República Federativa do Brasil
Ministério do Desenvolvimento, Indústria e do Comércio Exterior
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(21) **PI0620821-5 A2**

BRPI0620821A2

(22) Data de Depósito: 21/12/2006
(43) Data da Publicação: 22/11/2011
(RPI 2133)

(51) Int.Cl.:
C07C 209/16
B01J 23/46
B01J 37/03

(54) Título: PROCESSO PARA PRODUÇÃO DE UMA AMINA ALIFÁTICA, BEM COMO CATALISADOR UTILIZADO NO REFERIDO PROCESSO E SEU USO

(30) Prioridade Unionista: 28/12/2005 JP 2005-379652, 28/12/2005 JP 2005-379655, 28/12/2005 JP 2005-379660

(73) Titular(es): KAO Corporation

(72) Inventor(es): Masaharu Jono, Michio Terasaka, Tetsuaki Fukushima

(74) Procurador(es): Dannemann ,Siemsen, Bigler & Ipanema Moreira

(86) Pedido Internacional: PCT JP2006326164 de 21/12/2006

(87) Publicação Internacional: WO 2007/077903de 12/07/2007

(57) Resumo: PROCESSO PARA PRODUÇÃO DE UMA AMINA ALIFÁTICA, BEM COMO CATALISADOR UTILIZADO NO REFERIDO PROCESSO E SEU USO. A presente invenção refere-se a um processo para produção de uma amina alifática, compreendendo a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador formado por sustentação de pelo menos (A) um componente de rutênio produzido por hidrólise de um composto de rutênio em um veículo, ou por sustentação também, além do componente (A), de um segundo componente de metal específico ou um terceiro componente de metal específico no veículo. De acordo com o processo da presente invenção, uma amina primária alifática pode ser produzida de um álcool alifático com uma alta atividade catalítica e uma alta seletividade.

Relatório Descritivo da Patente de Invenção para **"PROCESSO PARA PRODUÇÃO DE UMA AMINA ALIFÁTICA, BEM COMO CATALISADOR UTILIZADO NO REFERIDO PROCESSO E SEU USO"**.

CAMPO DA INVENÇÃO

A presente invenção refere-se a um processo para produção de compostos contendo nitrogênio, em particular, aminas alifáticas.

ANTECEDENTES DA INVENÇÃO

Aminas primárias alifáticas são compostos importantes em campos de aplicação doméstica e industrial e têm sido utilizadas como materiais brutos para produção de tensoativos, agentes de tratamento de fibra etc.

As aminas primárias alifáticas foram produzidas por vários processos. Como um dos processos de produção, é conhecido o método de contactar um álcool primário alifático com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador. Na reação catalítica, neste contexto foi utilizado um catalisador com base em níquel/cobre ou um catalisador com base em metal nobre.

Quando os métodos utilizando-se o catalisador com base em metal nobre, em particular, um catalisador com base em rutênio, é descrito, por exemplo, o processo para produção de uma amina a partir de um álcool etc., na presença de um catalisador formado por sustentação de cerca de 0,001 a 25% por peso de rutênio juntamente com cerca de 0 a 5% por peso de um cocatalisador tal como rôdio, paládio, platina, cobre, prata e uma mistura destes, em um óxido poroso tal como alumina, sílica e um aluminossilicato (por exemplo, refere-se a JP 8-243392A). Além disso, é descrito o processo utilizando-se um catalisador formado por sustentação de cerca de 0,001 a 25 % por peso de rutênio e cerca de 0,1 a 6% por peso de cobalto e/ou níquel juntamente com cerca de 0 a 10% por peso de cobre e cerca de 0 a 5% por peso de um acelerador composto de vários metais em um óxido poroso tal como alumina, sílica e um aluminossilicato (por exemplo, refere-se a JP 10-174874A), e o processo utilizando-se um catalisador formado por sustentação de cerca de 0,001 a 25% por peso de rutênio e cerca de 6 a 50 % por peso de cobalto e/ou níquel juntamente com cerca de 0 a 10% por

peso de cobre e cerca de 0 a 5% por peso de um acelerador composto de vários metais em um óxido poroso tal como alumina, sílica e um aluminossilicato (por exemplo, refere-se a JP 10-174875A) .

Nestas técnicas, os catalisadores são produzidos por um método de impregnação, e o catalisador produzido é secado, cozido no forno em 400°C durante 4 horas, e em seguida submetido a tratamento de redução de hidrogênio em 300°C durante 20 horas. Além disso, os catalisadores deixam de exibir reatividade e seletividade suficientes.

SUMÁRIO DA INVENÇÃO

A presente invenção refere-se a:

(1) Um processo para produção de uma amina alifática, incluindo a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador formado por sustentação de (A) um componente de rutênio produzido por hidrólise de um composto de rutênio em um veículo;

(2) um processo para produção de uma amina alifática, incluindo a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador, em que o catalisador é formado por sustentação de (A) um componente de rutênio e (B) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio que são respectivamente produzidos por hidrólise de um composto de rutênio e um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio, em um veículo; e

(3) um processo para produção de uma amina alifática, incluindo a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador, em que o catalisador é formado por sustentação de (A) um componente de rutênio, (B') pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel e cobalto e (C) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário, em um veículo.

DESCRIÇÃO DETALHADA DA INVENÇÃO

A presente invenção refere-se a um processo para produção de uma amina alifática, em particular, uma amina primária alifática, de um álcool alifático com uma alta atividade catalítica e uma alta seletividade.

No processo para produção de uma amina alifática de acordo com a presente invenção, como o material bruto, é utilizado um álcool alifático saturado ou insaturado, linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono. Exemplos do álcool alifático utilizável na presente invenção incluem álcool hexílico, álcool isohexílico, álcool octílico, álcool isooctílico, álcool 2-etilhexílico, álcool nonílico, álcool isononílico, álcool 3,5,5-trimetilhexílico, álcool decílico, álcool 3,7-dimetiloctílico, álcool 2-propilheptílico, álcoois dodecílicos tais como álcool laurílico, álcoois tetradecílicos tais como álcool miristílico, álcoois hexadecílicos, álcoois octadecílicos tais como álcool estearílico, álcool oleílico, álcool beenílico, álcoois icosílicos, geraniol, metanol ciclopentílico, metanol ciclopentenílico, metanol ciclo-exílico e metanol ciclo-exenílico.

Na presente invenção, entre os álcoois alifáticos acima, preferidos são álcoois alifáticos lineares tendo 6 a 22 átomos de carbono, e mais preferidos são álcoois alifáticos lineares tendo 8 a 22 átomos de carbono.

