



(19) **REPUBLIKA HRVATSKA**  
**DRŽAVNI ZAVOD ZA**  
**INTELEKTUALNO VLASNIŠTVO**

(10) Identifikator  
dokumenta:



HR P960044 A2

HR P960044 A2

## (12) **PRIJAVA PATENTA**

(51) MKP<sup>6</sup>: **C 07 D 251/62**  
**C 07 D 251/60**

(21) Broj prijave: P960044A

(22) Datum podnošenja prijave patenta: 30.01.1996.

(43) Datum objave prijave patenta: 31.12.1997.

(31) Broj prve prijave: A 186/95

(32) Datum podnošenja prve prijave: 03.02.1995.

(33) Država ili organizacija podnošenja prve prijave: AT

(62) Broj i datum prvobitne prijave u slučaju podjele patenta:

(71) Podnositelj prijave:

**Agrolinz Melamin GmbH, St. Peter-Strasse 25, 4021 Linz, AT**

(72) Izumitelj:

**Martin Muellner, Grabnerstrasse 33, 4020 Linz, AT**

**Lorenzo Canzi, Via Luosi 2, 20131 Milano, IT**

**Gerhard Coufal, Via Mirabello 12, 22070 Appiano Gentile, IT**

**Helmut Fingrhut, Strechergasse 33, 4020 Linz, AT**

(74) Zastupnik:

**CPZ - CENTAR ZA PATENTE d.o.o., Zagreb, HR**

(54) Naziv izuma: **POSTUPAK ZA ČIŠĆENJE MELAMINA**

(57) Sažetak: Postupak za čišćenje melamina, pri kojem se onečišćeni melamin ostavlja 5 minuta do 20 sati stajati pri parcijalnom tlaku amonijaka od 150 do 400 bar u temperaturnom području od 280 do 430°C, nakon čega se naglo hladi na sobnu temperaturu i konačno se smanjuje tlak ili se istovremeno hladi i smanjuje tlak te dobiva čisti melamin u obliku praha.

HR P960044 A2

Iz literature je poznat veliki broj postupaka za čišćenje melamina. Pri tome se kao polazni materijal preporuča urea, koja se ili kod visokog tlaka i nekatalitički, ili kod niskog tlaka i uz primjenu jednog katalizatora, pretvara u melamin, amonijak i CO<sub>2</sub>. Također je poznato da kod tih postupaka, naročito kod visokotlačnih postupaka, nastaju razni nus-proizvodi odn. nečistoće, kao npr. melem, melam, amelin, amelid ili ureidomelamin, koji ugrožavaju čistoću melamina.

Obrada melamina proizvedenog putem visokotlačnog postupka vrši se primjerice prema US 3,116,294 (Montecatini) odvajanjem CO<sub>2</sub> i NH<sub>3</sub>-plinskih otpadaka iz tekućeg melamina, koji se još zaključno, kako bi se uklonio otopljeni CO<sub>2</sub>, obrađuje u protustruji sa NH<sub>3</sub>, sakuplja u drugom reaktoru i jedno vrijeme ostaje u njemu. Kolona za odvajanje i drugi reaktor se pri tome drže pod istim uvjetima temperature i tlaka kakve ima reaktor uree, naime na 250 do 500°C i tlakom od 40 do 150 bar. Tako dobiveni melamin se uzima iz drugog reaktora i naglo se hladi vodom ili miješanjem s hladnim plinovima. Čistoća melamina dobivena ovim postupkom ipak nije dovoljna za određene primjene, npr. kod proizvodnje melamin-formaldehid smola za prekrivanje površina, jer je osobito sadržaj melema prevelik. Kao što je poznato iz CH 345.894, onečišćenja kao što su melem i melam su netopiva odn. teško topiva u vodi i vodenim alkalil otopinama, tako da se ti spojevi kod prekrizalizacije melamina, primjerice nastavno na ponovnu obradu prema Montecatini postupku, teško mogu ukloniti iz melamina koji treba čistiti, i uz velike gubitke melamina.

Zadatak ovog izuma je prema tome, pronalaženje postupka kod kojeg bi se sadržaj nečistoća, naročito nečistoća teško topivih ili netopivih u vodi i vodenim alkalil otopinama, mogao reducirati bez gubitaka melamina.

Ovaj bi se zadatak mogao riješiti putem postupka pri kojem bi se onečišćeni melamin određeno vrijeme ostavio pri parcijalnom tlaku amonijaka od iznad 150 bar i pri temperaturi od iznad 280°C i zatim naglo ohladio.

