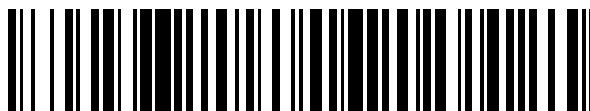


19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 638 172**

51 Int. Cl.:

**C07C 68/00** (2006.01)

**C07C 69/96** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **15.02.2008 PCT/IB2008/050570**

87 Fecha y número de publicación internacional: **21.08.2008 WO08099369**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **15.02.2008 E 08710066 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **21.06.2017 EP 2121562**

54 Título: **Proceso para la fabricación de carbonato de dimetilo**

30 Prioridad:

**16.02.2007 US 890288 P**

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

**19.10.2017**

73 Titular/es:

**SABIC GLOBAL TECHNOLOGIES B.V. (100.0%)  
Plasticslaan 1  
4612 PX Bergen op Zoom , NL**

72 Inventor/es:

**VIC FERNANDEZ, IGNACIO;  
FILLION, BENOIT;  
MURTHY, VUTUKURU;  
NAIR, VINOD y  
PEREZ COLLADO, MARIO**

74 Agente/Representante:

**VALLEJO LÓPEZ, Juan Pedro**

ES 2 638 172 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

Proceso para la fabricación de carbonato de dimetilo

5 **Antecedentes de la invención**

Los carbonatos de diarilo, como el carbonato de difenilo, son un reactante importante en la producción de resinas de policarbonato. A medida que se incrementan los usos de los policarbonatos, la producción segura y eficaz de los carbonatos de diarilo ha adquirido mayor importancia. Los primeros procesos para la producción de carbonatos de diarilo utilizaron fosgeno como reactivo. Sin embargo, la toxicidad del fosgeno indujo el desarrollo de un proceso sin fosgeno. El proceso sin fosgeno es bien conocido en la técnica y se describe en la Solicitud de patente de los Estados Unidos Números de serie 4.410.464, 5.344.954, 6.784.277, 7.141.641 y 7.288.668. La patente US-5.536.864 divulga un reactor para la producción de carbonato de diarilo en el que los reactantes son alimentados al fondo del reactor. La patente EP 1 156 028 A1 divulga que la obstrucción del catalizador puede ser un problema para los reactores de carbonato de diarilo.

Como se muestra esquemáticamente en la FIG. 1, el proceso sin fosgeno implica tres etapas de reacción. En primer lugar, se forman un carbonato de dialquilo (por ejemplo, carbonato de dimetilo) y agua haciendo reaccionar un alcohol (por ejemplo metanol) con oxígeno y monóxido de carbono en presencia de un catalizador. En una segunda etapa de reacción, el carbonato de dialquilo reacciona con un alcohol aromático (por ejemplo, fenol) para producir un carbonato de arilalquilo (por ejemplo, carbonato de fenilmetilo) y un alcohol (por ejemplo metanol). Después, en la tercera etapa de reacción, dos moléculas de un carbonato de arilalquilo sufren una reacción de transesterificación para producir una molécula de carbonato de diarilo (por ejemplo, carbonato de difenilo) y una molécula de carbonato de dialquilo. La presente invención se refiere a la primera etapa de este proceso.

Como se ha descrito anteriormente, en la reacción de formación para formar carbonato de dialquilo (etapa 1 de la Fig. 1) reacciona un alcohol con monóxido de carbono y oxígeno en presencia de un catalizador habitualmente en un reactor de tanque agitado cerrado. Se ha observado que el catalizador puede acumularse en superficies horizontales en el reactor, en líneas de transferencia hacia y desde el reactor y en el equipo de separación usado más tarde en el proceso de producción. Esta acumulación de catalizador está asociada a dos problemas potenciales. El primer problema es que la acumulación de catalizador puede, con el tiempo, obstruir las líneas de transferencia hacia y desde el reactor. Además, la acumulación de catalizador en las líneas de transferencia, así como en las superficies horizontales en el reactor puede provocar el desprendimiento de "trozos" de catalizador sólido y su caída dentro del reactor o equipo de separación posterior. Si los "trozos" son lo suficientemente grandes pueden interferir y potencialmente dañar los propulsores de la agitación de los reactores o causar vibraciones y condiciones dañinas dentro del equipo de separación.

Para evitar estos acontecimientos, se tendría que desconectar la instalación de producción de carbonato de dialquilo para limpiar los reactores, líneas de transferencia y equipo de separación para eliminar cualquier acumulación de catalizador que se hubiera producido. Los tiempos de desconexión de la instalación de producción de carbonato de dialquilo crearían escasez para los consumidores o procesos posteriores que requieren una corriente continua de carbonato de dialquilo. Sería extremadamente beneficioso encontrar un proceso en el que se pudiera evitar la acumulación de catalizador como se describe en la presente memoria y donde un proceso seguro y favorable para el equipo pudiera producir una corriente continua de carbonato de dialquilo.

45 **Sumario de la invención**

Los presentes inventores han descubierto un proceso en el que se puede evitar la acumulación de catalizador en reactores, líneas de transferencia y equipo de separación en una instalación de producción de carbonato de dialquilo. Como tal, los presentes inventores han descubierto un proceso en el que se podría producir una corriente continua de carbonato de dialquilo de forma segura sin dañar el equipo de proceso. En una realización, la presente invención proporciona un método para formar carbonato de dialquilo que comprende:

(1) introducir reactantes en un reactor que tiene un espacio de cabeza gaseosa y un espacio de cuerpo líquido, comprendiendo los reactantes alcohol, monóxido de carbono, oxígeno y un catalizador, funcionando el reactor en condiciones para formar carbonato de dialquilo y agua, en el que el alcohol y el catalizador se introducen en el espacio de cuerpo líquido del reactor en un líquido, y en el que el oxígeno y el monóxido de carbono se introducen en el espacio de cuerpo líquido del reactor en un gas,

(2) introducir una corriente separada que comprende oxígeno en el espacio de cabeza del reactor de tal manera que el espacio de cabeza comprende un contenido de oxígeno de entre 0,10 % en moles y 1,00 % en moles,

(3) extraer una corriente de producto del espacio de cabeza del reactor, comprendiendo la corriente de producto carbonato de dialquilo, agua, oxígeno y reactantes residuales,

(4) introducir la corriente de producto en un dispositivo de separación ciclónica para producir una corriente de fondo líquida y una corriente superior gaseosa,

5 (5) capturar e introducir la corriente de fondo líquida desde el dispositivo de separación ciclónica al reactor, en el que la corriente superior gaseosa contiene producto carbonato de dialquilo.

### Breve descripción de los dibujos

La Fig. 1 es un diagrama esquemático de reacción.

10 La Fig. 2 es un diagrama esquemático que muestra el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

La Fig. 3 es un diagrama esquemático que muestra el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

La Fig. 4(a) es un diagrama esquemático que muestra el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

Las Figuras. 4(b) y 4(c) son diagramas esquemáticos que muestran configuraciones de los deflectores en el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

15 La Fig. 5 es un diagrama esquemático que muestra el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

La Fig. 6 es un diagrama esquemático que muestra el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

La Fig. 7 es un diagrama esquemático que muestra el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

La Fig. 8 es un diagrama esquemático que muestra el equipo de producción de carbonato de dialquilo.

