

MG.

272881



PATENTE DE INVENCION

a favor de

F O R E T, S. A. - de nacionalidad española - domiciliada
en Calle Marina, nº 6 - B A R C E L O N A.

por:

"Mejoras en los procedimientos para llevar a cabo hidrogena-
ciones y otras reacciones gas/líquido".

-----:oOo:-----

M e m o r i a D e s c r i p t i v a

Esta invención se refiere a los procesos para
efectuar hidrogemaciones y otras reacciones gas/líquido ta-
les como oxidaciones, halogenaciones.



En su aspecto más amplio la presente invención proporciona un proceso para llevar una reacción gas/líquido tal como la hidrogenación, oxidación o halogenación de un compuesto líquido, especialmente compuesto orgánico líquido, o, si el compuesto es sólido, una solución del compuesto en un disolvente apropiado, cuyo proceso comprende el alimentar el compuesto líquido o solución a un reactor a través, por lo menos, de un conducto de alimentación dentro del cual se introduce por lo menos, una porción del reactante gaseoso. Es preferible que la mezcla gas/líquido se introduzca en el reactor convenientemente por debajo del nivel del líquido o la solución, que haya reaccionado o no haya reaccionado, ya presente en el reactor, de forma que el reactante gaseoso de la mezcla emergiendo dentro del reactor pueda dispersarse en un gran volumen del líquido o solución allí contenida. Preferiblemente la mezcla se introduce ininterrumpidamente y se retira del reactor a través de una salida emplazada a un nivel superior al de la entrada. La mezcla se introduce ventajosamente en el reactor a través de un conducto que se prolonga dentro de la zona inferior del reactor.

En la aplicación de este proceso a la hidrogenación de compuestos orgánicos, por ejemplo antraquinona o antraquinonas sustituidas se prefiere emplear un sensible exceso de hidrógeno por encima de la cantidad que se necesita para la efectiva hidrogenación.

En todos los casos es preferible emplear un catalizador adecuado en el reactor, por ejemplo se prefiere un catalizador de paladio cuando se lleva a cabo el proceso de hidrogenación citado anteriormente.

29 NOV



La invención se refiere más concretamente a un proceso para llevar a cabo la fase de hidrogenación del proceso cíclico para producir peróxido de hidrógeno a partir de una o más antraquinonas u otros compuestos orgánicos adecuados. En uno de tales procesos cíclicos una alquil antraquinona en un disolvente orgánico se hidrogena en un hidrogenador mediante hidrógeno en presencia de un catalizador, para formar la correspondiente antrahidroquinona la cual, después de separarla (por ejemplo por filtración) del catalizador, se oxida para producir peróxido de hidrógeno con regeneración de la alquil antraquinona. La solución alquil antraquinona resultante se la recicla de nuevo al hidrogenador después de separar el peróxido de hidrógeno mediante extracción acuosa. Se observará que en lugar de una alquil antraquinona pueden emplearse otras antraquinonas sustituidas adecuadas o incluso la misma antraquinona, y el término antraquinona tal como se emplea aquí incluye tales antraquinonas sustituidas. Sin embargo, cualquiera que sea la antraquinona(s) que se escoja, no se requiere alteración alguna de las etapas del tipo de proceso cíclico descrito, el cual, en lo sucesivo, se denominará un proceso cíclico del tipo a que se hace referencia.

Hasta ahora la etapa de la hidrogenación se ha llevado a cabo en un hidrogenador provisto en su zona inferior de un elemento poroso a través del cual se hace pasar el hidrógeno que de esta forma se dispersa sobre una extensa área del hidrogenador. Se ha encontrado, no obstante, que los elementos porosos son propensos a la obturación, por ejemplo, por el material catalizador que circula dentro del hidrogenador. Así pues, los elementos tienen que ser renova-

29 NOV 1957

272881

dos regularmente o limpiados conduciendo a una interrupción de la continuidad del proceso cíclico.

De acuerdo con una forma de ejecución, la presente invención provee también, un proceso cíclico de la clase referida en el que la etapa de hidrogenación comprende la alimentación de la solución de antraquinona dentro del hidrogenador (convenientemente por debajo del nivel de la solución reaccionada/o no reaccionada ya que se halla allí) a través por lo menos de un conducto de alimentación dentro del cual se introduce el hidrógeno necesario para la hidrogenación, y en el que después de las etapas de oxidación y extracción del peróxido la solución resultante se recicla de nuevo al mencionado conducto o conductos de alimentación. Al entrar en el hidrogenador, el hidrógeno de la mezcla de alimentación puede dispersarse en todo el gran volumen de la solución allí contenida.

