

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 735 400**

51 Int. Cl.:

C07D 317/38 (2006.01)

C07B 61/00 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **29.05.2015 PCT/JP2015/065492**

87 Fecha y número de publicación internacional: **03.12.2015 WO15182732**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **29.05.2015 E 15800528 (0)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **03.07.2019 EP 3150588**

54 Título: **Aparato y método para producir carbonato cíclico**

30 Prioridad:

30.05.2014 JP 2014112219

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

18.12.2019

73 Titular/es:

**MARUZEN PETROCHEMICAL CO., LTD. (100.0%)
1-1, Irifune 2-chome, Chuo-ku
Tokyo 104-8502, JP**

72 Inventor/es:

**OSAKI, KOUZO;
NANIKI, TAKASHI;
HAYASHI, YASUNORI y
HARUNA, TAKESHI**

74 Agente/Representante:

UNGRÍA LÓPEZ, Javier

ES 2 735 400 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

Aparato y método para producir carbonato cíclico

5 **Campo técnico**

La presente invención se refiere a un aparato y a un método para producir un carbonato cíclico. Más particularmente, se refiere a un aparato y a un método para producir un carbonato cíclico haciendo reaccionar un epóxido con dióxido de carbono en presencia de un catalizador heterogéneo.

10

Antecedentes en la técnica

Los carbonatos cíclicos son compuestos importantes utilizados en una amplia gama de aplicaciones, ya que se utilizan como disolventes orgánicos, agentes de procesamiento de fibras sintéticas, materias primas farmacéuticas y aditivos cosméticos, además de utilizarse recientemente como disolventes electrolíticos para baterías de litio y también en la síntesis de alquilen glicoles o carbonatos de dialquilo.

15

Este carbonato cíclico se ha sintetizado convencionalmente haciendo reaccionar un epóxido con dióxido de carbono en presencia de un catalizador homogéneo en condiciones de una presión adecuada. Como tal catalizador homogéneo, se conoce desde hace tiempo una sal de onio como, por ejemplo, un haluro o una sal de amonio cuaternario de un metal alcalino, por ejemplo, (bibliografía de patentes 1), y dicho catalizador homogéneo también se emplea a nivel industrial.

20

Sin embargo, generalmente, se requiere la operación de separación de la mezcla de reacción del catalizador, por ejemplo, por destilación, en el caso de utilizar un catalizador homogéneo y, por tanto, no solo es complicado el proceso de producción sino que también existen problemas como la descomposición del catalizador durante el proceso de separación o la generación de subproductos.

25

Por consiguiente, se ha propuesto un catalizador heterogéneo en el que se inmoviliza un grupo fosfonio cuaternario que tiene un ion haluro como contraión sobre un soporte, como gel de sílice, con el fin de simplificar el proceso de separación del catalizador, y se ha divulgado un método para producir continuamente carbonato de propileno mezclando el óxido de propileno con dióxido de carbono supercrítico y suministrando la mezcla al tubo de reacción cargado con el catalizador inmovilizado como un método para producir carbonato de propileno utilizando el catalizador inmovilizado (Literatura de patentes 2).

30

35

Sin embargo, el catalizador inmovilizado presenta una actividad más baja en comparación con un catalizador homogéneo y, por tanto, se requiere su uso en una gran cantidad y constituye un problema aumentar el tamaño del reactor, particularmente, en el caso de producir un carbonato cíclico a escala industrial.

40

Por otra parte, la cantidad de la solución de reacción que pasa con respecto a la cantidad de catalizador es menor y, por tanto, existe el problema de que (1) se produce el flujo irregular de la solución de reacción en el reactor y (2) el contacto del catalizador con la solución de reacción, es decir, la humectación del catalizador resulta insuficiente y, por tanto, el catalizador no puede funcionar suficientemente. Asimismo, por ejemplo, el flujo irregular en el sistema provoca un factor de puntos calientes (sobrecalentamiento local del catalizador) y el deterioro del catalizador se acelera significativamente.

45

Por otra parte, como resultado del flujo irregular que se genera en el sistema o la insuficiente humectación del catalizador, se produce una disminución en la eficiencia catalítica y la vida útil del catalizador de la misma manera que en el caso anterior, en el caso de que se gasifique dióxido de carbono en el reactor.

50

Por otra parte, la solución de reacción no forma necesariamente una fase homogénea cuando el dióxido de carbono no se mezcla de manera suficiente, incluso en condiciones en las que el dióxido de carbono no está gasificado. Por ejemplo, en la literatura de patentes 2, se utilizan mezclados óxido de propileno y dióxido de carbono supercrítico, y se causa la separación de fases entre el carbonato de propileno del producto y el dióxido de carbono supercrítico tal como se describe en la literatura no de patentes 1. Por lo tanto, es necesario que el dióxido de carbono se mezcle completamente con la solución de reacción para disolver suficientemente el dióxido de carbono en la solución de reacción y suprimir la separación de fases en el reactor y, por tanto, se requiere una instalación auxiliar a gran escala, como pueda ser un tanque de agitación.

55

Asimismo, cuando aumenta la temperatura, el componente de catalizador es desorbido desde el catalizador inmovilizado y disminuye significativamente la actividad del catalizador inmovilizado, mientras que la reacción de un epóxido con dióxido de carbono es una reacción exotérmica para liberar una cantidad relativamente grande de calor de reacción (por ejemplo, el calor de reacción liberado por la reacción de óxido de etileno con dióxido de carbono es de aproximadamente 100 kJ/mol) y, por tanto, la eliminación del calor de reacción en el momento de la síntesis de un carbonato cíclico constituye un problema en el caso de utilizar un catalizador inmovilizado.

60

65

Como método para eliminar el calor de reacción, un método general es utilizar un reactor de tipo intercambiador de calor, como por ejemplo un reactor encamisado o un reactor multitubular.

5 Sin embargo, la eliminación de calor mediante un reactor encamisado para hacer circular el medio de calor hacia la camisa presenta el problema fundamental de que disminuye el área de eliminación de calor en comparación con la cantidad de catalizador cuando aumenta el tamaño del reactor y solo se puede eliminar el calor del catalizador inmovilizado en la proximidad de la superficie de eliminación de calor.

10 Por otra parte, en el caso de un reactor multitubular, que tiene una pluralidad de tubos de reacción provistos en la carcasa del reactor, se elimina el calor de reacción generado haciendo circular el medio de calor en la carcasa del tubo de reacción mientras se lleva a cabo la reacción cargando el catalizador en el tubo de reacción y, por tanto, es posible aumentar el área de eliminación de calor. Sin embargo, en el caso de utilizar un catalizador inmovilizado sobre un soporte, como gel de sílice, fluye significativamente poco líquido en comparación con esta cantidad de flujos de catalizador, de modo que es necesario que el tubo de reacción sea significativamente delgado y largo para conseguir una eficiencia de eliminación suficiente, y se complica el aparato y aumenta de tamaño. Por otra parte, el mantenimiento también es problemático. Asimismo, se suma el problema también de la dificultad de cargar uniformemente una pluralidad de tubos de reacción con un catalizador.

20 Lista de citas

Literatura de patentes

Literatura de patentes 1: JP 63-17072 B

Literatura de patentes 2: WO 2005/084801 A

25 La patente internacional WO 2013/130147 A1 divulga un método para formar un producto de carbonato cíclico que se lleva a cabo haciendo reaccionar un óxido de alqueno, como por ejemplo óxido de etileno, con dióxido de carbono en presencia de un catalizador marco de metal orgánico (MOF) con menos de 0,5 mol % de cualquiera entre sales de potasio o de amonio cuaternario presentes sobre la base de las moles de óxido de alqueno introducidas en la zona de reacción en condiciones de reacción para formar un producto de carbonato cíclico.

Literatura no patentada

35 Literatura no patentada 1: Informe sobre los logros de la investigación y el desarrollo sobre la tecnología de reducción de carga ambiental utilizando un fluido supercrítico, marzo de 2002, Instituto Nacional de Ciencia y Tecnología Industrial Avanzada

Sumario de la invención

40 Problema técnico

Tal como se ha descrito, se requiere un aparato a una escala excesivamente grande que incluya un reactor de gran tamaño, una instalación de enfriamiento y una instalación de mezcla en comparación con la cantidad de producción cuando se produce un carbonato cíclico a escala industrial utilizando un catalizador inmovilizado. Por otra parte, también existe el problema de que la ampliación no es fácil en el caso de un proceso que requiera un reactor de gran tamaño o instalaciones auxiliares.

50 Por consiguiente, un objeto de la presente invención es proporcionar un aparato y un método para producir continuamente un carbonato cíclico que se pueda ampliar fácilmente sin requerir un reactor de gran tamaño o instalaciones auxiliares excesivas, incluso en el caso de producir un carbonato cíclico utilizando un catalizador inmovilizado como catalizador, a escala industrial, con capacidad de producir un carbonato cíclico sin deteriorar la eficiencia catalítica esperada y la vida útil del catalizador, económico y que presenta una excelente productividad industrial.

55 Solución del problema

Con el fin de conseguir el objetivo mencionado, [1] la presente invención proporciona un aparato para producir un carbonato cíclico que incluye:

60 un reactor adiabático para su carga con un catalizador sólido que tiene un compuesto orgánico iónico inmovilizado sobre un soporte como catalizador heterogéneo para hacer reaccionar un epóxido con dióxido de carbono, donde el compuesto orgánico iónico es una sal orgánica de amonio cuaternario que tiene un anión haluro como contraión o una sal orgánica de fosfonio cuaternario que tiene un anión haluro como contraión; una ruta de circulación para retornar al menos una porción de una mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de una salida del reactor hacia el reactor;

un medio de suministro de dióxido de carbono para suministrar continuamente dióxido de carbono en forma líquida o en un estado supercrítico a la ruta de circulación; y
 un medio de suministro de epóxido para suministrar continuamente un epóxido en forma líquida o en solución a la ruta de circulación, en la que
 5 la ruta de circulación incluye
 un medio de intercambio de calor para eliminar el calor de un fluido en circulación (mezcla de fluido en forma líquida que fluye hacia una ruta de circulación) por intercambio de calor indirecto,
 un medio de mezcla para mezclar el dióxido de carbono suministrado por el medio de suministro de dióxido de carbono con el fluido en circulación en una ruta,
 10 un medio de separación de gas-líquido para llevar a cabo un tratamiento de separación de gas-líquido reduciendo la presión de un fluido en circulación que contiene dióxido de carbono obtenido a través del medio de mezcla,
 un medio de presurización para presurizar un fluido en circulación tras el tratamiento de separación gas-líquido a una presión predeterminada, y
 15 un medio de mezcla para mezclar el epóxido suministrado por el medio de suministro de epóxido con el fluido en circulación en una ruta.

Por otra parte, para conseguir el objetivo mencionado, [2], la presente invención proporciona el aparato para producir un carbonato cíclico de acuerdo con [1], donde
 20 el reactor está configurado como un reactor de múltiples etapas de lecho fijo con dos o más reactores adiabáticos conectados en serie, y la ruta de circulación se proporciona de tal modo que se retorna al menos una porción de una mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de una salida de un reactor de última etapa a un reactor de primera etapa.

25 En la presente invención, la cantidad de catalizador con respecto a la cantidad de producción de un carbonato cíclico es aproximadamente constante independientemente del número de reactores y, por tanto, es fácil aumentar la capacidad de producción aumentando el número de reactores en el aparato de producción de acuerdo con [2].

