



19 ES	11 21	NUMERO 441.064	10 A I
	22	FECHA DE PRESENTACION 18-9-1975	

PATENTE DE INVENCION

P.- 61.369
2707 ES

30 PRIORIDADES: 81 NUMERO	32 FECHA	93 PAIS
7412381	19-9-74	Holanda

47 FECHA DE PUBLICIDAD	61 CLASIFICACION INTERNACIONAL B01J	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
------------------------	----------------------------------------	--------------------------------------

64 TITULO DE LA INVENCION

"UN PROCEDIMIENTO CONTINUO PARA LA PREPARACION DE UNA SAL DE HIDROXILAMONIO"

71 SOLICITANTE (S)

STAMICARBON B.V.

DOMICILIO DEL SOLICITANTE

P.O. Box 10, Geleen, Holanda

72 INVENTOR (ES)

Joseph Johannes Franciscus SCHOLTEN y Hendrik Lodewijk Theresia KOKS

73 TITULAR (ES)

74 REPRESENTANTE

DON ALBERTO DE ELZABURU MARQUEZ

Esta invención se refiere a un procedimiento para separar partículas de catalizador de una suspensión de las mismas en una disolución acuosa que contiene una sal de hidroxilamonio. Estos procedimientos son de importancia práctica para obtener una disolución de sal de hidroxilamonio para uso en la fabricación de caprolactama, que es un material de partida para el nylon 6 a partir de oxima de ciclohexanona, en el que la oxima se prepara a partir de ciclohexanona y la sal de hidroxilamonio.

Pueden prepararse sales de hidroxilamonio, por ejemplo, reduciendo monóxido de nitrógeno, ácido nítrico o un nitrato por medio de hidrógeno en presencia de un catalizador de hidrogenación, por ej. uno de paladio sobre soporte, en un medio ácido. Las partículas de catalizador se separan de la mezcla de reacción así obtenida, lo que puede efectuarse en forma de procedimiento discontinuo o procedimiento continuo. Sin embargo, con frecuencia la separación es difícil. Así, si se intenta una filtración, tiene lugar la obstrucción del medio de filtración, lo que hace difícil una separación efectiva, probablemente a causa de proporciones muy pequeñas de impurezas peptizantes, por ej, ácido succínico, ácidos hidroxicarboxílicos, aminas o tolueno. Estas impurezas orgánicas pueden estar presentes en la mezcla de reacción cuando la mezcla de reacción que contiene sal de hidroxilamonio se hace reaccionar después con una cetona para formar una oxima, y,

tras la separación de la oxima de mezcla de reacción, el medio de reacción impuro que queda se emplea de nuevo en la preparación de otra cantidad de sal de hidroxilamonio.

5 Se han encontrado según la invención que la separación de partículas de catalizador de una suspensión en una disolución que contiene una sal de hidroxilamonio puede facilitarse si dicha disolución contiene también un agente floculante polímero.

10 La proporción de agente floculante polímero puede estar, por ejemplo, entre 0,1 y 20, y preferiblemente 0,25 y 2, miligramos por gramo de catalizador presente.

15 Si es necesario, la adición de estas cantidades de material polímero puede repetirse periódicamente, por ejemplo cada una a ocho horas. Para lograr el mejor mezclado posible del agente floculante polímero con la suspensión, el agente floculante polímero se añade preferiblemente en forma de una disolución acuosa diluida, por ej. de una concentración de desde 0,01 a 1% en peso. Para formar esta disolución acuosa diluida puede usarse una parte de la disolución de sal de hidroxilamonio como disolvente.

20 Son ejemplos de agentes floculantes polímeros adecuados el almidón, la gelatina, la poliacrilamida y poli (alcohol vínico). Pueden obtenerse resultados particularmente buenos empleando una poliacrilamida no iónica, por ejemplo
25 con un peso molecular promedio de 3×10^7 y un grado medio

30.9.75

de polimerización de 4×10^5 . Este agente floculante está disponible en el comercio con la Marca de Fábrica de MEYPRO FLOC P3. Aunque las partículas de catalizador parezcan tener una carga positiva, se ha encontrado que una poliacrilamida no iónica da los mejores resultados.

5

Se dan los siguientes Ejemplos de la invención:

Ejemplo 1

Se redujo catalíticamente de modo continuo nitrato de amonio a una temperatura de 60°C y una presión de hidrógeno de 10 atmósferas en un reactor con un contenido efectivo de 3 litros, provisto de un agitador que funcionaba a 2000 r.p.m. y 4 bujías de filtración de acero sinterizado. La disolución acuosa que se introducía en el reactor contenía 21,6 gramos de ácido fosfórico y 22,4 gramos de nitrato de amonio por cada 100 gramos, y se fué introduciendo en el reactor a la velocidad de 5 Kilogramos por hora.

