

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 653 794**

51 Int. Cl.:

**C07D 301/12** (2006.01)  
**B01D 17/02** (2006.01)  
**B01F 5/06** (2006.01)  
**B01J 19/18** (2006.01)  
**B01J 19/24** (2006.01)  
**B01J 4/00** (2006.01)  
**C07D 301/03** (2006.01)  
**C07D 301/14** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **26.01.2011** E 15171187 (6)

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **01.11.2017** EP 2947076

54 Título: **Procedimiento para la fabricación de un 1,2-epóxido y un dispositivo para llevar a cabo dicho procedimiento**

30 Prioridad:

**02.02.2010 EP 10001035**

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

**08.02.2018**

73 Titular/es:

**EVONIK DEGUSSA GMBH (100.0%)  
Rellinghauser Strasse 1-11  
45128 Essen, DE**

72 Inventor/es:

**MUPPA, PRASAD;  
POSTMA, RON;  
VAN DEN BERG, BART B.;  
STOCK, JÜRGEN;  
WIEDERHOLD, HOLGER;  
RAUSCH, HANS-MARTIN;  
SCHALLENBERG, JÖRG y  
BERNHARDT, STEFAN**

74 Agente/Representante:

**LEHMANN NOVO, María Isabel**

**Observaciones:**

**Véase nota informativa (Remarks, Remarques o Bemerkungen) en el folleto original publicado por la Oficina Europea de Patentes**

**ES 2 653 794 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**

Procedimiento para la fabricación de un 1,2-epóxido y un dispositivo para llevar a cabo dicho procedimiento

**Campo de la invención**

5 La invención se refiere a la fabricación de un 1,2-epóxido en presencia de un complejo de manganeso soluble en agua como catalizador de oxidación.

**Antecedentes de la invención**

Se describe un procedimiento para la fabricación de un 1,2-epóxido en la solicitud de patente europea publicada EP 2149569. Describe la oxidación catalítica de una olefina terminal usando un complejo de manganeso soluble en agua como catalizador de oxidación.

10 El procedimiento descrito se lleva a cabo en un sistema multifásico, por ejemplo, bifásico, es decir, un sistema que comprende una fase orgánica, que puede ser un líquido o una fase gaseosa y una fase acuosa. La reacción propiamente dicha tiene lugar en la fase acuosa, mientras el producto resultante, epóxido, se separa de la fase acuosa en la fase orgánica debido a una baja solubilidad de, o extracción o separación por la fase orgánica. Por esta razón, el 1,2-epóxido se produce a altos números de recambio (TON, por sus siglas en inglés), con alta selectividad  
15 al 1,2-epóxido con, por otra parte, facilidad mejorada de aislamiento del 1,2-epóxido producido.

Típicamente el sistema catalítico utilizado para conseguir las ventajas anteriores comprende un átomo de manganeso o un número de átomos de manganeso coordinado con un ligando o ligandos. Son de particular interés los complejos binucleares de manganeso. Como ejemplo de la fabricación anterior de 1,2-epóxido, se hace referencia a la publicación de la solicitud de patente europea EP 2149570, que describe la oxidación de cloruro de alilo para producir epíclorohidrina. La patente europea EP 2149569 indica además que el procedimiento puede llevarse a cabo en un reactor, pero no proporciona más detalles sobre esto. Resulta, sin embargo, que con el aislamiento del 1,2-epóxido, quedó una fase acuosa que comprendía una fracción de catalizador activo. La patente europea EP 2149569 no describe ningún uso más para esta fracción, que significa que se desperdicia parte del catalizador, que no es eficaz. Otro ejemplo acerca de un método de fabricación de óxido de propileno se presenta en la solicitud de patente europea no publicada 09075528.  
20  
25

**Descripción de la invención**

Es por lo tanto un objeto de la presente invención proporcionar un procedimiento con eficacia mejorada del catalizador.

Es otro objeto de la invención proporcionar un procedimiento con selectividad mejorada para el producto.

30 Es otro objeto más de la invención proporcionar un procedimiento con bajos requerimientos de energía para las etapas de separación y purificación.