### 20 Descripción detallada

Los presentes inventores han descubierto procesos en los que la acumulación de catalizador en reactores, líneas de transferencia y equipo de separación en una instalación de producción de carbonato de dialquilo puede reducirse e incluso eliminarse. Los procesos y realizaciones descritos en la presente memoria para lograr la reducción de la  
25 acumulación de catalizador se pueden usar solos o en combinación unos con otros. Estos procesos cuando se emplean por separado o en combinación proporcionan una corriente continua de carbonato de dialquilo a partir de un sistema de reactor de formación de carbonato de dialquilo.

30 En la memoria descriptiva y en las reivindicaciones que siguen, se hará referencia a una serie de términos que se definirán con los siguientes significados:

Las formas singulares “un(o)”, “una” y “el”, “la” incluyen referentes plurales a menos que el contexto indique claramente lo contrario.

35 “Opcional” u “opcionalmente” significa que el suceso o circunstancia descrita posteriormente puede ocurrir o no, y que la descripción incluye casos en los que ocurre el suceso y casos en los que no ocurre.

Los alcoholes adecuados incluyen alcoholes C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> primarios, secundarios y terciarios, prefiriéndose los alcoholes C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub> primarios.

40 Los carbonatos de dialquilo adecuados son aquellos que incluyen un grupo carbonato dispuesto entre dos grupos alquilo. La reacción de formación del carbonato de dialquilo, tal como la representada en la figura 1, creará un carbonato de dialquilo que depende del alcohol utilizado como reactante. Por ejemplo, si se usa metanol como reactante, el carbonato de dialquilo comprenderá carbonato de dimetilo, que es un carbonato de dialquilo preferido.

45 Los carbonatos de diarilo adecuados incluyen aquellos que se usan para efectuar una reacción de transesterificación entre los extremos de hidroxilo libre de compuestos dihidroxílicos para formar policarbonato. Los carbonatos de diarilo incluyen un grupo carbonato dispuesto entre dos grupos arilo. La reacción de formación del carbonato de diarilo representada en la Fig. 1 creará un carbonato de diarilo que depende del alcohol aromático utilizado como reactante.  
50 Si se usa fenol como reactante, el carbonato de diarilo comprenderá carbonato de difenilo, que es un carbonato de diarilo preferido.

### (1) *Dispositivo de separación ciclónica y una corriente de lavado líquida*

55 Los presentes inventores han descubierto que la acumulación de catalizador en el equipo de separación y el equipo de separación de las líneas de transferencia y el reactor puede ser reducida e incluso eliminada si se introduce una corriente de lavado líquida en el dispositivo de separación ciclónica. Esta corriente de lavado sirve para impedir que el catalizador se adhiera a los laterales del dispositivo de separación ciclónica, así como al tubo de retorno al reactor. Además, se cree que la corriente de lavado líquida impide que el catalizador se adhiera al dispositivo de  
60 separación ciclónica y que el tubo de retorno se seque y se acumule y obstruya estas piezas del equipo.

La presente realización se describirá en la presente memoria con referencia a la Fig. 2. En esta primera realización, la presente invención proporciona un método para formar carbonato de dialquilo. Una primera etapa de este método incluye la introducción de reactantes a un reactor 201 que tiene un espacio de cabeza gaseosa 203 y un espacio de  
65 cuerpo líquido 205. El reactor 201 funciona en condiciones para formar carbonato de dialquilo y agua de acuerdo con el esquema de reacción de la Fig. 1. Los reactantes comprenden alcohol, monóxido de carbono, oxígeno y un

catalizador. En una realización preferida, se introducen alcohol y catalizador en el espacio de cuerpo líquido 205 del reactor 201 en una corriente o corrientes de líquido 217. Una corriente de reactante alcohol introducida en el reactor 201 puede comprender además carbonato de dialquilo que es difícil de separar en etapas de recuperación del producto posteriores debido a la naturaleza azeotrópica de la corriente de producto que contiene alcohol y carbonato de dialquilo que sale del reactor. El oxígeno y el monóxido de carbono se introducen preferiblemente en el espacio de cuerpo líquido 205 del reactor 201 en la corriente de gas 219. La mezcla de reacción en el espacio de cuerpo líquido 205 es preferiblemente agitada por la hélice 221.

El reactor 201 se hace funcionar en condiciones suficientes para producir carbonato de dialquilo y agua. Como se describe en la presente memoria, la reacción de alcohol con oxígeno y monóxido de carbono en presencia de un catalizador para producir carbonato de dialquilo es bien conocida en la técnica y se describe en las patentes US-6.784.277 y US-7.141.641. En estas patentes, se describe que la reacción catalizada del alcohol, oxígeno y monóxido de carbono pueda realizarse en un solo reactor 201. Las condiciones para llevar a cabo esta reacción deben seleccionarse para maximizar el rendimiento del carbonato de dialquilo a la vez que se minimiza la degradación del carbonato de dialquilo. Preferiblemente, a una temperatura de aproximadamente 50 °C a aproximadamente 250 °C y preferiblemente al menos a aproximadamente 100 °C por ejemplo hasta aproximadamente 150 °C. El reactor 201 se mantiene preferiblemente a una presión manométrica de aproximadamente 15 a aproximadamente 35 bar y preferiblemente de al menos aproximadamente 20 bar hasta aproximadamente 28 bar. La concentración del catalizador debe ser suficientemente alta para producir un rendimiento aceptable, pero debe mantenerse por debajo de una concentración que podría causar un solidificado del catalizador en el reactor 201.

El oxígeno puede proporcionarse en cualquier forma, prefiriéndose las formas gaseosas. Fuentes de oxígeno adecuadas incluyen, por ejemplo, aire y gases que contienen oxígeno que tienen al menos aproximadamente 95 por ciento en peso de oxígeno molecular, preferiblemente al menos aproximadamente 99 por ciento en peso de oxígeno molecular. El monóxido de carbono se suministra preferiblemente como un gas que tiene al menos aproximadamente 90 por ciento en peso, preferiblemente al menos aproximadamente 95 por ciento en peso, más preferiblemente al menos aproximadamente 99 por ciento en peso, de monóxido de carbono.

Los reactantes que incluyen el alcohol, oxígeno y monóxido de carbono se añaden preferiblemente en una relación molar de (aproximadamente 0,5 a aproximadamente 0,7): (aproximadamente 0,04 a aproximadamente 0,06): (aproximadamente 0,8 a aproximadamente 1,2), respectivamente. Una proporción molar altamente preferida de alcohol:oxígeno:monóxido de carbono es (aproximadamente 0,6):(aproximadamente 0,05): (aproximadamente 1).

El catalizador adecuado incluye los que comprenden hierro, cobre, níquel, cobalto, zinc, rutenio, rodio, paladio, plata, cadmio, renio, osmio, iridio, platino, oro, mercurio y similares y combinaciones que comprenden al menos uno de los metales anteriores. Los catalizadores preferidos pueden comprender cobre. Un catalizador muy preferido comprende ion cobre y cloruro en una relación molar de aproximadamente 0,5 a aproximadamente 1,5. Dentro de este intervalo, se puede preferir una relación molar de al menos aproximadamente 0,8. También dentro de este intervalo, se puede preferir una relación molar de hasta aproximadamente 1,2. Los catalizadores muy preferidos incluyen cloruro cuproso (CuCl) y cloruro cúprico (CuCl<sub>2</sub>), siendo el cloruro cuproso el más preferido. Durante el funcionamiento del proceso, se puede mantener una concentración adecuada de iones cloruro mediante la adición de ácido clorhídrico (HCl).