Predmet ovog izuma je postupak za čišćenje melamina koji je naznačen time, da se onečišćeni melamin ostavi stajati od 5 minuta do 20 sati pri parcijalnom tlaku amonijaka od 150 do 400 bar u temperaturnom području od 280 do 430°C, nakon čega se naglo hladi na sobnu temperaturu i konačno se smanjuje tlak ili se istovremeno hladi i smanjuje tlak te se dobiva čisti melamin u obliku praha.

Postupak prema ovom izumu je prikladan za čišćenje melamina, koji se pojavljuje u već poznatom postupku, a koji sadrži naročito nečistoće kao melem i melam. Melamin koji treba čistiti, u slučaju da se pojavljuje u kristalnom obliku ili kao prah, se prvo zagrijava na temperaturu unutar temperaturnog područja od 280 do 430°C po mogućnosti na ili iznad točke taljenja melamina do 400°C, a zatim se ostavi stajati u tom području određeno vrijeme pri parcijalnom tlaku amonijaka većem od 150 bar. Ako se melamin koji treba čistiti pojavljuje kao talina odn. tekuća faza, kao npr. nakon visokotlačnog reaktora za sintezu melamina pretvaranjem uree, tada može izostatiti ta faza zagrijavanja, a temperatura taline se dovodi na željenu vrijednost unutar gore definiranoeg temperaturnog područja.

Temperatura melamina koji treba čistiti se može za vrijeme stajanja održavati konstantnom, ali se može i mijenjati unutar gore definiranoeg temperaturnog područja. Tako se temperatura primjerice može kontinuirano ili postepeno unutar granica temperaturnog područja sniziti ili povišiti. Vrijeme stajanja može varirati u širokom području. Ono ovisi uglavnom o željenoj krajnjoj vrijednosti onečišćenja, kao o parcijalnom tlaku amonijaka i ekonomskim faktorima i može biti između 5 minuta i 20 sati, preporuča se između 10 minuta i 10 sati, a naročito između 30 minuta do 4 sata.

Duži periodi stajanja su također prema želji mogući. Parcijalni tlak amonijaka može isto tako varirati u velikom području i nalazi se između 150 i 400 bar. Preporuča se parcijalni tlak amonijaka do 360 bar, naročito se preporuča ako je podešen na 300 bar. Moguće je variranje tlaka za vrijeme perioda čekanja. Nadalje je moguće umiješati i druge inertne plinove pod reakcijskim uvjetima, kao npr. dušik.

Po završetku perioda stajanja, može se, ovisno o tehničkim uvjetima, prvo hladiti a zatim smanjiti tlak, ili istovremeno smanjiti tlak i hladiti. Hlađenje na sobnu temperaturu se primjerice vrši naglim hlađenjem pomoću hladnog tekućeg medija, primjerice pomoću vode ili tekućeg amonijaka ili miješanjem s hladnim plinovima.

Pomoću postupka prema ovom izumu se dobiva melamin u kristalnom obliku odn. kao prah i ima znatno reduciran sadržaj melema i melama.

Postupak prema ovom izumu može se provoditi kako diskontinuirano, tako i kontinuirano.

Postupak prema ovom izumu se može primijeniti pri svakom iz tehnike poznatom melamin-procesu. U preporučivom obliku izvedbe se postupak prema ovom izumu kombinira s visokotlačnim postupcima poznatim iz tehnike, kao što je npr. opisano u Ullmann/s Encyclopedia of Industrial Chemistry (Enciklopedija industrijske kemije), 5. izdanje, Svezak A-16, str. 174-179. Postupak prema ovom izumu se naročito dobro provodi nastavno na poznate faze obrade visokotlačnih postupaka. Te faze obrade sadrže

- a) odvajanje  $\text{NH}_3/\text{CO}_2$ -plinske mješavine dobivene kod pretvorbe uree od tekućeg melamina, kao i  
 b) reduciranje  $\text{CO}_2$  otopljenog u melaminu unošenjem  $\text{NH}_3$ .

Te faze obrade su primjerice opisane u US 3,116,294. Postupak prema ovom izumu se može vršiti nastavno direktno na reaktoru za pretvorbu uree ili nastavno na gore opisane faze obrade, pri čemu obrada može sadržavati kako faze a) u kombinaciji sa b), tako i samo jednu od tih faza.