Se consigue uno o más de los objetos anteriores mediante un procedimiento para la fabricación de un epóxido, que incluye:

35 a) añadir un oxidante, un complejo de manganeso soluble en agua y una olefina terminal para formar una mezcla de reacción multifásica de una fase acuosa y una fase orgánica con una relación volumétrica de fase acuosa a fase orgánica en el intervalo de desde 10:1 a 1:5, en donde la olefina terminal presenta una solubilidad máxima en la fase acuosa a 20 °C de 0,01 a 100 g/l y el complejo de manganeso soluble en agua es una especie mononuclear de la fórmula general (I):  $[LMnX_3]Y$  (I), o una especie binuclear de la fórmula general (II):  $[LMn(\mu-X)_3MnL](Y)_n$  (II), en donde Mn es un manganeso; L o cada L es independientemente un ligando polidentado, cada X es independientemente una especie de coordinación y cada  $\mu-X$  es independientemente una especie de coordinación de puente y en donde Y es un contraión de no coordinación,  
40

45 b) dispersar la fase orgánica en la fase acuosa continua en la forma de gotitas de menos de 3 mm y hacer reaccionar la olefina terminal con el oxidante en la mezcla de reacción multifásica que tiene al menos una fase orgánica en presencia del complejo de manganeso soluble en agua,

c) separar la mezcla de reacción en la fase orgánica y una fase acuosa y

d) reutilizar al menos parte de la fase acuosa y el catalizador contenido en la misma reciclando al menos una porción de la fase acuosa obtenida en la etapa c) en la etapa a).

**Descripción detallada de las figuras**

50 Lo siguiente es una breve descripción de las figuras en donde igual numeración indica elementos iguales.

La FIG. 1, ilustra una representación esquemática de una realización de un dispositivo para la fabricación de epíclorohidrina.

### Modo(s) de llevar a cabo la invención

5 La invención se basa en la observación de que la fase acuosa separada contiene catalizador que es aún activo. Esto ha llevado a los presentes autores a la idea de que reutilizar al menos parte de la fase acuosa separada que comprende el catalizador, conduce a un uso más eficaz del catalizador y a un menor consumo de energía en posteriores etapas de separación. La combinación de un sistema de reacción bifásico bien dispersado y la reutilización de la fase acuosa puede conducir a un número de recambio alto, (TON), que es el número de moles de olefina terminal que un mol de catalizador puede convertir antes de que llegue a inactivarse. Dicha combinación puede conducir además a un consumo de energía minimizado para las etapas posteriores de separación y purificación, alta selectividad en el producto para todas las materias primas y una utilización eficaz del volumen del reactor que conduce a un procedimiento menos complicado. A partir de ahora se discute la invención con mayor detalle.

15 El procedimiento se lleva a cabo en un sistema multifásico de una fase acuosa y una fase orgánica. Se cree que la oxidación (etapa a)) de la olefina terminal tiene lugar en fase acuosa, mientras se cree que la fase orgánica extrae o separa el 1,2-epóxido producido de la fase acuosa. Los autores han encontrado que la fase orgánica contiene pocos subproductos solubles en agua o ninguno y catalizador. Es beneficioso utilizar una olefina terminal que tenga una solubilidad limitada en agua, por ejemplo, cloruro de alilo y acetato de alilo en vez de alcohol alílico usado convencionalmente. El sistema multifásico puede ser creado añadiendo la olefina terminal con solubilidad limitada a una fase acuosa en una cantidad mayor que la que se disuelve en la fase acuosa. Las olefinas terminales tienen una solubilidad máxima de aproximadamente 100 g/l (a 20 °C), más preferiblemente de desde 0,01 a 100 g/l.

25 La relación volumétrica de la fase orgánica a la fase acuosa, ambas en el interior del reactor, y el grado de contacto entre las fases son parámetros importantes en la realización del sistema catalítico. Si la cantidad de fase orgánica es demasiado alta, la fase acuosa ya no es la fase continua. En este caso, puede ser insuficiente el mezclamiento de los ingredientes. Esto significa que la tasa de conversión de olefina terminal está considerablemente disminuida. Por otra parte, si la fase acuosa en el interior del reactor es demasiado alta con respecto a la cantidad de fase orgánica, la concentración de olefina terminal en la fase acuosa será demasiado baja con respecto a la concentración de oxidante. Esto puede conducir a la producción de subproductos no deseables y desactivación del catalizador. Por lo tanto, la relación volumétrica de fase acuosa a fase orgánica en el interior del reactor está en el intervalo de desde 10:1 a 1:5, con formación de emulsión como límite máximo.