La cantidad de catalizador utilizada en relación con los reactantes dependerá de la identidad del catalizador. Por ejemplo, cuando el catalizador comprende CuCl, una concentración de catalizador muy preferida es de aproximadamente 140 a aproximadamente 180 gramos por litro de mezcla de reacción. Preferiblemente se añade suficiente HCl al reactor 201 durante el transcurso de la reacción para mantener una relación molar de Cu:Cl próxima a 1,0. Preferiblemente, la concentración de HCl se determina y controla continuamente mediante la adición de HCl. Una relación de masa típica para la alimentación de HCl a la alimentación de líquido total es de aproximadamente  $6 \times 10^{-4}$  a aproximadamente  $8 \times 10^{-4}$ .

Se elimina una corriente de producto 207 del reactor 201 desde el espacio de cabeza 203 del reactor 201 en forma gaseosa (gas/vapor). La corriente de producto 207 comprende carbonato de dialquilo, agua y reactantes residuales. El término "reactantes residuales" se entiende en la presente memoria como reactantes sobrantes que no reaccionaron para formar carbonato de dialquilo. Los reactantes residuales incluyen alcohol, oxígeno, monóxido de carbono y catalizador (por ej., CuCl y HCl). El término gaseoso significa que el gas y el vapor están presentes en la corriente. El término "vapor" significa que se refiere a componentes de fluidos orgánicos de la mezcla tales como, por ejemplo, carbonatos de dialquilo, alcanoles y vapor de agua evaporados. Es decir, el término "vapor" se refiere a fluidos que tienen un punto de ebullición de al menos -50 °C a una atmósfera. Por el contrario, el término "gas" se refiere a oxígeno, dióxido de carbono, monóxido de carbono y, opcionalmente, nitrógeno. Es decir, el término "gas" se refiere a fluidos que tienen un punto de ebullición inferior a -50 °C a una atmósfera.

La corriente de producto gaseoso 207 y una corriente de lavado líquida 209 se introducen en un dispositivo de separación ciclónica 211, preferiblemente un ciclón 211. El ciclón 211 está funcionando en condiciones suficientes para producir una corriente líquida de fondo 213 y una corriente superior gaseosa 215. La composición del material de la corriente de lavado líquida 209 se selecciona preferiblemente de manera que comprende materiales que están

contenidos en el reactor 201 y no son ajenos a la reacción que se produce en el reactor 201. En una realización, la corriente de lavado líquida 209 comprende un material seleccionado del grupo que consiste en alcohol, carbonato de dialquilo, agua y combinaciones de los mismos. En una realización preferida adicional, la corriente de lavado líquida puede comprender además ácido clorhídrico acuoso para proporcionar una corriente de lavado líquida 209 que comprende un material seleccionado del grupo que consiste en alcohol, carbonato de dialquilo, agua, ácido clorhídrico y combinaciones de los mismos. En otra realización preferida, la corriente de lavado líquida 209 consiste en ácido clorhídrico acuoso. Si el ácido clorhídrico está presente en la corriente de lavado líquida es preferible que esté presente en una concentración mayor o igual que la concentración de ácido clorhídrico en la corriente de producto 207. La corriente de lavado líquida puede introducirse en el ciclón 211 individualmente o combinarse con la corriente de producto 207 antes de entrar en el ciclón 211. La temperatura de la corriente de lavado líquida se selecciona preferiblemente para estar en o cerca de la temperatura de la corriente de producto 207 para no condensar el vapor orgánico presente en la corriente de producto 207.

El origen de la corriente de lavado líquida 209 no está particularmente limitado. En una realización, la corriente de lavado líquida 209 se obtiene preferiblemente del espacio de cuerpo líquido 205 del reactor 201. La corriente de lavado líquida también puede obtenerse a partir de un chorro lateral de la corriente de reactante 217 u opcionalmente de corrientes de reactantes individuales e introducida en el reactor 201 a través del ciclón 211.

El caudal de la corriente de lavado líquida se selecciona de tal manera que la acumulación de catalizador no se produce en el ciclón ni en la corriente de líquido inferior 213 del ciclón 211. Además, el caudal de la corriente de lavado líquida debe seleccionarse dependiendo del tamaño de la línea de fondo líquida 213. En una realización preferida, el caudal de la corriente de lavado líquida 209 se selecciona de tal manera que no se produce acumulación de líquido en el ciclón. Por ejemplo, cuando la corriente de fondo líquida 213 fluye al reactor en un tubo que tiene un diámetro seleccionado, el caudal de la corriente de lavado líquida debe estar en el entorno de entre 0,05 y 10 metros/segundo, más preferiblemente entre 0,05 y 5 metros por segundo y lo más preferiblemente entre 0,05 y 2 metros/segundo para asegurar un lavado adecuado del ciclón y la línea de transferencia.

La corriente de fondo líquida 213 se captura del ciclón 211 y se introduce en el reactor 201. La corriente de fondo líquida 213 puede introducirse en el espacio de cabeza gaseosa 203 o en el espacio de cuerpo líquido 205. En una realización preferida, la corriente de fondo líquida 213 se introduce en el espacio de cuerpo líquido 205, por ejemplo por medio de un 'tubo de pata de inmersión' conectado al fondo de un ciclón 211 y directamente en el espacio de cuerpo líquido 205 del reactor 201. La corriente de fondo líquida 213 comprende líquido condensado en el ciclón 211, líquido y sólido arrastrado en la corriente de producto 207 y líquido contenido en la corriente de lavado líquida 209. La corriente superior gaseosa 215 del dispositivo de separación ciclónica 211 contiene producto carbonato de dialquilo y puede refinarse adicionalmente. Por ejemplo, como se describe en la patente US-7.141.641, la corriente superior gaseosa 215 puede introducirse en una serie de etapas de purificación para producir una corriente de producto de carbonato de dialquilo purificada que es adecuada para su uso en una instalación de producción de carbonato de diarilo.

## **(2) Introducción de oxígeno al espacio de la cabeza del reactor**

Los presentes inventores han encontrado que la acumulación de catalizador puede ser reducida e incluso eliminada en el equipo de reacción y separación si se introduce oxígeno en el espacio de cabeza del reactor. Además, cuando se observa acumulación de catalizador utilizando esta realización, se ha encontrado que la acumulación es menor de lo que sería sin añadir oxígeno al espacio de cabeza del reactor. Esto es beneficioso porque si un trozo del catalizador fuera a romperse será menos probable dañar el equipo.

La presente realización se describirá en la presente memoria con referencia a la Fig. 3. En esta realización, la presente invención proporciona otro método de formación de carbonato de dialquilo. Una primera etapa de este método incluye la introducción de reactantes a un reactor 301. El reactor 301 tiene un espacio de cabeza gaseosa 303 y un espacio de cuerpo líquido 305. Los reactantes comprenden alcohol, monóxido de carbono, oxígeno y un catalizador. El reactor funciona en condiciones, como se ha descrito anteriormente, para formar carbonato de dialquilo y agua. El alcohol y el catalizador se introducen en el espacio de cuerpo líquido 305 del reactor 301 en un líquido combinado 317 o por separado en una pluralidad de corrientes de reactantes individuales. El oxígeno y el monóxido de carbono se introducen en el espacio de cuerpo líquido 305 del reactor 301 preferiblemente en forma gaseosa como se ha descrito anteriormente.