Preferentemente en tal proceso cíclico la solución hidrogenada que pasa a la etapa de oxidación se filtra primero para separar el catalizador y ventajosamente una parte de la solución se hace pasar en acción de arrastre alrededor de los filtros y seguidamente es devuelta, sin filtrar, al mencionado conducto o conductos de alimentación para posterior mezcla con hidrógeno.

En un proceso cíclico preferido, el hidrogenador está situado encima de los filtros y el hidrógeno se introduce dentro del conducto de alimentación al nivel corriente de los filtros y a una presión superior a la de la solución que encuentra, por lo que la solución cae por gravedad desde el hidrogenador a los filtros y la citada porción sin filtrar vuelve al conducto de alimentación donde se mezcla

29 NOV 1961

- 5 -

27283

con la solución reciclada procedente de la etapa de la extracción del peróxido de hidrógeno; esta mezcla se encuentra entonces con el hidrógeno entrante y es ayudada a subir por el efecto elevador de gases del hidrógeno hasta el hidrogenador.

5

El tratamiento se realiza ventajosamente en un aparato que comprende un reactor, un conducto de alimentación al reactor, terminando el conducto de alimentación en una bajante que pasa a la zona inferior del hidrogenador, con una salida de la solución reaccionada que procede del reactor emplazada encima de la salida de la bajante y una entrada de gas que comunica exteriormente con el conducto de alimentación del reactor.

10

El tratamiento se emplea ventajosamente para hidrogenar una antraquinona o antraquinona sustituida disuelta en un disolvente adecuado y en este caso el reactor es un hidrogenador que está convenientemente situado encima de un elemento filtrante, mientras la salida de la solución comunica con el elemento filtrante; dicho elemento filtrante tiene una salida de filtrado y una salida secundaria en los filtros sobre el lado del hidrogenador, comunicando dicha salida secundaria con el conducto de alimentación del hidrogenador por arriba de la entrada de hidrógeno, y dicha entrada está emplazada de tal forma que, al funcionar, el hidrógeno que por ella pasa comunica un efecto elevador de gas que ayuda a dirigir la solución hacia arriba hasta el hidrogenador.

15

20

25

Preferentemente el conducto de alimentación, más arriba de la entrada de hidrógeno, incorpora un eductor o dispositivo similar y la indicada salida secundaria comu-

30



nica con el conducto de alimentación en el cuello del educ-
tor o dispositivo similar.

Como via de ejemplo se describe a continuación
el proceso de acuerdo con la invención, haciendo referencia
al dibujo esquemático que se acompaña.

5 En un recipiente de hidrogenación -1- sustan-
cialmente cilíndrico y cerrado, se hace una apertura en
la parte superior para dar paso a un bajante -2- que se
prolonga hasta el nivel de la zona más inferior del reci-
10 piente. Después se hace otra apertura en la pared lateral
del hidrogenador a una altura adecuada por encima del termi-
nal del bajante. Una rama -3- conduce desde esta abertura
a un elemento filtrante -4- emplazado sobre el nivel del
suelo por debajo del hidrogenador -1-. La disposición
15 relativa del hidrogenador -1- y el elemento filtrante -7-
es tal que al usarlo habrá una caída de presión de varias
libras por pulgada cuadrada sobre el elemento -7-, trabajan-
do el hidrogenador sustancialmente a presión atmosférica.
El elemento filtrante está provisto de una salida para el
20 filtrado -5- y de una salida secundaria -6- en el lado del
hidrogenador de los filtros -7- de la unidad filtrante -4-
y, dicha salida secundaria -6- se conecta al conducto de
alimentación -8- al hidrogenador. El conducto de alimenta-
ción en este punto está dispuesto horizontalmente (o puede
25 elevarse a un ángulo de hasta 45°) y está provisto de un
educor -9-, la conexión desde la salida secundaria -6- emer-
ge dentro de la garganta del educor -9-.

Corriente abajo de esta unión se provee al con-
ducto de alimentación -8- de un orificio de entrada para el
30 suministro de hidrógeno procedente de un conducto -10-. En



este punto el conducto de alimentación se dobla hacia arriba en comunicación con el bajante -2-. La parte superior del hidrogenador se abre posteriormente para pasar el exceso de hidrógeno y está provista de un conducto de retorno de hidrógeno -11- (equipado con bomba) para reciclar cualquier exceso mediante un dispositivo adecuado -12- de extracción de líquido arrastrado.

