



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
 ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ,
 ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21), (22) Заявка: **2003102385/04, 26.06.2001**

(24) Дата начала действия патента: **26.06.2001**

(30) Приоритет: **28.06.2000 FR 0008355**

(43) Дата публикации заявки: **27.05.2004**

(45) Опубликовано: **20.07.2005 Бюл. № 20**

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: **US 5849937 A, 15.12.1998. EP 0659473 A, 28.06.1995. RU 2126799 C1, 27.02.1999.**

(85) Дата перевода заявки РСТ на национальную фазу: **28.01.2003**

(86) Заявка РСТ:
EP 01/07273 (26.06.2001)

(87) Публикация РСТ:
WO 02/00637 (03.01.2002)

Адрес для переписки:
**129010, Москва, ул. Б.Спасская, 25, стр.3,
 ООО "Юридическая фирма Городисский и
 Партнеры", пат.пов. Е.Е.Назиной**

(72) Автор(ы):
БАЛЬТАЗАР Доминик (BE)

(73) Патентообладатель(ли):
СОЛВЕЙ (СОСЬЕТЕ АНОНИМ) (BE)

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ОКСИРАНА ПРИ ПОМОЩИ ПЕРОКСИДНОГО СОЕДИНЕНИЯ

(57) Реферат:

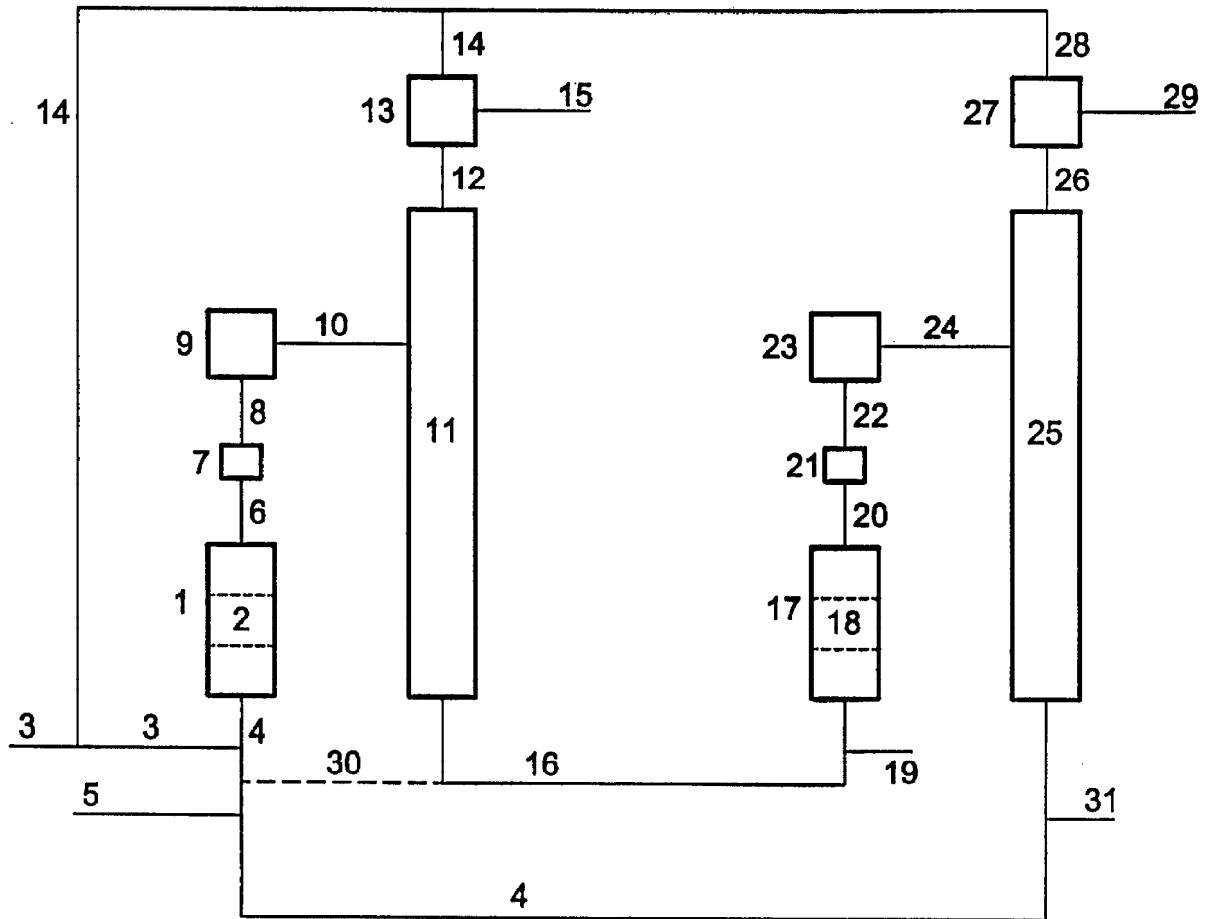
Изобретение относится к способу получения оксирана путем реакции олефина с пероксидным соединением в присутствии катализатора и растворителя по меньшей мере в двух расположенных последовательно реакторах, каждый из которых содержит часть катализатора, согласно которому пероксидное соединение вводят только в первый реактор, при этом следующий или

