua, es decir, liberan la corriente del producto mediante apertura y cierre mientras se mantiene la presión. Naturalmente, esto conduce a variaciones en la presión. Por lo tanto, la presión (PresS1) pretende ser una presión promedio.

35 Todas las partes en contacto con la mezcla del compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) y con la mezcla de reacción se hacen de los materiales respectivos, que son resistentes al ataque de los compuestos químicos en las condiciones respectivas, es decir, acero inoxidable, Hastelloy, tal como Hastelloy B o Hastelloy C, titanio, tantalio, carburo de silicio, nitruro de silicio, etc., y también se pueden pasivar o revestir con un material inerte a los compuestos químicos, tal como PTFE.

40 El compuesto de fórmula (I) se puede usar en el dispositivo (DispS4) para cualquier reacción posterior sin purificación adicional y, en el caso de purificación adicional, preferentemente, la fase líquida obtenida en el dispositivo (DispS4) se purifica adicionalmente por retirada de cualquier residuo de bajo punto de ebullición, y esto se lleva a cabo preferentemente usando un evaporador de película, más preferentemente un evaporador de película renovada.

#### 45 Ejemplos

conv la conversión se determinó por medida del contenido de CSI (CONT-CSI) en % en peso después de la reacción en la mezcla de reacción mediante espectroscopía IR frente a un patrón; conv es [100 - contenido (CONT-CSI)] en %.

50 CA caudal  
 nd no determinado  
 p1 presión (PresS1)  
 t1 tiempo (TiempoS1)  
 t2 tiempo (TiempoS2)  
 55 T1 temperatura (TempS1)  
 T2 temperatura (TempS2).

#### Ejemplos 1 a 14

60 En los ejemplos, se alimentó una premezcla equimolar de CSOS y CSI al dispositivo (DispS1). Los ejemplos se llevaron a cabo con

- dispositivo (DispS0): bomba de pistón 260D de ISCO Teledyne.
  - dispositivo (DispS1) que es un tubo en espiral de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno VolS1 fabricado con Hastelloy C. Para el calentamiento se usó una configuración de tubo en espiral en recipiente. El medio de calentamiento fue aceite convencional.
- 65

## ES 2 545 898 T3

- dispositivo (DispS2) que es un tubo de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno de aproximadamente 1,5 ml fabricado con Hastelloy C. El enfriamiento se llevó a cabo por simple contacto del tubo con el aire de la habitación que estaba a temperatura ambiente.
  - dispositivo (DispS3): regulador de contrapresión convencional de Swagelok de la Serie KPB.
- 5 • dispositivo (DispS4): el CO<sub>2</sub> se separó de la mezcla de reacción en un matraz de vidrio abierto.

La CISI obtenida en cada ejemplo fue un líquido de incoloro a amarillo.

La estructura se confirmó mediante espectroscopía IR:

- 10 IR (ATR, 24 barridos,  $\nu$  en  $\text{cm}^{-1}$ ): 3205 (m), 2758 (w), 2652 (w), 1727 (w), 1416 (s), 1318 (m), 1273 (w), 1206 (m), 1167 (s), 862 (s), 567 (s), 500 (s)

Ej	VoIS1	CA	T1	t1	T2	t2	p1	conv
	ml	[g/min]	[°C]	[min]	[°C]	[min]	[bar]	[%]
1	5,7	1,70	240	5,6	TA	1,4	77	95,8
2	5,7	1,70	240	5,6	TA	1,4	79	94,4
3	5,7	1,52	230	6,3	TA	1,5	87	92,5
4	5,7	1,52	230	6,3	TA	1,5	77	92,6
5	5,7	1,52	230	6,3	TA	1,5	84	92,4
6	5,14	0,58	200	15,5	TA	1	81	65,8
7	5,14	0,87	210	10,3	TA	1	82	60
8	5,14	0,58	210	15,5	TA	1	82	79,8
9	5,14	0,87	220	10	TA	1	88	83,3
10	5,14	0,58	220	15	TA	1	80	90,5
11	5,14	1,74	230	5	TA	1,5	81	62,5
12	5,14	4,4	250	2,0	TA	0,5	85	73,6
13	5,14	2,2	250	3,9	TA	1	86	93,5
14	5,14	1,15	250	7,5	TA	1,5	87	97,5

### Ejemplos 15 a 17

- 15 En los ejemplos, se alimentaron por separado CSOS y CSI al dispositivo (DispS1) y se mezclaron en el dispositivo (DispS1) mediante un dispositivo de mezcla estática en línea.