Asimismo, para conseguir el objeto anterior, [3], la presente invención proporciona un método para producir un carbonato cíclico suministrando de forma continua una mezcla de fluidos de materia prima que contiene un epóxido y dióxido de carbono a un reactor adiabático cargado con un catalizador sólido que tiene un compuesto orgánico iónico inmovilizado sobre un soporte como catalizador heterogéneo y donde el compuesto orgánico iónico es una sal orgánica de amonio cuaternario que tiene un anión haluro como contraión o una sal orgánica de fosfonio cuaternario que tiene un anión haluro como contraión y conduciendo al menos una porción de una mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de una salida del reactor a una ruta de circulación y retorna al reactor, incluyendo el método:
 30
 35

una etapa de intercambio de calor para eliminar el calor de un fluido en circulación (mezcla de fluido en una forma líquida que fluye hacia una ruta de circulación) por intercambio de calor indirecto;
 40 una etapa de suministro de dióxido de carbono que suministra continuamente dióxido de carbono en forma líquida o en estado supercrítico a la ruta de circulación;
 una etapa de mezcla de mezclar dióxido de carbono suministrado en la etapa de suministro de dióxido de carbono con el fluido en circulación en una ruta;
 una etapa de separación gas-líquido para reducir la presión de un fluido en circulación que contiene dióxido de carbono obtenido en la etapa de mezcla y llevar a cabo el tratamiento de separación gas-líquido del exceso de dióxido de carbono gasificado;
 45 una etapa de presurización de presurizar un fluido en circulación después de la separación gas-líquido a una presión predeterminada;
 una etapa de suministro de epóxido suministrando de forma continua un epóxido en forma líquida o en solución a la ruta de circulación; y
 50 una etapa de mezcla de mezclar el epóxido suministrado en la etapa de suministro de epóxido con el fluido en circulación en una ruta.

Por otra parte, para conseguir el objeto anterior, [4] la presente invención proporciona el método para producir un carbonato cíclico de acuerdo con [3], donde
 55 el reactor está configurado como un reactor de múltiples etapas de lecho fijo con dos o más reactores adiabáticos conectados en serie, y
 la ruta de circulación es para retornar al menos una porción de una mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de una salida de un reactor de última etapa a un reactor de primera etapa.

60 En la presente invención, la cantidad de catalizador con respecto a la cantidad de producción de un carbonato cíclico es aproximadamente constante independientemente del número de reactores, y por tanto es fácil aumentar la capacidad de producción aumentando el número de reactores en el método de producción de acuerdo con [4].

Efectos ventajosos de la invención

65

De acuerdo con la presente invención, es posible proporcionar un aparato y un método para producir de manera continua un carbonato cíclico con capacidad para ampliarse fácilmente aumentando el número de reactores sin requerir un reactor de gran tamaño o instalaciones auxiliares excesivas, con capacidad para producir un carbonato cíclico sin deteriorar la eficiencia catalítica esperada y la vida útil del catalizador, suprimiendo el flujo irregular o la separación de fases de la solución de reacción y eliminando eficientemente el calor de reacción, que son económicos y que presentan una excelente productividad industrial.

Breve descripción de los dibujos

- Fig. 1 es un diagrama que ilustra esquemáticamente un ejemplo de una primera realización del aparato para producir un carbonato cíclico de la presente invención.
 Fig. 2 es un diagrama que ilustra esquemáticamente un ejemplo de una segunda realización del aparato para producir un carbonato cíclico de la presente invención.
 Fig. 3 Es un diagrama que ilustra los resultados de la medición termogravimétrica del catalizador.
 Fig. 4 Es un diagrama que ilustra el efecto de la presión de reacción para producir carbonato de etileno.

Descripción de las realizaciones

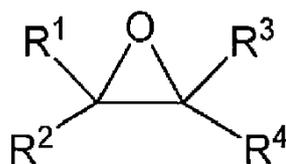
En adelante, la presente invención se describirá haciendo referencia a los dibujos adjuntos, si es necesario. Por otro lado, los mismos elementos en la descripción de los dibujos se designan con los mismos números de referencia, y se omite la descripción duplicada de los mismos.

En primer lugar, se describirán el epóxido materia prima y el catalizador heterogéneo utilizados en la presente invención, así como el carbonato cíclico obtenido en la presente invención.

(Epóxido)

El epóxido utilizado en la presente invención no está particularmente limitado siempre y cuando sea un compuesto que contenga al menos un anillo epoxi (anillo de 3 miembros compuesto de dos átomos de carbono y un átomo de oxígeno) en la fórmula estructural, y entre sus ejemplos pueden incluirse óxido de etileno, óxido de propileno, óxido de butileno, óxido de isobutileno, óxido de viniletileno, óxido de trifluorometiletileno, óxido de ciclohexeno, óxido de estireno, monóxido de butadieno, dióxido de butadieno, óxido de 2-metil-3-fenil-buteno, óxido de pineno y óxido de tetracianoetileno.

Entre dichos epóxidos, son preferentes los representados por la siguiente fórmula (1), y son más preferentes el óxido de etileno y el óxido de propileno.



[En la fórmula (1), R^1 y R^2 representan cada uno independientemente un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo que tiene de 1 a 6 átomos de carbono, un grupo haloalquilo que tiene de 1 a 6 átomos de carbono, un grupo alqueno que tiene de 2 a 6 átomos de carbono, un grupo haloalqueno que tiene de 2 a 6 átomos de carbono, un grupo arilo que tiene de 6 a 12 átomos de carbono, o un grupo ciano, R^3 y R^4 representan cada uno independientemente un átomo de hidrógeno, un grupo ciano o un grupo arilo que tiene de 6 a 12 átomos de carbono. Sin embargo, uno cualquiera de R^3 o R^4 puede formar un grupo cicloalquilo junto con uno cualquiera de R^1 o R^2].

El número de átomos de carbono en el grupo alquilo y haloalquilo representado por R^1 y R^2 es preferentemente de 1 a 4. Entre los ejemplos del grupo alquilo se pueden incluir un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo propilo y un grupo butilo, preferentemente un grupo metilo y un grupo etilo y, más preferentemente, un grupo metilo.

Por otra parte, el número de átomos de carbono en el grupo alqueno y haloalqueno representado por R^1 y R^2 es preferentemente de 2 a 4 y entre los ejemplos específicos del mismo se puede incluir un grupo vinilo.

Por otra parte, los ejemplos del átomo de halógeno en el grupo haloalquilo y el grupo haloalqueno pueden incluir cloro, bromo y yodo.

Por otra parte, como grupo arilo representado por R^1 , R^2 , R^3 y R^4 es preferente un grupo fenilo.

Por otra parte, entre R^1 y R^2 , son preferentes un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo que tiene de 1 a 6 átomos de carbono y un grupo haloalquilo que tiene de 1 a 6 átomos de carbono.

Por otra parte, como R³ y R⁴ es preferente un átomo de hidrógeno.

(Catalizador heterogéneo)

5 Como el catalizador heterogéneo utilizado en la presente invención, es preferente un catalizador inmovilizado que presenta actividad en la síntesis de un carbonato cíclico a partir de un epóxido y dióxido de carbono, que es un catalizador sólido en el que se inmoviliza un compuesto orgánico iónico sobre un soporte.

10 El compuesto orgánico iónico es una sal onio de cuaternaria seleccionada entre una sal de amonio orgánica cuaternaria que tiene un anión haluro como orgánica contraión y una sal de fosfonio orgánica cuaternaria que tiene un anión haluro como contraión. Entre los ejemplos de anión haluro pueden incluirse un anión flúor, un anión cloro, un anón bromo y un anión yodo.

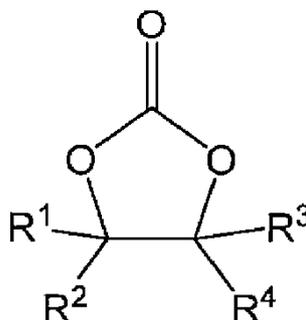
15 Entre los ejemplos específicos adecuados de la sal orgánica de onio cuaternaria se pueden incluir una sal de tetraalquilamonio, como cloruro de tetraalquilamonio o bromuro de tetraalquilamonio; y una sal de tetraalquilfosfonio, como cloruro de tetraalquilfosfonio o bromuro de tetraalquilfosfonio, siendo preferente entre ellas una sal de tetraalquilfosfonio

20 Por otra parte, el número de átomos de carbono en el grupo alquilo en la sal de tetraalquilamonio y la sal de tetraalquilfosfonio es preferentemente de 1 a 8, más preferentemente de 1 a 6, e incluso más preferentemente de 2 a 4. Entre los ejemplos del mismo pueden incluirse un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo propilo, un grupo isopropilo, un grupo butilo, un grupo isobutilo, un grupo pentilo, un grupo hexilo, un grupo heptilo, un grupo octilo y un grupo ciclohexilo.

25 Por otra parte, entre los ejemplos del soporte se pueden incluir un soporte de óxido inorgánico y un soporte de polímero orgánico. Además, su forma es preferentemente una forma de partícula siendo preferente una forma porosa. Entre los ejemplos específicos adecuados del soporte de óxido inorgánico se pueden incluir sílice (sílice gelificada), sílice mesoporosa, cerámica, zeolita y vidrio poroso, siendo preferentes entre ellos sílice y sílice mesoporosa. Además, entre los ejemplos del soporte de polímero orgánico se pueden incluir poliestireno, un copolímero de poliestireno, un poli(met)acrilato, una poli(met)acrilamida, una poliimida, polibenzimidazol, polibenzoxazol, polibenzotiazol, polietilen glicol, polipropilen glicol o un copolímero que contiene estos polímeros como componente principal, y una mezcla de polímeros.

(Carbonato cíclico)

35 Por otra parte, el carbonato cíclico obtenido en la presente invención es uno que tiene una estructura en la que el anillo epoxi del epóxido se convierte en un anillo de carbonato (anillo de 5 miembros que tiene enlace O-CO-O), y entre sus ejemplos se pueden incluir: carbonato de etileno, carbonato de propileno, carbonato de butileno, carbonato de isobutileno, carbonato de trifluorometil etileno, carbonato de vinil etileno, carbonato de ciclohexeno, carbonato de estireno, monocarbonato de butadieno, dicarbonato de butadieno, carbonato de clorometilo, carbonato de pineno y carbonato de tetracianoetileno. Los carbonatos cíclicos adecuados son aquellos representados por la siguiente fórmula (2).



45 [En la fórmula (2), R¹ a R⁴ tienen el mismo significado descrito anteriormente.]

[(1) Aparato para producir carbonato cíclico]

50 <Primera realización>

Se describirá el aparato para producir un carbonato cíclico relacionado con la primera realización de la presente invención (primer aparato de producción).

La Fig. 1 es un diagrama que ilustra esquemáticamente un ejemplo del aparato para producir un carbonato cíclico en relación con la primera realización de la presente invención.

5 Tal como se ilustra en Fig. 1, el aparato de producción de la presente realización incluye un reactor adiabático 1 para ser cargado con un catalizador heterogéneo para hacer reaccionar un epóxido con dióxido de carbono, una ruta de
circulación 2 para retornar al menos una porción de la mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de la salida
del reactor 1a al reactor 1, y una ruta de descarga 3 para descargar el resto de la mezcla fluida en forma líquida y
enviarla a la siguiente etapa si es necesario. La mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de la salida del
10 reactor 1a contiene principalmente el carbonato cíclico producido en el reactor 1 y el dióxido de carbono sin
reaccionar, y también puede contener el epóxido sin reaccionar dependiendo de las condiciones de reacción.

15 El reactor 1 puede ser un reactor adiabático que está configurado para poder cargarse con el catalizador heterogéneo para hacer reaccionar un epóxido con dióxido de carbono, siendo preferente un reactor tubular. Por otra parte, el material que constituye el reactor 1 no está particularmente limitado y es preferentemente SUS desde el punto de vista de una excelente resistencia a la corrosión. Además, es posible reducir en gran medida el coste de la instalación utilizando un reactor adiabático económico como el reactor 1.

20 Por otra parte, por ejemplo, puede cargarse perlas de vidrio antes o después del catalizador cuando se carga el catalizador heterogéneo en el reactor 1.