10

15

El catalizador empleado eran 15 gramos de paladio-platino sobre soporte poroso de carbón vegetal activado, dando una composición de catalizador que contenía 8% en peso de paladio y 2% en peso de platino.

20

El líquido de reacción descargado a través de las bujías filtrantes contenía 4,9% en peso de ácido fosfórico, 9,3% en peso de fosfato de monohidroxilamonio, 11,7% en peso de fosfato monoamónico y 14,4% en peso de nitrato de amonio. La capacidad de las bujías de filtración era tal que,

25

30.9.75

con la más alta resistencia a la filtración, aún podía tratarse el material de alimentación.

A intervalos de 10 minutos, la cantidad de catalizador recogida sobre el filtro se devolvió al líquido de reacción por medio de un breve impulso de presión. Inmediatamente después de haber enjuagado de este modo las bujías filtrantes, se determinó la resistencia a la filtración midiendo el tiempo requerido para obtener 0,3 litros de líquido de reacción filtrado (tiempo de drenaje).

La resistencia inicial a la filtración correspondía a un tiempo de drenaje de 40 segundos. A causa de los contaminantes orgánicos añadidos a la disolución de nitrato, que llegaban a constituir el 0,04% en peso calculados como carbono, la resistencia a la filtración aumentó gradualmente, siendo el tiempo de drenaje de unos 100 segundos al cabo de 9 horas.

Como comparación se usó después una disolución de nitrato especialmente purificada, descendiendo el tiempo de drenaje a 70 segundos al cabo de otras 9 horas. A la suspensión del reactor se añadió entonces un agente floculante en forma de una disolución acuosa al 0,05% en peso de MEYPROFLOC P3. Al cabo de otro período de 5 minutos, el tiempo de drenaje descendió al valor original de 40 segundos, y esta baja resistencia a la filtración se mantuvo sin posterior adición de agente floculante durante 17 horas.

30.9.75

Ejemplo II

Se redujo continuamente nitrato de amonio del mismo modo, empleando una disolución de nitrato de la misma composición que la empleada inicialmente en el Ejemplo 1 y en el mismo aparato, utilizando una velocidad de alimentación de 3,5 kg de disolución por hora. Al principio del experimento, la resistencia a la filtración correspondía a un tiempo de drenaje de 40 segundos. El líquido de reacción se contaminó entonces deliberadamente añadiendo continuamente 0,75 gramos de ciclohexilamina por litro de disolución de nitrato a reducir. La resistencia a la filtración aumentó entonces hasta un tiempo de drenaje de 70 segundos, a lo largo de un período de 20 horas. Después se añadieron continuamente 0,75 gramos de ciclohexanona por litro de disolución a reducir, como impureza adicional que hizo que la resistencia a la filtración aumentase de nuevo hasta un tiempo de drenaje de 100 segundos en un período de 12 horas. La adición de más impurezas se interrumpió después, y, a lo largo de otro período de 12 horas, la resistencia a la filtración disminuyó hasta un tiempo de drenaje constante de 70 segundos.

La adición a la suspensión del reactor de 4 miligramos de MEYPROFLOC P3 en forma de una disolución acuosa al 0,05% en peso redujo la resistencia a la filtración hasta un tiempo de drenaje de 42 segundos, en un período

de 5 minutos.

5

- REIVINDICACIONES -

10

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

15

1ª.- Un procedimiento continuo para la preparación de una sal de hidroxilamonio, que comprende las operaciones de (1) reducir un compuesto nitrogenado oxídico seleccionado del grupo que consta de monóxido de nitrógeno, ácido nítrico y una sal nitrato tratando dicho compuesto nitrogenado oxídico en un medio ácido acuoso con hidrógeno y un catalizador de hidrogenación para formar una suspensión de partículas de catalizador en una disolución de sal de hidroxilamonio, (2) añadir un agente floculante polímero a dicha suspensión y (3) separar la disolución de sal de hidroxilamonio desde dicha suspen-

25

7-2-77

sión.

2ª.- Un procedimiento según la reivindicación 1ª, en el que dicha suspensión contiene dicho agente floculante en una proporción de desde 0,25 a 2 miligramos por gramo de catalizador.

3ª.- Un procedimiento según la reivindicación 1ª o la reivindicación 2ª, en el que dicho agente floculante se añade en forma de una disolución acuosa que contiene de 0,01% a 1% en peso del agente floculante.

4ª.- Un procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones 1ª a 3ª, en el que dicho agente floculante empleado es una poliacrilamida no iónica.

5ª.- Un procedimiento continuo para la preparación de una sal de hidroxilamonio.

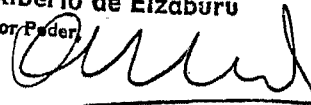
Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

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

Madrid, 10. FEB. 1977

P.A.

Alberto de Elzaburu
Por Poder



7-2-77
VGD.