Los ejemplos se llevaron a cabo con

- 20 • dispositivo (DispS0): bomba de pistón 260D de ISCO Teledyne.
- dispositivo (DispS1) que es un tubo en espiral de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno VoIS1 fabricado con Hastelloy C. Para el calentamiento se usó una configuración de tubo en espiral en recipiente. El medio de calentamiento fue aceite convencional.
- 25 • dispositivo (DispS2) que es un tubo de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno de aproximadamente 1,5 ml fabricado con Hastelloy C. El enfriamiento se llevó a cabo por simple contacto del tubo con el aire de la habitación que estaba a temperatura ambiente.
- dispositivo (DispS3): regulador de contrapresión convencional de Swagelok de la Serie KPB.
- dispositivo (DispS4): el CO<sub>2</sub> se separó de la mezcla de reacción en un matraz de vidrio abierto.

30 La CISI obtenida en cada ejemplo fue un líquido de incoloro a amarillo.

La estructura se confirmó mediante espectroscopía IR; los datos se dan en la descripción de los ejemplos 1 a 14.

Ej	Proporción molar CSOS : CSI	VoIS1	CA	T1	t1	T2	t2	p1	conv
		ml	[g/min]	[°C]	[min]	[°C]	[min]	[bar]	[%]
15	0,95	5,7	1,52	240	6,3	TA	1,5	80	95

16	0,95	6,8	2,23	240	5,1	TA	1	82	94,6
17	1,06	6,8	2,35	240	4,9	TA	1	84	88,4

### Ejemplos 18 a 21

5 En los ejemplos, se alimentó una premezcla equimolar de CSOS y CSI al dispositivo (DispS1). Los ejemplos se llevaron a cabo con

- dispositivo (DispS0): bomba de pistón 260D de ISCO Teledyne.
- dispositivo (DispS1) que es un tubo en espiral de 1/4 de pulgada (6,4 mm) con un volumen interno de aproximadamente 54 ml fabricado con Hastelloy C. Para el calentamiento se usó una configuración de tubo en espiral en recipiente. El medio de calentamiento fue aceite convencional.
- 10 • dispositivo (DispS2) que es un tubo de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno de aproximadamente 15 ml fabricado con Hastelloy C. El enfriamiento se llevó a cabo por simple contacto del tubo con agua a diferentes niveles de temperatura T2.
- dispositivo (DispS3): regulador de contrapresión convencional de Swagelok de la Serie KPB.
- 15 • dispositivo (DispS4): el CO<sub>2</sub> se separó de la mezcla de reacción en un matraz de vidrio abierto.

La CISI obtenida en cada ejemplo fue un líquido de incoloro a amarillo.

20 La estructura se confirmó mediante espectroscopía IR; los datos se dan en la descripción de los ejemplos 1 a 14.

Ej	CA	T1	t1	T2	t2	p1	conv
	[g/min]	[°C]	[min]	[°C]	[min]	[bar]	[%]
18	25	240	3,6	20	1	72	87,1
19	16,5	240	5,5	20	1	88	94,5
20	17	230	5,3	80	1	83	91,7
21	14,3	230	6,4	80	1	84	90,6

### Ejemplo comparativo

25 Debido al inicio de la descomposición, no se puede llevar a cabo una reacción discontinua a una temperatura superior a 160 °C para la comparación con la reacción continua de la presente invención. El riesgo de explosión es demasiado alto. Por lo tanto, solo se permiten reacciones discontinuas a 150 °C debido a estas restricciones de seguridad.