следующие реакторы питают не свежим пероксидным соединением, а только пероксидным соединением, присутствующим в среде, получаемой из предыдущего реактора, и не использованным в этом предыдущем реакторе. Технический результат: увеличение производительности, снижение образования побочных продуктов. 9 з.п. ф-лы, 1 ил.

RU 2 2 5 6 6 5 6 C 2

RU 2 2 5 6 6 5 6 C 2

RU 2 2 5 6 6 5 6 C 2



RU 2 2 5 6 6 5 6 C 2

RUSSIAN FEDERATION



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY,
PATENTS AND TRADEMARKS

(19) **RU** ⁽¹¹⁾ **2 256 656** ⁽¹³⁾ **C2**
(51) Int. Cl.⁷ **C 07 D 301/12, 301/32**

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21), (22) Application: **2003102385/04, 26.06.2001**
(24) Effective date for property rights: **26.06.2001**
(30) Priority: **28.06.2000 FR 0008355**
(43) Application published: **27.05.2004**
(45) Date of publication: **20.07.2005 Bull. 20**
(85) Commencement of national phase: **28.01.2003**
(86) PCT application:
EP 01/07273 (26.06.2001)
(87) PCT publication:
WO 02/00637 (03.01.2002)

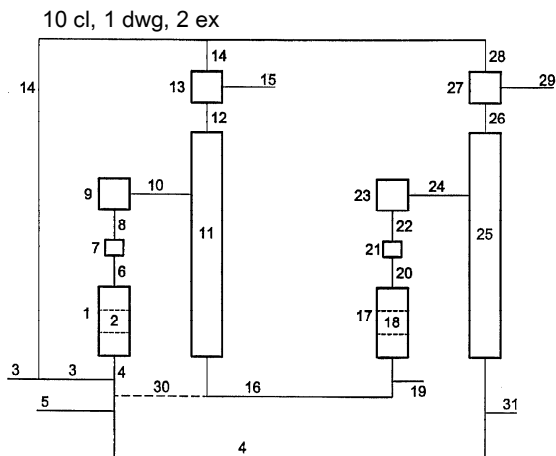
Mail address:
**129010, Moskva, ul. B.Spasskaja, 25, str.3,
OOO "Juridicheskaja firma Gorodisskij i
Partnery", pat.pov. E.E.Nazinoj**

(72) Inventor(s):
BAL'TAZAR Dominik (BE)
(73) Proprietor(s):
SOLVEJ (SOS'ETE ANONIM) (BE)

RU 2 256 656 C2

(54) **METHOD FOR PREPARING OXYRANE USING PEROXIDE COMPOUND**

(57) Abstract:
FIELD: organic chemistry, chemical technology.
SUBSTANCE: invention relates to a method for preparing oxyrane. Method involves reaction of olefin with peroxide compound in the presence of catalyst and a solvent in at least two reactors arranged in series and each reactor contains part of catalyst. Peroxide compound is added to the first reactor only and the next or the following reactors are fed with peroxide compound presenting in medium preparing from the preceding reactor but not with fresh peroxide compound or used in this preceding reactor. Method provides enhancing output and reducing formation of by-side products.
EFFECT: improved method for preparing.