30 Las limitaciones anteriores también pueden verse influidas por el grado de mezclamiento. En la práctica esto significa que se requiere dispersar bien la fase orgánica en la fase acuosa continua, tal como en forma de gotitas, preferiblemente tan pequeñas como sea posible, menores que 3 mm.

35 En la dispersión de la fase orgánica en la fase acuosa, puede tener lugar la reacción (oxidación catalítica) de la olefina terminal y el oxidante en presencia del catalizador (etapa a)). Se descarga la mezcla de reacción resultante del reactor. Se permite que la mezcla de reacción descargada comprenda tanto producto como material de partida no reaccionado. Se deja depositarse la mezcla de reacción descargada en sus fases separadas, la fase acuosa y la fase orgánica.

40 Los presentes autores encontraron sorprendentemente que la fase acuosa contiene catalizador que aún es activo. El catalizador contenido en la fase acuosa separada puede ser reutilizado, aumentando de ese modo la eficacia del catalizador.

45 Se cree que es beneficioso que la fase acuosa contenga al menos cantidades traza de la olefina terminal. Sin desear estar limitados por ninguna teoría, se cree que la presencia de olefina terminal permite que el catalizador permanezca activo, mientras se cree que sin la presencia de olefina terminal y/o debido a la presencia del epóxido y/u oxidante sin olefina terminal presente, se reduzca la actividad del catalizador activo. También se puede usar enfriamiento para reducir la disminución de eficacia del catalizador.

Se reutiliza la fase acuosa y se recicla al menos una porción de la fase acuosa a la mezcla de reacción. De esta manera, no se descarga el catalizador presente en la fase acuosa reciclada, sino que se usa con eficacia de nuevo.

50 Cuando se está realizando el procedimiento, por unidad de tiempo, se suministran ciertos volúmenes de materiales de partida acuosos, tales como el oxidante, catalizador y, si es necesario, tampón, a la mezcla de reacción (etapa a)).

55 Estos materiales de partida acuosos se indican como componentes acuosos. Simultáneamente, por unidad de tiempo, también se recicla un cierto volumen de fase acuosa separada a la mezcla de reacción. La relación en masa del volumen de componentes acuosos al volumen de fase acuosa reciclada añadida a la mezcla de reacción en cada instante se indica como la relación de reciclado de agua. Para conseguir los efectos ventajosos de reciclar el catalizador, dicha relación de reciclado de agua está preferiblemente en el intervalo de desde 10:1 a 1:10, más preferiblemente de desde 2:1 a 1:5 y lo más preferiblemente 1:3,5. También, las condiciones turbulentas tales como

una alta velocidad de la fase acuosa evitarán la aglomeración de las gotitas orgánicas dispersadas en dicho medio.

La relación molar de olefina terminal a oxidante es muy importante en el procedimiento de la presente invención. La relación molar de olefina terminal a oxidante puede ser mayor que 1:2. Preferiblemente, esta relación está en el intervalo de desde 12:1 a 1:1. Más preferiblemente, esta relación puede ser 1:1, 1,2:1, 2:1 o 4:1 o 2:1 a 12:1. Si se usa demasiado oxidante, entonces la selectividad en 1,2-epóxido se reduce debido a la producción de subproductos no deseables. Otra consecuencia de demasiado oxidante con respecto a olefina terminal es la rápida desactivación del catalizador. Si no se usa suficiente oxidante, entonces el número de recambio está por debajo del valor óptimo. Esto es, por lo tanto, significativamente diferente de las condiciones de decoloración descritas en la técnica anterior, donde se usan cantidades excesivas de oxidante, es decir, peróxido de hidrógeno. Para asegurar una eficacia óptima del peróxido, se añade preferiblemente el oxidante a la fase acuosa a una velocidad aproximadamente igual a la velocidad de reacción de la oxidación catalítica.