30 Se añadió una cantidad equimolar de CSI a CSOS a 120 °C durante 3 h, y a continuación la mezcla se comentó durante 3 h a 150 °C y se agitó a 150 °C durante 7 h. La conversión fue solo de un 90 %. Por lo tanto, en tiempo de reacción total para alcanzar un 90 % de conversión fue 13 h. El color fue amarillo.

35 Se debe evitar un color que sea más oscuro que el amarillo en todas las circunstancias en el proceso discontinuo dado que es una indicación de una cantidad sustancial de descomposición que de nuevo es una indicación de explosión inminente.

40 El documento de Patente WO 2009/123328 A1 desvela en el Ejemplo de Síntesis 2 la preparación de CISI en un método discontinuo. Se añadió CSI a CSOS durante 2 h a 120 °C, y a continuación la mezcla se agitó durante 6 h a 150 °C. El rendimiento fue de un 65,6 %.

### Ejemplo 22

Se alimentó una premezcla equimolar de CSOS y CSI al dispositivo (DispS1).

45 El ejemplo se llevó a cabo con

- dispositivo (DispS0): bomba de pistón disponible en el mercado.
- dispositivo (DispS1) que es un tubo en espiral de 1/2 de pulgada (12,7 mm) con un volumen interno de aproximadamente 1200 ml fabricado con Hastelloy C. Para el calentamiento se usó una camisa calentadora. El medio de calentamiento fue aceite convencional.
- 50 • dispositivo (DispS2) que es un tubo de 1/4 de pulgada (6,4 mm) con un volumen interno de aproximadamente 200 ml fabricado con Hastelloy C. Para el enfriamiento se usó una camisa refrigerante. El medio de enfriamiento fue aceite convencional.

- dispositivo (DispS3): se usó un regulador de contrapresión convencional disponible en el mercado.
- dispositivo (DispS4): el CO<sub>2</sub> se separó en un dispositivo de separación convencional.

La CISI obtenida fue un líquido de incoloro a amarillo.

5

La estructura se confirmó mediante espectroscopía IR; los datos se dan en la descripción de los ejemplos 1 a 14.

Ej	CA	T1	t1	T2	t2	p1	conv
	[kg/h]	[°C]	[min]	[°C]	[s]	[bar]	[%]
22	22,8	aprox. 230	5,3	aprox. 50	aprox. 30	80	96,5

### Ejemplo 23

10

Se alimentó una premezcla equimolar de ácido trifluorometanosulfónico y CSI al dispositivo (DispS1). El ejemplo se llevó a cabo con

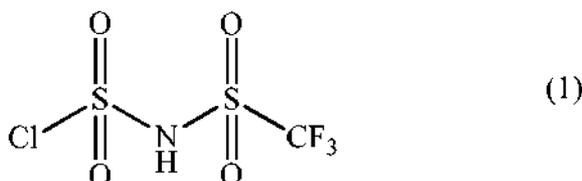
15

- dispositivo (DispS0): bomba de pistón 260D de ISCO Teledyne.
- dispositivo (DispS1) que es un tubo en espiral de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno VolS1 fabricado con Hastelloy C. Para el calentamiento se usó una configuración de camisa calentadora, y el medio de calentamiento fue aceite convencional.
- dispositivo (DispS2) que es un tubo de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno de aproximadamente 1,5 ml fabricado con Hastelloy C. El enfriamiento se llevó a cabo por simple contacto del tubo con el aire de la habitación que estaba a temperatura ambiente.
- dispositivo (DispS3): regulador de contrapresión convencional de Swagelok de la Serie KPB.
- dispositivo (DispS4): el CO<sub>2</sub> se separó de la mezcla de reacción en un matraz de vidrio abierto.

20

El compuesto de fórmula (1) obtenido fue un líquido de incoloro a amarillo.