25 Por otra parte, el reactor 1 está provisto de una entrada de reactor 1b. La entrada del reactor 1b está configurada de tal modo que el fluido en circulación fluye desde la ruta de circulación 2 al reactor 1, el fluido en circulación formado a medida que se suministran y se mezclan en la ruta de circulación 2 el dióxido de carbono y un epóxido se suministra al reactor 1 a través de la entrada del reactor 1b como mezcla fluida de materia prima.

30 Por otra parte, el aparato de producción de la presente realización incluye un medio de suministro de dióxido de carbono 6 para suministrar continuamente dióxido de carbono en forma líquida o un estado supercrítico a la ruta de circulación 2 y un medio de suministro de epóxido 8 para suministrar continuamente un epóxido en forma líquida o en solución a la ruta de circulación 2.

35 A través del medio de suministro de dióxido de carbono 6, se suministra continuamente el dióxido de carbono de una materia prima de reacción al fluido en circulación en forma líquida o en un estado supercrítico, y a través del medio de suministro de epóxido 8, se suministra continuamente el epóxido de una materia prima de reacción al fluido en circulación estando en estado líquido o en solución. Por otra parte, las cantidades de suministro de dióxido de carbono y el epóxido se controlan a través de estas configuraciones.

40 Entre los ejemplos de medios de suministro de dióxido de carbono 6 y medios de suministro de epóxido 8 se puede incluir una bomba. Al emplear una bomba como dicho medio, es posible controlar fácilmente la cantidad de suministro de dióxido de carbono o el epóxido. Además, es posible también reducir en gran medida el coste de las instalaciones.

45 Por otro lado, en el medio de suministro de epóxido 8, es preferente utilizar el carbonato cíclico para su síntesis a partir del epóxido como disolvente en el caso de suministrar el epóxido en forma de solución disuelto en un disolvente. Específicamente, el disolvente es preferentemente carbonato de etileno en el caso de suministrar óxido de etileno en forma de solución disuelto en un disolvente.

50 Por otra parte, el aparato de producción de la presente realización puede incluir un medio de suministro de aditivo 7 para suministrar un aditivo distinto de las materias primas de reacción a la ruta de circulación 2. A través del medio de suministro de aditivo 7, se suministra el aditivo a la ruta de circulación 2 al tiempo que se controla la cantidad de suministro.

55 El aditivo puede suministrarse de forma continua o discontinua. Por otra parte, el aditivo puede suministrarse en forma neta o en solución disuelto en un disolvente. El disolvente es preferentemente un carbonato cíclico en el caso de suministrar el aditivo en forma de solución disuelto en un disolvente.

Entre los ejemplos de medios de suministro de aditivos 7 se puede incluir una bomba.

60 Por otra parte, entre los ejemplos de aditivo se puede incluir un alcohol halogenado, como bromoetanol o bromopropanol. Un alcohol halogenado suprime la desorción del componente catalítico y actúa como un inhibidor del deterioro del catalizador.

65 Por otra parte, el aparato de producción de la presente realización incluye la ruta de circulación 2. En la ruta de circulación 2, se proporcionan un medio de intercambio de calor 4, un primer medio de mezcla 9, un medio de separación de gas-líquido 11, un medio de presurización 12 y un segundo medio de mezcla 10 desde la salida del reactor 1a hacia la dirección de la entrada del reactor 1b en el orden de medio de intercambio de calor 4, primer

medio de mezcla 9, medio de separación de gas-líquido 11, medio de presurización 12 y segundo medio de mezcla 10.

5 Se hace circular a través de la ruta de circulación 2, una porción de la mezcla de fluido en forma líquida que fluye a través de la salida del reactor 1a circula hacia el reactor 1 y, como resultado, aumenta el flujo de líquido en el reactor 1, es probable que se suprima el aumento de la temperatura en el reactor 1 a un intervalo apropiado, y se puede eliminar el flujo irregular de la solución de reacción o la mala humectación del catalizador en el reactor 1 y, por tanto, es posible suprimir una disminución en la eficiencia catalítica o la vida útil del catalizador. Asimismo, es posible ampliar el tiempo de retención y, por tanto, es posible disminuir la cantidad de catalizador y el tamaño del reactor 1 para que sea compacto.

15 La ruta de circulación 2 está configurada como una tubería apropiada arbitraria. El material que constituye la tubería no está particularmente limitado, y es preferentemente SUS desde el punto de vista de una excelente resistencia a la corrosión.

Además, la ruta de circulación 2 incluye el medio de intercambio de calor 4 para eliminar el calor del fluido en circulación por intercambio de calor indirecto.

20 Al proporcionar el medio de intercambio de calor 4 en la ruta de circulación 2, se puede eliminar fácilmente el calor de reacción y, por tanto, es posible controlar fácilmente la temperatura en el reactor 1 en un intervalo deseado (sustancialmente la temperatura de reacción). No es posible eliminar suficientemente el calor de reacción en el caso de no proporcionar el medio de intercambio de calor 4 y, por tanto, aumenta la temperatura en el reactor 1 y se acorta enormemente la vida útil del catalizador en algunos casos.

25 Como medio de intercambio de calor 4, se puede utilizar un intercambiador de calor arbitrario siempre y cuando pueda eliminar el calor de reacción reduciendo la temperatura del fluido en circulación que pasa a través del medio. Entre los ejemplos específicos de los mismos se pueden incluir un intercambiador de calor cilíndrico multitubular, un intercambiador de calor de doble tubo, un intercambiador de calor de placas, un enfriador de aire, un enfriador por irrigación, un intercambiador de calor de bobina y un intercambiador de calor de desplazamiento, y el caudal de circulación es un caudal relativamente alto pequeño y la operación se realiza a alta presión y, por tanto un intercambiador de calor de doble tubo, un enfriador de aire y un enfriador de irrigación son particularmente apropiados y preferentes. Además, el coeficiente de transferencia de calor global de estos intercambiadores de calor es preferentemente de aproximadamente $200 \text{ kcal}/(\text{m}^2\text{hrK})$ o más.

35 Por otra parte, preferentemente solo está configurada la ruta de circulación 2 entre la salida del reactor 1a y el medio de intercambio de calor 4. A través de dicha configuración, el fluido en circulación que fluye a través de la salida del reactor 1a debe someterse rápidamente a eliminación de calor.

40 Por otra parte, en la ruta de circulación 2, la porción de flujo de entrada de dióxido de carbono a la que fluye el dióxido de carbono suministrado por el medio de suministro de dióxido de carbono 6 no está particularmente limitada y puede estar en cualquier lugar de la ruta de circulación, y el dióxido de carbono presenta una baja conductividad térmica y su solubilidad aumenta a medida que disminuye la temperatura y, por tanto, es preferente el suministro al fluido en circulación después de la eliminación del calor y la mezcla rápida con dióxido de carbono. Por consiguiente, la porción de entrada de dióxido de carbono se proporciona preferentemente entre el medio de intercambio de calor 4 y el medio de mezcla 9.

50 Por otra parte, la ruta de circulación 2 incluye el medio de mezcla 9 (primer medio de mezcla) para mezclar el dióxido de carbono suministrado a través del medio de suministro de dióxido de carbono 6 con el fluido en circulación que fluye hacia la ruta de circulación 2 y se somete a la eliminación de calor a través del medio de intercambio de calor 4 en la ruta.

A través del medio de mezcla 9, se mezcla homogéneamente el dióxido de carbono suministrado con otros componentes.

55 Como medio de mezcla 9, es preferente utilizar un mezclador en línea, como por ejemplo una mezcladora estática desde el punto de vista de que el aparato es sencillo. Al proporcionar una mezcladora en línea a la ruta de circulación 2, es posible mezclar eficientemente el dióxido de carbono con otros componentes en la ruta de flujo para obtener un fluido de circulación uniforme.

60 Por otra parte, la ruta de circulación 2 es preferentemente una en la que se proporciona un medio de control de presión 13 para controlar el grado de apertura de la ruta de circulación 2 entre el medio de mezcla 9 y el medio de separación de gas-líquido 11.

65 Entre los ejemplos de medio de control de presión 13 se puede incluir una válvula de contrapresión.

Por otra parte, la ruta de circulación 2 incluye el medio de separación de gas-líquido 11 para llevar a cabo el tratamiento de separación de gas-líquido reduciendo la presión del fluido en circulación que contiene dióxido de carbono obtenido a través del medio de mezcla 9.

5 A través del medio de separación de gas-líquido 11, se separa el exceso de dióxido de carbono gasificado y, como resultado, se elimina el flujo irregular del fluido en circulación debido a la gasificación y se puede eliminar la mala humectación del catalizador heterogéneo en el reactor 1 y, por tanto, es posible utilizar eficazmente el catalizador.

10 Entre los ejemplos de medio de separación de gas-líquido 11 se puede incluir un tanque de separación de gas-líquido capaz de almacenar un líquido al mismo tiempo que separa el flujo de dos fases gas-líquido suministrado en un gas y un líquido. A través del uso del tanque de separación de gas-líquido, es posible establecer la circulación entre el reactor 1 y la ruta de circulación 2 guiando el fluido en circulación hacia el tanque de separación de gas-líquido y haciéndolo circular al arrancar el funcionamiento del aparato. Por otra parte, también es posible almacenar el fluido en circulación en su interior una vez completada la operación también.

15 Por otra parte, el medio de separación de gas-líquido 11 está provisto de una ruta de descarga de gas para descargar el gas separado por encima de la porción conectada a la ruta de circulación 2. Además, la ruta de descarga de gas está provista de un medio de control de presión 14 para controlar la presión interna del medio de separación gas-líquido 11.

20 Entre los ejemplos de medio de control de presión 14 se puede incluir una válvula de contrapresión.

Ajustando el medio de control de presión 13 y 14, es posible aplicar una diferencia de presión predeterminada entre el medio de separación de gas-líquido 11 y el medio de mezcla 9 y separar el exceso de dióxido de carbono a través de la gasificación.

25 Por otra parte, la ruta de circulación 2 está provista del medio de presurización 12 para presurizar el fluido en circulación sometido al tratamiento de separación de gas-líquido a través del medio de separación de gas-líquido 11 a una presión predeterminada.

30 A través del medio de presurización 12, puede controlarse apropiadamente el caudal de circulación y se aumenta la presión hasta una presión predeterminada (sustancialmente presión de reacción). Según esto, el fluido en circulación está en un estado de no incluir sustancialmente una fase gaseosa y es posible suprimir la gasificación del dióxido de carbono en el reactor 1.

35 Entre los ejemplos de medio de presurización 12 se puede incluir una bomba de circulación.

40 Por otra parte, en la ruta de circulación 2, una porción del flujo de entrada de epóxido en la que fluye el epóxido suministrado por el medio de suministro de epóxido 8 fluye preferentemente corriente abajo del medio de separación de gas-líquido 11 para evitar que el dióxido de carbono gasificado por el tratamiento de separación de gas-líquido sea arrastrado por el epóxido. Se proporciona más preferentemente en una posición cercana a la entrada del reactor para suprimir una reacción secundaria y, por tanto, se proporciona aún más preferentemente entre el medio de presurización 12 y el medio de mezcla 10.

45 Por otra parte, la ruta de circulación 2 es preferentemente una ruta provista de un medio de intercambio de calor 5.

50 La temperatura en la entrada del reactor 1b se puede ajustar según la relación en circulación de carbonato/epóxido cíclico en la entrada del reactor 1b, y la mezcla de fluido de materia prima que pasa a través de la entrada del reactor 1b se precalienta mediante el medio de intercambio de calor 5 y la temperatura en la entrada del reactor 1b se puede ajustar más fácilmente. Por otra parte, el medio de intercambio de calor 5 se puede utilizar en el caso de precalentamiento del interior del sistema antes del inicio de la reacción (antes de introducir el epóxido).

