



10 ES	11 NUMERO 464.218	10 A1
	21 FECHA DE PRESENTACION 17-11-77	

REGISTRADO

PATENTE DE INVENCION

30 PRIORIDADES: 31 NUMERO P 27 03 069.9	32 FECHA 26-1-77	33 PAIS Rep. Federal Alemana
---	---------------------	---------------------------------

47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL C07D	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
------------------------	--	--------------------------------------

54 TITULO DE LA INVENCION

"PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE 2-METILPIRIDINA Y DE 3-METILPIRIDINA".

71 SOLICITANTE (S)

DEUTSCHE GOLD- UND SILBER-SCHNEIDANSTALT VORMALS ROESSLER
(PAT/EL 7108 VC)

DOMICILIO DEL SOLICITANTE

Weissfrauenstrasse 9, Frankfurt (Main), República Federal Alemana.

72 INVENTOR (ES)

Helmut Beschke y Dr. Heinz Friedrich.

73 TITULAR (ES)

74 REPRESENTANTE

DON OSCAR DE ELZABURU FERNANDEZ (P.- 67.134)

Concedido el Registro de acuerdo con los datos que figuran en la presente descripción y según el contenido de la Memoria adjunta. NOTIFICASE COMO PRIMERA PAGINA DE LA MEMORIA

UNE A-4 MOD. 3108

lfg

20 JUN. 1978

POOR QUALITY

1 La invención se refiere a un procedimiento para la -
preparación de 2-metilpiridina y 3-metilpiridina mediante
reacción catalítica de acroleína y acetona con amoníaco -
en fase gaseosa.

5 Es sabido que 2-metilpiridina y 3-metilpiridina se -
forman en la reacción de acroleína y acetona con amoníaco
en fase gaseosa en presencia de catalizadores. Como cata-
lizadores sirven óxido de aluminio, óxido de silicio, u -
10 óxido de silicio en mezcla con 5 a 50% de óxido de alumi-
nio, eventualmente con adiciones de óxidos de otros ele---
mentos (memoria de patente británica 920 526). En este -
procedimiento los rendimientos de 2-metilpiridina y de --
3-metilpiridina ascienden juntamente sólo a 38%.

15 Se ha hallado ahora un procedimiento para la prepara-
ción de 2-metilpiridina y 3-metilpiridina mediante reac-
ción catalítica de acroleína y acetona con amoníaco en fa-
se gaseosa, que se caracteriza por el hecho de que como -
catalizadores se utilizan silicatos de aluminio altamente
dispersos, que contienen 3 a 30% en peso de óxido de alu-
20 minio, tienen una superficie según BET de 200 a 800 m²/g,
un volumen de poros de 0,4 a 1,0 cm³/g y un diámetro de -
poros de 20 a 100.10⁻⁸ cm. Con este procedimiento se ob-
tienen rendimientos notablemente más elevados que con el
procedimiento conocido. También son esencialmente más --
25 favorables los rendimientos de espacio - tiempo.

Los silicatos de aluminio que se han de utilizar se-
gún la invención tienen preferentemente un contenido de -
óxido de aluminio de 5 a 20 y especialmente de 10 a 15% -
en peso. Tienen preferentemente una superficie según BET
30 de 300 a 600 m²/g, un volumen de poros de 0,6 a 0,8 cm³/g

1 y un diámetro de poros de 40 a $80 \cdot 10^{-8}$ cm.

5 Los silicatos de aluminio pueden prepararse de manera conocida, por ejemplo mediante tratamiento de una solución mezclado del gel de ácido silícico producido con sulfato de aluminio y amoníaco, separación y liberación del silicato de aluminio formado respecto de iones extraños, así como secado y atemperamiento (Paul H. Emmett, Catalysis, volumen VII, Reinhold Publishing Corporation, especialmente páginas 5 a 9).

10 Para la realización del procedimiento según la invención se utilizan acroleína, acetona y amoníaco de manera habitual en estado gaseoso. Las proporciones cuantitativas pueden elegirse ampliamente a voluntad. Sin embargo, es conveniente en general utilizar por cada mol de acroleína aproximadamente 0,1 a 2,5 moles, preferentemente 0,2 a 2,0 moles, especialmente 0,5 a 1,5 moles, de acetona. Además es conveniente en general utilizar por cada mol de compuesto oxoico (acroleína y acetona) por lo menos aproximadamente 1 mol de amoníaco. Es ventajoso usar por cada mol de compuesto oxoico aproximadamente 1,0 a 3,0 moles, especialmente 1,3 a 2,5 moles, de amoníaco. Convenientemente se introduce además un gas inerte, especialmente nitrógeno, a saber se emplean con ventaja por cada mol de compuesto oxoico 0,5 a 3,0 moles, especialmente 1,0 a 2,5 moles, de gas inerte.

25 De la proporción cuantitativa de acetona a acroleína depende eventualmente en cierta medida el que se favorezca la formación de 2-metilpiridina o la de 3-metilpiridina. -
30 Quanto mayor es la proporción cuantitativa, tanto mayor es

11117

1 - en general la porción de 2-metilpiridina.

El catalizador es emplea en lecho fijo en general en un tamaño de granos de 0,2 a 3,0 mm, especialmente de 0,5 a 2,0 mm, o preferentemente en lecho fluidificado, en general en un tamaño de granos de 0,1 a 3,0 mm, especialmente de 0,2 a 2,0 mm. Es ventajoso introducir en el recinto de reacción los compuestos oxoicos por separado del amoníaco. Especialmente se elige para ello un modo de trabajo según la DT-OS 2 449 340, pero con la diferencia de que en lugar de acroleína se utiliza en cada caso una mezcla de acroleína y de acetona.