Las fases que se verifican, son las siguientes:

Se alimenta una solución adecuada de antraquinona y/o antraquinona sustituida a través del conducto de alimentación -8- y el hidrógeno se introduce dentro del conducto de alimentación a una presión superior a la de la solución con la que se reúne. Dentro del hidrogenador -1- la solución es ayudada por el efecto elevador de gas del hidrógeno y la mezcla fluye dentro del hidrogenador por el terminal inferior del bajante -2-. La velocidad de salida desde el bajante -2- está controlada, por ejemplo, por el caudal de afluencia, diámetro y longitud del bajante de forma que sea suficiente para asegurar una buena dispersión del hidrógeno por toda la solución en el hidrogenador.

El hidrogenador -1- normalmente contiene un catalizador de hidrogenación y la hidrogenación se lleva a cabo en la forma conocida. El exceso de hidrógeno procedente del hidrogenador sale a través del conducto de reciclado del hidrógeno -11- y mediante bomba se envía a través de un separador de líquidos al conductor de alimentación de hidrógeno -10-. La solución hidrogenada pasa desde el hidrogenador -1- y a través de la mencionada rama -3- a la unidad filtrante -4- en donde se filtra una porción de la misma por los filtros -7-. El filtrado sale del elemento filtrante -4- a través

29 NOV



del conducto de salida del filtrado -5-. Sin embargo, a la
porción no filtrada se la hace pasar en acción de arrastre
alrededor de los filtros -7- y luego se devuelve, a través
de la salida secundaria -6-, al conducto de alimentación
5 de la solución -8- entrando en aquel conducto a través de
la garganta constreñida del eductor -9- de la misma. El
eductor tiene el efecto de absorber la solución devuelta
al conducto de alimentación -8- mezclándola íntimamente con
la nueva alimentación entrante. Luego, la alimentación pro-
cedente del eductor -9- se conduce y atraviesa la entrada
10 del hidrógeno -10- en donde se reúne con el hidrógeno y
desde allí sube hasta el hidrogenador -1-.

La referida acción de arrastre ayuda a arrastrar
el catalizador de los filtros -7-, el catalizador así ex-
traído se lleva naturalmente con la citada solución no fil-
15 trada por el conducto -6- al conducto de alimentación -8-
y desde allí de nuevo al hidrogenador -1-. El arrastre
puede ser ayudado además mediante un flujo periódico de re-
troceso, a través del conducto -5-, o sea que, mediante
20 bombado (por ejemplo por medio de una bomba en un conducto
con válvula que comunique con la conducción 5) se hace
retroceder parte del filtrado a través de los filtros -7-
durante un corto período de tiempo.

Se observará que en un proceso cíclico de
25 acuerdo con la invención, la solución que pasa por el conduc-
to de alimentación -8- y que entra en el eductor -9- será
la que proviene de la etapa de extracción del peróxido de
hidrógeno o de cualquier tratamiento de regeneración que
pueda seguir a aquella etapa. Además, el caudal de nueva
30 alimentación que va al eductor será igual a la cantidad de

29 NOV 1958



- 9 -

27288

filtrado sacada de los filtros de suerte que el volumen de líquido sea substancialmente constante en lo que es, en efecto, un circuito cerrado.

5 Es posible modificar los aparatos y el proceso descrito anteriormente. Así, el conducto de alimentación que va al hidrogenador podría ir a una entrada en la zona inferior del hidrogenador. Además el bajante podría estar equipado con paletas de giro u otros instrumentos de giro para ayudar a la dispersión del gas en el líquido. Tambien
10 puede modificarse el elemento filtrante, o reemplazarse por cualquier elemento de recambio. Podría emplearse más de un conducto de alimentación y se podría alimentar cada conducto con reactante gaseoso.

15 No es esencial introducir todo el reactante gaseoso en la conducción o conducciones de alimentación; es posible disponer de una entrada auxiliar al recipiente de reacción a través de la cual se pueda introducir el resto de aquel reactante.