La reacción (oxidación catalítica) se lleva a cabo usando peróxido de hidrógeno, o un precursor del mismo, como oxidante. El peróxido de hidrógeno presenta fuertes propiedades oxidantes. Se usa típicamente en una disolución acuosa. La concentración de peróxido de hidrógeno puede variar, del 15 % (por ejemplo, calidad consumidor para decolorar el cabello) al 98 % (calidad propelente), con una preferencia por calidades industriales que varían de 30 % a 70 %. Más preferiblemente, la concentración de peróxido de hidrógeno es el 70 %. Otros oxidantes que pueden usarse incluyen peróxidos orgánicos, perácidos y combinaciones de los mismos.

La reacción (oxidación catalítica) de la olefina terminal tiene lugar en la fase acuosa. La fase acuosa puede tener un pH de 1 a 8, tal como de 2 a 5. La fase acuosa puede comprender además un sistema tampón para estabilizar el pH en un cierto intervalo. Por ejemplo, se ha encontrado ventajoso que la fase acuosa se estabilice en un intervalo de pH de 1 a 8, más preferiblemente de 2 a 5. El pH está, por lo tanto, (muy) por debajo del usado cuando se decoloran olefinas con peróxido de hidrógeno como oxidante, llevado a cabo típicamente en condiciones más alcalinas (por ejemplo, pH ajustado con  $\text{NaHCO}_3$  a 9,0). El intervalo adecuado o preferido puede conseguirse por varias combinaciones de ácido-sal conocidas, basándose la combinación preferida en ácido oxálico-sal de oxalato, ácido acético-sal de acetato, ácido malónico-sal de malonato y combinaciones de los mismos.

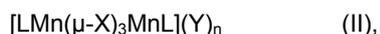
La fase acuosa puede comprender además cantidades minoritarias, si hay, de otros compuestos orgánicos. La fase acuosa también puede contener cantidades minoritarias de codisolventes, por ejemplo, para aumentar la solubilidad de la olefina. Los codisolventes adecuados incluyen, por ejemplo, acetona, metanol y otros alcoholes solubles en agua. Pueden usarse codisolventes en cantidades tales que se mantenga un sistema bifásico, preferiblemente en una cantidad < 10 por ciento en peso.

La fase acuosa puede comprender además un agente de transferencia de fase y/o un tensioactivo, en particular si se usa una olefina terminal con baja solubilidad (por ejemplo, por debajo de 0,1 g/l de agua). Los agentes de transferencia de fase conocidos que pueden usarse en el procedimiento de la invención incluyen sales de alquilamonio cuaternario. Los tensioactivos conocidos que pueden usarse en el procedimiento de la invención incluyen tensioactivos no iónicos tales como Tritón X100™ disponible en Union Carbide.

El sistema catalítico que comprende un complejo de manganeso soluble en agua se describe como sigue. El catalizador de oxidación es un complejo de manganeso soluble en agua. Ventajosamente, los complejos de manganeso incluyen especies mononucleares de la fórmula general (I):



y especies binucleares de la fórmula general (II):