25



Ej	VolS1	CA	T1	t1	T2	t2	p1	conv
	ml	[g/min]	[°C]	[min]	[°C]	[min]	[bar]	[%]
23	10	4	230	3,2	TA	aprox. 1	80,4	90,8

La estructura se confirmó mediante espectroscopía IR y RMN:

30

IR (ATR, 24 barridos,  $\nu$  en cm<sup>-1</sup>): 3279 (w), 1399 (s), 1357 (s); 1176 (s) 1149 (s), 740 (s), 611 (s), 581 (s), 510 (s), 549 (s), 476 (s).  
 RMN (CD<sub>3</sub>CN, 400 MHz, 24 °C, ref. 1,4 difluorobenceno)  $\delta$  = -78,75 ppm.

35

Además, la formación del producto deseado mediante la reacción se confirmó por comparación del calor de formación obtenido mediante medidas de DSC y datos calculados de alto nivel.

Método	$\Delta H$ en J/g	$\Delta H^\circ R$ en kJ/mol
DSC	Valor promedio 322 J/g	64 kJ/mol
Turbomole/Gaussian		62 kJ/mol

DSC se midió dinámicamente con una velocidad de calentamiento de 0,4 °C/min.

40

Turbomole: los cálculos de mecánica cuántica se llevaron a cabo con el programa TURBOMOLE V6.5 (18161), Ahlrichs, M. Baer, M. Haeser, H. Horn, y C. Koelmel, Electronic structure calculations on workstation computers: the program system TURBOMOLE, Chem. Phys. Lett. 162: 165 (1989); y Gaussian: Gaussian 09, Revisión D.01, M. J. Frisch, G. W. Trucks, H. B. Schlegel, G. E. Scuseria, M. A. Robb, J. R.

Cheeseman, G. Scalmani, V. Barone, B. Mennucci, G. A. Petersson, H. Nakatsuji, M. Caricato, X. Li, H. P. Hratchian, A. F. Izmaylov, J. Bloino, G. Zheng, J. L. Sonnenberg, M. Hada, M. Ehara, K. Toyota, R. Fukuda, J. Hasegawa, M. Ishida, T. Nakajima, Y. Honda, O. Kitao, H. Nakai, T. Vreven, J. A. Montgomery, Jr., J. E. Peralta, F. Ogliaro, M. Bearpark, J. J. Heyd, E. Brothers, K. N. Kudin, V. N. Staroverov, R. Kobayashi, J. Normand, K. Raghavachari, A. Rendell, J. C. Burant, S. S. Iyengar, J. Tomasi, M. Cossi, N. Rega, J. M. Millam, M. Klene, J. E. Knox, J. B. Cross, V. Bakken, C. Adamo, J. Jaramillo, R. Gomperts, R. E. Stratmann, O. Yazyev, A. J. Austin, R. Cammi, C. Pomelli, J. W. Ochterski, R. L. Martin, K. Morokuma, V. G. Zakrzewski, G. A. Voth, P. Salvador, J. J. Dannenberg, S. Dapprich, A. D. Daniels, Ö. Farkas, J. B. Foresman, J. V. Ortiz, J. Cioslowski, y D. J. Fox, Gaussian, Inc., Wallingford CT, 2009; usando el método B3LYP 6-31G.

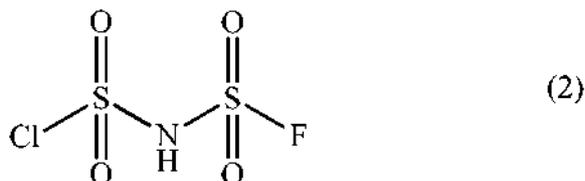
### Ejemplos 24 y 25

Se alimentó una premezcla equimolar de ácido flourosulfónico y CSI al dispositivo (DispS1).

Los ejemplos se llevará a cabo con

- dispositivo (DispS0): bomba de pistón 260D de ISCO Teledyne.
- dispositivo (DispS1) que es un tubo en espiral de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno VolS1 fabricado con Hastelloy C. Para el calentamiento se usó una configuración de camisa calentadora, y el medio de calentamiento fue aceite convencional.
- dispositivo (DispS2) que es un tubo de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno de aproximadamente 1,5 ml fabricado con Hastelloy C. El enfriamiento se llevó a cabo por simple contacto del tubo con el aire de la habitación que estaba a temperatura ambiente.
- dispositivo (DispS3): regulador de contrapresión convencional de Swagelok de la Serie KPB.
- dispositivo (DispS4): el CO<sub>2</sub> se separó de la mezcla de reacción en un matraz de vidrio abierto.