55 El medio de intercambio de calor 5 puede ser uno que pueda controlar la temperatura a través del intercambio de calor indirecto, y la operación se realiza a alta presión y, por tanto, es preferente un intercambiador de calor de doble tubo que tenga una estructura sencilla y la eficiencia de intercambio de calor correspondiente.

60 Por otra parte, el medio de intercambio de calor 5 se proporciona preferentemente aguas abajo del tanque de separación de gas-líquido 11 para suprimir la vaporización del dióxido de carbono por calentamiento, aunque se puede proporcionar en cualquier lugar en la ruta de circulación y el lugar no está particularmente limitado.

65 Por otra parte, en la ruta de circulación 2, la porción del flujo de entrada de aditivo en la que fluye por ejemplo el aditivo suministrado por el medio de suministro de aditivo 7 puede estar en cualquier lugar de la ruta de circulación y el lugar no está particularmente limitado. La cantidad de suministro del aditivo es generalmente una cantidad reducida y, por tanto, no se requiere preparar un medio de mezcla por separado cuando se suministra corriente arriba del medio de mezcla 10.

Por otra parte, la ruta de circulación 2 está provista del medio de mezcla 10 (el segundo medio de mezcla) para mezclar el epóxido suministrado por el medios de suministro de epóxido 8 con el fluido en circulación que fluye hacia la ruta de circulación 2 y está presurizado por el medio de presurización 12 en la ruta.

5 A través del medio de mezcla 10, el epóxido suministrado se mezcla uniformemente con otros componentes.

10 Como el medio de mezcla 10, es preferente el uso de un mezclador en línea, como una mezcladora estática desde el punto de vista de que el aparato es sencillo. Al proporcionar una mezcladora en línea a la ruta de circulación 2, es posible mezclar eficientemente el epóxido con demás componentes en la ruta de flujo para obtener un fluido de circulación uniforme.

15 El fluido en circulación que se mezcla homogéneamente a través del medio de mezcla 10 se suministra al reactor adiabático 1 cargado con el catalizador a través de la entrada del reactor 1b como una mezcla de fluido de materia prima, y como resultado, el dióxido de carbono reacciona con el epóxido en el reactor 1 para producir un carbonato cíclico.

20 La cantidad de suministro (velocidad de circulación) del epóxido introducido en el reactor 1 es preferentemente de 0,001 a 10 kg/h, más preferentemente de 0,01 a 1,0 kg/h, incluso más preferentemente de 0,05 a 0,5 kg/h con respecto a 1 kg del catalizador.

El contenido de dióxido de carbono en la mezcla fluida de materia prima introducida en el reactor 1 es preferentemente de 1 a 20, más preferentemente de 1,1 a 10, e incluso más preferentemente de 1,2 a 5 por lo que respecta a la relación (relación molar) de dióxido de carbono/epóxido.

25 Por otra parte, en cuanto a la cantidad de catalizador cargado en el reactor 1, se puede utilizar una cantidad arbitraria en un intervalo que satisfaga la velocidad de circulación anterior dependiendo de la cantidad de producción de un carbonato cíclico que se requiera.

30 Por otra parte, la relación (relación en masa) de dióxido de carbono/epóxido que circula al reactor 1 es preferentemente 1 o más, más preferentemente 10 o más, incluso más preferentemente 12,5 o más, y aún más preferentemente 15 o más, y preferentemente 100 o menos, más preferentemente 80 o menos, incluso más preferentemente 60 o menos, incluso más preferentemente 50 o menos, incluso más preferentemente 40 o menos, e incluso más preferentemente 30 o menos. Al ajustar la relación, es posible ajustar la temperatura en la entrada del reactor 1b.

35 Por otra parte, la mezcla fluida de materia prima no incluye sustancialmente una fase gaseosa y, por tanto, se puede permitir que fluya desde la parte superior a la parte inferior del reactor 1 (sistema de flujo descendente) o que fluya desde la parte inferior a la parte superior del reactor 1 (sistema de flujo ascendente). El sistema de flujo ascendente es preferente ya que las burbujas se escapan fácilmente incluso en el caso de que se generan accidentalmente las burbujas.

40 La mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de la salida del reactor 1a contiene principalmente el carbonato cíclico producido en el reactor 1 y el dióxido de carbono sin reaccionar, y también contiene el epóxido sin reaccionar dependiendo de las condiciones de reacción. Una porción del mismo se conduce a la ruta de circulación 2, tal como se ha descrito, y el resto descargado de la ruta de descarga 3 puede enviarse, por ejemplo, a un medio de separación y purificación (no ilustrado).

45 La ruta de descarga 3 está configurada como una tubería apropiada arbitraria. El material que constituye la tubería no está particularmente limitado y es preferentemente SUS desde el punto de vista de su excelente resistencia a la corrosión.

50 Por otra parte, la ruta de descarga 3 está provista de una válvula de control 15. A través de la válvula de control 15, es posible ajustar el flujo de líquido que se conduce a la ruta de circulación 2 y que se hace circular hacia el sistema y el flujo de líquido que se va a descargar de la ruta de descarga 3.

55 <Segunda realización>

60 A continuación, se describirá el aparato para producir un carbonato cíclico de acuerdo con la segunda realización de la presente invención (segundo aparato de producción). Se omitirá la descripción en las partes del segundo aparato de producción que son las mismas que las del primer aparato de producción.

65 El aparato de producción de la presente realización incluye un reactor de múltiples etapas de lecho fijo en el que están conectados en serie dos o más de los mismos reactores adiabáticos que el reactor 1, y se proporciona la ruta de circulación en el aparato de producción, de tal modo que al menos un porción de la mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de la salida del reactor de última etapa incluido en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo retorna al reactor de primera etapa incluido en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo.

En la presente invención, la cantidad de catalizador con respecto a la cantidad de producción de un carbonato cíclico es aproximadamente constante independientemente del número de reactores. Por tanto, es posible mejorar la capacidad de producción aumentando el número de reactores del aparato de producción de la presente realización.

5 El aparato de producción de la presente realización es preferentemente uno que incluye además un medio de suministro de epóxido para suministrar continuamente un epóxido en forma líquida o en solución a al menos una ruta de flujo entre las rutas de flujo para conectar los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo y un medio de mezcla para mezclar el epóxido suministrado a través del medio de suministro de epóxido con la mezcla fluida en forma líquida que fluye hacia la ruta de flujo en la ruta de flujo.

10 Al emplear dicha configuración, es posible suministrar el epóxido a una pluralidad de reactores de manera dividida y suprimir el deterioro del catalizador disminuyendo la cantidad de epóxido que se suministre al reactor de la primera etapa y la generación de calor en el reactor. Por otra parte, es más preferente emplear dicha configuración, ya que es posible distribuir el calor generado por la reacción a todos los reactores suministrando continuamente el epóxido en forma líquida o en solución a todas las rutas de flujo que conectan los correspondientes reactores, mezclándolo en todas las rutas de flujo que conectan los correspondientes reactores e introduciendo la mezcla en la entrada del reactor de la siguiente etapa.

15 Por otra parte, el aparato de producción de la presente realización es preferentemente uno en el que al menos una ruta de flujo entre las rutas de flujo para conectar los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo incluye un medio de intercambio de calor para eliminar el calor de la mezcla fluida en una forma líquida que fluya hacia la ruta de flujo por intercambio de calor indirecto.

20 Al emplear dicha configuración, es posible eliminar fácilmente el calor de reacción generado en el reactor de la etapa anterior y controlar fácilmente la temperatura en el reactor de la siguiente etapa en un intervalo deseado (sustancialmente la temperatura de reacción). Por otra parte, es más preferente emplear una configuración, ya que es posible llevar a cabo de manera más eficiente la eliminación de calor enfriando todas las rutas de flujo que conectan los correspondientes reactores por intercambio de calor indirecto y eliminando el calor de reacción.

25 La Fig. 2 es un diagrama que ilustra esquemáticamente un ejemplo del aparato para producir un carbonato cíclico utilizando un reactor de múltiples etapas de lecho fijo de acuerdo con la segunda realización de la presente invención.

30 El aparato para producir un carbonato cíclico ilustrado en Fig. 2 incluye un reactor de múltiples etapas de lecho fijo en el que están conectados en serie tres reactores adiabáticos (reactor 1, reactor 21 y reactor 31), y el reactor de múltiples etapas de lecho fijo está provisto de una ruta de flujo 22 desde una salida 1a del reactor de primera etapa (reactor 1) a una entrada 21b del reactor de segunda etapa (reactor 21) y una ruta de flujo 32 desde una salida de reactor de la segunda etapa 21a a una entrada 31b del reactor de tercera etapa (reactor 31). Una porción de la mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de la salida del reactor de la tercera etapa 31a se conduce a una entrada del reactor de la primera etapa 1b a través de la ruta de circulación 2 de la misma manera que el proceso ilustrado en la Fig. 1.

35 La ruta de flujo 22 y la ruta de flujo 32 están configuradas como una tubería apropiada arbitraria de la misma manera que la ruta de circulación 2. El material que constituye la tubería no está particularmente limitado y es preferentemente SUS desde el punto de vista de una excelente resistencia a la corrosión.

40 El reactor 21 y el reactor 31 pueden ser aquellos que están configurados para poder ser cargados con el catalizador heterogéneo para hacer reaccionar un epóxido con dióxido de carbono de la misma manera que el reactor 1, y es preferente un reactor tubular. Por otra parte, el material que constituye el reactor 21 y el reactor 31 no está particularmente limitado, y es preferentemente SUS desde el punto de vista de su excelente resistencia a la corrosión. Además, es posible reducir en gran medida el coste de la instalación utilizando un reactor adiabático económico como puedan ser el reactor 21 y el reactor 31.

45 Por otra parte, por ejemplo, se puede cargar perlas de vidrio antes o después del catalizador cuando se carga el catalizador heterogéneo en el reactor 21 y el reactor 31.

50 Por otra parte, el aparato para producir un carbonato cíclico ilustrado en Fig. 2 incluye un medio de suministro de epóxido 8 para suministrar continuamente un epóxido en forma líquida o en solución de la misma manera que el aparato de producción de la primera realización. Asimismo, en el aparato de producción, también están dispuestas las válvulas de control 16, 26 y 36 en cada ruta de flujo 22 y ruta de flujo 32, además de la ruta de circulación 2, de modo que se suministra el epóxido a la ruta de flujo.

55 A través de dicha configuración, se suministra el epóxido como materia prima de reacción a la mezcla fluida en forma líquida para que fluya la ruta de circulación 2, la ruta de flujo 22 y la ruta de flujo 32 en un estado que es líquido o solución.

60

65

Por otra parte, es posible controlar respectivamente la cantidad de suministro del epóxido suministrado a los reactores 1, 21 y 31 por las válvulas de control 16, 26 y 36.

5 Por otro lado, se puede disponer individualmente un medio de suministro de epóxido para las correspondientes rutas de flujo en lugar de disponer las válvulas de control 16, 26 y 36. En este caso, la cantidad de suministro del epóxido a los correspondientes reactores puede controlarse respectivamente a través de cada medio de suministro de epóxido individual.

10 Por otra parte, las rutas de flujo 22 y 32 están provistas respectivamente de medios de intercambio de calor 24 y 34 para eliminar el calor de la mezcla fluida en una forma líquida que fluye hacia la ruta de flujo por intercambio de calor indirecto.

15 Al proporcionar el medio de intercambio de calor 24 y 34 a las rutas de flujo 22 y 32, es posible eliminar fácilmente el calor de reacción generado en el reactor de la etapa anterior y controlar fácilmente la temperatura en el reactor de la siguiente etapa en un intervalo deseado (sustancialmente el temperatura de reacción).

