

**KÖZZÉTETELI
PÉLDÁNY**

P 0302039

Eljárás laktámok tisztítására

11.11.2005.

A2

KIVONAT

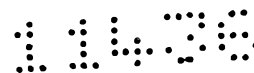
A találmány laktámok, különösen aminonitril gyűrűzárásos hidrolízisével előállított laktámok tisztítására, mégpedig többek között az aminokapronitril gyűrűzárásos hidrolízisével előállított ϵ -kaprolaktám tisztítására vonatkozik, amelynek során a hidrolizáló reakcióközegeből eltávolítják az ammóniát, majd a laktámot a közegből tisztított formában kinyerik. Ennek során a laktámot egy bázis jelenlétében legalább egyszer desztillálják, így adott esetben egy, a laktámnál illékonyabb vegyületeket tartalmazó felső frakciót, egy, a kívánt tisztaságú laktámot tartalmazó frakciót és egy, a laktámot és a laktámnál kevésbé illékony vegyületeket tartalmazó desztillációs maradékot kapnak. A desztillációs maradékot különböző eljárásokkal, mégpedig vékonyréteg elpárologtatásos eljárással kezelik, ezzel a jelenlévő kaprolaktám nagyrésztét kinyerik és ezt a tisztítási eljárásba visszavezetik.

A találmány szerinti eljárással a hidrolízis közegben jelenlévő kaprolaktámot kívánt tisztaságban és nagy kitermeléssel állítják elő.

2003. 07. 07.
J

2005. 01. 19.
Jd. olt. megu
le!

Az így kinyert kaprolaktámot hidrogéneztek, majd ioncserélő gyantán kezelték vagy kénsav jelenlétében desztillálták, végül egy bázis jelenlétében desztillálták.



Egyéb tisztítási eljárásokat is leírtak. Például a WO98/05636 számú nemzetközi közvételteli irat egy savas természetű oldószer alkalmazásával végzett folyadék/folyadék extrakción vagy gyantán végzett kezelésen alapuló tisztítási eljárásra vonatkozik.

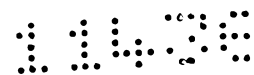
Ezekben az eljárásokban a kaprolaktám végső desztillálását általában úgy végezték, hogy a termék megfeleljen a tisztasági követelményeknek, különösen poliamidok, például poliamid-6 előállításában használt monomerrel szemben támasztott tisztasági követelményeknek.

Azonban ez az utolsó desztillációs lépés nagy kaprolaktám veszteséget okoz, ami nagyon ártalmas a teljes eljárás gazdaságossága szempontjából.

10 A Beckmann átrendeződési reakcióval előállított kaprolaktám tisztítására vonatkozóan a 4 301 073 számú amerikai egyesült államokbeli szabadalmi leírásban olyan eljárást javasoltak a kaprolaktám tisztítására, amely egy oldószerrel végzett extrakciós lépést, majd a bázisos közeg desztillálását foglalja magában. A desztillációs maradék kezelésével annyi kaprolaktámot nyertek ki, amennyi lehetséges. Ezen kezelés folyamán további desztillációs
15 lépéseket hajtottak végre, és a desztillált kaprolaktámot egy erős savval kezelték, mielőtt az extrakciós lépésben visszacirkuláltatták. Ezzel az eljárással javítható a kaprolaktám kitermelése, de a visszacirkulálás előtt végzett kezelésben egy sav alkalmazására van szükség. Tehát a visszacirkuláltatási eljárás bonyolult, és a savas kezelés kivitelezése jelentős befektetést igényel. Ezen túlmenően az eljárás nem alkalmazható egy új reakcióval előállított
20 kaprolaktám kezelésére, amelynek teljesen eltérő szennyeződései új tisztítási eljárásokkal távolíthatók el.

Találmányunk egyik célja a fenti hátrányok kiküszöbölése egy, az aminonitril gyűrűzárásos hidrolíziséből származó laktám tisztítására alkalmas eljárás és berendezés kidolgozásával, amely nagytisztaságú laktám nagy kitermeléssel történő előállítását teszi lehetővé.
25 Végül, találmányunk kiterjed a laktám, közelebbről az ϵ -kaprolaktám tisztítási eljárására, amelyet aminonitril, közelebbről aminokapronitril gyűrűzárásos hidrolízisével állítunk elő, az eljárás során a hidrolizáló reakcióközegtől az ammóniát eltávolítjuk, majd a laktámot a közegtől tisztított formában nyerjük ki.

A találmányunk szerinti eljárásban a laktámot egy bázis jelenlétében legalább egyszer végzett desztillálással nyerjük ki, ezzel adott esetben egy, a laktámnál illékonyabb vegyületeket tartalmazó felső frakciót, a kinyerendő laktámot kívánt tisztaságban tartalmazó frakciót, valamint a laktámot és a laktámnál kevésbé illékony vegyületeket tartalmazó desztillációs maradékot kapunk.