RU 2 256 656 C2

Настоящее изобретение касается способа получения оксирана путем реакции между олефином и пероксидным соединением в присутствии катализатора и растворителя. В частности, оно касается получения оксида пропилена (или оксида эпихлоргидрина) путем эпоксидирования пропилена (или аллилхлорида) при помощи пероксида водорода в
5 присутствии катализатора, содержащего TS-1.

Из предшествующего уровня техники известно получение оксида пропилена путем реакции между пропиленом и пероксидом водорода в присутствии TS-1. Например, согласно патенту US 5,849,937 такой способ осуществляют в нескольких последовательно расположенных реакторах. В данном известном способе каждый реактор из
10 последовательного ряда питают свежим пероксидом водорода.

Заявителем было установлено, что при питании каждого реактора свежим пероксидом водорода становится невозможным конвертировать все количество применяемого пероксида водорода без значительного образования побочных продуктов и, следовательно, обеспечить оптимальную производительность.

Настоящее изобретение призвано устранить этот недостаток при помощи нового способа, который позволяет конвертировать 100% вводимого количества пероксида водорода при незначительном образовании побочных продуктов, не снижая при этом скорости реакции.

В этой связи объектом настоящего изобретения является способ получения оксирана
20 путем реакции олефина с пероксидным соединением в присутствии катализатора и растворителя по меньшей мере в двух расположенных последовательно реакторах, каждый из которых содержит часть катализатора, согласно которому в первый реактор вводят первую часть олефина, растворитель и полностью все количество пероксидного соединения в этом реакторе осуществляют эпоксидирование первой части олефина для
25 образования первой части оксирана, из этого реактора извлекают среду, содержащую первую часть образовавшегося оксирана, растворитель, неиспользованное пероксидное соединение и, возможно, неконвертированный олефин, в следующий реактор вводят среду и другую часть олефина, здесь же осуществляют эпоксидирование другой части олефина при помощи неиспользованного пероксидного соединения, извлеченного из первого
30 реактора, с образованием другой части оксирана и извлекают эту другую часть полученного таким образом оксирана.

Одним из существенных признаков настоящего изобретения является то, что пероксидное соединение вводят только в первый реактор. Следующий или следующие реакторы не питают, таким образом, свежим пероксидным соединением, а только
35 пероксидным соединением, присутствующим в среде, извлекаемой из предыдущего реактора, и не использованным в этом предыдущем реакторе. Как правило, в первый реактор вместе с пероксидным соединением вводят также воду. Тот факт, что в следующий(ие) реактор(ы) не добавляют пероксидное соединение, позволяет потреблять 100% общего количества применяемого пероксидного соединения, не снижая при этом
40 скорости реакции по сравнению со способом, в котором используют то же общее количество пероксидного соединения, но при этом каждый реактор питают свежим пероксидным соединением.

В способе согласно настоящему изобретению применяют установку, содержащую по меньшей мере два реактора эпоксидирования, расположенных последовательно и
45 соединенных между собой, за исключением по меньшей мере двух последовательных реакционных зон, расположенных в одном и том же реакторе. То есть используют отдельные реакторы. Каждый реактор питают олефином. Пероксидное соединение и растворитель вводят только в первый реактор. Каждый реактор содержит часть катализатора, которая остается в этом реакторе. Если катализатор присутствует в виде
50 стационарного слоя, то, как правило, нет необходимости принимать меры предосторожности для удержания катализатора в этом реакторе. Как вариант, катализатор может присутствовать в виде частиц, по меньшей мере часть которых находится в псевдооживленном состоянии, достигаемом при помощи жидкого потока, или механического

перемешивания, или при помощи газа. При использовании жидкого потока рекомендуется предусматривать зону выброса над текущим слоем для остановки движущихся частиц катализатора и/или предусматривать фильтр на выходе реактора.

5 Разумеется, установка может содержать более двух последовательно соединенных реакторов. В этом случае первый реактор последовательного ряда питают олефином, пероксидным соединением и растворителем, а каждый последующий реактор питают олефином и средой из предыдущего реактора последовательного ряда. Предпочтительно используют три последовательных реактора.

10 В способе согласно настоящему изобретению, как правило, в первом реакторе потребляется по меньшей мере 50% общего количества пероксидного соединения, введенного в первый реактор. Наилучшей производительности достигают при потреблении в первом реакторе по меньшей мере 70%. Чаще всего в первом реакторе потребляется не более 99%, предпочтительно не более 85%. Оставшаяся часть потребляется в следующем(их) реакторе(ах).