El compuesto de fórmula (2) obtenido fue un líquido de incoloro a amarillo.



Ej	VolS1	CA	T1	t1	T2	t2	p1	conv
	ml	[g/min]	[°C]	[min]	[°C]	[min]	[bar]	[%]
24	10	2,4	230	6,6	TA	aprox. 1	83,7	68,7
25	10	5,1	230	3,1	TA	aprox. 1	83,7	57,4

La estructura se confirmó mediante espectroscopía RMN:

RMN (CD<sub>3</sub>CN, 400 MHz, 24 °C, ref: fluoruro de bencenosulfonilo) δ = 57,24 ppm.

### Ejemplo de aplicación

La pureza y el rendimiento de cualquiera de los ejemplos 1 a 22 se puede determinar indirectamente mediante el uso del producto obtenido respectivo como sustrato en una reacción para la preparación de bis(fluorosulfonil)-imida. A modo de ejemplo para tal determinación de rendimiento y pureza, a continuación se describe la forma en que se usó el producto preparado de acuerdo con el ejemplo 22 como sustrato para la preparación de sal de cinc de bis[di((fluorosulfonil)imida)] de forma análoga al Ejemplo de Síntesis 19-1 del documento de Patente WO 2009/123328 A1:

en un recipiente de reacción de 500 ml se cargaron 179,3 g de valerónitrilo y 20,3 g de CISI (0,093 mol, preparado de acuerdo con el ejemplo 22), seguido de agitación. Se añadieron al recipiente de reacción 10,6 g (0,10 mol) de ZnF<sub>2</sub> anhidro, seguido de llevar a cabo la reacción a temperatura ambiente (25 °C) durante 3 horas. La sal de cinc de bis[di((fluorosulfonil)imida)] se obtuvo en forma de una solución (rendimiento: 66,4 %, determinado por RMN <sup>19</sup>F y calculado basándose en CISI (de un contenido de un 100 %)).

Cualquiera de los productos preparados de acuerdo con los ejemplos 1 a 22 de la presente invención tuvo una pureza similar y se obtuvo con un rendimiento similar.

**Ejemplo 26**

Se alimentó una premezcla equimolar de trifluorometanosulfonato de 1-n-butil-3-metilimidazolio y CSI al dispositivo (DispS1).

5

El ejemplo se llevó a cabo con

- dispositivo (DispS0): bomba de pistón 260D de ISCO Teledyne.
- dispositivo (DispS1) que es un tubo en espiral de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno VolS1 fabricado con Hastelloy C. Para el calentamiento se usó una configuración de camisa calentadora, y el medio de calentamiento fue aceite convencional.
- dispositivo (DispS2) que es un tubo de 1/8 de pulgada (3,2 mm) con un volumen interno de aproximadamente 1,5 ml fabricado con Hastelloy C. El enfriamiento se llevó a cabo por simple contacto del tubo con el aire de la habitación que estaba a temperatura ambiente.
- dispositivo (DispS3): regulador de contrapresión convencional de Swagelok de la Serie KPB.
- dispositivo (DispS4): el CO<sub>2</sub> se separó de la mezcla de reacción en un matraz de vidrio abierto.

10

15

El compuesto de fórmula (1) obtenido fue un líquido de color amarillo

Ej	VolS1	CA	T1	t1	T2	t2	p1	conv
	ml	[g/min]	[°C]	[min]	[°C]	[min]	[bar]	[%]
26	5	0,51	180	0,8	TA	aprox. 1	80	87

20

Se midieron los siguientes datos analíticos para el producto de la reacción.