en donde Mn es un manganeso; L o cada L es independientemente un ligando polidentado, preferiblemente un compuesto cíclico o acíclico que contiene 3 átomos de nitrógeno; cada X es independientemente una especie de coordinación y cada  $\mu\text{-X}$  es independientemente una especie de coordinación de puente, seleccionada del grupo que consiste en:  $\text{RO}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{I}^-$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{NCS}^-$ ,  $\text{N}_3^-$ ,  $\text{I}_3^-$ ,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NR}_3$ ,  $\text{RCOO}^-$ ,  $\text{RSO}_3^-$ ,  $\text{RSO}_4^-$ ,  $\text{OH}^-$ ,  $\text{O}^{2-}$ ,  $\text{O}_2^{2-}$ ,  $\text{HOO}^-$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{SH}^-$ ,  $\text{CN}^-$ ,  $\text{OCN}^-$  y  $\text{S}_4^{2-}$  y combinaciones de los mismos, en donde R es un radical  $\text{C}_1\text{-C}_{20}$  seleccionado del grupo que consiste en: alquilo, cicloalquilo, arilo, bencilo y combinaciones de los mismos e Y es un contraión no de coordinación seleccionado del grupo que consiste en:  $\text{RO}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{I}^-$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{RCOO}^-$ ,  $\text{PF}_6^-$ , acetato, tosilato, triflato ( $\text{CF}_3\text{SO}_3^-$ ) y una combinación de los mismos, siendo R de nuevo una vez un radical  $\text{C}_1$  a  $\text{C}_{20}$  seleccionado del grupo que consiste en: alquilo, cicloalquilo, arilo, bencilo y combinación de los mismos. El contraión Y no de coordinación puede proporcionar la neutralidad de carga del complejo y el valor de n depende de la carga del complejo catiónico y el contraión Y aniónico, por ejemplo, n puede ser 1 o 2. En una realización, un ion de  $\text{CH}_3\text{COO}^-$  o  $\text{PF}_6^-$  puede usarse como el contraión no de coordinación. Los ligandos que son adecuados para la presente invención son compuestos acíclicos que contienen al menos 7 átomos en la cadena carbonada o compuestos cíclicos que contienen al menos 9 átomos en el anillo, teniendo cada uno los átomos de nitrógeno separados por al menos dos átomos de carbono. Una clase preferida de ligandos es aquella a base de triazaciclononano ("Tactn") (sustituido). El ligando preferido es

1,4,7-trimetil-1,4,7-triazaciclononano ("TmTacn").

Se indican como preferidos complejos de manganeso dinucleares, debido a su mayor actividad y solubilidad en agua. Los complejos de manganeso dinucleares preferidos son los de la fórmula  $[Mn^{IV}_2(\mu-O)_3L_2](Y)_n$  (igual que la fórmula:  $[LMn(\mu-O)_3MnL](Y)_n$ , en donde n es 2 y L e Y tienen el significado identificado anteriormente, preferiblemente TmTacn como ligando y  $PF_6^-$  o acetato ( $CH_3CO_2^-$ , de ahora en adelante OAc) como contraión. El sistema catalítico que comprende un complejo de manganeso soluble en agua se describió anteriormente. El complejo preferido para la presente invención comprende 1,4,7-trimetil-1,4,7-triazaciclononano ("TmTacn") como el ligando o los ligandos preferidos. Este ligando está comercialmente disponible en Aldrich.

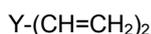
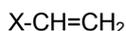
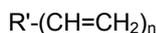
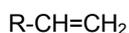
Se usa el complejo de manganeso en cantidades catalíticamente eficaces. Típicamente, se usa el catalizador en una relación molar de catalizador (Mn) al oxidante de desde 1:10 a 1:10 000 000, preferiblemente de desde 1:100 a 1:1 000 000, lo más preferiblemente de desde 1:1000 a 1:100 000. Por conveniencia, la cantidad de catalizador también puede expresarse en términos de su concentración, cuando se tiene en cuenta el volumen del medio acuoso. Por ejemplo, puede usarse en una concentración molar (basándose en el Mn) de desde 0,001 a 10 mmol/l, preferido de desde 0,01 a 7 mmol/l y lo más preferiblemente de desde 0,01 a 2 mmol/l.

Un experto en la materia puede determinar rápidamente las condiciones de reacción para la oxidación catalítica. La reacción es exotérmica y puede requerirse enfriamiento de la mezcla de reacción. La reacción se lleva a cabo preferiblemente a cualquier temperatura entre  $-5\text{ }^\circ\text{C}$  y  $40\text{ }^\circ\text{C}$ , dependiendo de parámetros físicos tales como el punto de fusión y ebullición de las olefinas terminales usadas.

Según la invención, la olefina terminal utilizada es una olefina epoxidable que puede ser funcionalizada. La olefina terminal puede ser un líquido en las condiciones del procedimiento, por ejemplo, cloruro de alilo o propileno licuado, pero también un gas, por ejemplo, propileno gaseoso.