La reacción se efectúa a temperaturas comprendidas entre aproximadamente 300 y 500°C, especialmente entre 380 y 480°C. La presión puede elegirse en gran parte a voluntad, pero se recomienda trabajar a presión normal o solo moderadamente más baja o más alta de hasta aproximadamente 3 bares, para que puedan utilizarse aparatos sencillos. Una reducida depresión o sobrepresión resulta eventualmente del hecho de que los gases son aspirados o comprimidos a través de la instalación.

Ejemplo 1

Se utilizó un reactor de lecho fluidificado. Este constaba de un tubo de 70 mm de anchura, que tenía por abajo un espacio libre de 200 mm de altura, sobre éste, a intervalos de 50 mm cada uno, estaba provisto con 40 redes de alambre de 5 mm de anchura de mallas, y por arriba tenía un espacio libre de 600 mm de altura y de hasta 160 mm de anchura.

En el reactor se introdujo en estado gaseoso en corriente uniforme por cada hora, desde abajo, una mezcla -

1 -de gases de 1.500 litros en condiciones normales de nitrógeno y 2.150 litros en condiciones normales de amoníaco, y desde un lado en el lecho fluidificado, a saber a 130 mm sobre el fondo del reactor, una mezcla de gases de --
5 1.350 g de acroleína, 1395 g de acetona y 210 litros en condiciones normales de nitrógeno.

El reactor contenía 2,0 kg de catalizador. El catalizador constaba de silicato de aluminio con un contenido de 13% de Al_2O_3 , tenía una superficie según BET de 500 --
10 cm^2/g , un volumen de poros de $0,75 cm^3/g$, un diámetro de poros de $60 \cdot 10^{-8} cm$ y un tamaño de granos de 0,4 a 1,0 mm.

La temperatura en el reactor se mantuvo a $440^\circ C$. La mezcla de reacción, que salía del reactor, estaba libre --
de acroleína. Esta se condujo con una temperatura de --
15 $250^\circ C$ a un lavador de gases, en el que se lavaron por medio de agua los compuestos de piridina formados y la acetona no reaccionada. El gas residual remanente, a base --
de amoníaco y nitrógeno, se devolvió al circuito en el --
20 reactor tras la adición de 750 litros normales por hora de amoníaco.

El grado de conversión de acroleína fue de 100%, y --
el de acetona de 73%. Se obtuvieron por hora 550 g de --
2-metilpiridina y 314 g de 3-metilpiridina, correspondientes a rendimientos de 25% y 28%, referidos a la acroleína
25 utilizada. Junto a ello resultaron 75 g de piridina y --
55 g de 2,6-dimetilpiridina. Por hora se recuperaron --
378 g de acetona. Por cada kg de catalizador y hora el --
rendimiento de 2-metilpiridina y de 3-metilpiridina ascendió a 432 g.

30

11117

1 Ejemplo 2

5 Se procedió tal como según el ejemplo 1, pero se introdujeron por hora 1.680 g de acroleína y 1.045 g de acetona. El grado de conversión de acroleína fue de 100%, y el de acetona de 75%. El rendimiento de 2-metilpiridina ascendió a 512 g, correspondientes a 18%, y el rendimiento de 3-metilpiridina ascendió a 451 g, correspondientes a 32%, referido a la acroleína utilizada. Junto a ello resultaron 127 g de piridina y 39 g de 2,6-dimetilpiridina. Por cada kg de catalizador y hora el rendimiento de 2-metilpiridina y 3-metilpiridina ascendió a 481 g.

10 Ejemplo 3

15 Se procedió tal como según el ejemplo 1, pero se introdujeron por hora 1.010 g de acroleína y 1.740 g de acetona, y la reacción se realizó a 420°C. La acroleína se convirtió en 100%, y la acetona en 78%. El rendimiento de 2-metilpiridina ascendió a 470 g, correspondientes a 28%, y el rendimiento de 3-metilpiridina ascendió a 168 g, correspondientes a 20%, referido a la acroleína utilizada. Junto a ello resultaron 50 g de piridina y 30 g de 2,6-dimetilpiridina. Por cada kg de catalizador y hora el rendimiento de 2-metilpiridina y de 3-metilpiridina ascendió a 319 g.

25

30

11117

1

REIVINDICACIONES

5

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.- Procedimiento para la preparación de 2-metilpiridina y de 3-metilpiridina mediante reacción catalítica de acroleína y acetona con amoníaco en fase gaseosa, que se caracteriza por el hecho de que como catalizadores se utilizan silicatos de aluminio altamente dispersos, que contienen 3 a 30% en peso de óxido de aluminio, tienen una superficie según BET de 200 a 800 m²/g, un volumen de poros de 0,4 a 1,0 cm³/g y un diámetro de poros de 20 a 100.10⁻⁸ cm.

20

2ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, que se caracteriza por el hecho de que el catalizador se utiliza en lecho fluidificado y se introducen acroleína y acetona por separado del amoníaco en el lecho fluidificado.

25

3ª.- "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE 2-METILPIRIDINA Y DE 3-METILPIRIDINA.

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

30

11117

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

Madrid, 17. NOV. 1977

P.A.

Oscar de Elizaburu
Por Poder



5

10

15

20

25

30

ARS/.

11117