15 В соответствии с настоящим изобретением в способе предпочтительно применяют реакторы одинаковых размеров. Это позволяет осуществлять переход функций от одного реактора к другому, когда дезактивированный катализатор в реакторе заменяют свежим или регенерированным катализатором, не прерывая при этом работу установки (так называемый "карусельный" процесс).

20 Первый предпочтительный вариант реализации способа в соответствии с настоящим изобретением состоит в использовании катализатора в виде частиц, по меньшей мере часть которых находится в псевдооживленном состоянии, как описано в патентной заявке, поданной заявителем в тот же день, что и настоящая патентная заявка, и носящей название "Способ получения оксирана в присутствии катализатора в виде частиц" (содержание которой приводится в качестве ссылки). В этом случае рекомендуется предусматривать фильтр, через который проходит среда, выходящая из первого реактора, перед ее введением в следующий реактор. Этот вариант реализации обеспечивает однородное диспергирование катализатора в эпоксилирующей реакционной среде, нормальный теплообмен и, следовательно, облегчает контроль за температурой реакции.

30 Во втором варианте реализации способа в соответствии с настоящим изобретением входящую в следующий реактор среду подвергают расширению перед ее введением в этот следующий реактор. Этот вариант наиболее применим, когда эпоксирирование осуществляют под давлением или в присутствии соединения в газообразном состоянии. Этим газообразным соединением может быть тот же олефин (например, пропилен) или инертный газ, который вводят в эпоксилирующую реакционную среду для обеспечения перемещения оксирана и его извлечения из реактора, как описано в патентной заявке WO 99/48883, поданной на имя заявителя.

40 В третьем варианте реализации способа в соответствии с настоящим изобретением входящую в следующий реактор среду сначала подвергают обработке для отделения образовавшегося оксирана перед ее введением в этот следующий реактор. Целью этого варианта реализации является как можно более быстрое отделение оксирана от эпоксилирующей реакционной среды сразу после его образования, чтобы избежать образования побочных продуктов путем гидролиза или алкоголиза (метанолиза, если в качестве растворителя используют метанол) образованного оксирана. Преимуществом этого варианта реализации является обеспечение повышенной избирательности. Разделяющей обработкой предпочтительно является дистилляция, как описано в патентной заявке, поданной на имя заявителя в тот же день, что и настоящая патентная заявка, и озаглавленной "Способ получения оксирана, включающий в себя отделение оксирана от реакционной среды" (содержание которой приводится в качестве ссылки).

50 Предпочтительный вариант реализации способа в соответствии с настоящим изобретением схематически показан на фиг.1. В данном предпочтительном варианте первый реактор 1 содержит часть катализатора, предпочтительно в виде псевдооживленного слоя 2. Реактор 1 питают первой частью олефина через трубопровод 3,

