

257036



P - 19.492

1203 S

Rehecha I

257036

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud

d e

P A T E N T E D E I N V E N C I O N

formulada el 1 de Abril de 1.960, con el nº 257.036

e n

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de STAMICARBON N.V., entidad holandesa, establecida en
2 van der Maesenstraat, Heerlen, Holanda, por:

"UN PROCEDIMIENTO PARA LA FABRICACION DE MELAMINA"

La presente invención se refiere a un método perfeccionado para preparar melamina por calentamiento de urea y/o cualquiera de los productos de pirolisis de urea, por ejemplo, biuret.

Es bien sabido que pueden obtenerse buenos rendimientos de melamina partiendo de urea o de sus productos de pirolisis, calentando estas sustancias a una temperatura de 220-400° C. en presencia de un catalizador sólido adecuado de área superficial interna grande (por ejemplo gel de sílice) y, preferiblemente, en presencia de NH_3 . En el procedimiento bien conocido antes mencionado, la urea o el otro material de partida de que se trate, se

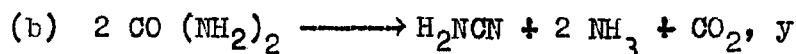


257036

introduce preferiblemente por la parte inferior de un lecho fluidificado de catalizador, manteniendo el estado fluidificado por medio de una corriente de NH_3 .

En relación con el mecanismo de reacción, la realización antes mencionada del procedimiento no es ideal. En efecto, se ha observado que la reacción principal de la síntesis de melamina:

(a) $6 \text{CO} (\text{NH}_2)_2 \longrightarrow \text{C}_3\text{N}_6\text{H}_6 + 3 \text{CO}_2 \uparrow + 6 \text{NH}_3 \uparrow$ está constituida por dos reacciones consecutivas:

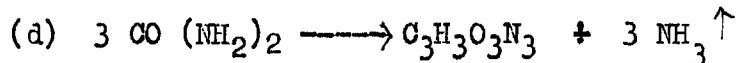


Se ha observado ahora que la primera reacción (b) es fuertemente endotérmica y transcurre de un modo mucho más rápido que la segunda reacción (c), débilmente endotérmica.

Es sabido que, en relación con el elevado coeficiente de transferencia térmica que se obtiene con un lecho catalítico fluidificado, dicho lecho catalítico fluidizado se considera particularmente conveniente para una reacción fuertemente endotérmica que transcurre a un nivel de temperatura alto.

Por tanto, en principio, es correcto que la primera reacción (b) se realice de modo que transcurra en un lecho catalítico fluidizado. Además, este lecho fluidizado es favorable en relación con el mezclado rápido necesario con el lecho catalítico de la urea que ha de añadirse como sustancia sólida o en estado fundido, puesto que, si el mezclado se realiza de un modo mucho más lento, que tiene lugar cuando se utiliza un lecho catalítico fijo, puede suceder que la urea no se descomponga según la reacción (b) sino según la reacción:

257036



formándose grumos de ácido ciánico sobre el catalizador, que bloquean el paso a través del lecho.

5 Se ha observado ahora que, en un lecho catalítico fluidizado a una carga relativamente elevada, la reacción (b) transcurre prácticamente hasta hacerse completa, pero la reacción (c) sólo se verifica en pequeña escala. Para que la reacción (c) pueda hacerse total y, por tanto obtener un mayor rendimiento de melamina, habría que disminuir la carga sobre el lecho fluidizado, o
10 bien emplear un reactor de lecho fluidizado mayor. Sin embargo, para la reacción (c), no son de importancia las conocidas ventajas de un lecho fluidizado, puesto que la reacción (c) tiene poca influencia calorífica; aquí es de poca importancia una temperatura
15 adecuadamente constante, así como también el mezclado satisfactorio de los reaccionantes con el catalizador, puesto que, en el caso de la reacción (c), los reaccionantes son gaseosos. Teniendo en cuenta estas consideraciones, la reacción (c) debe hacerse preferiblemente en un lecho catalítico fijo.