20 Para efectuar una buena dispersión de hidrógeno (u otro gas) en la solución a medida que la mezcla emerge del bajante en el hidrogenador (u otro reactor) tiene que tenerse en cuenta diversos factores. Entre estos factores están los caudales de alimentación de la solución de antraquinona (u otra solución) y del hidrógeno (u otro gas),
25 altura vertical del efecto elevador del gas, longitud y diámetro interno del bajante, y caudales de recirculación. Sin embargo, por la teoría hidrodinámica se conoce muy bien la relación de varios de estos factores. Así pues resulta una relativa simple cuestión el tomar los factores tales
30 como la altura vertical adecuada de la elevación de gas, diá-

272881



metro interno y longitud adecuadas del bajante para dar el grado de dispersión deseado.

N O T A

Se reivindica como objeto de esta Patente de

5 Invención:

1.- Un procedimiento para llevar a cabo una reac-
ción gas/líquido tal como la hidrogenación, oxidación o halo-
genación de un compuesto líquido, especialmente un compuesto
orgánico líquido, o, si el compuesto es sólido, una solución
10 del compuesto en un disolvente apropiado, cuyo proceso com-
prende el alimentar el compuesto líquido o solución al inte-
rior de un reactor a través de por lo menos un conducto
de alimentación dentro del cual se introduce por lo menos
una porción del reactante gaseoso.

15 2.- Un proceso según la reivindicación 1 en el
que la mezcla gas/líquido se alimenta al interior del reac-
tor convenientemente por debajo del nivel del líquido o solu-
ción reaccionado y/o sin reaccionar, ya existente en el
reactor.

20 3.- Un proceso según la reivindicación 1 o rei-
vindicación 2, en el que la mezcla es alimentada continua-
mente al reactor y la solución reaccionada se retira conti-
nuamente del reactor a través de una salida situada por enci-
ma del nivel de entrada.

25 4.- Un proceso según la reivindicación 2 ó rei-
vindicación 3 en el que la mezcla se alimenta al reactor
a través de un bajante que se prolonga dentro de la zona
inferior del reactor.

5.- Un proceso según cualquiera de las anterio-



res reivindicaciones en el que la reacción gas/líquido es una hidrogenación.

5 6.- Un proceso según la reivindicación 5, en el que el compuesto orgánico es antraquinona o una antraquinona sustituida en solución en un disolvente adecuado o mezcla disolvente.

7.- Un proceso según la reivindicación 6, según el que en la hidrogenación, se utiliza un catalizador, por ejemplo un material catalizador de paladio.

10 8.- Un proceso cíclico de la clase referida, en el que la etapa de hidrogenación comprende el alimentar el hidrogenador con la solución de antraquinona introduciéndola por debajo del nivel de la solución reaccionada y/o no reaccionada allí existente, a través de por lo menos un
15 conducto de alimentación dentro del cual se introduce el hidrógeno necesario para la hidrogenación, y en el que después de las etapas de oxidación y extracción de peróxido de hidrógeno, la solución resultante extraídase recicla al citado conducto o conductos de alimentación,

20 9.- Un proceso según la reivindicación 8, en el que después de la hidrogenación la solución se pasa a un elemento filtrante, realizándose así la filtración de forma que la mayor parte de la solución se filtra y se pasa a la etapa de oxidación, pero el resto de la solución se la hace
25 pasar en acción de arrastre alrededor de los filtros y después se devuelve, sin filtrar, al mencionado conducto o conductos de alimentación para mezclarla otra vez con hidrógeno.

30 10.- Un proceso según la reivindicación 9, en el que el hidrogenador se emplaza sobre los filtros y el hidró-



5 geno se introduce en un conducto de alimentación a la altura del nivel general de los filtros y a una presión mayor que la de la solución con la que se une, siendo un proceso que la solución cae por gravedad desde el hidrogenador al elemento filtrante, la dicha porción no filtrada vuelve al conducto de alimentación para mezclarse con la solución reciclada procedente de la etapa de extracción de peróxido de hidrógeno y luego se reúne con el nuevo hidrógeno entrante, siendo ayudado a subir hasta el hidrogenador por el efecto elevador de gas del hidrógeno.

10

11.- Un procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado en que la reacción gas/líquido se lleva a cabo en un reactor que presenta un conducto de alimentación dispuesto como bajante introducido hasta la zona inferior de dicho reactor, una salida para la evacuación de la solución reaccionada emplazada encima de la salida del bajante, y una entrada de gas que comunica exteriormente con el conducto de alimentación del reactor, con lo que el gas que pasa a través de dicha boca proporciona un efecto elevador de gas que ayuda al arrastre del líquido o solución del reactor.