Tehát a desztillációval végzett tisztítási lépés desztillációs maradéka vagy a visszamaradó anyag túlnyomórészt laktámot tartalmaz, a szennyeződések főleg sókból és a reakció melléktermékeiből állnak.

5 A találmányunk szerinti eljárásban a desztillációs maradék kezelése során a desztillációs maradékban jelenlévő laktám nagyrészt elválasztjuk, és a tisztítási eljárás bármelyik lépésében elválasztott laktámot vagy a gyűrűzárásos hidrolízis után kapott közeget visszacirkuláltatjuk.

10 A találmányunk szerinti megoldásban a desztillációs maradék kezelése során a laktámot, például vékonyréteg bepárlással visszanyerjük, vagy az utóbbit kristályosítjuk vagy a laktámot az egyéb szennyeződésektől elválasztjuk, például a szennyeződések nagyrésztét vízzel extraháljuk.

15 A laktám kristályosítását szokásos kristályosítási eljárásokkal végezhetjük, ahol oldószerként vizet vagy a laktám telített vizes oldatát vagy magát a laktámot használjuk. Ezt előnyösen egyetlen lépésben végezzük. Azonban, amennyiben szükséges, két vagy több kristályosítási lépés is alkalmazható.

A kristályosítási eljárást és annak körülményeit például a 943 608 számú európai és a 4 882 430 számú amerikai egyesült államokbeli szabadalmi leírásban ismertették.

20 Az így előállított laktámot visszacirkuláltatjuk a bázisos közeget tartalmazó desztilláló edénybe, ezt vagy úgy végezzük, hogy a desztilláló oszlop egy előre meghatározott szintjére közvetlenül betápláljuk vagy az említett oszlopba belépő reakcióközeg áramához hozzáadjuk vagy a tisztítási eljárás egy másik lépésében adagoljuk, majd a laktámot kinyerjük vagy a gyűrűzárásos hidrolízisből származó közeghez adjuk.

25 Találmányunk második kiviteli alakjában a desztillációs maradékot vékonyfilm vagy vékonyréteg elpárologtatásos eljárással kezeljük. Az elpárologtatott laktámot a kristályosítást magában foglaló kiviteli alakhoz hasonló körülmények között a kristályosító edénybe visszavezetjük. A laktám elpárologtatását 130 °C és 150 °C közötti hőmérsékletre történő hevítéssel végezzük 10 mbar-nál kisebb nyomáson.

30 Végül találmányunk harmadik megvalósítási módja szerint a desztillációs maradékot vízzel kezelhetjük a szennyeződések, különösen a sók oldása céljából, az ülepítéssel végzett elválasztás után kinyert laktámot előnyösen visszacirkuláltatjuk a laktám savas közegben, majd bázisos közegben történő desztillálásával végzett tisztítási eljárásba.

A desztillációs maradék kezelésére vonatkozó fenti eljárásokkal az ezen maradék termékekben jelenlévő laktám legalább 90 tömeg%-ának, előnyösen legalább 95 tömeg%-a



visszanyerhető. A tisztítási eljárásban a laktámveszteség a jelenlévő résztvevő laktám kevesebb mint 3 tömeg%-ára leszorítható.

A találmányunk szerinti eljárásban a bázisos desztillálással végzett tisztítással a laktámveszteség nagyon alacsony szintre leszorítható. Ezen veszteségek csak nagyon kis
5 hatással vannak az eljárás gazdaságosságára és a nagyon magas kitermeléssel kinyert laktám minőségére.

A találmányunk szerinti megoldásban a közeg, amelyből a laktámot kinyerjük, lehet az aminonitril gyűrűzárásos hidrolízisének alkalmazott reakcióközeg az ammónia elpárologtatása után. Az említett reakcióközeg hidrogénezésnek vethető alá az ammónia elpárologtatása előtt.
10

A bázisos desztillációnak alávetett reakcióközegen az ammónia elpárologtatása után többféle előkezelést végezhetünk.

Találmányunk egyik megvalósítási módja szerint a hidrolizáló reakcióközeget a laktámnál kevésbé illó és illékonyabb termékek eltávolítása céljából kezeljük. Ezt a kezelést a 5 496 941 számú amerikai egyesült államokbeli szabadalmi leírásban ismertették,
15 ennek megfelelően az ammóniát, a vizet és az egyéb illó termékeket elpárologtatjuk, majd a laktámot ledesztilláljuk. Tehát a találmányunk szerinti bázisos desztillációval kezelt hidrolizáló reakcióközeg a desztillálással kinyert laktám.