20 De acuerdo con la invención, pues, se prepara melamina calentando urea y/o uno o más de los productos de pirolisis de la misma a 220-400° C., en presencia de NH₃ y de un catalizador adecuado, suministrándose primero el material de partida a uno o
25 más lechos catalíticos fluidizados, donde se mantiene el catalizador en estado fluidizado mediante NH₃, y los vapores resultantes, junto con NH₃, se hacen pasar desde el lecho o lechos fluidizados a través de un lecho o lechos de catalizador fijos.

El procedimiento de acuerdo con la invención tiene las siguientes ventajas en comparación con el procedimiento antiguo:

30 1. El lecho fluido puede ser mucho menor que cuando no se utiliza lecho fijo. En el procedimiento de acuerdo con la inven-

257036



ción, el lecho fluido solo necesita contener de 5 a 10% de la cantidad total de catalizador que hay que emplear. Esto significa que el aparato de lecho fluidizado, que está sujeto a fuerzas de corrosión y erosión, puede ser mucho menor y, por tanto, menos costoso.

2. Cuando se utiliza un lecho fluido menor, se disminuye el desgaste del catalizador por frotamiento y se forma menos polvo, de manera que hay que reemplazar periódicamente menos catalizador.

3. Se necesita menos NH_3 para lograr un estado fluidizado conveniente del catalizador para una carga de urea determinada. Se han obtenido buenas cifras de conversión de melamina para una relación NH_3 /urea tan baja como 1,5:1-5:1, estando expresada la cantidad de NH_3 en $\text{m}^3/\text{h.}$, y la cantidad de urea en $\text{kg}/\text{h.}$, mientras que se necesita, en el procedimiento conocido, una relación NH_3 /urea, por ejemplo, de 9:1.

4. Teniendo en cuenta el menor coste de un lecho fluidizado más pequeño, la invención puede ponerse en práctica ventajosamente utilizando varios lechos fluidizados para un aparato de lecho fijo, de manera que, si surgieran dificultades operativas en la parte más sensible del aparato, es decir, en la parte en que se suministra inicialmente el material de partida, no es necesario parar la totalidad del aparato, sino solamente cortar el lecho fluidizado que no funciona; los lechos fluidizados activos, cuyo funcionamiento no es afectado, mantendrán el proceso en marcha.

5. Una porción del catalizador, es decir, la contenida en el lecho o lechos fijos, puede tener un diámetro de partícula considerablemente mayor que lo que es normalmente conveniente en un lecho fluidizado. Se ha encontrado que el uso de un catalizador

257 036



en el lecho fijo con un diámetro de partícula varias veces mayor (incluso hasta 10 veces) que lo usual en un lecho fluido, no ejerce una influencia desfavorable sobre el rendimiento y, como resultado del mayor diámetro de partícula, la resistencia al flujo gaseoso a través del lecho es menor. La invención comprende un aparato para realizar este procedimiento.

El dibujo adjunto representa de modo esquemático una sección longitudinal y un aparato de acuerdo con la invención.

El aparato comprende un reactor de lecho fluido 1, conectado con un reactor tubular 3 por medio de un conducto 2. Los reactores son de un material resistente a la corrosión. Tanto el aluminio como el acero austenítico al cromo níquel, tipo V 4 A, han dado resultados muy satisfactorios. El reactor de lecho fluido comprende una rejilla 4 con un lecho 5 de un adsorbente de área superficial interna grande, que descansa sobre la misma, un ciclón colector de polvo 6, un conducto de alimentación 7 para suministrar el material de partida al lecho fluidizado, y un conducto de alimentación 8 para suministrar el gas de fluidización que ha de mantener el lecho en estado fluidizado. El reactor tubular 3 contiene un grupo de tubos 9, que están rellenos con partículas del mismo adsorbente. Si se desea, puede hacerse pasar un agente de calefacción o refrigerante a través del espacio que queda entre los tubos. En la parte superior y en el fondo, los tubos están fijados a placas de tubos 10 y 11. Sobre la placa de tubos 11, está el conducto de salida 12 para los gases que fluyen a través del reactor.