Los ejemplos de olefinas terminales adecuadas incluyen compuestos olefinicamente insaturados terminales. En una realización, el compuesto olefinicamente insaturado terminal puede tener al menos un enlace  $-C=C-$  insaturado, tal como al menos un grupo  $-C=CH_2$  insaturado. El compuesto olefinicamente insaturado puede comprender más de un enlace  $-C=C-$  insaturado. Por otra parte, se requiere que el enlace  $-C=C-$  insaturado no sea un grupo terminal. Los compuestos olefinicamente insaturados de manera terminal pueden tener uno o más enlaces  $-C=CH_2$  terminales.

Ejemplos adecuados de compuestos olefinicamente insaturados terminales incluyen, por lo tanto, los siguientes compuestos:



en donde R es un radical de 1 o más átomos de carbono que opcionalmente comprende 1 o más heteroátomos (tales como oxígeno, nitrógeno o silicio); R' es un radical multivalente de 1 o más átomos de carbono que opcionalmente comprende 1 o más heteroátomos, en donde n se corresponde con la valencia del radical multivalente; X es un átomo de halógeno e Y es un átomo de oxígeno.

Son de particular interés compuestos olefinicamente insaturados seleccionados de los compuestos:

(a) cloruro de vinilo o cloruro de alilo;

(b) 1-alqueno, preferiblemente propeno;

(c) mono-, di- o polialil éteres de mono-, di- o polioles;

(d) mono-, di- o polivinil éteres de mono-, di- o polioles;

(e) ésteres mono-, di- o polialílicos de mono-, di- o poliácido;

(f) ésteres mono-, di- o polivinílicos de mono-, di- o poliácidos;

(g) divinil éter o dialil éter.

La olefina terminal presenta una solubilidad máxima en la fase acuosa a  $20\text{ }^\circ\text{C}$  de desde 0,01 a 100 g/l a  $20\text{ }^\circ\text{C}$ .

En una realización más preferida de la presente invención, la olefina terminal se selecciona de: bromuro de alilo, cloruro de alilo y acetato de alilo. En una realización lo más preferida de la invención se usa cloruro de alilo para la fabricación de epiclorohidrina, debido al interés comercial y a la facilidad de aislamiento de la epiclorohidrina

producida.

Según otra realización preferida de la presente invención la olefina terminal es propileno para producir óxido de propileno y la reacción se lleva a cabo a temperaturas en el intervalo de  $-5\text{ }^{\circ}\text{C}$  a  $40\text{ }^{\circ}\text{C}$ . El propileno se usa preferiblemente en exceso sobre el oxidante.

- 5 Según otra realización más de la invención, se alimenta el tampón, si hay, y catalizador de oxidación como una mezcla premezclada en la etapa a).

10 Un dispositivo para llevar a cabo el procedimiento anterior para la fabricación de 1,2-epóxido comprende un reactor para llevar a cabo la oxidación catalítica que tiene una entrada para alimentar el oxidante, el catalizador de oxidación, opcionalmente un tampón y la olefina terminal al reactor y una salida para descargar la mezcla de reacción de dicho reactor, medios de separación conectados a la salida del reactor para separar la mezcla de reacción en al menos una fase orgánica y una fase acuosa, medios de reciclado para reciclar parte de la fase acuosa separada en los medios de separación, medios de dispersión para dispersar la olefina terminal en la fase acuosa y medios de enfriamiento para controlar la temperatura del procedimiento de oxidación catalítica.

15 El dispositivo comprende un reactor para llevar a cabo el procedimiento que tiene una entrada y una salida. Por la entrada del reactor se alimentan los agentes reaccionantes al reactor, mientras se descarga por la salida del reactor la mezcla de reacción. El dispositivo comprende además medios de separación conectados a la salida del reactor para separar la mezcla de reacción en al menos una fase orgánica y la fase acuosa como se explicó anteriormente. Preferiblemente, este medio de separación comprende un separador líquido a líquido directo, tal como un tanque de sedimentación, puesto que el producto forma al menos una fase orgánica separada, fase que se separa de la fase acuosa cuando se deja sedimentar. También se pueden usar otros dispositivos tales como hidrociclones.