Találmányunk egy másik megvalósítási módja szerint, különösen amikor a gyűrűzárásos hidrolízist gőzfázisban végezzük, a reakcióközegeből csak az ammóniát extraháljuk,
20 amelyet az ammónia eltávolítása előtt adott esetben hidrogénezzük.

A desztillálással kinyert laktámot vagy az ammóniamentes reakcióközeget hidrogénezhetjük vagy oxidáló kezelésnek vethetjük alá, például a bázisos desztilláció előtt.

Egy másik megvalósítási módnál a laktám tisztítási eljárása során ioncserélő gyantán
25 savas közegben végzett kezelést vagy erős sav, például kénsav jelenlétében végzett desztillálást hajthatunk végre.

A tisztítási eljárás és a laktám kinyerése a laktám egyszer vagy egymás után többször végzett kristályosítását is tartalmazhatja, és az így kristályosított laktám alkotja a találmányunk szerinti bázisos desztillációhoz betáplált közegét.

Tehát a találmányunk szerinti desztillálási eljárás a laktám tisztítási eljárás egy olyan lépése, amely a laktám tisztítására vonatkozó számos ismert eljárásban használt egyéb
30 kezelésekkel kombinálható.

Találmányunk egy másik jellemzője, hogy a találmányunk szerinti tisztítási eljárást olyan desztillálási eljárással végezhetjük, amely desztilláló oszlopok sorozatát foglalja magában, ezzel egymás után többféle termék elválasztása végezhető.

5 Szintén találmányunk tárgyát képezik a bázisos közeg vagy savas közeg desztillálásával végzett tisztítási eljárás kivitelezésére alkalmazott berendezések.

Találmányunk első kiviteli alakjában, amely a tisztítandó laktám bázisos közegben történő kezelésének kivitelezésére alkalmas, a berendezés egy első desztilláló oszlopot foglal magában, amelybe a tisztítandó laktámot előre meghatározott mennyiségű bázissal együtt tápláljuk be. Ebben az oszlopban, amely dehidratáló oszlopként is ismert, a vizet
10 egy felső frakció formájában távolítjuk el, a laktámot és a bázist tartalmazó desztillálási maradékot egy második desztilláló oszlopba tápláljuk be.

Ebben a második desztilláló oszlopban a laktámnál illékonyabb termékeket egy felső frakció formájában eltávolítjuk, és az elválasztott laktámot egy harmadik desztilláló oszlopba tápláljuk be.

15 Ebben a harmadik oszlopban a ledesztillált és felső frakcióként kinyert laktámot és a desztillálási maradékot előnyösen a találmányunk szerinti eljárással kezeljük a laktám nagyrészenek kinyerése céljából. A desztillálási maradékból kinyert laktámot előnyösen a második desztilláló oszlopra visszavezetjük.

A találmányunk második kiviteli alakja szerinti berendezés sorba állított három
20 desztilláló oszlopot tartalmaz. Az első oszlop, amely az első kiviteli alaknak felel meg, egy dehidratáló oszlop, amellyel a víz nagyrésze, előnyösen teljes mennyiség eltávolítható.

A második oszlopon a legkevésbé illékony vegyületek és különösen a laktámnál kevésbé illékony vegyületek választódnak el és alkotják a desztillációs maradékot. Az oszlop tetején kinyert laktámot betápláljuk a harmadik oszlopba.

25 Ebben az utolsó oszlopban a tisztított laktámot előnyösen egy középső frakciónak akár gőzfázisban akár folyadékfázisban történő kivonásával gyűjtjük össze. A laktámnál illékonyabb vegyületeket tartalmazó felső frakciót eltávolítjuk, és a desztillálási maradékot előnyösen visszavezetjük a második oszlopra.

Ebben a kiviteli alakban a második oszlopról származó desztillálási maradékot előnyösen azért kezeljük, hogy a találmányunk szerinti eljárásban kapott laktámot kinyerjük.
30 Az így kinyert laktámot előnyösen a második oszlopra vezetjük vissza.

A bázisos vegyületet előnyösen az első dehidratálási lépésbe történő betáplálás előtt adagoljuk a kezelendő közeghez.

Azonban találmányunk kiterjed egy olyan eljárásra is, amelynek során a savas közegben, különösen kénsavas közegben végzett desztillációval, majd bázisos közegben végzett desztillációval tisztítandó laktámot tartalmazó közeget kezeljük. Ezt a találmányunk szerinti kezelési eljárást a fent ismertetett második kiviteli alak szerinti berendezésben végezzük.

Ezen második kiviteli alak szerint a savat a dehidratáló oszlopba történő betáplálás előtt adjuk a kezelendő közeghez, a bázist a második desztilláló oszlopban előállított felső frakcióhoz adjuk a harmadik desztilláló oszlopba történő betáplálás előtt.