Los presentes inventores han encontrado que la acumulación de catalizador se reduce cuando hay oxígeno presente en el espacio de cabeza 303 del reactor 301. Por lo tanto, en la presente realización, se introduce una corriente separada 309 que comprende oxígeno en el espacio de cabeza 303 del reactor 301. La fuente de corriente 309 no está particularmente limitada y preferiblemente comprende una mezcla de monóxido de carbono y oxígeno en una relación estequiométrica similar añadida al espacio de líquido 305 del reactor, por ejemplo 1:1. En una realización preferida, el caudal de vapor 309 se seleccionará de modo que el espacio de cabeza 303 del reactor 301 comprenda un contenido de oxígeno entre 0,10 % en moles y 1,00 % en moles, y más preferiblemente entre 0,20 y 0,6 % en moles (por ejemplo entre 0,30 y 0,50 % en moles). En otra realización preferida, el caudal de la corriente 309 se controla utilizando un conjunto controlador y válvula 310. En esta realización posterior, el caudal de flujo de la

corriente 309 se controla de manera que el oxígeno también esté presente en los intervalos descritos anteriormente en la corriente gaseosa superior 315 desde el dispositivo de separación ciclónica 311.

Una corriente de producto gaseoso 307 se retira del espacio de cabeza 303 del reactor 301. La corriente de producto 307 comprende carbonato de dialquilo y agua formada en el reactor, oxígeno introducido a través de la corriente 309 y reactantes no reaccionados residuales. La corriente de producto se introduce en un dispositivo de separación ciclónica 311, preferiblemente ciclón 311, para producir una corriente de fondo líquida 313 y una corriente superior gaseosa 315. La corriente de fondo líquida 313 se captura e introduce en el reactor 301, como se ha descrito anteriormente. La corriente superior gaseosa 315 contiene producto carbonato de dialquilo.

### (3) Configuraciones de deflectores preferidas

Los presentes inventores han descubierto que la acumulación de catalizador puede ser reducida e incluso eliminada en el equipo de reacción si se emplea una configuración de deflector preferida. Se ha descubierto que la acumulación de catalizador puede ocurrir en superficies horizontales dentro del equipo de reacción y separación. El catalizador puede adherirse a estas superficies horizontales, secarse y, eventualmente, acumularse. Si no se controla, pueden desprenderse trozos de la acumulación y caer en el espacio líquido del reactor y el equipo de separación causando así daños al equipo y vibraciones potencialmente inseguras en el equipo. Por lo tanto, los inventores han determinado que se deben minimizar superficies horizontales en el reactor, y en particular deflectores y sus abrazadores de soporte que tienen porciones dispuestas en el espacio de cabeza gaseosa del reactor. La expresión "superficie horizontal" significa una superficie que es sustancialmente horizontal y se entiende que significa que la superficie es plana y contiene una pendiente con respecto al plano horizontal de menos de 20°, por ejemplo 10° o menos.

La presente realización se describirá en la presente memoria con referencia a las Figs. 4 (a) - (c). En esta realización, la presente invención proporciona otro método de formación de carbonato de dialquilo. Una primera etapa de este método incluye la introducción de reactantes en un reactor 401. El reactor 401 tiene un espacio de cabeza gaseosa 403 y un espacio de cuerpo líquido 405. Los reactantes comprenden alcohol, monóxido de carbono, oxígeno y catalizador. El reactor 401 funciona en condiciones, como se ha descrito anteriormente, para formar carbonato de dialquilo y agua. El alcohol y el catalizador se introducen en el espacio de cuerpo líquido 405 del reactor 401 en un líquido combinado 417 o por separado en una pluralidad de corrientes de reactantes individuales. El oxígeno y el monóxido de carbono se introducen, preferiblemente en la corriente 419 o en corrientes separadas, al espacio de cuerpo líquido 405 del reactor 401 preferiblemente en forma gaseosa como se ha descrito anteriormente.

El reactor comprende un deflector (423 o 425) o una pluralidad de deflectores (423 y 425). El término "deflector" se entiende en la presente memoria que incluye la parte de deflector vertical, así como cualquier accesorio 451 o abrazadera de soporte 451 que fija la parte de deflector vertical al reactor 401. El deflector o deflectores están dispuestos en una configuración seleccionada del grupo que consiste en:

(A) el deflector 423 está totalmente dispuesto dentro del espacio de cuerpo líquido 405 del reactor 401 y

(B) el deflector 425 comprende una porción 427 que está dispuesta en el espacio de la cabeza gaseosa 403 y una porción 429 que está dispuesta en el espacio del cuerpo de líquido 405, en el que la parte de deflector 427 de cualquier deflector, incluyendo cualquier accesorio como se ha descrito anteriormente, dispuesto en el espacio de cabeza gaseosa 403 tiene un área de superficie horizontal de menos de 200 cm<sup>2</sup>.

Como se muestra en la Figura 4(b), si se selecciona la configuración de deflector (B) y se emplea, la parte de deflector 427, incluyendo cualquier accesorio como se ha descrito anteriormente, dispuesta en el espacio de cabeza gaseosa 403 preferiblemente tendrá menos de 100 cm<sup>2</sup> de la superficie horizontal 450. Como se muestra en la Fig. 4(c) la porción de deflector 427 dispuesta en el espacio de cabeza gaseosa 403 no tendrá superficies horizontales. La reducción de superficies horizontales puede conseguirse reduciendo la parte superior del deflector como se ilustra en la figura 4(c).

Se elimina una corriente de producto 407 del espacio de cabeza 403 del reactor 401. La corriente de producto 407 comprende carbonato de dialquilo, agua y reactantes residuales y se introduce en un dispositivo de separación ciclónica 411 para producir una corriente de fondo líquida 413 y una corriente superior gaseosa 415. La corriente de fondo líquida 413 se captura del dispositivo de separación ciclónica 411 y se introduce en el reactor 401. La corriente superior gaseosa 415 contiene producto carbonato de dialquilo.

### Combinaciones de realizaciones de método:

Como se describe en la presente memoria, la presente invención proporciona métodos para producir carbonato de dialquilo en los que la acumulación de catalizador en el equipo de reacción, el equipo de separación y las líneas de transferencia puede reducirse e incluso eliminarse. La presente invención proporciona al menos tres nuevos métodos para llevar a cabo este objetivo. Los métodos pueden usarse solos o pueden usarse en cualquier

combinación. Por ejemplo, tal como se describe en la Figura 5, se emplean la primera y segunda realizaciones que incluyen (1) introducir una corriente de lavado líquida 509 al dispositivo de separación ciclónica 511 y (2) introducir una corriente separada 508 que comprende oxígeno al espacio de cabeza 503 del reactor 501. Como se representa en la Figura 6, se emplean la primera y tercera realizaciones que incluyen (1) introducir una corriente de lavado líquida 609 al dispositivo de separación ciclónica 611 y (3) emplear una configuración de deflector 623 preferida como se ha descrito anteriormente. Como se describe en la Figura 7 se emplean las realizaciones del segundo y tercer método que incluyen (2) introducir una corriente separada 708 que comprende oxígeno al espacio de cabeza 703 del reactor 701 y (3) emplear una configuración de deflector 723 preferida como se ha descrito anteriormente. En una realización más preferida representada en la Figura 8, se emplean las tres realizaciones de método que incluyen (1) introducir una corriente de lavado líquida 809 al dispositivo de separación ciclónica 811, (2) introducir una corriente separada 808 que comprende oxígeno al espacio de cabeza 803 del reactor 801 y (3) emplear una configuración de deflector 823 preferida como se ha descrito anteriormente. Obsérvese que la configuración de deflector empleada en las Figs. 6 a 8 incluye una configuración preferida en la que los deflectores están completamente dispuestos con el espacio de cuerpo líquido de los reactores.