15

20

12.- Un procedimiento según las reivindicaciones 1 y 10, en el que la reacción se efectúa en cooperación con un filtro, conectado a la salida de la solución reaccionada del hidrogenador y situado a un nivel más bajo que este, presentando una salida para el líquido filtrado y una salida secundaria que comunica con el conducto general de alimentación del hidrogenador.

25

- 13 -

272881

29 NOV



13.- Mejoras en los procedimientos para llevar a cabo hidrogenaciones y otras reacciones gas/líquido.

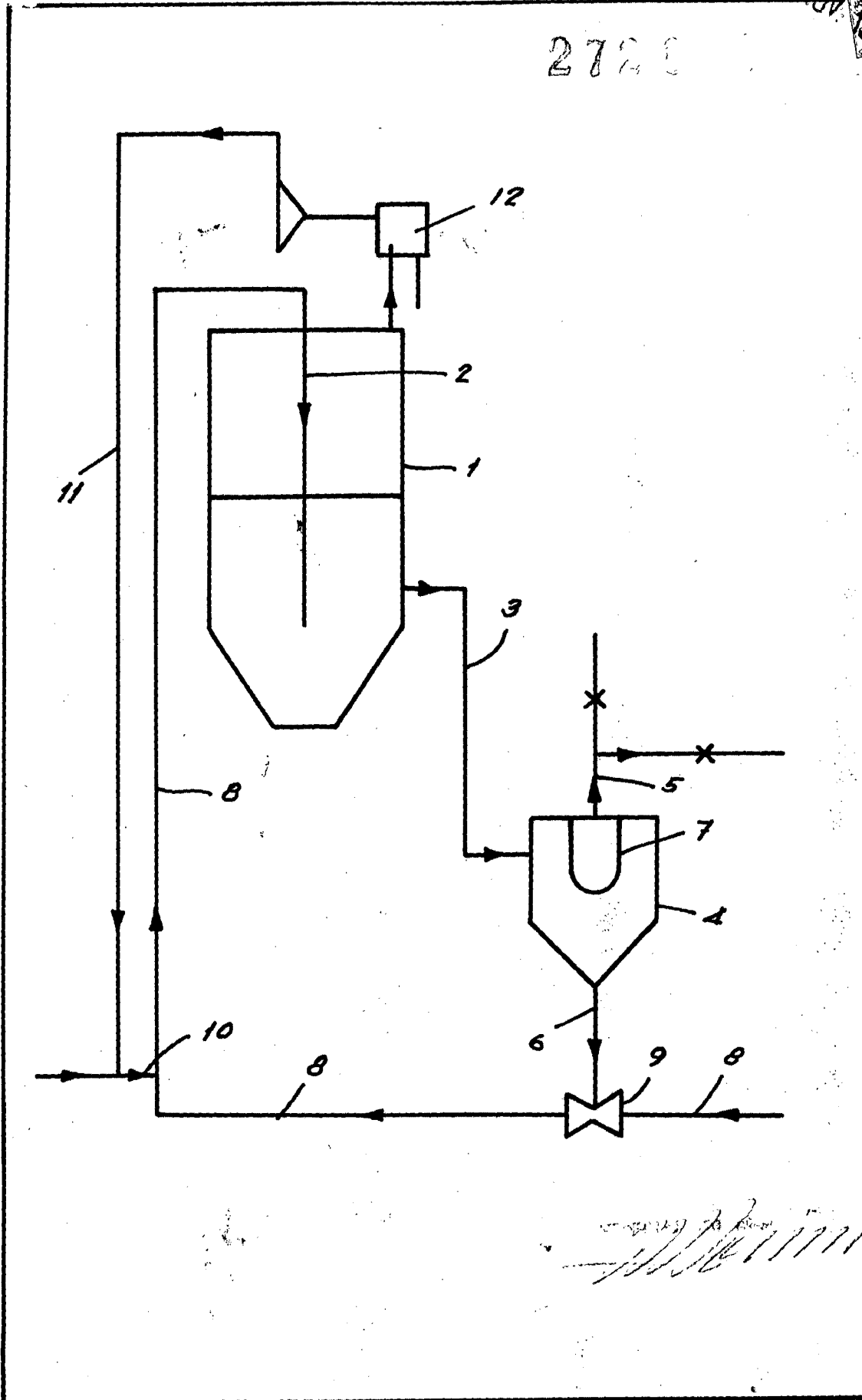
Esta memoria consta de trece páginas escritas por una sola cara.

BARCELONA, 29 NOV. 1961

P. A.



2723



[Handwritten signature or scribble]