а затем через трубопровод 4 (пероксидным соединением – через трубопровод 5, а затем – через трубопровод 4*, а растворителем – через трубопровод 4 от другой части установки, которая будет описана ниже. В первом реакторе первая часть олефина реагирует с пероксидным соединением в присутствии катализатора с образованием первой части оксирана. Выходящая через трубопровод 6 из реактора 1 среда содержит растворитель, первую часть оксирана, неиспользованное пероксидное соединение и неконвертированный олефин. Эта среда проходит через фильтр 7 и подается по трубопроводу 8 в емкость 9, где она подвергается расширению. Затем по трубопроводу 10 эта среда подается в дистилляционную колонну 11. В верхней части этой дистилляционной колонны 11 извлекают смесь оксирана и неконвертированного олефина. Эту смесь по трубопроводу 12 подают в конденсатор 13, где оксиран отделяется от неконвертированного олефина. Неконвертированный олефин возвращают в реактор 1 через трубопроводы 14, 3 и 4. Первую часть оксирана в виде конечного продукта извлекают через трубопровод 15. В нижней части дистилляционной колонны 11 отбирают среду, содержащую растворитель, не использованное в реакторе 1 пероксидное соединение и, возможно, часть неконвертированного олефина. Эту среду, часть которой может быть, в случае необходимости, рециклирована в реактор 1 по трубопроводу 30, подают по трубопроводу 16 во второй реактор 17, содержащий другую часть катализатора, предпочтительно в виде псевдоожиженного слоя 18. Второй реактор 17 питают второй частью олефина через трубопровод 19. Во втором реакторе 17 вторая часть олефина реагирует с пероксидным соединением, не использованным в первом реакторе, в присутствии катализатора 18 с образованием второй части оксирана. Предпочтительно во втором реакторе 17 условия являются такими, чтобы использовалось все количество пероксидного соединения, поступившего из первого реактора. Выходящая из реактора 17 по трубопроводу 20 среда содержит в этом случае растворитель, вторую часть оксирана и неконвертированный олефин. Эта среда проходит через фильтр 21 и по трубопроводу 22 подается в емкость 23, где подвергается расширению. После этого через трубопровод 24 среду направляют во вторую дистилляционную колонну 25. В верхней части этой дистилляционной колонны 25 получают смесь второй части оксирана и неконвертированного олефина. Эту смесь через трубопровод 26 подают в конденсатор 27, где происходит отделение оксирана от неконвертированного олефина. Неконвертированный олефин возвращают в реактор 1 по трубопроводам 28, 14, 3 и 4. Вторую часть оксирана в виде готового продукта отбирают по трубопроводу 29. В нижней части дистилляционной колонны 25 отбирают растворитель, который по трубопроводу 4 возвращают в первый реактор 1, и отходы в виде воды, которые удаляют по трубопроводу 31.

Катализатор, используемый в способе согласно настоящему изобретению, предпочтительно содержит в качестве активного элемента цеолит, предпочтительно титаносодержащий цеолит. Под титаносодержащим цеолитом понимают твердое вещество, содержащее кремнезем с микропористой кристаллической структурой цеолитового типа, в которой несколько атомов кремния заменены атомами титана. Титаносодержащий цеолит предпочтительно имеет кристаллическую структуру типа ZSM-5, ZSM-11, ZSM-12, MCM-41, ZSM-48. Он может также иметь кристаллическую структуру бета-цеолитового типа, предпочтительно не содержащую алюминий. Хорошо подходят цеолиты с диапазоном инфракрасного поглощения, составляющим примерно $950-960\text{ см}^{-1}$. Предпочтительны титаносодержащие цеолиты силикалитового типа. Наиболее предпочтительные из них отвечают формуле $x\text{TiO}_2(1-x)\text{SiO}_2$, где x составляет от 0,0001 до 0,5, предпочтительно от 0,001 до 0,05. Материалы данного типа, известные под названием TS-1, имеют микропористую кристаллическую цеолитовую структуру, аналогичную структуре цеолита ZSM-5.

Используемый в способе согласно настоящему изобретению катализатор предпочтительно имеет форму частиц, получаемых путем экструзии, как описано в патентной заявке WO 99/24164, поданной на имя заявителя, или при помощи спрей-

технологии, как описано в патентной заявке WO 99/241164, поданной на имя заявителя. Содержание этих двух заявок включено в настоящую заявку в качестве ссылки.

5 Применяемый в способе согласно настоящему изобретению растворитель может быть выбран из линейных или разветвленных насыщенных алифатических спиртов. Спиртовой растворитель предпочтительно содержит до 10 атомов углерода, предпочтительно от 1 до 6 атомов углерода. В качестве примеров можно упомянуть метанол и этанол. Предпочтительным является метанол.

10 Количество применяемого в первом реакторе растворителя, как правило, составляет по меньшей мере 25 вес.% от веса жидкой реакционной среды, присутствующей в первом реакторе, в частности по меньшей мере 40 вес.%, например, по меньшей мере 50 вес.%. Обычно это количество не превышает 99 вес.%, в частности 95 вес.%.

15 Молярное соотношение между количеством олефина и количеством пероксидного соединения, участвующих в способе согласно настоящему изобретению, как правило, составляет по меньшей мере 0,1, в частности по меньшей мере 0,2 и предпочтительно по меньшей мере 0,5. Чаще всего это молярное соотношение составляет не более 100, в частности не более 50 и предпочтительно не более 25.

Способ в соответствии с настоящим изобретением можно осуществлять в непрерывном или периодическом режиме.