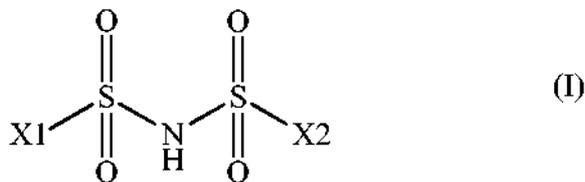
IR (ATR, 24 barridos,  $\nu$  en  $\text{cm}^{-1}$ ): 3122 (w), 2966 (w), 1573 (w), 1404 (w), 1353 (w) 1256 (s), 1224 (m), 1156 (s), 1029 (s), 836 (m), 746 (m), 636 (s), 622 (s), 584 (s) 574 (s).

25

RMN (CD<sub>3</sub>CN, 400 MHz, 24 °C, ref. 1,4-difluorobenceno)  $\delta$  = -79,28 ppm.

REIVINDICACIONES

1. Método para la preparación de un compuesto de fórmula (I);

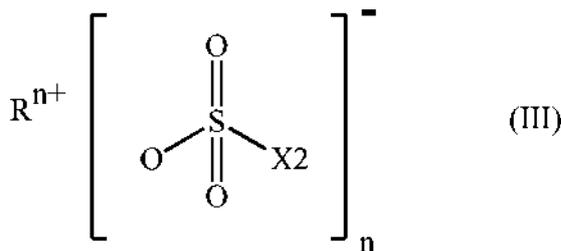
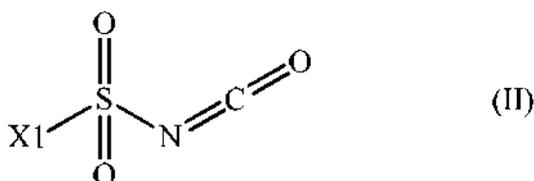


5

el método comprende tres etapas consecutivas, etapa (EtapaS1), etapa (EtapaS2) y etapa (EtapaS3); la etapa (EtapaS1) comprende una reacción (ReacR1);

la reacción (ReacS1) es una reacción del compuesto de fórmula (II) con el compuesto de fórmula (III);

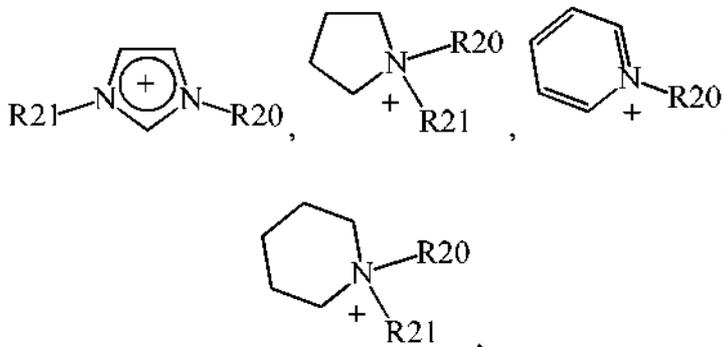
10



en las que

15 X1 y X2 son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en F, Cl, Br, J, perfluoroalquilo C<sub>1-6</sub>, y toliilo;

R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>, Cu<sup>2+</sup>, Al<sup>3+</sup>, Ti<sup>3+</sup>, Fe<sup>2+</sup>, Fe<sup>3+</sup>, B<sup>3+</sup>,



20

[N(R20)(R21)(R22)R23]<sup>+</sup>, y [P(R20)(R21)(R22)R23]<sup>+</sup>;

R20, R21, R22 y R23 son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H, alquilo C<sub>1-8</sub>, cicloalquilo C<sub>5-6</sub>, fenilo, bencilo, vinilo y alilo;