Na presente invenção, como o catalisador, é utilizado (1) um catalisador formado por sustentação de (A) um componente de rutênio produzido por hidrólise de um composto de rutênio em um veículo; (2) um catalisador formado por sustentação de (A) um componente de rutênio e (B) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio que são respectivamente produzidos por hidrólise de um composto de rutênio e um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio, em um veículo (a seguir referido simplesmente como um "segundo componente de metal (B)); ou (3) um catalisador formado por sustentação de (A) um componente de rutênio, (B') pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel e cobalto (a seguir referido simplesmente como um "segundo componente de metal (B)'); e (C) pelo menos um componente de

metal selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário (a seguir referido simplesmente como um "terceiro componente de metal (C)), em um veículo (a seguir, os catalisadores acima (I) a (3) são ocasionalmente totalmente referidos simplesmente como um "catalisador com base em rutênio"). Em cada dos catalisadores acima (I) a (3), exemplos do veículo incluem um composto molecular elevado, um fosfato de metal, e um óxido poroso. Exemplos do óxido poroso utilizado na presente invenção incluem alumina, zircônia, titânia, sílica, carbono ativado, aluminossilicatos, terra diatomácea, compostos tipo hidrotalcita tais como, por exemplo, um óxido de compósito com base em magnésio/alumínio, óxidos de metal alcalino-terroso, e, nióbia. Exemplos do composto molecular elevado incluem poliestireno, náilon e resina de quelato, e exemplos do fosfato de metal incluem fosfato de cálcio e fosfato de cálcio de alumínio. Entre estes veículos, em vista de uma alta atividade catalítica e uma alta seletividade, preferido é óxido poroso, mais preferidos são alumina, zircônia, titânia e aluminossilicatos, e ainda mais preferidos são alumina e zircônia. Em particular, os catalisadores produzidos por utilização de zircônia ou titânia exibem uma maior atividade catalítica, enquanto os catalisadores produzidos por utilização de alumina ou um aluminossilicato exibem uma maior seletividade às aminas primárias .

Na presente invenção, os veículos tais como composto molecular elevado, um fosfato de metal, um óxido poroso podem ser utilizados sozinhos ou em combinação de quaisquer dois ou mais destes.

O catalisador com base em rutênio utilizado na presente invenção é formado por sustentação do componente de rutênio (A) somente, tanto do componente de rutênio (A) quanto do segundo componente de metal (B), ou todos dos componente de rutênio (A), do segundo componente (B') e do terceiro componente de metal (C), no veículo acima. No catalisador acima (I), o componente de rutênio (A) é sustentado no veículo por hidrolisação de um composto de rutênio. No catalisador acima (2), o componente de rutênio (A) e o segundo componente de metal (B) são sustentados no veículo por hidrolisação do composto de rutênio e um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio, respec-

tivamente. No catalisador acima (3), o componente de rutênio (A), o segundo componente de metal (B') e o terceiro componente de metal (C) são sustentados no veículo por hidrolisação do composto de rutênio, um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em níquel e cobalto, e um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário, respectivamente.

O método de sustentação destes componentes não é particularmente limitado, e inclui qualquer método convencionalmente conhecido opcional tal como método de impregnação, método de precipitação, método de permuta de íon e método de amassamento.

Como o segundo componente de metal (B) a ser sustentado no veículo, em vista de melhorar uma atividade catalítica e uma seletividade do catalisador resultante, é utilizado um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio. Estes segundos componentes de metal podem ser sustentados sozinhos ou em combinação de quaisquer dois ou mais destes. Como o segundo componente de metal (B') a ser sustentado no veículo, em vista de melhorar uma atividade catalítica e uma seletividade do catalisador resultante, é utilizado pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel e cobalto. Entre estes segundos componentes de metal (B'), preferido é um componente de níquel. Além disso, como o terceiro componente de metal (C) a ser sustentado no veículo, em vista de obter um catalisador tendo tanto uma alta atividade catalítica quanto uma alta seletividade, é utilizado pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário e preferivelmente pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em lantânio e magnésio.

A seguir, o processo para produção do catalisador com base em rutênio respectivo é ilustrativamente explicado.

Primeiro, o catalisador acima (I) pode ser produzido por adição do veículo tal como óxido poroso a um meio tal como água permutada por íon para preparar uma suspensão, e em seguida adição de uma solução preparada por dissolução do composto de rutênio em um meio aquoso tal

como água permutada por íon à suspensão, se requerido, seguido por aquecimento ao mesmo tempo que agitando para controlar uma temperatura da suspensão de cerca de 20 a 95°C e preferivelmente 40 a 80°C. O catalisador acima (2) e o catalisador acima (3) podem ser produzidos da mesma maneira como utilizado para produção do catalisador (I) exceto para utilização de uma solução preparada por dissolução de um composto de rutênio como uma fonte do componente de rutênio (A) e um composto de metal como uma fonte do segundo componente de metal (B) em um meio aquoso, e uma solução preparada por dissolução do composto de rutênio, um composto de metal como uma fonte do segundo componente de metal (B') e um composto de metal como uma fonte do terceiro componente de metal (C) em um meio aquoso, respectivamente.

Exemplos do composto de rutênio incluem cloretos, nitratos, formiatos, sais de amônio etc., de rutênio. Exemplos do composto de metal como uma fonte do segundo componente de metal (B) ou (B') e do composto de metal como uma fonte do terceiro componente de metal (C) incluem cloretos, nitratos, carbonatos, sulfatos, sais de amônio etc., dos respectivos componentes.

A seguir, um álcali é adicionado a uma suspensão contendo os respectivos compostos como fontes dos respectivos componentes de metal para ajustar um pH da suspensão para cerca de 4 a 12 e preferivelmente cerca de 6 a 11, desse modo permitindo os respectivos compostos serem hidrolisados. Em seguida, a mistura reacional obtida foi amadurecida para sustentar os respectivos componentes no veículo tal como o óxido poroso. O álcali não é particularmente limitado. Exemplos do álcali utilizável na presente invenção incluem amônia aquosa, e carbonatos, hidróxidos etc., de um metal álcali tal como sódio e potássio. A temperatura e tempo requeridos do ajuste de pH para o amadurecimento não são particularmente limitados contanto que uma hidrólise suficiente do composto de rutênio seja assegurada.

A seguir, a mistura reacional é submetida a tratamento de redução adicionando-se um agente de redução tal como, por exemplo, formaldeído, hidrazina e boroidreto de sódio a ela e, se requerido, aquecendo-se a

mistura para cerca de 20 a 95°C e preferivelmente 60 a 95°C. A seguir, a solução reacional obtida é submetida à separação de sólido-líquido tal como filtração para obter sólidos. Os sólidos desse modo obtidos são completamente lavados com água e em seguida secados em uma temperatura de preferivelmente 140°C ou menor sob pressão normal ou pressão reduzida. Estes agentes de redução podem ser utilizados sozinhos ou em combinação de quaisquer dois ou mais destes.