En el lecho fluido 5, hay tubos de calefacción 13, por los cuales puede pasar un agente de calefacción, por ejemplo, vapor de agua. En lugar de los tubos, pueden usarse varillas macizas que se ponen a una temperatura elevada haciendo pasar una corriente eléctrica a través de las mismas; para contrarrestar el desgaseo

257036



te como resultado de la corrosión y la erosión, las varillas se fabricarán preferiblemente de material conductor duro, por ejemplo, SiC o MoSi₂.

5 Cuando el equipo está funcionando, las partículas de catalizador se mantienen en el estado fluidizado suministrando NH₃. A través del conducto 7. se introduce urea sólida o fundida. Los productos de descomposición formados a partir de la urea pasan por el ciclón 6, junto con el NH₃, siendo retenido el polvo de catalizador por dicho ciclón y retornando a lecho fluido; los gases des-
10 empolvados se introducen desde la parte superior del ciclón a los tubos 9, donde tiene lugar la conversión posterior. Por el conducto 12, se descarga una mezcla de NH₃ y vapor de melamina, después de lo cual la melamina se separa del NH₃ por el procedimiento conocido.

15 Ejemplo 1

Utilizando el aparato descrito anteriormente y un adsorbente de gel de sílice cuyo diámetro de partícula era de 0,25-0,50
20 mm. en el lecho fluido, y 4 mm. en los tubos, manteniendo la temperatura del lecho fluido a 350° C y la del lecho fijo a 330° C. se introdujo urea por el conducto 7 a razón de 55 kg. por hora y NH₃ por el conducto 8, a 250 m³ por hora. Por lo tanto, la relación NH₃/urea fué 4,5:1. El análisis de la mezcla gaseosa descar-
25 gada por el conducto 8 indicó que la urea cargada se había convertido en melamina con un rendimiento que llegaba hasta 90 % con relación al que se puede conseguir teóricamente.

30 Ejemplo 2

Bajo condiciones análogas a las descritas en el Ejemplo 1,



257036

pero con urea fundida rociada sobre el lecho fundido a razón de 100 kg. por hora, y alimentando NH_3 a razón de 300 m³ por hora, se obtuvo un rendimiento de 85% en la conversión a melamina.

El procedimiento de acuerdo con la invención no se limita a la realización a presión atmosférica que se ha utilizado en la puesta en práctica del procedimiento según se ha descrito en los ejemplos, sino que pueden emplearse presiones superiores a la atmosférica.

La presente solicitud, que corresponde a la presentada en Holanda el día 2 de Abril de 1.959, bajo el número 237.750, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

N O T A

Los puntos de invención, propia y nueva, que se presentan para que sean objeto de la presente solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

1º. - Un procedimiento para la fabricación de melamina calentando urea y/o uno o más productos de pirólisis de la misma a 220-400° C en presencia de NH_3 y de un catalizador adecuado, siendo primero el material de partida suministrado a uno o más lechos de catalizador fluidificados, en los cuales el catalizador es mantenido en estado fluidificado por NH_3 , y los vapores resultantes, junto con NH_3 , son pasados desde el lecho o lechos fluidificados a través de un lecho o lechos de catalizador fijos.

2º. - Un procedimiento según el punto 1º, en el cual la relación NH_3 :urea es de 1,5:1 a 5:1 (NH_3 en m³ y urea en kgs. por unidad de tiempo).



257036

3º. - Un procedimiento según los puntos 1º ó 2º, en el cual la cantidad de adsorbente contenida en el lecho fijo es 10-20 veces mayor que la cantidad contenida en el lecho fluido.

5 4º. - Un procedimiento según cualquiera de los puntos anteriores, en el cual el tamaño de partícula del catalizador contenido en el lecho fijo es varias veces mayor que el tamaño de partícula en el lecho fluido.

5º. - Un procedimiento para la fabricación de melamina.