25

n es 1, 2 o 3;

la reacción (ReacS1) se lleva a cabo de forma continua;

en la etapa (EtapaS1) una mezcla del compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) pasa a través de un dispositivo (DispS1), el dispositivo (DispS1) es un dispositivo de funcionamiento continuo, en el dispositivo (DispS1) la mezcla del compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) se calienta a una temperatura (TempS1), la temperatura (TempS1) es de 180 a 300 °C, donde tiene lugar la reacción (ReacS1), dando como resultado una mezcla de reacción,

en la etapa (EtapaS2) la mezcla de reacción del dispositivo (DispS1) pasa a través de un dispositivo (DispS2), el dispositivo (DispS2) es un dispositivo para enfriar la mezcla de reacción;

en la etapa (EtapaS3) la mezcla de reacción del dispositivo (DispS2) pasa a través de un dispositivo (DispS3), el dispositivo (DispS3) es un dispositivo para la regulación de la contrapresión;

la mezcla de reacción se enfría a una temperatura (TempS2) mediante los efectos en la mezcla de reacción del dispositivo (DispS2) o del dispositivo (DispS3) o de una combinación del dispositivo (DispS2) y el dispositivo (DispS3), la temperatura (TempS2) es de 0 a 150 °C.

2. Método de acuerdo con la reivindicación 1, en donde

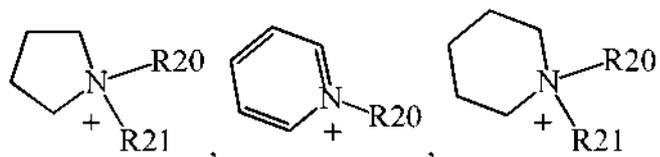
el método comprende además una etapa (EtapaS4), que se lleva a cabo después de la etapa (EtapaS3), en la etapa (EtapaS4) la mezcla de reacción del dispositivo (DispS3) pasa a través de un dispositivo (DispS4), el dispositivo (DispS4) es un dispositivo para separar CO<sub>2</sub> de la mezcla de reacción.

3. Método de acuerdo con las reivindicaciones 1 o 2, en el que

X1 y X2 son idénticos y se seleccionan entre el grupo que consiste en F, Cl, Br, perfluoroalquilo C<sub>1-6</sub> y toliolo.

4. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 3, en el que

R<sup>n+</sup> se selecciona entre el grupo que consiste en H<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>,



[N(R20)(R21)(R22)R23]<sup>+</sup>;

R20, R21, R22 y R23 son idénticos o diferentes y se seleccionan independientemente entre sí entre el grupo que consiste en H, alquilo C<sub>1-8</sub>, cicloalquilo C<sub>5-6</sub>, fenilo, bencilo, vinilo y alilo.

5. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 4, en el que

el dispositivo (DispS1) se selecciona entre el grupo que consiste en tubo, microrreactor, intercambiador de calor de carcasa y tubo, intercambiador de calor de placa y cualquier dispositivo común cuyo fin sea intercambiar calor de una mezcla de reacción.

6. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 5, en el que

el dispositivo (DispS2) se selecciona entre el grupo que consiste en tubo, microrreactor, intercambiador de calor de carcasa y tubo, intercambiador de calor de placa y cualquier dispositivo común cuyo fin sea intercambiar calor de una mezcla de reacción.

7. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 6, en el que el dispositivo (DispS3) es un dispositivo regulador de contrapresión convencional.

8. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 7, en el que la temperatura (TempS1) es de 190 a 280 °C.

9. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 8, en el que la temperatura (TempS2) es de 10 a 120 °C.

10. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 9, en el que

la reacción (ReacS1) se lleva a cabo a una presión (PresS1), la presión (PresS1) es de 10 a 1000 bar.

11. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 10, en el que

el tiempo (TiempoS1) es de 0,5 s a 4 h; el tiempo (TiempoS1) es el tiempo durante el que la mezcla se expone a calentamiento y a la temperatura (TempS1) en el dispositivo (DispS1).

5 12. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 11, en el que el tiempo (TiempoS2) es de 0,1 s a 2 h; el tiempo (TiempoS2) es el tiempo durante el que la mezcla de reacción se enfría a la temperatura (TempS2).

10 13. Método de acuerdo con una o más de las reivindicaciones 1 a 12, en el que la cantidad molar del compuesto de fórmula (III) es de 0,5 a 1,5 veces la cantidad molar del compuesto de fórmula (II).