A sav jelenléte következtében képződő sókat, például a bázis semlegesítéséből származó aminoszulfátokat és szulfátokat a második desztilláló oszlopon képződő desztillációs maradék termékből eltávolítjuk és lecsapoljuk. Ezt a desztillációs maradékot előnyösen laktám kinyerési kezelésnek vetjük alá, amely a jelen esetben a következő:

- a desztillációs maradékot vízzel mossuk az olyan sók eltávolítása céljából, mint az ammónium- és/vagy aminoszulfátok, a vizes fázis és a laktámot tartalmazó szerves fázis elválasztása után a szerves fázist előnyösen a dehidratáló oszlopba betáplált közegbe visszavezetjük vagy a második oszlopra visszavezetjük vagy, az egyik változat szerint, további kezelésnek, például vékonyréteg elpárologtatásnak vagy kristályosításnak vetjük alá, vagy

- a laktám elpárologtatását vékonyfilm vagy vékonyréteg elpárologtatással végezzük,

vagy

- a laktámot vízből, vizes laktámoldatból vagy laktámból kristályosítjuk.

Ezeket a kezeléseket kombinálhatjuk, előnyösen a vízzel végzett mosást a bepárlás vagy a kristályosítás előtt végezzük.

Találmányunk egyik jellemzője, hogy a laktám előnyösen ϵ -kaprolaktám, amelyet aminokapronitril gőzfázisban vagy folyadékfázisban oldószerrel vagy oldószer nélkül végzett gyűrűzárásos hidrolízisével állítunk elő.

Az aminonitril például addiponitril részleges hidrogénezésével képződik. Ezt a reakciót például a 4 601 859, 2 762 835, 2 208 598 számú amerikai egyesült államokbeli, a 4 235 466 számú német és az 5 981 790 számú amerikai egyesült államokbeli szabadalmi leírásokban ismertették.

A gyűrűzárásos hidrolízis reakcióközegében jelenlévő ammóniát desztillálással vagy gyors eljárással eltávolítjuk.

A találmányunk szerinti eljárás reakcióközege legalább 99,9 tömeg% laktámot tartalmazhat. Ezt a koncentráció-tartományt csak példaképpen adjuk meg. Tehát a laktámot tartalmazó közeg a találmányunk szerinti eljárással is tisztítható.

5 A találmányunk szerinti berendezés második kiviteli alakját képező különböző oszlopokban a működési körülmények az alábbiak, anélkül, hogy találmányunkat erre korlátoznánk.

Az első dehidratálási lépést 110 °C és 130 °C közötti hőmérsékleten végezzük körülbelül 50 mbar és 200 mbar közötti nyomáson.

10 A dehidratált frakciót a második desztilláló oszlopba tápláljuk be, amelyben a magas forráspontú termékek elválasztására vonatkozó második lépést végezzük, amelynek során desztillálási maradék képződik.

Ezen oszlop működési körülményei a következők: 150 °C-nál alacsonyabb hőmérséklet és 5 mbar és 10 mbar közötti nyomás.

15 Az így előállított felső frakció a laktámnál magasabb forráspontú szennyeződések tartalmaz 100 ppm-nél kisebb mennyiségben.

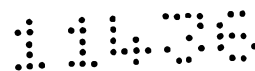
Ezt a felső frakciót a következő desztilláló oszlopra tápláljuk be, amelynek működési körülményei a következők: 150 °C-nél alacsonyabb hőmérséklet az oszlop alján és 5 mbar és 10 mbar közötti nyomás.

20 A középső frakcióként képződött laktám, előnyösen az ϵ -kaprolaktám tisztasága (szennyezettségének mértéke) eleget tesz a poliamidgyártásban, különösen textilipari alkalmazás esetén előírt követelményeknek. Ezen közbülső frakciót előnyösen az oszlopból gőzfázisban vonjuk ki, ezáltal magas forráspontú termékeket csak nagyon kis koncentrációban tartalmaz. Azonban ezen közbülső frakciót folyadékfázisban is kivonhatjuk, és ez a megoldás is találmányunk oltalmi körébe tartozik.

25 Találmányunk egyik kiviteli alakjában az oszlop alján kapott desztillálási maradékot a második desztilláló oszlopra visszavezetjük.

30 Találmányunk egy előnyös kiviteli alakjában a találmányunk szerinti laktám tisztítására vonatkozó eljárás szerint a második oszlop alján összegyűjtött desztillálási maradékot a laktám elválasztási lépésben, például vékonyfilm vagy vékonyréteg elpárologtatásos eljárásnak vetjük alá 150 °C-nál alacsonyabb hőmérsékleten és 5 mbar és 10 mbar közötti nyomáson.