### Ejemplos

Habiendo descrito la invención en detalle, se proporcionan los siguientes ejemplos. Los ejemplos no deben considerarse como limitativos del alcance de la invención, sino meramente ilustrativos y representativos de la misma.

#### Ilustración 1 (oxigenación y reducción de la acumulación de catalizador)

Se preparó una mezcla de reacción y se hizo reaccionar de acuerdo con las siguientes condiciones. La mezcla de reacción comprendía metanol (MeOH) y carbonato de dimetilo (DMC) es una relación de 70:30 % en peso. La mezcla de reacción contenía también 16 gramos de CuCl. Esta mezcla se introdujo en un reactor de vidrio cerrado con un volumen de 100 ml. El reactor se mantuvo a 2413 Kpa y a una temperatura de 132 °C. La mezcla de reacción se agitó con un agitador girando a una velocidad de 1.000 rpm. Una alimentación de gas de oxidación que comprende N<sub>2</sub>:O<sub>2</sub> en una relación 95:5 se introdujo en el reactor a un caudal de 1200 Nml/ min durante dos horas. Una alimentación de gas de reacción que comprende monóxido de carbono y oxígeno (CO:O<sub>2</sub>) en una relación 95:5 también se introdujo en el reactor de vidrio con un caudal de 660 Nml/min durante 3 horas. La mezcla de reacción se redujo entonces con CO durante 8 horas con un flujo de gas CO a una velocidad de 660 Nml/min 1.000 rpm. La mezcla de reacción se mantuvo entonces bajo CO a una presión 2413 Kpa sin flujo y sin agitar a 132 °C durante 7 días.

Al final de 7 días, el reactor se abrió y se inspeccionó visualmente para determinar la formación de gránulos de catalizador. Los gránulos de catalizador se observaron en y por encima del nivel de líquido de la mezcla de reacción. El reactor se cerró y se agitó a 1.000 rpm durante 2 horas a 132 °C y 2413 Kpa de presión de CO. Al final de este período de 2 horas, el agitador se detuvo y el reactor se abrió y se inspeccionó visualmente para determinar la formación de gránulos de catalizador. Se observaron nuevamente gránulos de catalizador en la mezcla de reacción y por encima del nivel de líquido en el reactor. El reactor se cerró y se agitó a 1.000 rpm durante 2 horas a 132 °C. Durante este tiempo, se introdujo también en el reactor una corriente que comprende N<sub>2</sub> y O<sub>2</sub> en una relación de 95:5. Al final de este período de tiempo de 2 horas, el agitador se detuvo y el reactor se abrió y no se observaron gránulos en la mezcla de reacción ni por encima del nivel de líquido en el reactor.

Se puede concluir que la acumulación de catalizador en forma de gránulos se observa cuando el espacio de cabeza de un reactor está desprovisto de oxígeno. Cuando se introduce oxígeno en el espacio de cabeza del reactor, la acumulación de catalizador puede reducirse e incluso eliminarse.

**REIVINDICACIONES**

1. Un método de formación de carbonato de dialquilo que comprende:

- 5 (1) introducir reactantes en un reactor que tiene un espacio de cabeza gaseosa y un espacio de cuerpo líquido, comprendiendo los reactantes alcohol, monóxido de carbono, oxígeno y un catalizador, funcionando el reactor en condiciones para formar carbonato de dialquilo y agua,  
 10 en donde el alcohol y el catalizador se introducen en el espacio de cuerpo líquido del reactor en un líquido, y en donde el oxígeno y el monóxido de carbono se introducen en el espacio de cuerpo líquido del reactor en un gas,  
 (2) introducir una corriente separada que comprende oxígeno en el espacio de cabeza del reactor de tal manera que el espacio de cabeza comprende un contenido de oxígeno de entre el 0,10 % en moles y el 1,00 % en moles,  
 15 (3) extraer una corriente de producto del espacio de cabeza del reactor, comprendiendo la corriente de producto carbonato de dialquilo, agua, oxígeno y reactantes residuales,  
 (4) introducir la corriente de producto en un dispositivo de separación ciclónica para producir una corriente de fondo líquida y una corriente superior gaseosa,  
 (5) capturar e introducir la corriente de fondo líquida desde el dispositivo de separación ciclónica al reactor,

20 en el que la corriente superior gaseosa contiene el producto carbonato de dialquilo.

2. El método de la reivindicación 1, en el que el espacio de cabeza comprende un contenido de oxígeno de entre el 0,20 % en moles y el 0,60 % en moles.

25 3. El método de las reivindicaciones 1 o 2, en el que el reactor comprende un deflector, estando el deflector dispuesto en una configuración seleccionada del grupo que consiste en:

- (A), el deflector está completamente dispuesto dentro del espacio de cuerpo líquido del reactor y  
 30 (B) el deflector comprende una parte que está dispuesta en el espacio de cabeza gaseosa y una parte que está dispuesta en el espacio de cuerpo líquido, en donde la parte de deflector de cualquier deflector dispuesto en el espacio de cabeza gaseosa tiene un área superficial horizontal de menos de 200 cm<sup>2</sup>, por ejemplo menos de 100 cm<sup>2</sup> de área superficial horizontal, o ninguna superficie horizontal.

35 4. El método de cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en el que también se introduce una corriente de lavado líquida en el dispositivo de separación ciclónica, en el que la corriente de lavado líquida comprende un material seleccionado del grupo que consiste en alcohol, carbonato de dialquilo, agua y combinaciones de los mismos y en el que la corriente de fondo líquida comprende líquido condensado en el dispositivo de separación ciclónica, líquido y sólidos arrastrados en la corriente de producto y líquido contenido en la corriente de lavado líquida.

40 5. El método de la reivindicación 4, en el que la corriente de lavado líquida comprende además ácido clorhídrico.

6. El método de la reivindicación 5, en el que la concentración de ácido clorhídrico en la corriente de lavado líquida es mayor o igual a la concentración de ácido clorhídrico en la corriente de producto.

45 7. El método de la reivindicación 6, en el que la corriente de lavado líquida comprende además un material seleccionado del grupo que consiste en alcohol, carbonato de dialquilo, agua y combinaciones de los mismos.

8. El método de cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7, en el que el alcohol comprende metanol y el carbonato de dialquilo comprende carbonato de dimetilo.