O agente de redução pode ser utilizado em uma quantidade de geralmente cerca de 1 a 50 mols e preferivelmente 15 a 40 mols por um mol de todos os componentes de metal sustentados a fim de efetivamente reduzir os respectivos componentes de metal sustentados.

O tempo de tratamento de redução não é particularmente limitado contanto que o tempo para permitir a reação de redução prossiga em uma extensão desejável é assegurado.

Enquanto isso, o tratamento de redução acima não é essencial. Após sustentação dos respectivos componentes no veículo por hidrólise, os sólidos obtidos pelo procedimento de separação de sólido-líquido podem ser completamente lavados com água e em seguida secados.

Na presente invenção, o procedimento de lavagem com água acima é preferivelmente conduzido em uma tal extensão que o filtrado obtido tenha uma condutividade elétrica de 50 μS/cm ou menos, a fim de prevenir contra íons de permanecerem no catalisador resultante.

Na presente invenção, quando os respectivos componentes de metal são sustentados no veículo pelo método de hidrólise acima, os procedimentos tais como tratamento por cozimento no forno em temperatura elevada geralmente requerido para o método de impregnação etc., e tratamento de redução em temperatura elevada sob uma atmosfera de gás inerte, não são obrigatoriamente necessários, resultando em um procedimento simples para produção do catalisador.

O catalisador desse modo produzido com base em rutênio preferivelmente contém o componente de rutênio (A) em uma quantidade de cerca de 0,1 a 25% em massa e mais preferivelmente 1 a 15% em massa em

termos de rutênio metálico com base em uma quantidade total do catalisador incluindo o veículo em vista de atividade catalítica e seletividade suficientes e baixos custos. Além disso, o catalisador com base em rutênio preferivelmente contém o segundo componente de metal (B) ou (B') em uma quantidade de cerca de 0,1 a 25% em massa e mais preferivelmente 0,2 a 15% em massa em termos do elemento de metal com base em uma quantidade total do catalisador incluindo o veículo. Além disso, o catalisador com base em rutênio preferivelmente contém o terceiro componente de metal (C) em uma quantidade de cerca de 0,01 a 10 % em massa e mais preferivelmente 0,05 a 5% em massa em termos do elemento de metal com base em uma quantidade total do catalisador incluindo o veículo. O conteúdo do componente de rutênio (A) no catalisador pode ser medido por análise espectral de emissão ICP após fundir o catalisador utilizando-se sulfato de hidrogênio de amônio. Os conteúdos do segundo componente de metal (B) ou (B') e do terceiro componente de metal (C) podem também ser medidos por análise espectral de emissão ICP após submeter o catalisador ao tratamento de decomposição úmida (utilizando-se ácido sulfúrico/peróxido de hidrogênio) no caso onde o veículo não contém nenhum silício, ou após submeter o catalisador a um tratamento de fusão de álcali no caso onde o veículo contém silício.

No processo para produção de uma amina alifática de acordo com a presente invenção, o álcool alifático como o material bruto é contactado com amônia e hidrogênio na presença do catalisador desse modo produzido com base em rutênio para produzir uma amina alifática e preferivelmente uma amina primária alifática.

A reação catalítica pode ser realizada em um sistema fechado tipo batelada ou um sistema de fluxo tipo batelada, ou em um sistema de fluxo de leito fixo. A quantidade do catalisador utilizado varia dependendo do tipo de sistema reacional utilizado. Em um sistema reacional tipo batelada, em vista de atingir boas reatividade e seletividade, o catalisador é utilizado em uma quantidade de preferivelmente 0,1 a 20% em massa e mais preferivelmente 0,5 a 10% em massa com base no álcool alifático bruto. Além disso, em vista de boas conversão e seletividade e prevenção de desativação

do catalisador, a temperatura de reação é de 120 a 280°C e preferivelmente de 180 a 250°C, e a pressão de reação é da pressão normal a 40 MPaG e preferivelmente de 0,5 a 30 MPaG.

A relação molar de amônia para o álcool alifático como os materiais brutos (amônia/álcool alifático) é geralmente de 0,5 a 10 e preferivelmente de 2 a 7 em vista de boa conversão e boa seletividade às aminas primárias. Amônia pode ser adicionada separadamente do hidrogênio, ou pode ser introduzida na forma de um gás misto de amônia e hidrogênio. A relação molar de hidrogênio para o álcool alifático como cargas iniciais (hidrogênio/álcool alifático) é preferivelmente de 0,01 a 3,0 e mais preferivelmente de 0,02 a 2,0 quando utilizada em um sistema fechado tipo batelada. Quando utilizada em um sistema de fluxo tipo batelada ou um sistema de fluxo de leito fixo, a relação molar de hidrogênio que inicialmente flui através do sistema para o álcool alifático é preferivelmente de 0,01 a 1,0 e mais preferivelmente de 0,02 a 0,8. Entretanto, em qualquer um dos métodos de reação acima, as relações molares no curso das respectivas reações não são necessariamente limitadas às faixas especificadas acima.

De acordo com o processo de produção da presente invenção, uma amina alifática, em particular, uma amina primária alifática, pode ser produzida de um álcool alifático com uma alta atividade catalítica e uma alta seletividade.

A presente invenção é descrita em maiores detalhes por referência aos seguintes exemplos. Entretanto, deve ser observado que estes exemplos são apenas ilustrativos e não se destinam a limitar a invenção a eles.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 1

Um frasco separável foi carregado com 10,0 g de um pó de alumina "A-11" disponibilizado por Sumitomo Chemical Corp., e 170 g de água permutada por íon para preparar uma suspensão, e em seguida uma solução preparada por dissolução de 0,59 g de hidrato de cloreto de rutênio tendo um peso molecular de 252,68 em 40 g de água permutada por íon foi adicionada a ela, seguido por aquecimento da suspensão para 60°C ao mesmo

tempo que agitando. A suspensão desse modo obtida (em 60°C) foi agitada durante 3 horas, e em seguida amônia aquosa como um precipitante foi gotejada nela para ajustar um pH da suspensão para 11 para hidrólise desta, seguido por amadurecimento da suspensão em 60°C durante 2 horas. Em seguida, a suspensão foi misturada com 4,8 g de uma solução de formalina a 37% em massa e aquecida para 90°C em que a suspensão foi reduzida durante 1 hora. A seguir, o pó obtido foi separado por filtração, lavado com água permutada por íon até uma condutividade elétrica do filtrado alcançar 30 µs/cm ou menos, e em seguida secado em 60°C sob uma pressão de 13 kPa, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador A de rutênio/alumina a 2% em massa.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 2