Találmányunk egy másik előnyös kiviteli alakjában a desztillálási maradékot kristályosítjuk a laktám, különösen a kaprolaktám kinyerése céljából.



A desztillálási maradékot vízzel is kezelhetjük a sók, különösen a hidrolizáló közegben jelenlévő szabad bázisok semlegesítéséből származó szulfátok extrahálása céljából. A laktámot tartalmazó kinyert szerves fázist a dehidratáló oszlopra vagy a második oszlopra visszavezethetjük, vagy a laktám elválasztásának egy következő lépésében, például vékonyfilm vagy vékonyréteg elpárolgatásnak vagy kristályosításnak vethetjük alá.

A találmányunk szerinti megoldásban bázisként alkálifém-hidroxidokat, alkáliföldfém-hidroxidokat vagy fém-karbonátokat használunk, mint a nátrium-hidroxid, lítium-hidroxid, kálium-hidroxid, magnézium-hidroxid, kalcium-hidroxid, nátrium-karbonát, magnézium-karbonát, lítium-karbonát vagy vegyes karbonátok. Előnyösen vizes nátrium-hidroxid-oldatot használunk. A bázis mennyisége széles határok között változtatható. Előnyösen 1 kg kaprolaktámra vagy laktámra számítva 0,05 g és 2 g közötti mennyiségű bázist adagolunk.

Ahogy fentebb jeleztük, ezt a bázist a dehidratálási lépésben adagolt kezelendő közeghez vagy a berendezés második kiviteli alakja szerinti második oszlopból származó felső frakcióhoz adagoljuk a harmadik oszlopba történő betáplálás előtt.

A találmányunk szerinti megoldásban a dehidratálási lépésben a közeghez egy sav, előnyösen kénsav is adagolható. Az adagolt sav mennyiségét a kezelendő közegben jelenlévő szabad bázis mennyiségének függvényében határozzuk meg. A bázis mennyiségét a közeg potenciometrikus titrálásával határozzuk meg. Az adagolt sav mennyisége a szabad bázisok 1 moljára számítva 0,5 mol sav és a szabad bázisok 1 moljára számítva 1 mol sav közötti, előnyösen a szabad bázisok 1 moljára számítva 0,7 mol sav és 0,9 mol sav közötti. Ez a koncentráció-tartomány megolvasztható sók és gyengén korrodeáló hatású közeg előállítását teszi lehetővé.

A találmányunk szerinti megoldás további előnyeit és részleteit az alábbi példákban ismertetjük, amelyekben a mellékelt ábrákra hivatkozunk, ezek közül az

1. ábrán a találmányunk szerinti berendezés első kiviteli alakjának blokkdiagramja látható és a

2. ábrán a találmányunk szerinti berendezés második kiviteli alakjának blokk diagramja látható.

1. Példa

Addiponitril részleges hidrogénezésével előállított aminokapronitril gyűrűzárásos hidrolíziséből származó közeget hidrogénezünk az ammónia ledesztillálása (leszívása) előtt. A képződő közeget ioncserélő gyantán juttatjuk át. A kezelési körülményeket az em-



lített szabadalmi leírásokban és szabadalmi bejelentésekben, különösen a WO98/05636 számú nemzetközi és a 2 786 180 számú francia szabadalmi leírásokban ismertették. A közeg körülbelül 65 tömeg% kaprolaktámot tartalmaz és a következő tisztasági jellemzőket mutatja:

5 Permanganát szám (PN_{MnO_4}): 35

Illékony bázis tartalom (N_{VB}): 1,8 meq/kg

UV szám (N_{UV}): 0,5

Ezeket a jellemzőket szabványos eljárásokkal határozzuk meg, amelyet a permanganát szám (PN_{MnO_4}) esetében az ISO 8660 standard előírás szerint, az illó bázis
10 tartalom (N_{VB}) esetében az ISO 8661 standard előírás és az UV szám (N_{UV}) esetében az ISO 7059 standard előírás szerint határozzuk meg. A találmányunk szerinti megoldásra vonatkozó 1. ábrán ezt a közeget az 1 csövön át a 2 első desztilláló oszlopra tápláljuk be, ezután a 3 csövön át 1 kg kaprolaktámra számítva 0,6 g tiszta nátrium-hidroxidot adagolunk koncentrált oldat formájában.

15 A 2 oszlop aljának hőmérséklete 130 °C-nál alacsonyabb és nyomása 70 mbar. A 4 felső frakció vizet tartalmaz.

Az 5 desztillációs maradék 0,5 tömeg%-nál kevesebb vizet tartalmaz.