20 La fase acuosa se recicla en el reactor por la entrada del reactor. Este medio de reciclado puede ser de diseño simple, por ejemplo, una tubería que conecta una salida de fase acuosa del medio de separación y la entrada del reactor provista de una bomba para transportar la fase acuosa al reactor. Se observa en la presente memoria que el experto será conocedor de que el reactor según la invención está provisto de elementos tecnológicos del procedimiento habitual como, por ejemplo, bombas, válvulas y mecanismos de control.

25 El reactor comprende además medios de dispersión para dispersar la fase orgánica de olefina terminal en la fase acuosa y medios de enfriamiento para controlar la temperatura de la oxidación catalítica, debido a su naturaleza exotérmica.

30 Acerca del tipo de reactor, son adecuados varios diseños del reactor para llevar a cabo el procedimiento según la invención. El reactor puede ser un reactor de flujo pistón (RFP). Debido a la alta velocidad requerida para dispersión y los largos periodos de residencia, un RFP usado en la presente invención será un RFP muy largo. El reactor puede ser también un reactor de tipo tanque agitado continuo (RTAC). Cuando se usa un RTAC, se debería tener especial cuidado en la dispersión de la olefina terminal en la fase acuosa.

35 Según una realización preferida de la invención, también puede llevarse a cabo la oxidación catalítica en un reactor de tipo bucle. En un reactor de tipo bucle, se hace circular la mezcla de reacción. Cuando la velocidad de circulación del reactor de tipo bucle es aproximadamente 15 veces la velocidad a la que se alimentan los componentes acuosos y la olefina terminal, es decir, la velocidad de alimentación, el reactor de tipo bucle se puede describir como un RTAC debido al alto grado de retromezcla. La ventaja de usar un reactor de tipo bucle en el presente procedimiento es que permite el comportamiento de mezcla bien definido de un sistema de bombeo junto con medios de dispersión en un diseño de reactor compacto.

Según otra realización preferida más de la invención, el medio de dispersión es un mezclador estático, puesto que este mezclador proporcionará la máxima rotura de las gotitas orgánicas en la fase continua acuosa.

Según otra realización de la invención, se alimenta oxidante fresco y olefina a la fase acuosa en porciones subdivididas al reactor por múltiples partes de entrada distribuidas por el recinto del reactor.

- 45 La presente invención se explica además mediante la FIG. 1, que muestra una representación esquemática de una realización de un dispositivo para la fabricación de epíclorohidrina.

50 Se observa en la presente memoria que el experto que se enfrenta a la tarea de construir el dispositivo para llevar a cabo el procedimiento según la invención será conocedor de que todos los elementos tecnológicos del procedimiento del dispositivo se construyen y se hacen funcionar usando el conocimiento tecnológico del procedimiento general común.

55 En esta realización, el dispositivo 10 comprende un reactor 20 de tipo bucle que comprende una entrada 21 y una salida 22. Se alimentan peróxido de hidrógeno, un complejo de manganeso soluble en agua como catalizador de oxidación, una disolución tampón de oxalato y cloruro de alilo, que se disponen en tanques 15 de alimentación separados, se alimentan al reactor 20. Se transportan los agentes reaccionantes de los tanques 15 de alimentación a la entrada 21 del reactor por los conductos 11 de alimentación mediante bombas 12 de alimentación. Se puede