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 1 foi repetido a não ser utilizando-se 1,47 g de hidrato de cloreto de rutênio, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador B de rutênio/alumina a 5% em massa.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 3

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 1 foi repetido a não ser utilizando-se um pó de zircônia "RC-100" disponibilizado por Dai-Ichi Kigenso Kagaku Kogyo Co., Ltd., no lugar do pó de alumina, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador C de rutênio/zircônia a 2% em massa.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 4

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 1 foi repetido a não ser utilizando-se um pó de titânia "SSP-25" disponibilizado por Sakai Kagaku Kogyo Co., Ltd., no lugar do pó de alumina, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador D de rutênio/titânia a 2% em massa.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 5

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 2 foi repetido a não ser utilizando-se um pó de zeólita sintético "CP814E" disponibilizado por Zeolyst Inc., no lugar do pó de alumina, desse modo obtendo

cerca de 10 g de um catalisador E de rutênio/zeólita a 5% em massa.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO COMPARATIVO 1

Em um prato de cerâmica, 0,26 g de tricloreto de rutênio foi dissolvido em 5,8 g de água permutada por íon, e 6 g de um pó de alumina "A-11" disponibilizado por Sumitomo Chemical Corp., foram imersos na solução obtida, e deixados permanecer em temperatura ambiente durante 2 horas. A seguir, a suspensão resultante foi aquecida para 65°C e desidratada ao mesmo tempo que misturando, e em seguida secada em 120°C sob pressão normal durante todo dia e noite. O pó seco obtido foi aquecido para 400°C em uma taxa de elevação de temperatura de 5°C/min sob uma alimentação de fluxo de ar em uma taxa de 3 Nm^3/h, e cozido no forno em 400°C durante 4 horas, desse modo obtendo cerca de 6 g de um catalisador F de rutênio/alumina a 2% em massa.

EXEMPLO 1

Uma autoclave de 500 mL de um tipo de agitação giratória por indução eletromagnética foi carregada com 150 g (0,55 mol) de álcool estearílico e 3 g do catalisador A produzido no Exemplo de preparação 1 (2,0% em massa com base no álcool bruto), e em seguida 47 g (2,76 mols) de amônia foram carregados na autoclave e também 0,17 mol de hidrogênio foi introduzido sob pressão nela de modo que uma pressão total na autoclave como medido em temperatura ambiente alcance 2,8 MPaG. A seguir, os conteúdos da autoclave foram aquecidos para uma temperatura de reação de 220°C ao mesmo tempo que agitando (em 1000 rpm). A pressão máxima inicial na autoclave em 220°C foi 16 MPaG. Ao mesmo tempo que continuamente fornece hidrogênio na autoclave de modo que uma pressão total nela seja mantida em uma pressão constante de 16 MPaG, os conteúdos da autoclave foram reagidos um com o outro. O produto reacional resultante foi filtrado para remover o catalisador dele, e em seguida submetido à cromatografia por gás para analisar uma composição deste, desse modo determinar uma conversão do álcool bruto, uma seletividade à amina de estearila, e uma quantidade de subprodutos produzidos. A "conversão de álcool" utilizada aqui significa a quantidade de álcool consumida durante a reação da

quantidade de álcool bruto inicial, enquanto a "seletividade à amina de estearila" significa a quantidade de amina de estearila como um produto reacional da quantidade de álcool consumida durante a reação (esta definição é similarmente aplicada às descrições subsequentes). Os resultados são mostrados na Tabela 1.

EXEMPLOS 2 A 5

O mesmo procedimento como no Exemplo 1 foi repetido a não ser utilizando-se os catalisadores (B), (C), (D) e (E) produzidos nos Exemplos de preparação 2, 3, 4 e 5, respectivamente, no lugar do catalisador (A), e fornecendo uma quantidade adicional de hidrogênio de modo que a pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C seja mantida em um valor constante mostrado na Tabela 1. Os produtos reacionais resultantes foram analisados da mesma maneira como no Exemplo 1. Os resultados são mostrados na Tabela 1.

Tabela 1-1

	Catalisador	Pressão máxima inicial (MPaG)	Tempo de reação (hora)
Exemplo 1	A	16	6,0
Exemplo 2	B	16	6,0
Exemplo 3	C	16	6,0
Exemplo 4	D	16	6,0
Exemplo 5	E	16	4,0

Tabela 1-2

	Conversão de álcool bruto (%)	Seletividade à amina de estearila (%)	Produtos (%)	
			Amina de diestearila	Outros
Exemplo 1	86,3	85,5	5,9	6,6
Exemplo 2	96,4	75,0	10,3	13,8
Exemplo 3	94,0	76,2	11,1	11,3
Exemplo 4	91,2	76,6	10,9	10,4
Exemplo 5	93,2	81,2	8,8	8,7

EXEMPLO COMPARATIVO 1

O mesmo procedimento como no Exemplo 1 foi repetido a não ser utilizando-se o catalisador (F) produzido no Exemplo de Preparação Comparativo 1 no lugar do catalisador (A). Mais especificamente, a reação foi conduzida durante 6 horas sob a condição de que a pressão máxima inicial como medido em 220°C seja 16 MPaG. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 1. Como um resultado, foi confirmado que a conversão do álcool bruto foi 54,9 %.

EXEMPLO 6

O mesmo procedimento como no Exemplo 3 foi repetido a não ser utilizando-se 150 g (0,81 mol) de álcool laurílico no lugar de álcool estearílico e utilizando-se amônia em uma quantidade de 69 g (4,06 mols), desse modo conduzindo a reação durante 11 horas. A pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C foi 21 MPaG. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 1. Como um resultado, foi confirmado que a conversão do álcool bruto foi 96,3%, a seletividade à laurila amina foi 74,9%, a quantidade de dilauril amina produzida é 12,3%, e a quantidade dos outros subprodutos produzidos foi 10,9%.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 6

Um frasco separável foi carregado com 10,0 g de um pó de zircônia "RC-100" disponibilizado por DaHchi Kigenso Kagaku Kogyo Co., Ltd., e 170 g de água permutada por íon para preparar uma suspensão, e em seguida uma solução preparada por dissolução de 0,59 g de hidrato de cloreto de rutênio tendo um peso molecular de 252,68 e 0,18 g de hexa-idrato de sulfato de níquel em 40 g de água permutada por íon foi adicionada a ela, seguido por aquecimento da suspensão para 60°C ao mesmo tempo que agitando. A suspensão desse modo obtida (em 60°C) foi agitada durante 10 horas, e em seguida uma solução de carbonato de sódio aquosa como um precipitante foi gotejada nela para ajustar um pH da suspensão para 11 para hidrólise desta, seguido por amadurecimento da suspensão em 60°C durante 2 horas. Em seguida, a suspensão foi misturada com 4,8 g de uma solu-