20 Когда способ в соответствии с настоящим изобретением осуществляют в непрерывном режиме, то, как правило, пероксидное соединение используют в первом реакторе в количестве, составляющем по меньшей мере 0,005 моль в час и на грамм катализатора, присутствующего в первом реакторе, в частности по меньшей мере 0,01 моль. Количество пероксидного соединения обычно меньше или равно 25 моль и, в частности, меньше или равно 10 моль. Предпочтение отдается количеству пероксидного соединения, 25 превышающему или равному 0,03 моль и меньшему или равному 2,5 моль.

30 В способе согласно настоящему изобретению пероксидное соединение используют предпочтительно в виде водного раствора. Как правило, водный раствор содержит по меньшей мере 2 вес.% пероксидного соединения, в частности по меньшей мере 5 вес.%. Чаще всего он содержит не более 90 вес.% пероксидного соединения, в частности 70 вес.%.

35 Температура реакции между олефином и пероксидным соединением может варьировать от 10 до 125°C. В предпочтительном варианте, описанном в патентной заявке EP 99/08703, поданной на имя заявителя, она превышает 35°C для компенсации постепенной дезактивации катализатора. Температура может превышать или быть равной 40°C и предпочтительно превышать или быть равной 45°C. Наиболее предпочтительна температура, превышающая или равная 50°C. Температура реакции предпочтительно меньше 100°C.

40 В способе согласно настоящему изобретению реакция между олефином и пероксидным соединением может осуществляться при атмосферном давлении. Она может также осуществляться под давлением. Как правило, это давление не превышает 40 бар. На практике наиболее предпочтительным является давление в 20 бар.

45 Пероксидные соединения, которые могут использоваться в способе согласно настоящему изобретению, являются пероксидными соединениями, содержащими одну или несколько пероксидных функциональных групп (-OON), которые могут высвобождать активный кислород и способны обеспечивать эпексидирование. Хорошие результаты можно получить при использовании неорганических пероксидных соединений. Для способа подходят пероксид водорода и пероксидные соединения, которые могут образовывать пероксид водорода в условиях реакции эпексидирования. Более предпочтителен пероксид 50 водорода.

Если используют пероксид водорода, то для способа в соответствии с настоящим изобретением следует использовать водный раствор пероксида водорода в сыром, то есть в неочищенном виде. Например, можно использовать раствор, полученный путем простой экстракции практически чистой водой из смеси, получаемой при окислении по меньшей

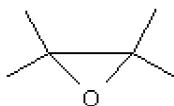
мере одного алкилантрагидрохинона (способ, называемый "способ АО авто-окисления") без последующей промывки и/или очистки. Эти исходные растворы пероксида водорода, как правило, содержат от 0,001 до 10 г/л органических примесей, выраженных в ООУ (общий органический углерод). Они обычно содержат катионы металлов (таких как щелочные или

5 щелочно-земельные металлы, например, натрий) и анионы (такие как фосфаты, нитраты) с содержанием от 0,01 до 10 г/л.

В другом варианте способа можно использовать водный раствор пероксида водорода, полученного путем прямого синтеза из кислорода и водорода в присутствии метанола.

Оксиран, который может быть получен при помощи способа в соответствии с настоящим

10 изобретением, является органическим соединением, содержащим группу, отвечающую общей формуле



15 Оксиран обычно содержит от 2 до 10 атомов углерода, предпочтительно от 3 до 6 атомов углерода. Оксираны, предпочтительно получаемые при помощи способа в соответствии с настоящим изобретением, представляют собой 1,2-эпоксипропан и 1,2-эпокси-3-хлорпропан. В качестве оксирана более предпочтителен 1,2-эпоксипропан.

20 Наиболее подходящими для способа в соответствии с настоящим изобретением олефинами являются олефины, содержащие, как правило, от 2 до 10 атомов углерода и предпочтительно от 3 до 6 атомов углерода. Для этого подходят пропилен, бутилен и аллилхлорид. Более предпочтительны пропилен и аллилхлорид. Наиболее предпочтительным является пропилен.