20 Como medio de intercambio de calor 24 y 34, se puede utilizar un intercambiador de calor arbitrario 4 siempre y cuando pueda eliminar el calor de reacción disminuyendo la temperatura del fluido en circulación en una forma líquida que pasa a través de los medios. Como ejemplo específico del mismo se puede incluir un intercambiador de calor cilíndrico multitubular, un intercambiador de calor de doble tubo, un intercambiador de calor de placas, un enfriador de aire, un enfriador por irrigación, un intercambiador de calor de bobina y un intercambiador de calor de desplazamiento y el caudal de circulación es un caudal relativamente pequeño y la operación se lleva a cabo a alta presión y, por tanto, un intercambiador de calor de doble tubo, un enfriador de aire y un enfriador de irrigación son particularmente apropiados y preferentes. Por otra parte, el coeficiente de transferencia de calor global de estos intercambiadores de calor es preferentemente de aproximadamente 200 kcal/(m²hrK) o más.

30 Por otra parte, las rutas de flujo 22 y 32 incluyen respectivamente el medio de mezcla 20 y 30. A través del medio de mezcla 20 y 30, se mezcla el epóxido suministrado con la mezcla fluida en una forma líquida que fluye hacia la ruta de flujo en la ruta de flujo.

Como el medio de mezcla 20 y 30, es preferente utilizar una mezcladora en línea, como por ejemplo una mezcladora estática desde el punto de vista de que el aparato es sencillo.

35 Por otra parte, en el aparato para producir un carbonato cíclico ilustrado en Fig. 2, se proporcionan el medio de intercambio de calor 24 en la ruta de flujo 22, la porción de flujo de entrada de epóxido y el medio de mezcla 20 desde la salida 1a del reactor de primera etapa hacia la entrada 21b del reactor de segunda etapa en el orden de medio de intercambio de calor 24, porción de flujo de entrada de epóxido y medio de mezcla 20. Por otra parte, el medio de intercambio de calor 34 en la ruta de flujo 32, la porción de flujo de entrada de epóxido y el medio de mezcla 30 se proporcionan desde la salida 21a del reactor de la segunda etapa hacia la entrada 31b del reactor de tercera etapa en el orden de medio de intercambio de calor 34, la porción de flujo de entrada de epóxido y el medio de mezcla 30.

45 Es posible eliminar de manera eficiente el calor de la mezcla fluida en forma líquida, para mezclarla de manera uniforme y eficiente con el epóxido, y suministrar la mezcla al siguiente reactor, ya que estos se proporcionan en ese orden.

50 Por otra parte, con una configuración de este tipo, es posible aumentar la diferencia de temperatura entre la temperatura de salida y la temperatura de entrada en los correspondientes reactores dentro de un intervalo en el que no se produce el deterioro del catalizador y para llevar a cabo la reacción de manera eficiente a una alta velocidad de reacción en todos los reactores.

55 Por otra parte, el aparato de producción de la presente realización no está limitado al aparato de producción ilustrado en la Fig. 2. En la Fig. 2, se ilustra un aparato de producción en el que se utiliza un reactor de múltiples etapas de lecho fijo en el que se conectan tres reactores adiabáticos 1, 21 y 31 en serie, si bien el número de reactores adiabáticos puede ser dos o más. El número de reactores adiabáticos incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo es preferentemente de 2 a 10, más preferentemente de 2 a 6, e incluso más preferentemente de 2 a 4.

60 Por otra parte, es posible proporcionar una ruta de flujo al reactor adiabático de varias etapas para evitar los correspondientes reactores y esto hace posible ajustar de manera apropiada la cantidad de producción y además cambiar el catalizador mientras continúa la producción.

65 Asimismo, al cambiar apropiadamente la ruta de flujo entre los correspondientes reactores, también es posible cambiar el orden de conexión de los reactores y llevar a cabo la reacción en un orden optimizado dependiendo del estado de deterioro del catalizador.

Por otro lado, la cantidad de suministro del epóxido que se introduzca en los correspondientes reactores adiabáticos, el contenido de dióxido de carbono en la mezcla de fluidos de la materia prima, la cantidad de catalizador que se cargue en los reactores adiabáticos respectivos y la relación (relación en masa) de carbonato/epóxido cíclico que se haga circular a los correspondientes reactores adiabáticos son como los de la primera realización.

5

[(2) Método para producir carbonato cíclico]

A continuación, se describirá el método para producir un carbonato cíclico de la presente invención.

10 El método para producir un carbonato cíclico de la presente invención puede realizarse utilizando el aparato de producción de la presente invención, como puedan ser el primer aparato de producción o el segundo aparato de producción descritos anteriormente. Por otra parte, el método se realiza suministrando de forma continua una mezcla de fluido de materia prima que contiene un epóxido y dióxido de carbono a un reactor adiabático cargado con un catalizador heterogéneo, haciendo circular al menos una porción de una mezcla de fluido en forma líquida que
15 sale por la salida del reactor (la salida del reactor de la última etapa en el caso de un reactor de múltiples etapas de lecho fijo) a una ruta de circulación para retornar al reactor, eliminando el calor de reacción en la ruta de circulación, suministrando continuamente el epóxido y el dióxido de carbono al fluido en circulación y mezclando a una ruta de flujo.

20 La temperatura de entrada (temperatura de reacción) del reactor adiabático (se refiere a los correspondientes reactores adiabáticos incluidos en el reactor de múltiples etapas en el caso de utilizar un reactor de múltiples etapas de lecho fijo. Lo mismo se aplica a continuación para la descripción de la temperatura) es preferentemente 60 °C o más, más preferentemente 70 °C o más, incluso más preferentemente 80 °C o más, incluso más preferentemente 90 °C o más, incluso más preferentemente 100 °C o más, y aún más preferentemente 110 °C o más alto desde el
25 punto de vista de la velocidad de reacción y la eficiencia de reacción y es preferentemente 160 °C o más bajo, más preferentemente 150 °C o menos, incluso más preferentemente 140 °C o menos, aún más preferentemente 130 °C o menos e, incluso, más preferentemente 120 °C o menos desde el punto de vista de suprimir la descomposición térmica y evitar la desactivación de la vida útil del catalizador.

30 Por otra parte, la temperatura en la salida del reactor adiabático es preferentemente 80 °C o más, más preferentemente 90 °C o más, e incluso más preferentemente 100 °C o más y es preferentemente 180 °C o más baja, más preferentemente 160 °C o menos, e incluso más preferentemente 140 °C o menos.

35 La diferencia de temperatura entre la temperatura de salida y la temperatura de entrada en el reactor es preferentemente 10 °C o más, más preferentemente 20 °C o más, e incluso más preferentemente 30 °C o más y es preferentemente 80 °C o menos, más preferentemente 70°C o menos, incluso más preferentemente 60°C o menos, e incluso más preferentemente 50°C o menos. Por otra parte, es preferente que la temperatura de salida sea > a la temperatura de entrada.

40 Por otro lado, la cantidad de calor generado por cantidad de producción es constante (calor de reacción de aproximadamente 100 kJ/mol, por ejemplo, en el caso de sintetizar carbonato de etileno a partir de óxido de etileno y dióxido de carbono) y, por tanto, la temperatura de entrada en el reactor adiabático y la diferencia de temperatura se pueden ajustar según la relación de flujo del carbonato cíclico que se hace circular hacia el epóxido.

45 Por otra parte, la presión de reacción es preferentemente de 1 a 15 MPa desde el punto de vista de prevenir la gasificación de dióxido de carbono y epóxido y utilizar una instalación económica. Asimismo, es preferente llevar a cabo la reacción en torno a la presión crítica (7,38 MPa) del dióxido de carbono, desde el punto de vista del rendimiento de un carbonato cíclico, y es más preferente llevar a cabo la reacción a una presión por encima de la presión crítica para suprimir el flujo irregular en el reactor debido a la gasificación de dióxido de
50 carbono. Específicamente, es preferente llevar a cabo la reacción a entre 7 y 10 MPa y es más preferente llevar a cabo la reacción de 7,4 a 9 MPa.

A continuación, se describirá específicamente el método para producir un carbonato cíclico de la presente invención haciendo referencia a Fig. 1 y tomando el caso de utilizar el aparato para producir un carbonato cíclico de acuerdo
55 con la primera realización de la presente invención como ejemplo.

60 El método de producción de la presente invención es preferentemente un método para establecer primero la circulación entre el reactor 1 y la ruta de circulación 2 haciendo circular un carbonato cíclico al aparato de producción de la presente invención descrito antes de suministrar dióxido de carbono y un epóxido. Como el carbonato cíclico, es posible utilizar un carbonato cíclico producido a partir del fluido en circulación (por ejemplo, fluido en circulación después de la separación gas-líquido) del lote anterior o según el método de la presente invención o un carbonato cíclico disponible en el mercado.

65 Entre los ejemplos específicos del método para establecer la circulación se pueden incluir un método en el que se guía un carbonato cíclico que se calienta por adelantado a el medio de separación de gas-líquido 11 y éste se envía y hace circular hacia el medio de intercambio de calor 5, el reactor 1, la ruta de circulación 2 y el medio de

intercambio de calor 4 a través del medio de presurización 12. Por otra parte, se almacena el fluido en circulación del lote anterior en el medio de separación de gas-líquido 11 pudiéndose utilizar. En ambos casos, es preferente ajustar la temperatura en la entrada del reactor mediante el medio de intercambio de calor 5.

5 Posteriormente, se suministra el dióxido de carbono al circuito de circulación 2 al mismo tiempo que se controla la cantidad de suministro del mismo a través del medio de suministro de dióxido de carbono 6. Se agita el dióxido de carbono a través del medio de mezcla 9 y se hace circular en el proceso en un estado de mezcla completa, es decir, completamente disuelto en el carbonato cíclico.

10 El dióxido de carbono sobrante que no se disuelve en el carbonato cíclico se separa a través del medio de separación de gas-líquido 11.

15 El dióxido de carbono sobrante se evacua a través de la parte superior del medio de separación de gas-líquido 11, al mismo tiempo que se controla la presión del medio de separación de gas-líquido 11 a una presión más baja que la presión del reactor 1 (por tanto, la presión del medio de mezcla 9) a través de este exceso de gas y el medio de control de presión 14. La diferencia de presión entre el medio de separación de gas-líquido 11 y el reactor 1 es preferentemente 0,1 MPa o más, más preferentemente 0,3 MPa o más, incluso más preferentemente 0,5 MPa o más, e incluso más preferentemente 1,0 MPa o menos.

20 Al separar el exceso de gas a una presión inferior a la presión del reactor 1, es posible suministrar dióxido de carbono que se disuelve en el carbonato cíclico y apenas se gasifica en el reactor 1, evitándose el flujo irregular en el reactor 1.

25 Posteriormente, el líquido en circulación después de la separación gas-líquido se presuriza a una presión deseada (sustancialmente la presión de reacción) y se suministran el epóxido y el aditivo, si es necesario. El epóxido se suministra a la ruta de circulación al tiempo que se controla la cantidad de suministro del mismo a través del medio de suministro de epóxido 8 y se agita mediante el medio de mezcla 10, con lo cual se forma una mezcla de fluido de materia prima uniforme.

30 Se suministra el aditivo a la ruta de circulación al tiempo que se controla la cantidad de suministro del mismo a través del medio de suministro de aditivo 7. El emplazamiento del suministro del aditivo no está particularmente limitado y la cantidad de suministro del aditivo es generalmente una cantidad reducida y, por tanto, no es necesario preparar un medio de mezcla por separado cuando se suministra aguas arriba del medio de mezcla 10.

35 Se suministra la mezcla fluida de materia prima que contiene un epóxido al reactor 1 y se pone en contacto con el catalizador cargado en el reactor 1 para iniciar la producción continua.

40 Por otro lado, puede utilizarse un reactor de múltiples etapas de lecho fijo en el que una pluralidad de reactores adiabáticos está conectada en serie como el reactor como se describe en la segunda realización. En el caso de aumentar el número de reactores adiabáticos, se conduce a la ruta de circulación 2 al menos una porción de la mezcla fluida en forma líquida que fluye hacia afuera a través de la salida del reactor de la última etapa para retornar a la entrada del reactor de primera etapa.