ção de formalina a 37% em massa e aquecida para 90°C em que a suspensão foi reduzida durante 1 hora. A seguir, o pó obtido foi separado por filtração, lavado com água permutada por íon até uma condutividade elétrica do filtrado alcançar 30 μs/cm ou menos, e em seguida secado em 60°C sob uma pressão de 13 kPa, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador G de 2% em massa de rutênio/0,4% em massa de níquel sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 7

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 6 foi repetido a não ser utilizando-se 0,59 g de hidrato de cloreto de rutênio e 0,16 g de hexa-idrato de cloreto de cobalto, e utilizando-se amônia aquosa como um precipitante, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador H de 2% em massa de rutênio/0,4% em massa de cobalto sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 8

Um frasco separável foi carregado com 10,0 g de um pó de zircônia "RC-100" disponibilizado por DaHchi Kigenso Kagaku Kogyo Co., Ltd., e 170 g de água permutada por íon para preparar uma suspensão, e em seguida uma solução preparada por dissolução de 0,59 g de hidrato de cloreto de rutênio tendo um peso molecular de 252,68 em 40 g de água permutada por íon foi adicionada a ela, seguido por aquecimento da suspensão para 60°C ao mesmo tempo que agitando. A suspensão desse modo obtida (em 60°C) foi agitada durante 10 horas, e em seguida uma solução preparada por dissolução de 0,64 g de metatungstato de amônio em 20 g de água permutada por íon, e amônia aquosa foi gotejada nela para ajustar um pH da suspensão para 11 para hidrólise desta, seguido por amadurecimento da suspensão em 60°C durante 2 horas. Em seguida, a suspensão foi misturada com 4,8 g de uma solução de formalina a 37% em massa e aquecida para 90°C em que a suspensão foi reduzida durante 1 hora. A seguir, o pó obtido foi separado por filtração, lavado com água permutada por íon até uma condutividade elétrica do filtrado alcançar 30 μs/cm ou menos, e em seguida secado em 60°C sob uma pressão de 13 kPa, desse modo obtendo cerca de

10 g de um catalisador I de 2% em massa de rutênio/0,4% em massa de tungstênio sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 9

Um frasco separável foi carregado com 10,0 g de um pó de zircônia "RC-100" disponibilizado por Darlchi Kigenso Kagaku Kogyo Co., Ltd., e 170 g de água permutada por íon para preparar uma suspensão, e em seguida uma solução preparada por dissolução de 0,29 g de hidrato de cloreto de rutênio tendo um peso molecular de 252,68 e 0,72 g de hexa-idrato de sulfato de níquel em 40 g de água permutada por íon foi adicionada a ela, seguido por aquecimento da suspensão para 60°C ao mesmo tempo que agitando. A suspensão desse modo obtida (em 60°C) foi agitada durante 10 horas, e em seguida amônia aquosa como um precipitante foi gotejada nela para ajustar um pH da suspensão para 11 para hidrólise desta, seguido por amadurecimento da suspensão em 60°C durante 2 horas. Em seguida, a suspensão foi misturada com 3,2 g de uma solução de formalina a 37% em massa e aquecida para 90°C em que a suspensão foi reduzida durante 1 hora. A seguir, o pó obtido foi separado por filtração, lavado com água permutada por íon até uma condutividade elétrica do filtrado alcançar 30 μs/cm ou menos, e em seguida secado em 120°C sob pressão normal, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador J de 1% em massa de rutênio/1,6% em massa de níquel sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 10

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 6 foi repetido a não ser utilizando-se 10,0 g de um pó de alumina "A-11" disponibilizado por Sumitomo Chemical Corp., desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador K de 2% em massa de rutênio/0,4% em massa de níquel sustentado por alumina.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 11

Um frasco separável foi carregado com 10,0 g de um pó de zircônia "RC-100" disponibilizado por Dai-Ichi Kigenso Kagaku Kogyo Co., Ltd., e 170 g de água permutada por íon para preparar uma suspensão, e em seguida uma solução preparada por dissolução de 0,29 g de hidrato de cloreto

de rutênio tendo um peso molecular de 252,68 e 0,72 g de hexa-idrato de sulfato de níquel em 40 g de água permutada por íon foi adicionada a ela, seguido por aquecimento da suspensão para 60°C ao mesmo tempo que agitando. A suspensão desse modo obtida (em 60°C) foi agitada durante 10 horas, e em seguida uma solução aquosa de hidróxido de sódio a 10% como um precipitante foi gotejada nela para ajustar um pH da suspensão para 11 para hidrólise desta, seguido por amadurecimento da suspensão em 60°C durante 2 horas. Em seguida, após resfriamento, o pó obtido foi separado por filtração, lavado com água permutada por íon até uma condutividade elétrica do filtrado alcançar 30 μs/cm ou menos, e em seguida secado em 120°C sob pressão normal, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador L de 1% em massa de rutênio/1,6% em massa de níquel sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO COMPARATIVO 2

Em um prato de cerâmica, 0,26 g de tricloreto de rutênio foi dissolvido em 7,5 g de água permutada por íon, e em seguida 6 g de um pó de zircônia "RC-100" disponibilizado por Dai-Ichi Kigenso Kagaku Kogyo Co., Ltd., foi imerso na solução obtida, e deixado permanecer em temperatura ambiente durante 2 horas. Em seguida, a suspensão resultante foi aquecida para 65°C e desidratada ao mesmo tempo que misturando, e em seguida secada em 120°C sob pressão normal durante todo dia e noite. O pó seco obtido foi aquecido para 400°C em uma taxa de elevação de temperatura de 5°C/min sob uma alimentação de fluxo de ar em uma taxa de 3 Nm^3/h, e cozido no forno em 400°C durante 4 horas. A seguir, o pó de zircônia sustentado por rutênio desse modo obtido foi imerso em uma solução preparada por dissolução de 0,12 g de hexa-idrato de nitrato de níquel em 7,4 g de água permutada por íon, e em seguida deixado permanecer em temperatura ambiente durante 2 horas. Em seguida, a suspensão resultante foi aquecida para 65°C e desidratada ao mesmo tempo que misturando, e em seguida secada em 120°C sob pressão normal durante todo dia e noite. O pó seco obtido foi aquecido para 400°C em uma taxa de elevação de temperatura de 5°C/min sob uma alimentação de fluxo de ar em uma taxa de 3 Nm^3/h, e co-

zido no forno em 400°C durante 4 horas, desse modo obtendo cerca de 6 g de um catalisador M de 2% em massa de rutênio/0,4% em massa de níquel sustentado por zircônia.