50



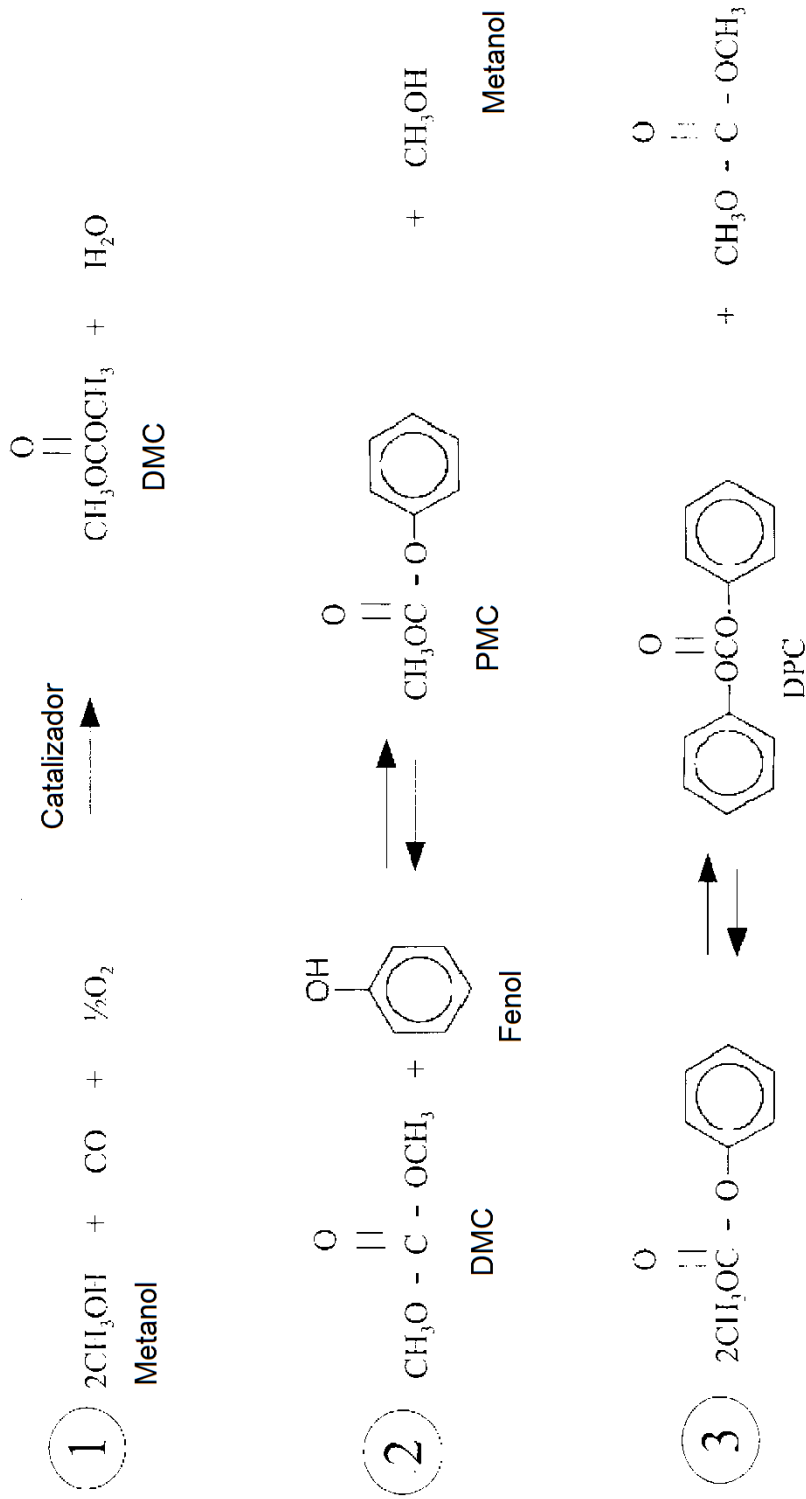


Figura 1

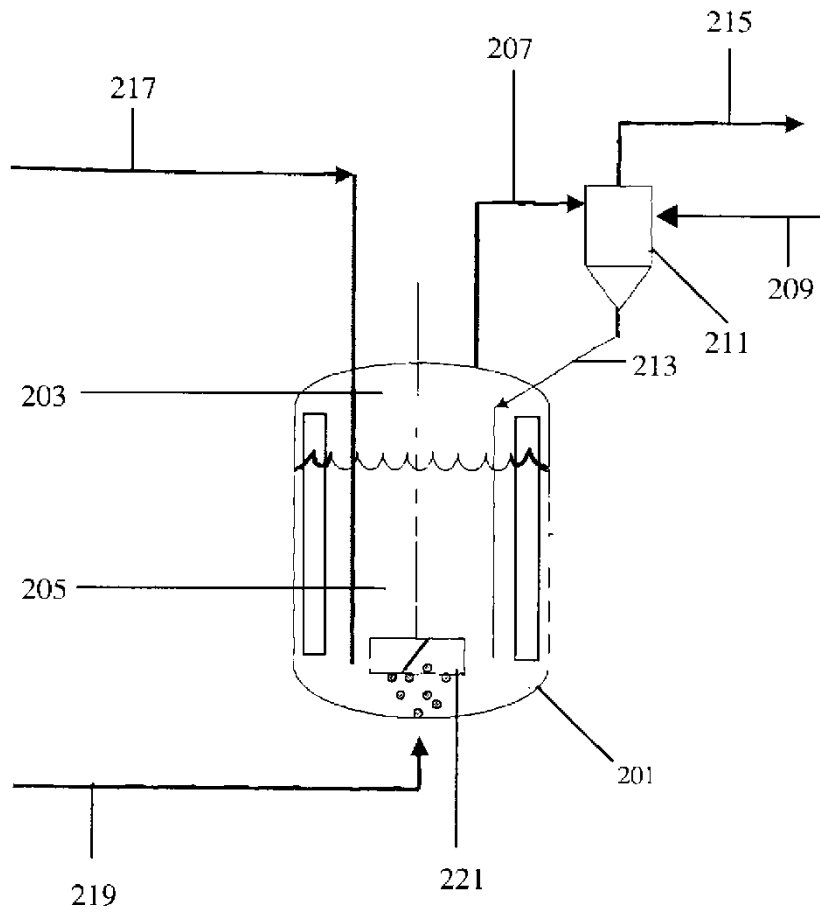


Figura 2

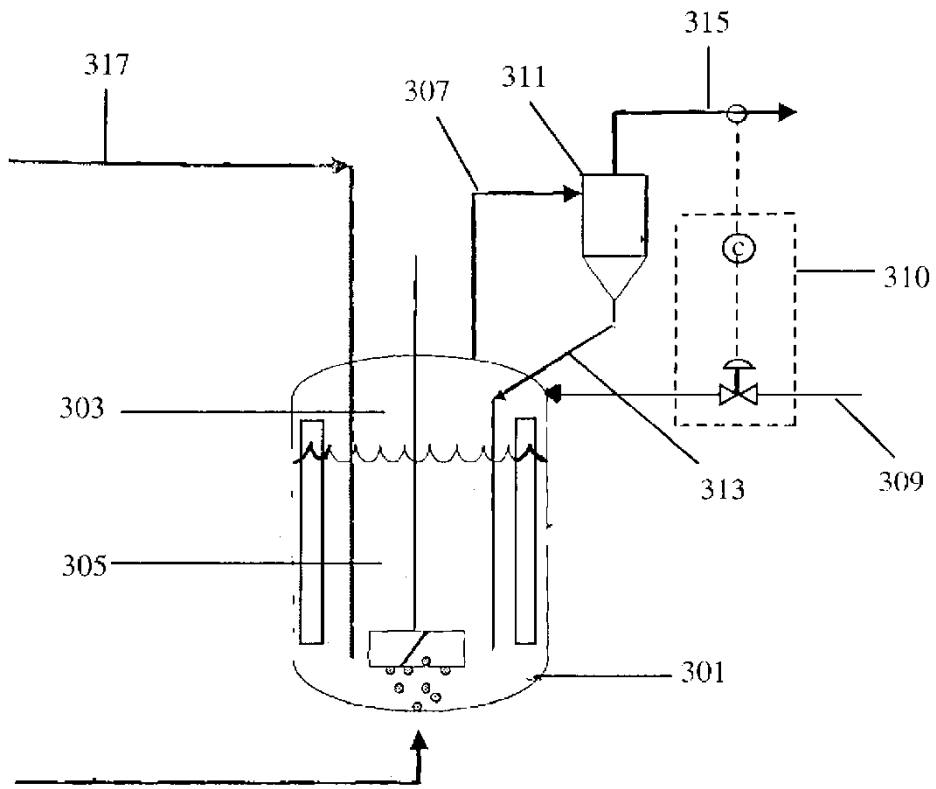


Figura 3