45 Esta vez, es preferente suministrar continuamente un epóxido en forma líquida o en solución a al menos una ruta de flujo entre las rutas de flujo que conectan los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo y mezclar el epóxido suministrado en la etapa de suministro de epóxido con la mezcla fluida en forma líquida que fluye hacia la ruta del flujo en la ruta del flujo. Asimismo, preferentemente, se suministra continuamente un epóxido en forma líquida o en solución a todas las rutas de flujo que conectan los correspondientes reactores, se mezcla en todas las vías de flujo de conexión para conectar los reactores respectivos y se introduce en la entrada del reactor de la siguiente etapa.

50 Por otra parte, preferentemente, se elimina el calor de la mezcla fluida en forma líquida que fluye hacia al menos una ruta de flujo entre las rutas de flujo que conectan los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo por intercambio de calor indirecto, siendo más preferente enfriar la mezcla fluida en forma líquida en todas las rutas de flujo que conectan los correspondientes reactores por intercambio de calor indirecto para eliminar el calor de reacción.

55 La mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de la salida del reactor 1a (la salida del reactor de la última etapa en el caso de un reactor de múltiples etapas) contiene principalmente el carbonato cíclico producido en el reactor y dióxido de carbono sin reaccionar, y contiene el epóxido sin reaccionar dependiendo de las condiciones de reacción. Se conduce una porción del mismo a la ruta de circulación 2, tal como se ha descrito y se enfría a través del medio de intercambio de calor 4 para eliminar el calor de reacción.

60 El resto se envía desde la ruta de descarga 3 a la siguiente etapa (etapa de separación y purificación), si es necesario. La cantidad de descarga de la ruta de descarga 3 se ajusta a través de la válvula de control 15, de modo que la cantidad de fluido en circulación en el sistema sea constante.

Como etapa de separación y purificación, es posible aplicar, por ejemplo, una etapa para separar el dióxido de carbono y el epóxido, despresurizando la mezcla fluida en forma líquida y reciclando el dióxido de carbono por compresión del gas descargado y una etapa de purificación del carbonato cíclico en bruto después de la eliminación de dióxido de carbono y epóxido a través de métodos como destilación, cristalización y adsorción.

5

Ejemplos

A continuación, se describirá la presente invención haciendo referencia a los Ejemplos, si bien la presente invención no queda limitada con estos Ejemplos. Por otro lado, los métodos de análisis utilizados en los ejemplos son los siguientes.

10

(1) Análisis de fluorescencia de rayos X

15

Se utilizó análisis de fluorescencia de rayos X para medir la cantidad de catalizador modificada con bromo y fósforo. Las condiciones de análisis fueron las siguientes.

Aparato: nombre del producto "System3270" (fabricado por Rigaku Corporation)

Condiciones de medición: tubo Rh, voltaje del tubo: 50 kV, corriente del tubo: 50 mA y atmósfera de vacío, y detector: SC y F-PC

20

(2) Medición termogravimétrica.

25

Se usó un aparato de medición simultánea termogravimétrica diferencial para la medición termogravimétrica del catalizador. Las condiciones de análisis fueron las siguientes.

Aparato: nombre del instrumento "TG-DTA6200" (fabricado por Hitachi High-Tech Science Corporation)

Cantidad de muestra: 14 mg (se pesó la muestra molida con un mortero en una bandeja de aluminio)

Intervalo de medición y temperatura elevada: temperatura ambiente (25 °C) → elevada a 5 °C/min → mantenida a 50 °C durante 3 horas → elevada a 0,5 °C/min → mantenida a 250 °C durante 3 horas

30

Atmósfera: 50 ml/min en corriente de nitrógeno.

(3) Cromatografía de gases.

35

Se utilizó cromatografía de gases para el análisis de composición de la solución de reacción. Las condiciones de análisis fueron las siguientes.

Aparato: nombre del producto "GC-2010Plus" (fabricado por Shimadzu Corporation)

Detector: FID

Temperatura del INJ: 150 °C

40

Temperatura DET: 260 °C

Volumen de la muestra: 0,3 µl

Proporción de división: 5

Columna: DB-624 (60 m, 0,32 mm de diámetro interior, 1,8 µm, fabricado por Agilent Technologies)

Condiciones de temperatura de la columna: mantenida a 70 °C durante 3 minutos → elevada a 5 °C/min → 120 °C → elevada a 10 °C/min → mantenida a 250 °C durante 5 minutos (31 minutos en total)

45

Ejemplo de síntesis de catalizador 1: Síntesis de catalizador de gel de sílice con superficie modificada con bromuro de tributilfosfonio

50

Se introdujeron en un tanque de reacción de 200 l SUS, 40 kg de gel de sílice en forma de perlas (CARIACT Q-10 (tamaño de poro promedio: 10 nm, tamaño de partícula: 1,2 a 2,4 mm, área de superficie específica: 300 m²/g) fabricado por FUJI SILYSIA CHEMICAL LTD.) y 100 l de xileno. Se llevó a cabo la deshidratación azeotrópica de xileno-agua durante 2 horas mientras se calentaba a reflujo a 140 °C para eliminar la humedad contenida en el gel de sílice. Posteriormente, se purgó con nitrógeno el tanque de reacción y se añadieron gota a gota 4,4 kg de 3-bromopropiltrimetoxisilano. Esto se calentó y se calentó a reflujo durante 9 horas a 135 °C para llevar a cabo la reacción de silanización. Se retiró el producto de reacción así obtenido del tanque de reacción, se separó por filtración el precursor del catalizador (gel de sílice bromopropilado) en el producto de reacción y después se lavó con 40 l de xileno. La cantidad modificada con bromo en el precursor de catalizador obtenido aquí fue de 0,39 mmol/g.

55

60

Posteriormente, se introdujeron en el tanque de reacción el precursor de catalizador así obtenido y 100 l de xileno, se purgó con nitrógeno el tanque de reacción y después se agregaron gota a gota 9,1 kg de fosfina de tri-n-butilo. Se calentó durante 24 horas mientras se mantenía a reflujo como tal para llevar a cabo la reacción modificando con fosfonio cuaternario.

65

Después de la reacción, se separó por filtración el producto de reacción y se lavó 6 veces con 40 l de acetona. A continuación, se secó el producto de reacción durante la noche a 120 °C en una corriente de nitrógeno a presión

reducida, obteniendo así 46 kg del gel de sílice deseado que tenía la superficie modificada con bromuro de tributilfosfonio. La cantidad de cantidad modificada con bromo en el catalizador fue de 0,32 mmol/g, y la cantidad modificada con fósforo en el catalizador fue de 0,33 mmol/g.

5 Ejemplo de referencia 1: Medición termogravimétrica de catalizador

Se llevó a cabo la medición termogravimétrica del catalizador obtenido en el Ejemplo 1 de síntesis de catalizador. Los resultados se ilustran en la Fig. 3.

10 Tal como se ilustra en Fig. 3, comenzó a observarse la descomposición térmica del catalizador a una temperatura de 146 °C o superior y se detectó 1-bromobutano como producto de descomposición. A partir de este resultado, se ajustó la temperatura límite superior en el reactor a 140 °C en los siguientes ejemplos.

Ejemplo de referencia 2: Explicación sobre el efecto de la presión de reacción para producir carbonato de etileno

15 Se introdujeron en un autoclave de 50 ml equipado con un agitador, 400 mg del catalizador obtenido en el Ejemplo de Síntesis de Catalizador 1 y se secaron durante 1 hora a 120 °C a presión reducida. Se cargó el interior del autoclave con nitrógeno a la presión atmosférica y se enfrió a temperatura ambiente, después, se introdujeron 4 ml (60 mmoles) de óxido de etileno. A continuación, se cargó temporalmente el autoclave con dióxido de carbono a 20 1,5 MPaG, se calentó el interior del autoclave a 100 °C al tiempo que se agitaba a 800 rpm con el agitador, se siguió cargando el autoclave con dióxido de carbono para ajustar la presión interna en el intervalo de 3,0 a 18,3 MPa, y se llevó a cabo la reacción durante 1 hora. Una vez completada la reacción, se llevó a cabo el enfriamiento y se liberó dióxido de carbono para despresurizar el interior del autoclave. Se analizó la solución de reacción así obtenida por 25 cromatografía de gases para determinar el rendimiento de carbonato de etileno. Los resultados se ilustran en Fig. 4.

25 Tal como se ilustra en Fig. 4, se ha indicado que la relación entre la presión de reacción y el rendimiento del carbonato de etileno es una relación convexa tener el pico en torno a la presión crítica del dióxido de carbono. Se ajustó la presión de reacción a 8 MPa en los siguientes ejemplos desde el punto de vista de este resultado y 30 suprimiendo la gasificación del dióxido de carbono.

30 **Ejemplo 1: Producción de carbonato de etileno utilizando aparatos de producción continua**

Se llevó a cabo la producción de carbonato de etileno utilizando un aparato equipado respectivamente con un intercambiador de calor de doble tubo como medio de intercambio de calor 4 y 5, una bomba como medio de 35 suministro 6, 7 y 8 de, por ejemplo, una materia prima y medios de presurización 12, una mezcladora estática como medio de mezcla 9 y 10, un tanque de separación de gas-líquido como medio de separación de gas-líquido 11, y una válvula de contrapresión como medio de control de presión 13 y 14 en el aparato ilustrado en la Fig. 1.

40 Se cargó un reactor 1 con un diámetro interior de 50 mm, una longitud de 100 cm y un volumen de 2000 ml con 530 g (1000 ml) del catalizador obtenido en el Ejemplo de Síntesis de Catalizador 1 y se cargó adicionalmente con 1560 g (1000 ml) de perlas de vidrio en total con un tamaño de partícula de 4 mm antes y después del catalizador.

45 A continuación, se condujeron inicialmente 5,0 kg de carbonato de etileno disueltos previamente por calentamiento al tanque de separación de gas-líquido 11 y esto se envió y se hizo circular hacia el intercambiador de calor 5, el mezclador estático 10, el reactor 1, la ruta de circulación 2, el intercambiador de calor 4 y el mezclador estático 9 a un caudal de 2050 g/h mediante la bomba 12. En ese momento, se ajustó la temperatura en la entrada del reactor a 100 °C con el intercambiador de calor 5.

50 A continuación, se suministró dióxido de carbono a un caudal de 53 g/h mediante la bomba 6. En ese momento, se hizo circular el dióxido de carbono en un estado de mezcla completa, es decir, se disolvió completamente en carbonato de etileno agitándolo con una mezcladora estática 9. El exceso de dióxido de carbono que no se disuelve en carbonato de etileno se separa con el tanque de separación de gas-líquido 11 y, por tanto, se evita el flujo irregular en el reactor 1. Se descargó el exceso de dióxido de carbono desde la parte superior del tanque de separación de gas-líquido 11 y se mantuvo la presión del tanque de separación de gas-líquido 11 a 7,5 MPaG a través 55 de este exceso de gas y la válvula de contrapresión 14.

A continuación, se ajustó la presión en el reactor 1 se ajustó a 8,0 MPaG mediante la válvula de contrapresión 13. De esta manera, se estableció la diferencia de presión entre la mezcladora estática 9 y el reactor 1 y el tanque de separación de gas-líquido 11 en 0,5 MPa. Además, la presión del líquido después de la separación gas-líquido 60 aumentó a 8,0 MPaG a través de la bomba 12 y el líquido se suministró al reactor 1. A través de esta operación, se suministró al reactor 1 el dióxido de carbono que se disolvió completamente en carbonato de etileno y apenas se gasificó.

65 Por otra parte, la solubilidad saturada del dióxido de carbono en carbonato de etileno es aproximadamente 12 % en masa en las condiciones (8 MPa y 100 °C) de la entrada del reactor 1b y, por tanto, la solubilidad del dióxido de carbono en el fluido en circulación después de la separación gas-líquido fue aproximadamente 11 % en masa.