EXEMPLO 7

Uma autoclave de 500 mL de um tipo de agitação giratória por indução eletromagnética foi carregada com 150 g (0,55 mol) de álcool estearílico e 3 g do catalisador G produzido no Exemplo de preparação 6 (2,0% em massa com base no álcool bruto), e em seguida 47 g (2,76 mols) de amônia foram carregados na autoclave e também 0,17 mol de hidrogênio foi introduzido sob pressão nela de modo que uma pressão total na autoclave como medido em temperatura ambiente alcance 2,3 MPaG. A seguir, os conteúdos da autoclave foram aquecidos para uma temperatura de reação de 220°C ao mesmo tempo que agitando (em 1000 rpm). A pressão máxima inicial na autoclave em 220°C foi 16 MPaG. Ao mesmo tempo que continuamente fornecendo hidrogênio na autoclave de modo que uma pressão total nela seja mantida em uma pressão constante de 16 MPaG, os conteúdos da autoclave foram reagidos um com o outro. O produto reacional resultante foi filtrado para remover o catalisador dele, e em seguida submetido à cromatografia por gás para analisar uma composição deste. Os resultados são mostrados na Tabela 2.

EXEMPLOS 8 e 9

O mesmo procedimento como no Exemplo 7 foi repetido a não ser utilizando-se os catalisadores (H) e (I) produzidos nos Exemplos de preparação 7 e 8, respectivamente, no lugar do catalisador (G), e fornecendo uma quantidade adicional de hidrogênio de modo que a pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C seja mantida em um valor constante mostrado na Tabela 2. Os produtos reacionais resultantes foram analisados da mesma maneira como no Exemplo 7. Os resultados são mostrados na Tabela 2.

EXEMPLO 10

O mesmo procedimento como no Exemplo 7 foi repetido a não ser carregando-se 6 g do catalisador (J) produzido no Exemplo de prepara-

ção 9 (4,0% em massa com base no álcool bruto) no lugar do catalisador (G), e fornecendo uma quantidade adicional de hidrogênio de modo que a pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C seja mantida em um valor constante mostrado na Tabela 2. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 7. Os resultados são mostrados na Tabela 2.

EXEMPLO 11

O mesmo procedimento como no Exemplo 7 foi repetido a não ser carregando-se 3 g do catalisador (L) produzido no Exemplo de preparação 11 (2,0% em massa com base no álcool bruto) no lugar do catalisador (G), e fornecendo uma quantidade adicional de hidrogênio de modo que a pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C seja mantida em um valor constante mostrado na Tabela 2. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 7. Os resultados são mostrados na Tabela 2.

Tabela 2-1:

	Catalisador	Pressão máxima inicial (MPaG)	Tempo de reação (hora)
Exemplo 7	G	16	6,0
Exemplo 8	H	16	6,0
Exemplo 9	I	16	6,0
Exemplo 10	J	16	4,0
Exemplo 11	L	16	4,0

Tabela 2-2:

	Conversão de álcool bruto (%)	Seletividade à amina de estearila (%)	Produtos (%)	
			Amina de diestearila	Outros
Exemplo 7	97,0	87,6	9,1	2,9
Exemplo 8	97,3	78,7	15,8	4,9
Exemplo 9	96,5	70,6	19,3	9,1
Exemplo 10	98,1	90,3	7,2	2,3
Exemplo 11	97,6	89,0	9,6	1,1

EXEMPLO COMPARATIVO 2

O mesmo procedimento como no Exemplo 7 foi repetido a não ser utilizando-se o catalisador (M) produzido no Exemplo de Preparação Comparativo 2 no lugar do catalisador (G). A reação foi conduzida durante 6 horas, e a pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C foi 16 MPaG. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 7. Como um resultado, foi confirmado que a conversão do álcool bruto foi 12,7%.

EXEMPLO 12

O mesmo procedimento como no Exemplo 7 foi repetido a não ser utilizando-se 150 g (0,81 mol) de álcool laurílico no lugar de álcool estearílico e utilizando-se amônia em uma quantidade de 69 g (4,06 mols), desse modo conduzindo a reação durante 9 horas. A pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C foi 21 MPaG. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 7. Como um resultado, foi confirmado que a conversão do álcool bruto foi 97,9%, a seletividade à laurila amina foi 90,4%, a quantidade de dilauril amina produzida é 8,9%, e a quantidade dos outros subprodutos produzidos foi 0,6%.

EXEMPLO 13

Uma autoclave de 500 mL de um tipo de agitação giratória por indução eletromagnética foi carregada com 150 g (0,55 mol) de álcool estearílico e 3 g do catalisador (G) produzido no Exemplo de preparação 6 (2,0% em massa com base no álcool bruto), e em seguida os conteúdos da autoclave foram aquecidos para 220°C em uma atmosfera de hidrogênio (0 MPaG) ao mesmo tempo que agitando (em 1000 rpm). Em seguida, ao mesmo tempo que fluindo amônia e hidrogênio através da autoclave em taxas de 19,1 g (1,1 mol/h) e 2,6 L (0,12 mol/h), respectivamente, a fim de manter a pressão de reação em um valor constante de 2,0 MPaG, a reação foi conduzida durante 3 horas. O produto reacional resultante foi filtrado para remover o catalisador dele, e em seguida submetido à cromatografia por gás para analisar uma composição deste. Como um resultado, foi confirmado

que a conversão do álcool bruto foi 96,0%, a seletividade à laurila amina foi 78,1%, a quantidade de dilauril amina produzida é 13,4%, e a quantidade dos outros subprodutos produzidos foi 7,6%.

EXEMPLO 14

O mesmo procedimento como no Exemplo 13 foi repetido a não ser utilizando-se o catalisador (K) produzido no Exemplo de preparação 10 no lugar do catalisador (G), fluindo amônia e hidrogênio através da autoclave em taxas de 13,1 g (0,77 mol/h) e 4,3 L (0,19 mol/h), respectivamente, desse modo conduzindo a reação durante 6 horas. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 7. Como um resultado, foi confirmado que a conversão do álcool bruto foi 65,5%, a seletividade à laurila amina foi 85,5%, a quantidade de dilauril amina produzida é 7,3%, e a quantidade dos outros subprodutos produzidos foi 2,2%.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 12