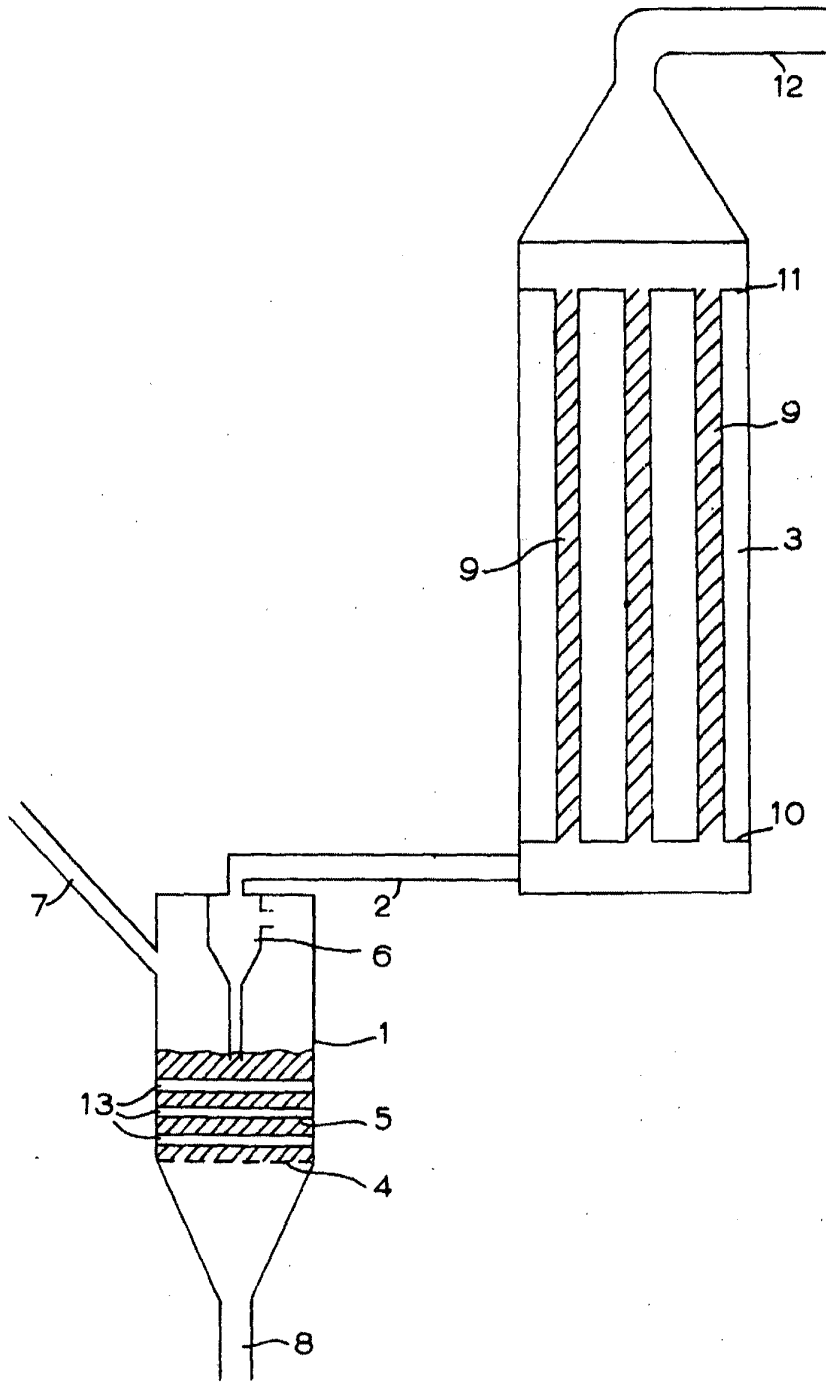
10 Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, representado en el dibujo que se acompaña y para los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de ocho hojas escritas a máquina por una sola de sus caras.

Madrid,

21 JUL 1956
P. A.
[Handwritten signature]

257 036



Carl