A continuación, se suministró 2-bromoetanol como aditivo para el mantenimiento del catalizador al reactor 1 a un caudal de 0,035 g/h mediante la bomba 7, y se suministró óxido de etileno al reactor 1 a un caudal de 44 g/h mediante la bomba 8, iniciando así la producción continua (relación (relación de masa) de epóxido/carbonato cíclico en circulación en el reactor 1 = 40). Por otro lado, se mezclaron con la mezcladora estática 10 2-bromoetanol y óxido de etileno con carbonato de etileno y se suministró al reactor 1.

Se ajustó el grado de apertura de la válvula de control 15 de modo que el nivel de líquido en el tanque de separación de gas-líquido 11, es decir, la cantidad de fluido en circulación en el sistema fuera constante, y se retiró el carbonato de etileno así producido a través de la ruta de descarga 3. El caudal de carbonato de etileno retirado fue aproximadamente 88 g/h.

Por otra parte, no se detectó óxido de etileno en el gas descargado desde la parte superior del tanque de separación de gas-líquido 11 y, por tanto, se calculó la relación de conversión de óxido de etileno a través de la siguiente ecuación.

Relación de conversión $X = \{(\text{caudal de óxido de etileno suministrado}) - (\text{caudal de óxido de etileno extraído}) / (\text{caudal de óxido de etileno suministrado})\} \times 100$

La concentración de óxido de etileno en el carbonato de etileno retirado fue 0,29 %, y se calculó que la relación de conversión del óxido de etileno fue 99,4 %.

Además, aunque la reacción continuó durante 260 horas, se mantuvo la temperatura en la salida del reactor en un intervalo de 115 a 118 °C y no se observó una disminución en la relación de conversión por la desactivación del catalizador. Es decir, se ha demostrado que la temperatura en el reactor se controla apropiadamente por intercambio de calor indirecto y que el rendimiento catalítico se puede mantener incluso durante una operación a largo plazo.

Ejemplo 2: Simulación con un reactor.

Se simuló la relación entre la temperatura del reactor, la cantidad de carbonato de etileno que se hace circular y la cantidad de catalizador en las siguientes condiciones en la realización ilustrada en la Fig. 1. Los resultados se presentan en la Tabla 1.

Software de simulación: PRO II (desarrollado por Invensys Process Systems (S) Pte Ltd.), método de estimación de propiedades físicas SRK-M

Aparato: se equipó el aparato respectivamente con un intercambiador de calor de doble tubo como medio de intercambio de calor 4 y 5, una bomba como medio de suministro 6, 7 y 8 de, por ejemplo, una materia prima y el medio de presurización 12, una mezcladora estática. Como medio de mezcla 9 y 10, un tanque de separación de gas-líquido como medio de separación de gas-líquido 11 y una válvula de contrapresión como medio de control de presión 13 y 14 en el aparato ilustrado en la Fig. 1.

Cantidad de producción de carbonato de etileno al año (8000 horas): 1.000 toneladas

Cantidad de suministro de óxido de etileno (bomba 8): 63 kg/h

Cantidad de suministro de 2-bromo-etanol (bomba 7): 0,05 kg/h

Cantidad de suministro de dióxido de carbono (bomba 6): 63 kg/h

Relación de conversión de óxido de etileno: 99 %

Número de reactores: 1

Presión en reactor: 8 MPa.

Temperatura en la entrada del reactor adiabático: 60 °C, 70 °C, 80 °C, 90 °C, 100 °C, 110 °C, 120 °C, 130 °C y 135 °C

Temperatura límite superior en el reactor adiabático (temperatura en la salida del reactor adiabático): 140 °C

ΔT : diferencia de temperatura entre la salida del reactor 1a y la entrada del reactor 1b

Circulación de EC/EO y relación de dilución: se obtiene dividiendo el caudal de carbonato de etileno en la entrada 1b del reactor por la cantidad de suministro de óxido de etileno (63 kg/h)

Ejemplo 3: Simulación por tres reactores.

Se simuló la relación entre la temperatura del reactor, la cantidad de carbonato de etileno que se hace circular y la cantidad de catalizador en las siguientes condiciones en la realización ilustrada en la Fig. 2. Los resultados se presentan en la Tabla 1.

Software de simulación: PRO II (desarrollado por Invensys Process Systems (S) Pte Ltd.), método de estimación de propiedades físicas SRK-M

Aparato: se equipó el aparato respectivamente con un intercambiador de calor de doble tubo como medio de intercambio de calor 4, 5, 24 y 34, una bomba como medio de suministro 6, 7 y 8 de, por ejemplo, una materia prima y el medio de presurización 12, una mezcladora estática como medio de mezcla 9, 10, 20 y 30, un tanque de

separación de gas-líquido como medio de separación de gas-líquido 11, y una válvula de contrapresión como medio de control de presión 13 y 14 en el aparato ilustrado en la Fig. 2.

Cantidad de producción de carbonato de etileno al año (8000 horas): 1.000 toneladas

Cantidad de suministro de óxido de etileno (válvula de control 16): 21 kg/h

5 (válvula de control 26): 21 kg/h

(válvula de control 36): 21 kg/h

Cantidad de suministro de 2-bromo-etanol (bomba 7): 0,05 kg/h

Cantidad de suministro de dióxido de carbono (bomba 6): 64 kg/h

Relación de conversión de óxido de etileno: 99 %

10 Número de reactores: 3

Presión en reactor: 8 MPa.

Temperatura en la entrada del reactor adiabático: 110 °C, 120 °C, 130 °C y 135 °C

Temperatura límite superior en el reactor adiabático (temperatura en la salida del reactor adiabático): 140 °C

ΔT : diferencia de temperatura entre la salida del reactor 1a y la entrada del reactor 1b

15 Circulación de EC/EO y relación de dilución: se obtiene dividiendo el caudal de carbonato de etileno en la entrada 1b del reactor por la suma de la cantidad de suministro de óxido de etileno (63 kg/h)

Ejemplo 4: Simulación por dos reactores.

20 La simulación del reactor se realizó en una realización en la que el número de reactores fue dos, concretamente, se separaron la válvula de control 36, la ruta de flujo 32, el reactor 31, el medio de intercambio de calor 34 y el medio de mezcla 30 en la realización ilustrada en la Fig. 2.

25 Específicamente, se simuló la relación entre la temperatura del reactor, la cantidad de carbonato de etileno que se hizo circular y la cantidad de catalizador en las siguientes condiciones. Los resultados se presentan en la Tabla 1.

Software de simulación: PRO II (desarrollado por Invensys Process Systems (S) Pte Ltd.), método de estimación de propiedades físicas SRK-M

30 Aparato: se preparó el aparato separando la válvula de control 36, la ruta de flujo 32, el reactor 31, el medio de intercambio de calor de doble tubo 34 y la mezcladora estática 30 en el aparato del Ejemplo 2.

Cantidad de producción de carbonato de etileno al año (8000 horas): 1.000 toneladas

Cantidad de suministro de óxido de etileno (válvula de control 16): 31,5 kg/h

(válvula de control 26): 31.5 kg/h

35 Cantidad de suministro de 2-bromo-etanol (bomba 7): 0,05 kg/h

Cantidad de suministro de dióxido de carbono (bomba 6): 64 kg/h

Relación de conversión de óxido de etileno: 99 %

Número de reactores: 2

Presión en reactor: 8 MPa.

40 Temperatura en la entrada del reactor adiabático: 90 °C, 100 °C, 110 °C, 120 °C, 130 °C y 135 °C

Temperatura límite superior en el reactor adiabático (temperatura a la salida del reactor adiabático): 140 °C

ΔT : diferencia de temperatura entre la salida del reactor 1a y la entrada del reactor 1b

45 Circulación de EC/EO y relación de dilución: se obtiene dividiendo el caudal de carbonato de etileno en la entrada 1b del reactor por la suma de la cantidad de suministro de óxido de etileno (63 kg/h)

[Tabla 1]

	Número de reactores	Temperatura en el reactor			Circulación requerida y relación de dilución EC/EO ^(*) (peso/peso)	Cantidad de catalizador requerida	
		Entrada (°C)	Salida (°C)	ΔT (°C)		Por reactor (l)	Cantidad total (l)
Ejemplo 2	1	60	140	80	10	590	590
	1	70	140	70	11	486	486
	1	80	140	60	13	442	442
	1	90	140	50	16	417	417
	1	100	140	40	20	401	401
	1	110	140	30	26	404	404
	1	120	140	20	39	449	449
	1	130	140	10	77	551	551
Ejemplo 3	3	110	140	30	9	138	415
	3	120	140	20	13	152	457
	3	130	140	10	26	185	555
	3	135	140	5	51	226	679

(continuación)

	Número de reactores	Temperatura en el reactor			Circulación requerida y relación de dilución EC/EO ^(*) (peso/peso)	Cantidad de catalizador requerida	
		Entrada (°C)	Salida (°C)	ΔT (° C)		Por reactor (l)	Cantidad total (l)
Ejemplo 4	2	90	140	50	8	217	433
	2	100	140	40	10	206	411
	2	110	140	30	13	212	424
	2	120	140	20	20	231	461
	2	130	140	10	40	286	572
	2	135	140	5	78	344	688

*1: carbonato de etileno/óxido de etileno

5 Tal como se presenta en la Tabla 1, la temperatura de entrada se puede controlar a través de la relación en circulación de carbonato de etileno/óxido de etileno en la entrada del reactor y es posible llevar a cabo la reacción con una cantidad relativamente pequeña de catalizador de aproximadamente 400 a 500 l con respecto a 1.000 toneladas/año de la cantidad de producción de carbonato de etileno optimizándola. Por lo tanto, es posible llevar a cabo la reacción en un reactor compacto y reducir el coste de la instalación.

10 Por otra parte, en la presente invención, la cantidad de catalizador con respecto a la cantidad de producción de un carbonato cíclico es aproximadamente constante independientemente del número de reactores, por lo que solo se requiere aumentar secuencialmente el número de reactores, intercambiadores de calor y mezcladoras estáticas en el caso de mejorar la capacidad de producción, siendo posible una mejora económicamente excelente de la capacidad de producción. Por lo tanto, no es necesario disponer de instalación y ni se requiere una doble inversión en la instalación.

15

Lista de signos de referencia

- 1, 21 y 31: Reactor
 1a, 21a y 31a: Salida del reactor
 20 1b, 21b y 31b: Entrada del reactor
 2: Ruta de circulación
 3: Ruta de descarga
 4, 5, 24 y 34: Medios de intercambio de calor
 6: Medio de suministro de dióxido de carbono
 25 7: Medio de suministro aditivos
 8: Medio de suministro de epóxido.
 9, 10, 20 y 30: Medios de mezcla
 11: Medio de separación gas-líquido.
 12: Medio de presurización
 30 13 y 14: Medios de control de presión
 15, 16, 26 y 36: Válvula de control
 22 y 32: Ruta de flujo entre reactores

REIVINDICACIONES

1. Un aparato para producir un carbonato cíclico que comprende:

- 5 un reactor adiabático para su carga con un catalizador sólido que tiene un compuesto orgánico iónico inmovilizado sobre un soporte como catalizador heterogéneo para hacer reaccionar un epóxido con dióxido de carbono, donde el compuesto orgánico iónico es una sal de amonio orgánica cuaternaria que tiene un anión haluro como contraión o una sal de fosfonio orgánica cuaternaria que tiene un anión haluro como contraión;
- 10 una ruta de circulación para retornar al menos una porción de una mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de una salida del reactor hacia el reactor;
- un medio de suministro de dióxido de carbono para suministrar continuamente dióxido de carbono en forma líquida o en un estado supercrítico a la ruta de circulación; y
- un medio de suministro de epóxido para suministrar continuamente un epóxido en forma líquida o en solución a la ruta de circulación, donde
- 15 la ruta de circulación comprende
- un medio de intercambio de calor para eliminar el calor de un fluido en circulación por intercambio de calor indirecto,
- un medio de mezcla para mezclar el dióxido de carbono suministrado por el medio de suministro de dióxido de carbono con el fluido en circulación en una ruta,
- 20 un medio de separación de gas-líquido para llevar a cabo un tratamiento de separación de gas-líquido reduciendo la presión de un fluido en circulación que contiene dióxido de carbono obtenido a través del medio de mezcla,
- un medio de presurización para presurizar un fluido en circulación tras el tratamiento de separación gas-líquido a una presión predeterminada, y
- 25 un medio de mezcla para mezclar el epóxido suministrado por el medio de suministro de epóxido con el fluido en circulación en una ruta.