25 В способе в соответствии с настоящим изобретением может оказаться необходимым контролировать рН жидкой фазы. Например, во время реакции между олефином и пероксидным соединением следует поддерживать рН жидкой фазы в пределах от 4,8 до 6,5, например, путем добавления основания (гидроксида натрия) в среду

30 эпексидирования, как рекомендовано в патентной заявке WO 99/48882, поданной на имя заявителя (содержание которой включено в настоящую патентную заявку в качестве ссылки). Это основание может быть введено только в один реактор (например, первый реактор) или в несколько реакторов. Предпочтительно его вводят в каждый реактор.

Реакцию между олефином и пероксидным соединением можно осуществлять в присутствии соли, такой как хлорид натрия, как описано в патентной заявке WO EP

35 99/08703 на имя заявителя (содержание которой включено в настоящую патентную заявку в качестве ссылки). Эту соль можно вводить только в один реактор (например, первый реактор) или в несколько реакторов. Предпочтительно ее вводят в каждый реактор.

40 Может быть предпочтительным вводить олефин разбавленным одним или несколькими алканами. Например, можно вводить в реакторы для эпексидирования жидкость, содержащую олефин, а также по меньшей мере 10 об.% (в частности, 20 об.%, например, по меньшей мере 30 об.%) одного или нескольких алканов. Например, в случае применения пропилена его можно смешивать по меньшей мере с 10 об.% пропана, когда в реактор вводят рециркулируемый неконвертированный пропилен. Можно так же использовать источник пропилена, не полностью очищенный от пропана.

45 Нижеследующие примеры приведены для иллюстрации настоящего изобретения без ограничения его объема.

В примерах 1 и 2 расчеты производились при помощи программного обеспечения ASPEN PLUS®, выпускаемого компанией "ASPEN TECHNOLOGY INC.", с введением кинетических параметров реакции, определенных на основании описанных опытных

50 испытаний, и равновесий жидкость-пар, взятых из справочной литературы.

Сравнительный пример 1

В этом примере синтез оксида пропилена осуществляют в двух последовательных реакторах с промежуточным отделением оксида пропилена, образованного в первом реакторе, в ректификационной колонне. Половину H_2O_2 подают в первый реактор и

половину – во второй. 326,5 кмоль/час пероксида водорода с 1100 кмоль/час воды, делят на две равные части, каждая из которых содержит 163,5 кмоль/час пероксида водорода и 550 кмоль/час воды; первую часть смешивают с 1500 кмоль/час метанола, 250 кмоль/час пропилена и с фракцией, рециркулируемой из нижней части ректификационной колонны под давлением, достаточным для растворения всего пропилена при температуре реакции. Реакционную среду непрерывно подают при 70°C в исследовательский реактор, содержащий 600 кг катализатора. При помощи соответствующей системы охлаждения в реакторе поддерживают температуру в 70°C.

Из реактора эфлюент направляют в ректификационную колонну, содержащую 50 теоретических тарелок (в том числе конденсатор и испаритель); питание осуществляют на уровне 10-й теоретической тарелки (считая от конденсатора); колонна работает при 1,1 абсолютного бара (давление в верхней части колонны); температура в верхней части колонны поддерживается на уровне 40°C (частично испаренный дистиллят); установленный уровень молярного орошения равен 1; общий расход дистиллята устанавливают в размере 600 кмоль/час.

Извлекаемую в нижней части колонны обедненную смесь с низким содержанием пропилена делят на две части, первую из которых, содержащую 90% объема смеси, рециркулируют для питания первого реактора; вторую, содержащую остаток смеси, полученной в нижней части ректификационной колонны, смешивают с 200 кмоль/час пропилена под давлением, достаточным для растворения всего пропилена при температуре реакции, и непрерывно вводят при 70°C во второй исследовательский реактор, содержащий 820 кг катализатора, при этом во втором реакторе при помощи соответствующей системы охлаждения поддерживается температура в 70°C.

Эфлюент из второго реактора содержит 24,5 кмоль/час неконвертированного пероксида водорода, 209,4 кмоль/час оксида пропилена и 87,7 кмоль/час побочных продуктов (в основном метоксипропанол и пропандиол); дистиллят колонны содержит 56,2 кмоль/час оксида пропилена; выход C₃ достигает 64,1% при степени конверсии пероксида водорода 92,4%.

Пример 2 (согласно изобретению)

В этом примере синтез оксида пропилена осуществляют в двух последовательных реакторах с промежуточным отделением оксида пропилена, образовавшегося в первом реакторе.