Um frasco separável foi carregado com 10,0 g de um pó de zircônia "RC 100" disponibilizado por DaHchi Kigenso Kagaku Kogyo Co., Ltd., e 170 g de água permutada por íon para preparar uma suspensão, e em seguida uma solução preparada por dissolução de 0,29 g de hidrato de cloreto de rutênio tendo um peso molecular de 252,68, 0,72 g de hexa-idrato de sulfato de níquel e 0,04 g de nitrato de lantânio em 40 g de água permutada por íon foi adicionada a ela, seguido por aquecimento da suspensão para 60°C ao mesmo tempo que agitando. A suspensão desse modo obtida (em 60°C) foi agitada durante 10 horas, e em seguida amônia aquosa como um precipitante foi gotejada nela para ajustar um pH da suspensão para 11 para hidrólise desta, seguido por amadurecimento da suspensão em 60°C durante 2 horas. Em seguida, a suspensão foi misturada com 3,2 g de uma solução de formalina a 37% em massa e aquecida para 90°C em que a suspensão foi reduzida durante 1 hora. A seguir, o pó obtido foi separado por filtração, lavado com água permutada por íon até uma condutividade elétrica do filtrado alcançar 30 μs/cm ou menos, e em seguida secado em 60°C sob uma pressão de 13 kPa, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador N de 1% em massa de rutênio/1,6% em massa de níquel/0,1% em massa de lan-

tânio sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 13

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 12 foi repetido a não ser utilizando-se 0,29 g de hidrato de cloreto de rutênio, 0,72 g de hexa-idrato de sulfato de níquel e 0,04 g de cloreto de magnésio, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador O de 1% em massa de rutênio/1,6% em massa de níquel/0,1% por peso de magnésio sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 14

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 12 foi repetido a não ser utilizando-se 0,29 g de hidrato de cloreto de rutênio, 0,72 g de hexa-idrato de sulfato de níquel e 0,04 g de nitrato de ítrio, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador P de 1% em massa de rutênio/1,6% em massa de níquel/0,1% por peso de ítrio sustentado por zircônia.

EXEMPLO DE PREPARAÇÃO 15

O mesmo procedimento como no Exemplo de preparação 12 foi repetido a não ser utilizando-se 0,29 g de hidrato de cloreto de rutênio, 0,72 g de hexa-idrato de sulfato de níquel e 0,02 g de nitrato de bário, desse modo obtendo cerca de 10 g de um catalisador Q de 1% em massa de rutênio/1,6% em massa de níquel/0,1% por peso de bário sustentado por zircônia.

Enquanto isso, nos Exemplos de Preparação e Exemplos de Preparação Comparativos acima, os conteúdos dos componentes (A), (B), (B') e (C) nos respectivos catalisadores com base em uma quantidade total do catalisador foram determinados pela seguinte análise espectral de emissão ICP.

Medição de Conteúdos dos Respectivos Componentes:

O conteúdo do componente de rutênio foi medido como segue. Isto é, hidrogeno sulfato de amônio foi adicionado a uma amostra (catalisador) de modo que hidrogeno sulfato de amônio seja utilizado em uma quantidade diversas dezenas de vezes aquela da amostra de catalisador, e a mistura obtida foi fundida sob aquecimento. O fundido resultante foi resfriado e

em seguida dissolvido sob aquecimento em água pura, e o conteúdo do componente de rutênio nele foi medido por um analisador espectral de emissão ICP. Além disso, os conteúdos do componente de níquel e do componente de bário foram medidos como segue. Isto é, ácido sulfúrico foi adicionado a uma amostra (catalisador), e a mistura obtida foi aquecida. Além disso, quantidades apropriadas de peróxido de hidrogênio e ácido nítrico foram adicionadas à mistura, e a solução obtida foi repetidamente aquecida até produzir uma solução transparente. A solução transparente resultante foi resfriada e em seguida misturada com água pura, e o conteúdo de cada um dos componente de níquel e componente de bário nela foi medido por um analisador espectral de emissão ICP.

EXEMPLO 15

Uma autoclave de 500 mL de um tipo de agitação giratória por indução eletromagnética foi carregada com 150 g (0,55 mol) de álcool estearílico e 3 g do catalisador (N) produzidos no Exemplo de Produção 12 (2,0% em massa com base no álcool bruto), e em seguida 47 g (2,76 mols) de amônia foram carregados na autoclave e também 0,17 mol de hidrogênio foi introduzido sob pressão nela de modo que uma pressão total na autoclave como medido em temperatura ambiente alcance 2,3 MPaG. A seguir, os conteúdos da autoclave foram aquecidos para uma temperatura de reação de 220°C ao mesmo tempo que agitando (em 1000 rpm). A pressão máxima inicial na autoclave em 220°C foi 16 MPaG. Ao mesmo tempo que continuamente fornecendo hidrogênio na autoclave de modo que uma pressão total nela seja mantida em uma pressão constante de 16 MPaG, os conteúdos da autoclave foram reagidos um com o outro. O produto reacional resultante foi filtrado para remover o catalisador dele, e em seguida submetido à cromatografia por gás para analisar uma composição deste. Os resultados são mostrados na Tabela 3.

EXEMPLO 16

O mesmo procedimento como no Exemplo 15 foi repetido a não ser utilizando-se o catalisador (O) produzido no Exemplo de Preparação 13 no lugar do catalisador (N), e fornecendo uma quantidade adicional de hi-

drogênio de modo que a pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C seja mantida em um valor constante mostrado na Tabela 3. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 15. Os resultados são mostrados na Tabela 3.

EXEMPLOS 17 e 18

O mesmo procedimento como no Exemplo 15 foi repetido a não ser carregando-se 6 g de cada um dos catalisadores (P) e (Q) produzido nos Exemplos de Preparação 14 e 15 (4% em massa com base no álcool bruto), respectivamente, no lugar do catalisador (N), e fornecendo uma quantidade adicional de hidrogênio de modo que a pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C seja mantida em um valor constante mostrado na Tabela 3. Os produtos reacionais resultantes foram analisados da mesma maneira como no Exemplo 15. Os resultados são mostrados na Tabela 3.

Tabela 3-1

	Catalisador	Pressão máxima inicial (MPaG)	Tempo de reação (hora)
Exemplo 15	N	17	6,0
Exemplo 16	O	17	7,0
Exemplo 17	P	17	3,0
Exemplo 18	Q	16	3,0

Tabela 3-2

	Conversão de álcool bruto (%)	Seletividade à amina de estearila (%)	Produtos (%)	
			Amina de diestearila	Outros
Exemplo 15	97,3	92,1	6,3	1,4
Exemplo 16	97,6	92,6	5,8	1,4
Exemplo 17	97,4	93,6	4,8	1,4
Exemplo 18	97,6	92,3	5,9	1,6

EXEMPLO 19

O mesmo procedimento como no Exemplo 15 foi repetido a não ser utilizando-se 150 g (0,81 mol) de álcool laurílico no lugar de álcool estea-

rílico e utilizando-se amônia em uma quantidade de 69 g (4,06 mols), desse modo conduzindo a reação durante 9 horas. A pressão máxima inicial como medido em uma temperatura de reação de 220°C foi 21 MPaG. O produto reacional resultante foi analisado da mesma maneira como no Exemplo 15. Como um resultado, foi confirmado que a conversão do álcool bruto foi 96,3%, a seletividade à laurila amina foi 90,9%, a quantidade de dilauril amina produzida é 8,2%, e a quantidade dos outros subprodutos produzidos foi 0,6%.