### Primjer 1-7

U mini autoklav sa 10 ml volumena stavlja se određena količina (EW) melamina s definiranim početnim sadržajem nečistoća kao i količina amonijaka potrebna za održavanje određenog tlaka p. Konačno se autoklav uranjanjem u medij koji je nosač topline brzo zagrijava na temperaturu T i ostavlja stajati t minuta na toj temperaturi. Nakon toga se autoklav uranjanjem u hladnu vodu brzo hladi i smanjuje se tlak. Kod tako pročišćenog melamina se istražuje krajnji sadržaj nečistoća, naročito melema. Parametri postupka, kao što je izvaga melamina (EW), tlak p, vrijeme t, temperatura T, početni sadržaj melema (MEo), melama (MAo), amelina (ANo), amelida (ADo) i ureidomelamina (UM) te djelomično amelina (AN) i amelida (AD) prikazani su u tabeli 1.

Pr.	EW (mg) ppm	P (bar)	T (°C)	t	MEo (min)	ME ppm	MAo ppm	MA ppm	UMo ppm	UM ppm	Ano ppm	AN ppm	ADo ppm	AD ppm
1	268	350	290	10	5600	1100	18300	320	10600	170	--	--	--	--
2.	268	350	290	100	5600	150	18300	220	10600	290	--	--	--	--
3.	80	350	370	180	5600	90	22000	1600	3300	710	6700	350	1000	150
4.	51	250	400	180	13000	130	22000	2000	3300	820	6700	400	1000	120
5.	159	250	340	180	13000	40	22000	1200	3300	410	6700	290	1000	50
6.	176	250	310	960	13000	40	22000	930	3300	420	6700	460	1000	50
7.	159	250	3470	10	13000	330	22000	3600	3300	590	6700	830	1000	150
8.	126	200	330	100	12000	190	--	--	--	--	--	--	--	--
9.	115	200	400	60	16000	980	--	--	--	--	--	--	--	--
10.	113	200	370	100	12000	450	--	--	--	--	--	--	--	--
11.	90	150	370	240	16000	670	--	--	--	--	--	--	--	--
12.	84	150	340	1740	12000	270	--	--	--	--	--	--	--	--
13.	67	150	350	180	12000	890	--	--	--	--	--	--	--	--
-	nije određeno													

### PATENTNI ZAHTJEVI

- Postupak za čišćenje melamina, **naznačen time**, da se onečišćeni melamin ostavi stajati na 5 minuta do 20 sati pri parcijalnom tlaku amonijaka od 150 do 400 bar u temperaturnom području od 280 do 430°C, nakon čega se naglo hladi na sobnu temperaturu i konačno se smanjuje tlak ili se istovremeno hladi i smanjuje tlak te dobiva čisti melamin u obliku praha.
- Postupak prema patentnom zahtjevu 1, **naznačen time**, da se melamin ostavi stajati u temperaturnom području između točke taljenja melamina i 400°C.
- Postupak prema patentnom zahtjevu 1, **naznačen time**, da je parcijalni tlak amonijaka podešen na do 360 bar.
- Postupak prema patentnom zahtjevu 1, **naznačen time**, da vrijeme stajanja iznosi 10 minuta do 10 sati.
- Postupak prema patentnom zahtjevu 1, **naznačen time**, da se postupak nastavlja na visokotlačni proces za proizvodnju melamina.
- Postupak prema patentnom zahtjevu 1, **naznačen time**, da se postupak nastavlja na visokotlačni proces za proizvodnju melamina iz uree.
- Postupak prema patentnom zahtjevu 1, **naznačen time**, da se postupak nastavlja na obradu jednog visokotlačnog postupka, pri čemu obrada obuhvaća faze
  - odvajanja  $\text{NH}_3/\text{CO}_2$ -mješavine plinova dobivene kod pretvorbe uree, od tekućeg melamina i/ili
  - reduciranja  $\text{CO}_2$  otopljenog u melaminu uz unošenje  $\text{NH}_3$ .

### SAŽETAK

Postupak za čišćenje melamina, pri kojem se onečišćeni melamin ostavlja 5 minuta do 20 sati stajati pri parcijalnom tlaku amonijaka od 150 do 400 bar u temperaturnom području od 280 do 340°C, nakon čega se naglo hladi na sobnu temperaturu i konačno se smanjuje tlak ili se istovremeno hladi i smanjuje tlak te dobiva čisti melamin u obliku praha.