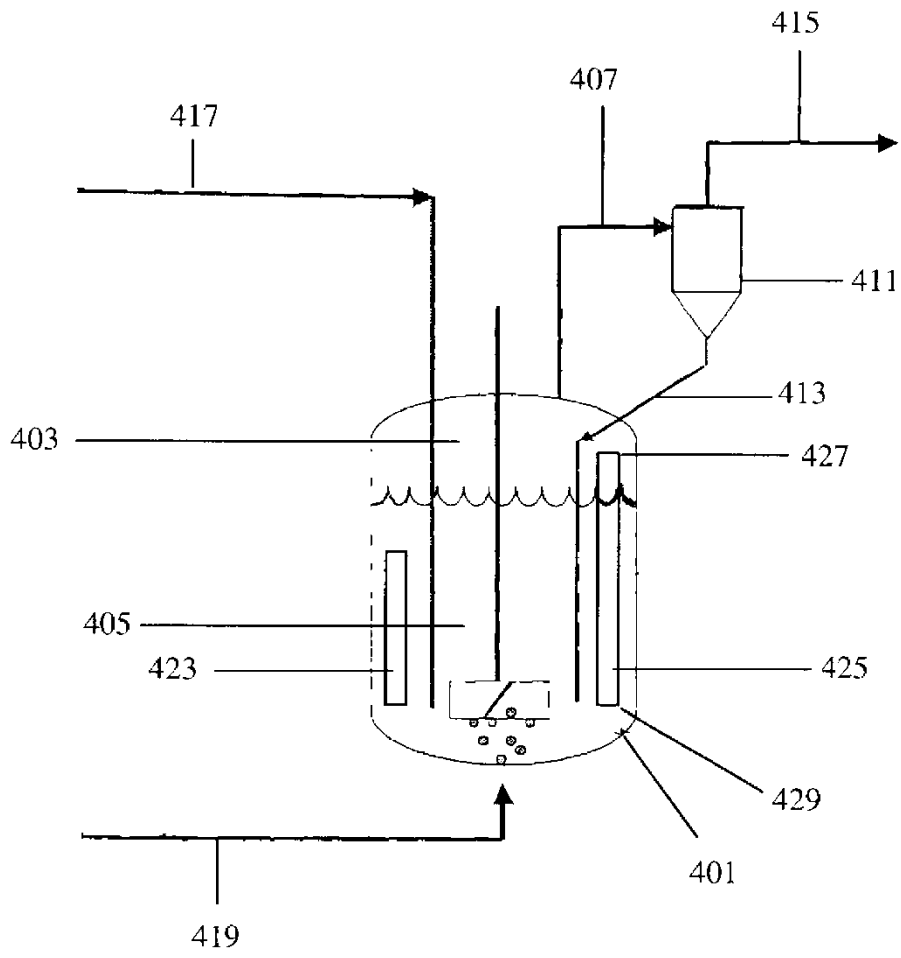


Figura 4(a)

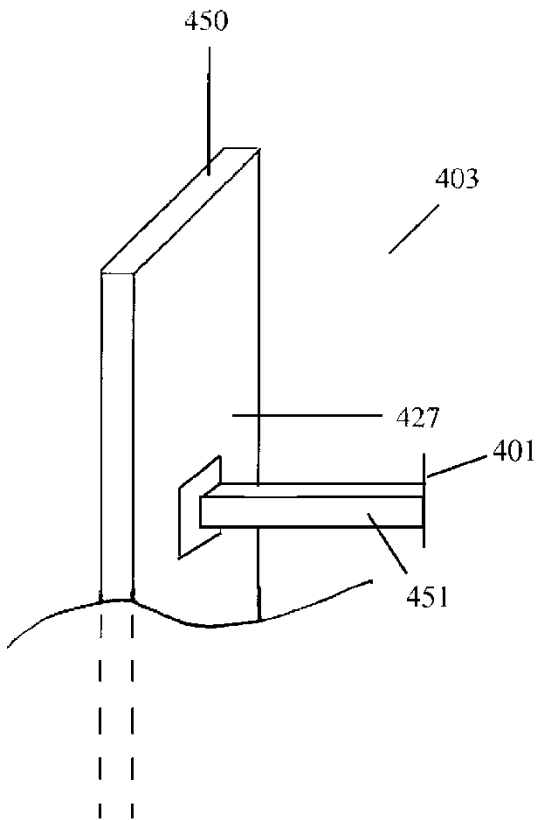


Figura 4(b)

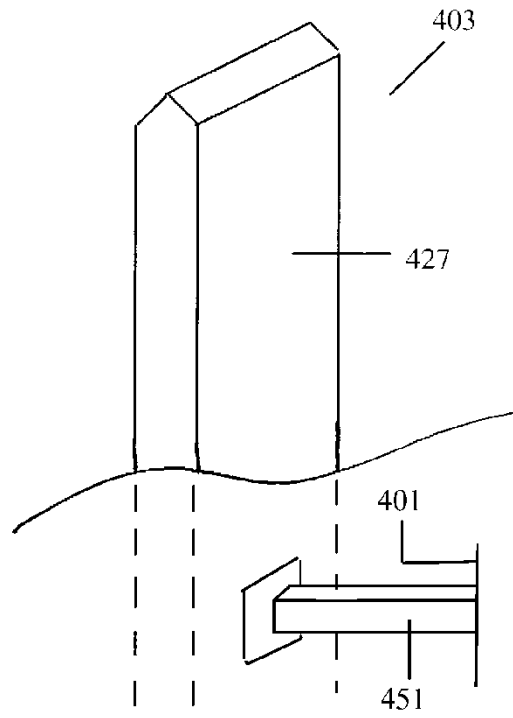


Figura 4(c)