2. El aparato para producir un carbonato cíclico de acuerdo con la reivindicación 1, donde

- 30 el reactor está configurado como un reactor de múltiples etapas de lecho fijo con dos o más reactores adiabáticos conectados en serie, y
- se proporciona la ruta de circulación de tal modo que retorne al menos una porción de la mezcla fluida en forma líquida que fluye a través de la salida de un reactor de última etapa a un reactor de primera etapa.

35 3. El aparato para producir un carbonato cíclico de acuerdo con la reivindicación 2, que comprende además:

- un medio de suministro de epóxido para suministrar continuamente un epóxido en una forma líquida o en solución a al menos una ruta de flujo entre rutas de flujo para conectar los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo; y
- 40 un medio de mezcla para mezclar el epóxido suministrado por el medio de suministro de epóxido con una mezcla fluida en forma líquida que fluye hacia una ruta de flujo en la ruta de flujo.

4. El aparato para producir un carbonato cíclico de acuerdo con la reivindicación 2 o 3, donde al menos una ruta de flujo entre las rutas de flujo para conectar los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo incluye un medio de intercambio de calor para eliminar el calor de la mezcla fluida en una forma líquida que fluye hacia la ruta de flujo por intercambio de calor indirecto.

45

5. El aparato para producir un carbonato cíclico de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, donde los correspondientes medios de mezcla son una mezcladora en línea.

50

6. Un método para producir un carbonato cíclico suministrando continuamente una mezcla fluida de materia prima que contiene un epóxido y dióxido de carbono a un reactor adiabático cargado con un catalizador sólido que tiene un compuesto orgánico iónico inmovilizado sobre un soporte como catalizador heterogéneo, donde el compuesto orgánico iónico es una sal de amonio orgánica cuaternaria que tiene un anión haluro como contraión o una sal de fosfonio orgánica cuaternaria que tiene un anión haluro como contraión y conduciendo al menos una porción de una mezcla fluida en una forma líquida que fluye a través de la salida de un reactor hacia una ruta de circulación para retornar al reactor, que comprende:

55

- una etapa de intercambio de calor para eliminar el calor de un fluido en circulación por intercambio de calor indirecto;
- 60 una etapa de suministro de dióxido de carbono que suministra continuamente dióxido de carbono en forma líquida o en un estado supercrítico a la ruta de circulación;
- una etapa de mezcla de dióxido de carbono suministrado en la etapa de suministro de dióxido de carbono con el fluido en circulación en una ruta;

una etapa de separación gas-líquido de reducción de la presión de un fluido en circulación que contiene dióxido de carbono obtenido en la etapa de mezcla y realización del tratamiento de separación gas-líquido del exceso de dióxido de carbono gasificado;

5 una etapa de presurización de un fluido en circulación después de la separación gas-líquido a una presión predeterminada;

una etapa de suministro de epóxido suministrando de forma continua un epóxido en forma líquida o en solución a la ruta de circulación; y

una etapa de mezcla de mezcla del epóxido suministrado en la etapa de suministro de epóxido con el fluido en circulación en una ruta.

10 7. El método para producir un carbonato cíclico de acuerdo con la reivindicación 6, donde

el reactor está configurado como un reactor de múltiples etapas de lecho fijo con dos o más reactores adiabáticos conectados en serie, y

15 la ruta de circulación es retornar al menos una porción de una mezcla fluida en una forma líquida que fluye a través de la salida de un reactor de última etapa a un reactor de primera etapa.

8. El método para producir un carbonato cíclico de acuerdo con la reivindicación 7, que comprende además:

20 una etapa de suministro de epóxido de suministro continuo de un epóxido en forma líquida o en solución a al menos una ruta de flujo entre rutas de flujo para conectar los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo; y

una etapa de mezcla para mezclar el epóxido suministrado en la etapa de suministro de epóxido con una mezcla fluida en forma líquida que fluye hacia la ruta de flujo en la ruta de flujo.

25 9. El método para producir un carbonato cíclico de acuerdo con la reivindicación 7 u 8 que comprende:

una etapa de intercambio de calor de eliminación de calor de una mezcla fluida en una forma líquida que fluye hacia al menos una ruta de flujo entre rutas de flujo para conectar los correspondientes reactores incluidos en el reactor de múltiples etapas de lecho fijo por intercambio de calor indirecto.

30 10. El método para producir un carbonato cíclico de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 6 a 9, donde las correspondientes etapas de mezcla se llevan a cabo utilizando una mezcladora en línea.

Fig.1

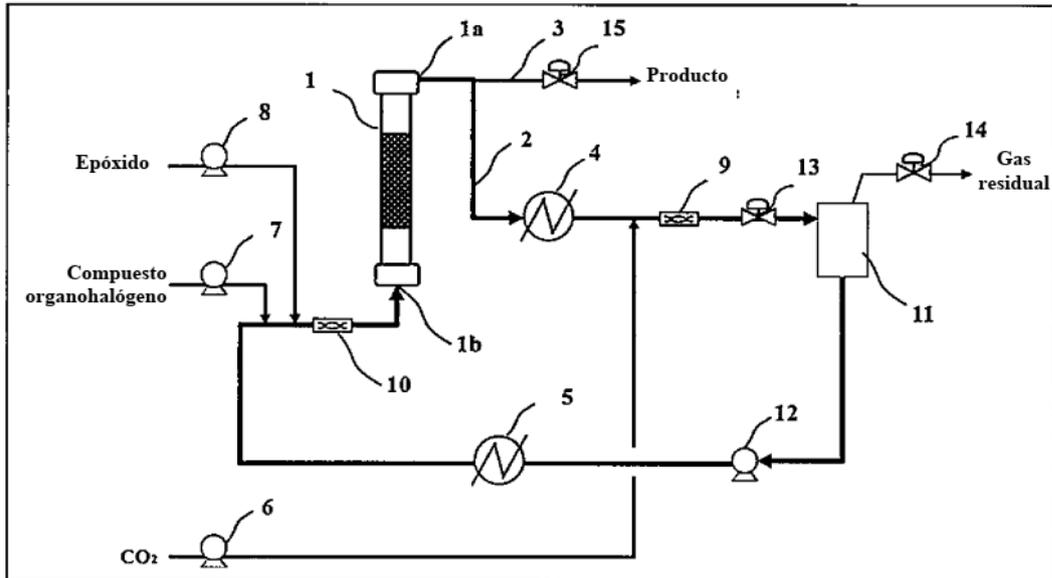


Fig.2

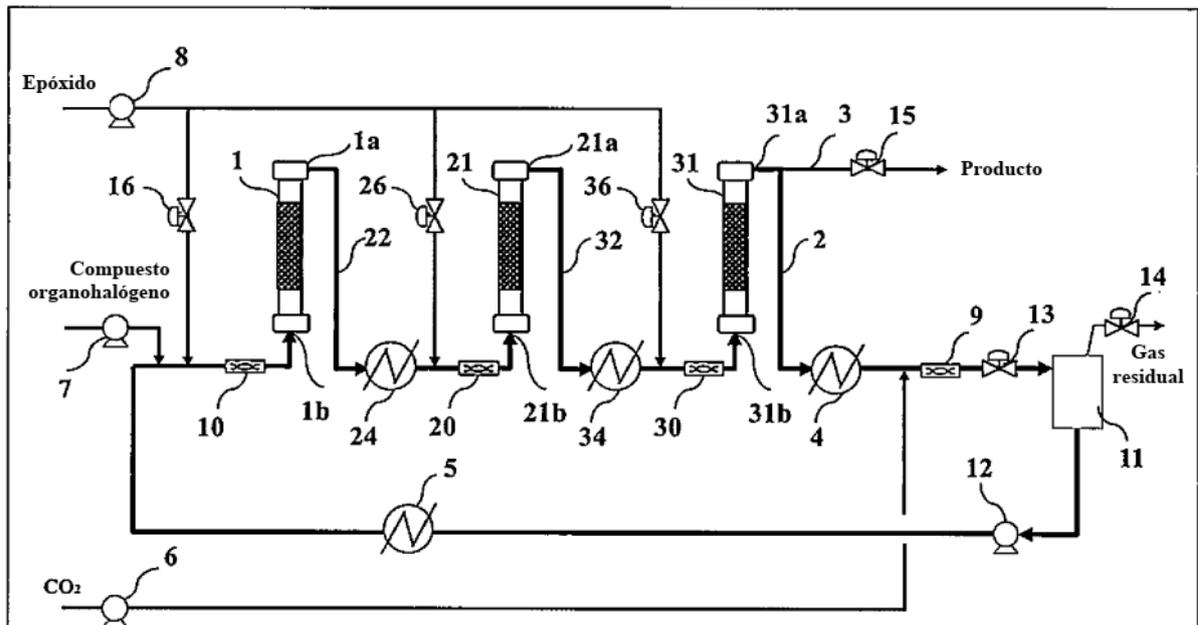


Fig.3

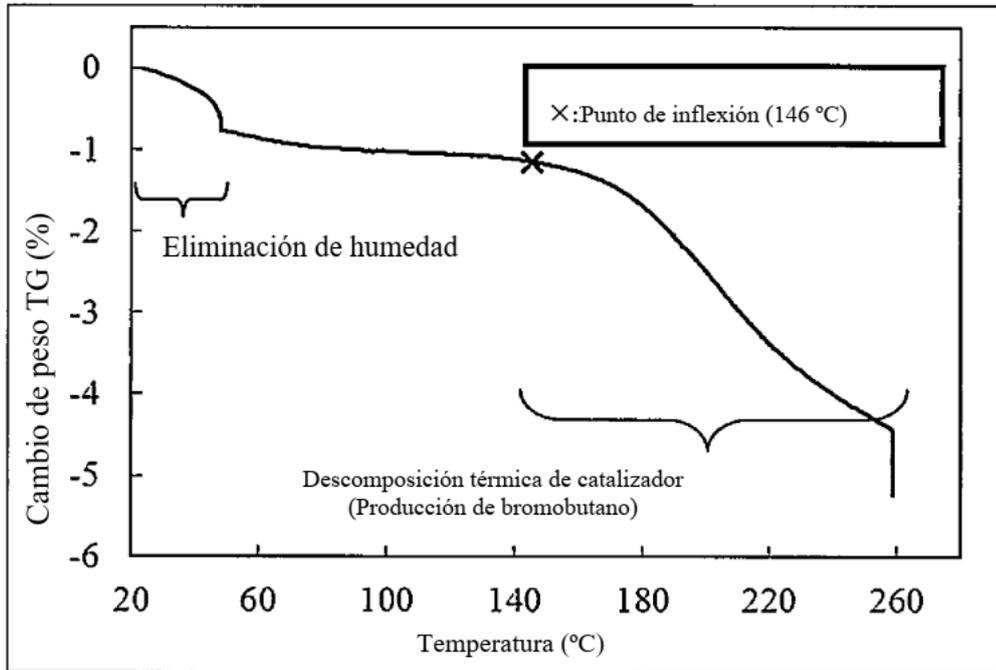


Fig.4