- 5 disponer un medio 50 de premezcla entre la entrada 21 y una o más de las bombas 12 de alimentación para premezclar algunos de los componentes, tales como el catalizador y tampón de oxalato en la FIG 1. La entrada 21 del reactor comprende ventajosamente varios puertos de entrada, un puerto para cada agente reaccionante. Se descarga la mezcla de reacción del reactor 20 por la salida 22 del reactor en un medio 30 de separación. La salida 22 del reactor y el medio 30 de separación están conectados mediante un conducto 13 de descarga. El medio 30 de separación comprende una entrada 31 de separación por la que se suministra la mezcla de reacción al medio 30 de separación. En el medio 30 de separación se permite que se separen las fases, al menos una fase orgánica y la fase acuosa. La fase orgánica que comprende epíclorohidrina se aísla del medio 30 de separación por la salida 32 de producto.
- 10 Se recicla al menos parte de la fase acuosa en el medio 30 de separación al reactor 20 por un conducto 41 de reciclado que conecta una salida 33 de reciclado del medio 30 de separación y una entrada 21 del reactor. Una bomba 42 de reciclado está incluida en el conducto 41 de reciclado para transportar la fase acuosa. La fase orgánica en el interior del reactor 20 se dispersa en la fase acuosa usando un medio 23 de dispersión. El reactor 20 comprende además una bomba 26 del reactor para transportar la mezcla de reacción y medios 24 de enfriamiento para enfriar la mezcla de reacción. Dicho medio 24 de enfriamiento puede ser, por ejemplo, un refrigerador de agua u otros tipos de medios de intercambio de calor. Sin embargo, la elección del tipo de medio 24 de enfriamiento se deja a la competencia del experto.
- 15

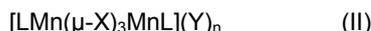
## REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento para la fabricación de un epóxido, que comprende:

5 a) añadir un oxidante, un complejo de manganeso soluble en agua y una olefina terminal para formar una mezcla de reacción multifásica de una fase acuosa y una fase orgánica con una relación volumétrica de fase acuosa a fase orgánica en el intervalo de desde 10:1 a 1:5, en donde la olefina terminal presenta una solubilidad máxima en la fase acuosa a 20 °C de 0,01 a 100 g/l y el complejo de manganeso soluble en agua es una especie mononuclear de la fórmula general (I):



10 o una especie binuclear de la fórmula general (II):



15 en donde Mn es un manganeso; L o cada L es independientemente un ligando polidentado, cada X es independientemente una especie de coordinación y cada  $\mu\text{-X}$  es independientemente una especie de coordinación de puente y en donde Y es un contraión de no coordinación;

20 b) dispersar la fase orgánica en la fase acuosa continua en la forma de gotitas menores que 3 mm y hacer reaccionar la olefina terminal con el oxidante en la mezcla de reacción multifásica que tiene al menos una fase orgánica en presencia del complejo de manganeso soluble en agua;

c) separar la mezcla de reacción en la fase orgánica y una fase acuosa y

d) reutilizar al menos parte de la fase acuosa y el catalizador contenido en la misma mediante reciclado de al menos una porción de la fase acuosa obtenida en la etapa c) en la etapa a).

25 2. El procedimiento de la reivindicación 1, en donde la relación de reciclado de agua de los componentes acuosos a fase acuosa reutilizada está en el intervalo de 10:1 a 1:10, preferiblemente en el intervalo de desde 2:1 a 1:5.

3. El procedimiento de la reivindicación 1 o 2, en donde la relación molar de olefina terminal a oxidante está en el intervalo de 12:1 a 1:1.

30 4. El procedimiento según una de las reivindicaciones precedentes 1 a 3, en donde la fase acuosa comprende además un sistema tampón para estabilizar el pH en el intervalo de 1 a 8 y se añade el tampón a la mezcla de reacción como un componente acuoso.

5. El procedimiento según una de las reivindicaciones precedentes 1 a 4, en donde la reacción se lleva a cabo a temperaturas en el intervalo de -5 °C a 40 °C.

6. El procedimiento según una de las reivindicaciones precedentes 1 a 5, en donde la olefina terminal se selecciona de: bromuro de alilo, cloruro de alilo y acetato de alilo.

35 7. El procedimiento según una de las reivindicaciones precedentes 1 a 5, en donde la olefina terminal es propileno.

8. El procedimiento según una de las reivindicaciones precedentes 1 a 7, en donde la relación molar de complejo de manganeso soluble en agua a oxidante está en el intervalo de 1:10 a 1:10 000 000.

9. El procedimiento según una de las reivindicaciones precedentes 1 a 8, en donde el oxidante es peróxido de hidrógeno o un precursor del mismo.

40 10. El procedimiento según una de las reivindicaciones precedentes 1 a 9, en donde el procedimiento se lleva a cabo en un reactor de tipo tanque agitado continuo o en un reactor de bucle.

Fig. 1