APLICABILIDADE INDUSTRIAL

De acordo com o processo da presente invenção, uma amina alifática, em particular, uma amina primária alifática pode ser produzida de um álcool alifático com uma alta atividade catalítica e uma alta seletividade. As aminas alifáticas resultantes são compostos importantes em campos de aplicação doméstica e industrial e são adequadamente utilizadas, por exemplo, como materiais brutos para produção de tensoativos, agentes de tratamento de fibra etc.

REIVINDICAÇÕES

1. Processo para produção de uma amina alifática, caracterizado pelo fato de que compreende a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador formado por sustentação de (A) um componente de rutênio produzido por hidrólise de um composto de rutênio em um veículo.

2. Processo para produção de uma amina alifática, caracterizado pelo fato de que compreende a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador, em que o catalisador é formado por sustentação de (A) um componente de rutênio e (B) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio que são respectivamente produzidos por hidrólise de um composto de rutênio e um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio, em um veículo.

3. Processo para produção de uma amina alifática, caracterizado pelo fato de que compreende a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador, em que o catalisador é formado por sustentação de (A) um componente de rutênio, (B') pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel e cobalto e (C) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário, em um veículo.

4. Processo de acordo com a reivindicação 3, caracterizado pelo fato de que um conteúdo do pelo menos um componente de metal (C) selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário no catalisador é de 0,01 a 10% em massa em termos do elemento de metal com base em uma quantidade total do catalisador.

5. Processo de acordo com a reivindicação 3 ou 4, caracterizado pelo fato de que o catalisador é produzido por hidrólise de um composto de rutênio como uma fonte do componente (A), um composto de metal como

uma fonte do componente (B') e um composto de metal como uma fonte do componente (C) para precipitar os respectivos componentes de metal.

6. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 5, caracterizado pelo fato de que o veículo é pelo menos um composto selecionado do grupo consistindo em um composto molecular elevado, um fosfato de metal, e um óxido poroso.

7. Processo de acordo com a reivindicação 6, caracterizado pelo fato de que o veículo é um óxido poroso.

8. Processo de acordo com a reivindicação 7, caracterizado pelo fato de que o óxido poroso é pelo menos um óxido selecionado do grupo consistindo em alumina, zircônia, titânia e uma terra diatomácea de aluminossilicato, compostos tipo hidrotalcita, óxidos de metal alcalino-terroso, e, nióbia.

9. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 2 a 8, caracterizado pelo fato de que um conteúdo do componente (B) ou do componente (B') no catalisador é de 0,1 a 25% em massa em termos do elemento de metal com base em uma quantidade total do catalisador.

10. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 9, caracterizado pelo fato de que um conteúdo do componente de rutênio (A) no catalisador é de 0,1 a 25% em massa em termos de rutênio metálico com base em uma quantidade total do catalisador.

11. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 10, caracterizado pelo fato de que o catalisador utilizado neste é seco em uma temperatura de 140°C ou menor.

12. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 11, caracterizado pelo fato de que o catalisador produzido é submetido ao tratamento de redução na presença de pelo menos um agente de redução selecionado do grupo consistindo em formaldeído, hidrazina e boroidreto de sódio.

13. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 12, caracterizado pelo fato de que a reação catalítica do álcool alifático com amônia e hidrogênio é realizada em uma temperatura de 120 a 280°C.

14. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 13, caracterizado pelo fato de que a reação catalítica do álcool alifático com amônia e hidrogênio é realizada sob uma tal condição que um relação molar de amônia para o álcool alifático (amônia/álcool alifático) é de 0,5 a 10.

15. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 14, caracterizado pelo fato de que o catalisador é utilizado em uma quantidade de 0,1 a 20% em massa com base no álcool alifático.

16. Processo de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 15, caracterizado pelo fato de que a amina alifática é uma amina primária alifática.

17. Catalisador utilizado no processo para produção de uma amina alifática contactando-se um álcool alifático tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio, caracterizado pelo fato de que compreende um veículo, e (A) um componente de rutênio produzido por hidrólise de um composto de rutênio que é sustentado no veículo.

18. Catalisador utilizado no processo para produção de uma amina alifática contactando-se um álcool alifático tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio, caracterizado pelo fato de que compreende um veículo, e (A) um componente de rutênio e (B) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio que são respectivamente produzidos por hidrólise de um composto de rutênio e um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio, e são sustentados no veículo.

19. Catalisador utilizado no processo para produção de uma amina alifática contactando-se um álcool alifático tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio, caracterizado pelo fato de que compreende um veículo, e (A) um componente de rutênio, (B') pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel e cobalto e (C) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário que são sustentados no veículo.

20. Uso de um catalisador formado por sustentação de (A) um

componente de rutênio produzido por hidrólise de um composto de rutênio em um veículo, caracterizado pelo fato de ser no processo para produção de uma amina alifática contactando-se um álcool alifático tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio.

21. Uso de um catalisador formado por sustentação de (A) um componente de rutênio e (B) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio que são respectivamente produzidos por hidrólise de um composto de rutênio e um composto de pelo menos um metal selecionado do grupo consistindo em níquel, cobalto e tungstênio, em um veículo, caracterizado pelo fato de ser no processo para produção de uma amina alifática contactando-se um álcool alifático tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio.

22. Uso de um catalisador formado por sustentação de (A) um componente de rutênio, (B') pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em níquel e cobalto e (C) pelo menos um componente de metal selecionado do grupo consistindo em lantânio, ítrio, magnésio e bário, em um veículo, caracterizado pelo fato de ser em um processo para produção de uma amina alifática contactando-se um álcool alifático tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio.

PI 0620821-5

RESUMO

Patente de invenção: **"PROCESSO PARA PRODUÇÃO DE UMA AMINA ALIFÁTICA, BEM COMO CATALISADOR UTILIZADO NO REFERIDO PROCESSO E SEU USO"**.

A presente invenção refere-se a um processo para produção de uma amina alifática, compreendendo a etapa de contactar um álcool alifático linear ou ramificado, ou cíclico tendo 6 a 22 átomos de carbono com amônia e hidrogênio na presença de um catalisador formado por sustentação de pelo menos (A) um componente de rutênio produzido por hidrólise de um composto de rutênio em um veículo, ou por sustentação também, além do componente (A), de um segundo componente de metal específico ou um terceiro componente de metal específico no veículo. De acordo com o processo da presente invenção, uma amina primária alifática pode ser produzida de um álcool alifático com uma alta atividade catalítica e uma alta seletividade.