Ezt az 5 desztillációs maradékot a 6 második oszlopra tápláljuk be, amely 7, 8 reflux alatt működik. A 9 felső frakciót, amely lényegében kaprolaktámból és a kaprolaktámnál
20 alacsonyabb forráspontú vegyületekből áll, eltávolítjuk. Az eltávolított kaprolaktám mennyisége a betáplált kaprolaktám 0,5 tömeg%-át teszi ki. A 10 desztillációs maradékot, amely kaprolaktámot tartalmaz, a 11 harmadik oszlopra tápláljuk be, ez szintén 12, 13 reflux alatt működik.

A 14 felső frakció megfelelő tisztaságú kaprolaktámból áll.

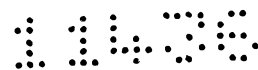
25 A tisztítási jellemzők a következők:

Permanganát szám (PN_{MnO_4}): 1,5

Illékony bázis tartalom (N_{VB}): 0,28 meq/kg

UV szám (N_{UV}): 0,025

A 15 desztillációs maradék túlnyomórészt kaprolaktámból áll és szennyeződésként
30 a kaprolaktámnál magasabb forráspontú vegyületeket tartalmaz, ezt a 16 lehántolt film elpárologtató berendezésbe tápláljuk be, amely 10 mbar nyomáson és 150 °C hőmérsékleten működik.



Az elpárologtatott kaprolaktámot a 17 csövön keresztül visszavezetjük a 11 harmadik oszlopra.

Az el nem párologtatott termékeket a 18 csövön át eltávolítjuk.

5 A 2 első oszlopba betáplált és a 11 harmadik oszlop 14 tetején képződött kaprolaktám tömegaránya azt mutatja, hogy a kicsapódó kaprolaktám 99,1 %-át megfelelően nagy tisztaságban nyerjük ki.

2. Példa

10 Az ammónia desztillálása (leszívása) után kapott aminokapronitril hidrolizáló közeget a találmányunk szerinti berendezésben kezeljük, ezt a kaprolaktám tisztítási eljárásnak második kiviteli alakját bemutató 2. ábrán szerint diagram formájában ábrázoljuk.

A közeg jellemzői a következők:

Permanganát szám (PN_{MnO_4}): 381

Illékony bázis tartalom (N_{VB}): 232 meq/kg

UV szám (N_{UV}): 12

15 A szabad bázisok potenciometrikus citrálással meghatározott koncentrációja 1 kg közegegre vagy oldatra számítva 189 meq-nek felel meg.

A 2. ábrán a találmányunk szerinti közeget 21 csövön át tápláljuk be a 22 első desztilláló oszlopba azután, hogy a 23 csövön át a kezelendő közegben jelenlévő szabad bázis 1 moljára számítva 0,8 mol kénsavat adagolunk koncentrált oldat formájában.

20 A 22 oszlop alján a hőmérséklet 130 °C-nál alacsonyabb, a nyomás 70 mbar. A 24 felső frakció vizet tartalmaz.

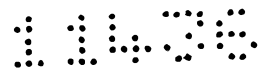
A 25 desztillációs maradék 0,5 tömeg%-nál kevesebb vizet tartalmaz.

A 25 desztillációs maradékot a 26 második oszlopba tápláljuk be, amely 27, 28 reflux alatt működik.

25 A 26 második oszlopról származó 29 felső frakciót, amely lényegében kaprolaktámot és a kaprolaktámnál alacsonyabb forráspontú vegyületeket tartalmaz, betápláljuk a szintén 32, 33 reflux alatt működő 31 harmadik oszlopba, azután, hogy a 39 csövön át ezen felső frakcióhoz 1 kg kaprolaktámra számítva 0,6 g tiszta nátrium-hidroxidot adunk koncentrált oldat formájában.

30 A 31 harmadik oszlopról származó 34 felső frakciót, amely a kaprolaktámnál alacsonyabb forráspontú vegyületeket tartalmaz, eltávolítjuk.

A bemutatott kiviteli alakban a 35 desztillációs terméket a 26 második oszlopra visszavezetjük.



Az ezen 31 harmadik oszlopról lecsapolt tisztított kaprolaktám 40 közbülső frakció formájában van. A kivonási műveletet az oszlop alsó részén gáz formájában vagy az oszlop felső részén folyadék formájában végezzük. Az előállított kaprolaktám jellemzői a következők:

- 5 Permanganát szám (PN_{MnO_4}): 2
 Illékony bázis tartalom (N_{VB}): 0,25 meq/kg
 UV szám (N_{UV}): 0,03

10 A találmányunk szerinti eljárásban a 26 második oszlopról lejövő 30 desztillációs maradékot, amely túlnyomórészt kaprolaktámból áll, és szennyeződésként kaprolaktámnál magasabb forráspontú vegyületeket és a szabad bázisok kénsavval történő semlegesítésében képződő sókat tartalmaz, a 36 lehántolt film elpárologtató berendezésbe tápláljuk, amely 10 mbar nyomáson és 150 °C hőmérsékleten működik. Az elpárologtatott kaprolaktámot a bemutatott kiviteli alakban a 37 csövön keresztül visszavezetjük a 26 második oszlopra.