326,5 кмоль/час пероксида водорода в присутствии 1100 кмоль/час воды смешивают с 1500 кмоль/час метанола, 250 кмоль/час пропилена и с фракцией, рециркулируемой из нижней части ректификационной колонны, под давлением, достаточным для растворения всего пропилена при температуре реакции. Реакционную среду непрерывно вводят при 70 °C в исследовательский реактор, содержащий 600 кг катализатора. В реакторе поддерживают температуру 70°C при помощи соответствующей системы охлаждения.

Эфлюент из реактора направляют в ректификационную колонну, содержащую 50 теоретических тарелок (в том числе конденсатор и испаритель); питание осуществляют на уровне 10-й теоретической тарелки (считая от конденсатора); колонна работает при 1,1 абсолютного бара (давление в верхней части колонны); температура в верхней части колонны поддерживается на уровне 40°C (частично испаренный дистиллят); установленный уровень молярного орошения равен 1; общий расход дистиллята устанавливают в размере 600 кмоль/час.

Извлекаемую в нижней части колонны обедненную смесь с низким содержанием пропилена делят на две части, первую из которых, содержащую 90% объема смеси, рециркулируют для питания первого реактора; вторую, содержащую остаток смеси, полученной в нижней части ректификационной колонны, смешивают с 200 кмоль/час пропилена под давлением, достаточным для растворения всего пропилена при температуре реакции, и непрерывно вводят при 70°C во второй исследовательский реактор, содержащий 820 кг катализатора, при этом во втором реакторе при помощи

соответствующей системы охлаждения поддерживается температура в 70°C.

Эфлюент из второго реактора содержит 1,9 кмоль/час неконвертированного пероксида водорода, 256,5 кмоль/час оксида пропилена и 62,2 кмоль/час побочных продуктов (в основном метоксипропанол и пропандиол); дистиллят колонны содержит 88,4 кмоль/час оксида пропилена; выход C₃ достигает 78,6% при степени конверсии пероксида водорода 99,4%.

Формула изобретения

1. Способ получения оксирана путем реакции олефина с пероксидным соединением в присутствии катализатора и растворителя по меньшей мере в двух расположенных последовательно реакторах, каждый из которых содержит часть катализатора, согласно которому в первый реактор вводят первую часть олефина, растворитель и полностью все количество пероксидного соединения, в этом реакторе осуществляют эпоксидование первой части олефина с образованием первой части оксирана, из этого реактора извлекают среду, содержащую первую часть полученного оксирана, растворитель, неиспользованное пероксидное соединение и, возможно, неконвертированный олефин, в следующий реактор вводят среду и другую часть олефина, здесь же осуществляют эпоксидование другой части олефина при помощи неиспользованного пероксидного соединения, извлеченного из первого реактора, с образованием другой части оксирана и извлекают эту другую часть образованного таким образом оксирана.

2. Способ по п.1, в котором 50 - 99% общего количества пероксидного соединения, используемого в первом реакторе, расходуется в первом реакторе, при этом оставшуюся часть используют в следующем(их) реакторе(ах).

3. Способ по п.1 или 2, в котором все реакторы имеют одинаковые размеры.

4. Способ по любому из пп.1–3, в котором катализатор присутствует в каждом реакторе в виде частиц, по меньшей мере часть из которых находится в псевдооживленном состоянии.

5. Способ по п.4, в котором выходящая из первого реактора среда проходит через фильтр перед введением в следующий реактор.

6. Способ по любому из пп.1–5, в котором входящую в следующий реактор среду перед введением в следующий реактор сначала подвергают расширению.

7. Способ по любому из пп.1–6, в котором входящую в следующий реактор среду перед введением в следующий реактор сначала подвергают обработке для отделения образовавшегося оксирана.

8. Способ по п.7, в котором разделяющая обработка является дистилляцией.

9. Способ по любому из пп.1–8, в котором оксиран представляет собой эпихлоргидрин, олефин представляет собой аллилхлорид, пероксидное соединение представляет собой пероксид водорода, растворитель является метанолом, а катализатор содержит TS-1.

10. Способ по любому из пп.1–8, в котором оксиран является оксидом пропилена, олефин является пропиленом, пероксидное соединение является пероксидом водорода, растворитель является метанолом, а катализатор содержит TS-1.

45

50