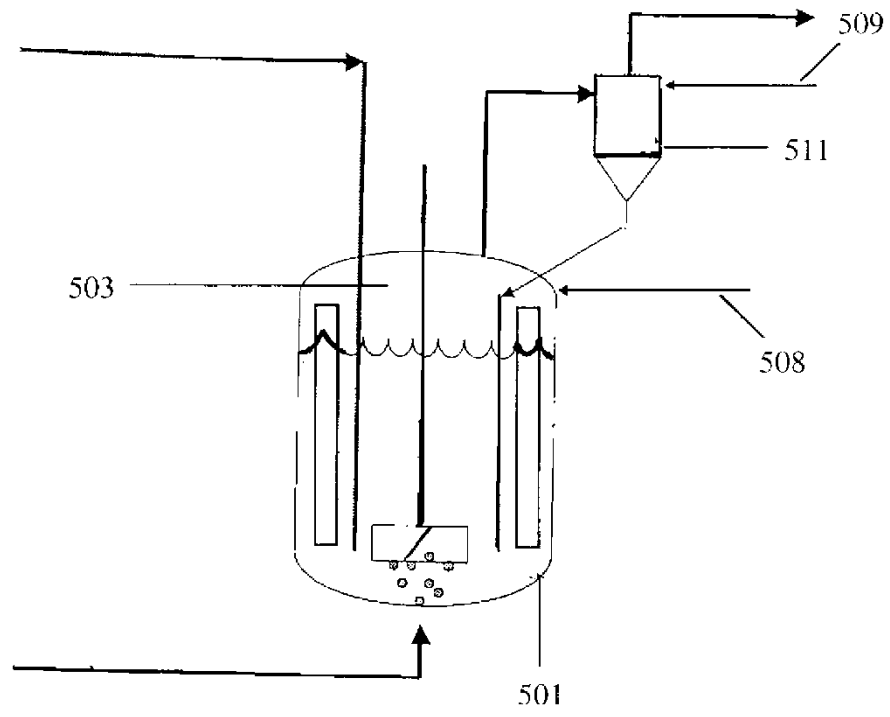


Figura 5

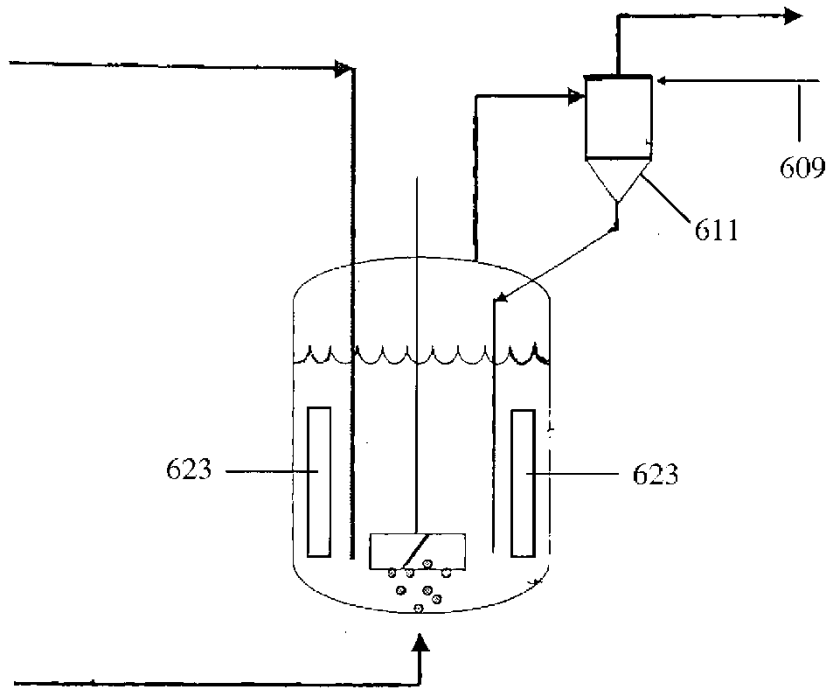


Figura 6

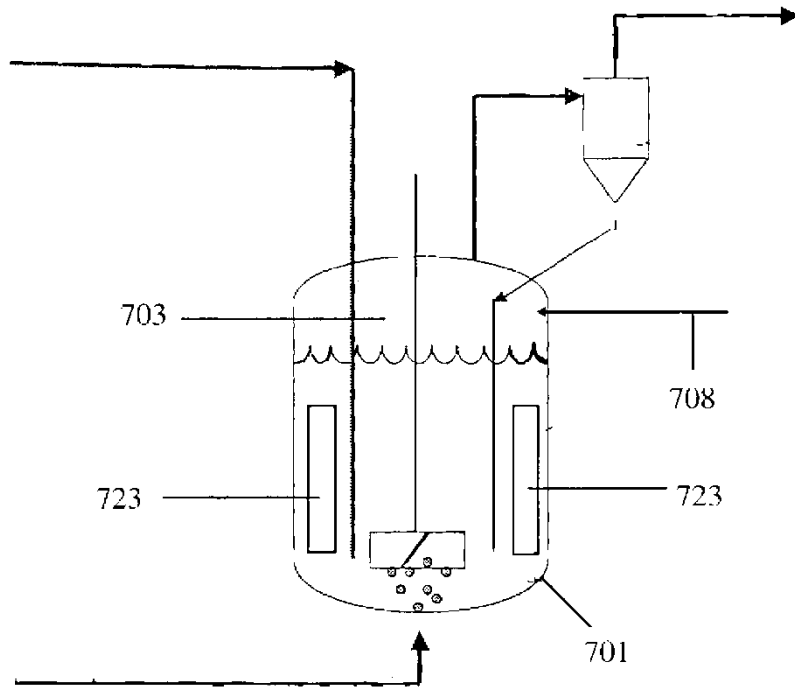


Figura 7



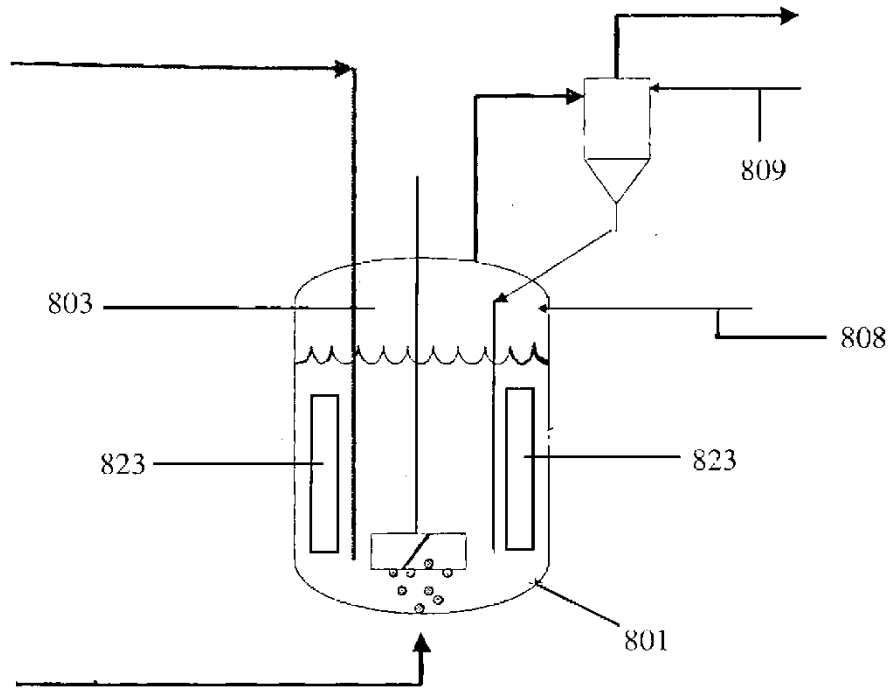


Figura 8