15 Az el nem párologtatott termékeket a 38 csövön át eltávolítjuk.

A 22 első oszlopba betáplált és a 31 harmadik oszlopról 40 közbülső frakció formájában kijövő kaprolaktám tömegaránya azt mutatja, hogy a kaprolaktám 98,9 %-át megfelelően nagy tisztasággal nyerjük ki.

3. Példa

20 A 2. példa szerint járunk el azzal az eltéréssel, hogy a második oszlopról származó 30 desztillációs maradékot víz hozzáadásával kezeljük körülbelül 80 tömeg% kaprolaktámmal tartalmazó oldat előállítása céljából. A keveréket keverésnek vetjük alá. Keverés után két folyadékfázis képződik. Az alsó fázis egy vizes fázis, amely 60 tömeg% amin-szulfátot tartalmaz, ez a tisztítási eljárásban a dehidratáló oszlopra felvitt kaprolaktámban jelenlévő
 25 amin körülbelül 70 %-ának felel meg. A felső fázist, amely lényegében kaprolaktámból áll, az első desztilláló oszlopra visszavezetjük.

Ezzel az eljárással a desztilláló oszlopra felvitt kaprolaktám 99 %-át nagy tisztaságban nyerjük ki, amely termék különösen textiliparban használható poliamid előállítására alkalmas.

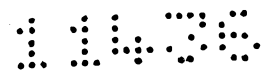
30 4. Példa

A 2. példa szerint járunk el, azzal az eltéréssel, hogy a második oszlop 30 desztillációs maradékát a kaprolaktám tisztításának egyik lépésében kristályosítási eljárásnak vetjük alá. A desztillációs maradékot csökkentett nyomáson bepároljuk, ezzel körülbelül 8 tö-

meg% vízkoncentrációt érünk el. A 40 °C hőmérsékletű koncentrált oldatot ezután 20 °C körüli hőmérsékletre hűtjük körülbelül óránkénti 10 °C hűtési sebességgel. A képződött kristályokat egy zsugorított üvegszűrőn át végzett szűréssel kinyerjük. A vizes anyalúgot kinyerjük és az esetleges visszacirkulálás céljából eltároljuk. A kaprolaktám kristályokat tartalmazó szilárd szűrőleplenyt a kaprolaktám telített vizes oldatával mossuk. A mosási arány a nedves anyagra vonatkoztatva előnyösen 1 és 5 közötti.

A kinyert kaprolaktám a desztillálási lépésbe történő visszacirkuláláshoz megfelelő tisztaságú.

Ezzel az eljárással a desztilláló oszlopra felvitt kaprolaktám 99 %-át nagy tisztasággal nyerjük ki, amely termék különösen alkalmas textiliparban használható poliamid előállítására.



Szabadalmi igénypontok

1. Eljárás aminonitril-származék gyűrűzárásos hidrolízisével előállított laktámok tisztítására, amelynek során a hidrolízis reakcióközezből eltávolítjuk az ammóniát és adott esetben az oldószert, majd a laktámot egy bázis jelenlétében legalább egyszer desztilláljuk, így a reakcióközezből kinyerjük a laktámot, és amely desztillációs eljárással adott esetben egy, a laktámnál illóbb vegyületeket tartalmazó felső frakciót, egy, a laktámot nagy tisztaságban tartalmazó frakciót és egy, a laktámot és a laktámnál magasabb forráspontú vegyületeket tartalmazó desztillációs maradék terméket nyerünk ki, **azzal jellemezve**, hogy egy, az említett desztillációs maradék termék kezelésére vonatkozó lépést hajtunk végre, amelynek során a laktám nagyrésztét kinyerjük, és a kinyert laktámot a laktám tisztítási eljárásban visszacirkuláltatjuk.

2. Az 1. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy a desztillációs maradék termék kezelésére vonatkozó eljárásként a laktámot egy oldószerből, mégpedig vízből, vizes laktám oldatból vagy laktámokból átkristályosítjuk.

3. Az 1. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy a desztillálási maradék termék kezelésére vonatkozó eljárásként a laktámot vékonyréteg elpárologtatásos eljárásnak vetjük alá.

4. Az 1-3. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy a kezelés során a fenti desztillációs maradék terméket vízzel desztilláljuk, ahol a laktámot a szerves fázisban nyerjük ki.

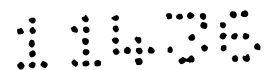
5. Az 1-4. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy a laktámot a bázisos közegben végzett desztillációt megelőzően savas közegben desztilláljuk.

6. Az 1-5. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy 1 kg laktámra számítva 0,05 g és 2 g közötti mennyiségű bázisos vegyületet adagolunk.

7. Az 1-6. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy bázisos vegyületként alkálifém-hidroxidokat használunk.

8. Az 5. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy savas vegyületként kénsavat használunk.

9. Az 5. vagy 8. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve**, hogy a tisztítandó laktámban jelenlévő szabad bázis móljára számítva 0,5 mól és 1 mól közötti mennyiségű savas vegyületet adagolunk.



10. Berendezés laktám desztillációval történő tisztítására, **azzal jellemezve**, hogy sorba állított három desztilláló oszlopot tartalmaz, ahol az első oszlop egy dehidratáló oszlop (2,22), a második oszlop (6,26) és a harmadik oszlop (11,31) a laktámnál kevésbé illó vegyületek és illóbb vegyületek elválasztására szolgáló oszlop, a tisztított laktámot a

5 harmadik oszlopról (11,31) elvezetjük, és a laktámhoz egy bázisos vegyületet adagolunk legalább az egyik oszlopba való betáplálás előtt.

11. A 10. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a bázisos vegyületet a dehidratáló oszlopba (2,22) történő bevezetés előtt adjuk a laktámhoz.

12. A 11. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a laktámnál illóbb

10 vegyületeket a második oszlopról (6) lejövő felső frakcióként (9) távolítjuk el.

13. A 12. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a kevésbé illó vegyületeket a harmadik oszlopról (11) lejövő desztillációs maradék termékként (17) választjuk el.

14. A 12. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a harmadik oszlop-

15 ról (11) származó desztillációs maradék termék (17) kezelésével visszanyerjük a jelenlévő laktámot, és a visszanyert laktámot a laktám tisztítási eljárásba visszacirkuláltatjuk.

15. A 10. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a laktámnál illóbb vegyületeket a harmadik oszlopról (31) lejövő felső frakcióként eltávolítjuk, és a laktámnál kevésbé illó vegyületeket a második oszlopról (26) származó desztillációs ma-

20 radék termékként eltávolítjuk.

16. A 15. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a jelenlévő laktámot a második oszlopról (26) származó desztillációs maradék termék kezelésével visszanyerjük, és ezt a visszanyert laktámot a laktám tisztítási eljárásba visszacirkuláltatjuk.

17. A 15. vagy 16. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a

25 laktámhoz a bázisos vegyületet a dehidratáló oszlopba (22) történő betáplálás előtt adagoljuk.

18. A 15. és 16. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a savas vegyületet a laktámhoz a dehidratációs lépés előtt adagoljuk, és a bázisos vegyületet a laktámhoz a harmadik oszlopba (31) történő betáplálás előtt adagoljuk.

19. A 14. vagy 16. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy laktámnál

30 kevésbé illó vegyületeket tartalmazó desztillációs maradék termékek kezelése során a laktámot vékonyfilm vagy vékonyréteg elpárologtatásos eljárással, kristályosítással és/vagy vízzel végzett mosással választjuk el.

20. A 10-19. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a bázisos vegyület alkálifém-hidroxid.

21. A 10-20. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a bázisos vegyületet 1 kg laktámra számítva 0,05 g és 2 g közötti mennyiségben adagoljuk.

5 22. A 18. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a savas vegyület kénsav.

23. A 18. vagy 21. igénypont szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a savas vegyületet a tisztítandó laktámban jelenlévő szabad bázisok móljára számítva 0,5 mól és 1 mól közötti mennyiségben adagoljuk.

10 24. A 10-23. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a tisztítandó laktámot tartalmazó közeget az aminonitril hidrolízis reakcióközegének ioncserélő gyantájával végzett kezeléssel állítjuk elő az ammónia eltávolítása után.

25. A 10-24. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a laktám kaprolaktám.

15 26. A 10-25. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a hidrolízis reakcióközeget az ammónia eltávolítása előtt hidrogénezzük.

27. A 10-25. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a hidrolízis reakcióközeget az ammónia eltávolítása után hidrogénezzük.

20 28. A 10-27. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a ciklizáló hidrolízist gőzfázisban vagy folyadékfázisban végezzük.

29. A 10-27. igénypontok bármelyike szerinti berendezés, **azzal jellemezve**, hogy a ciklizáló hidrolízist folyadékfázisban, egy oldószer jelenlétében végezzük.

A meghatalmazott:

25

DANUBIA
Szabadalmi és Védjegy Iroda Kft.

Dr. Fehérvári Flóra
szabadalmi ügyvivő

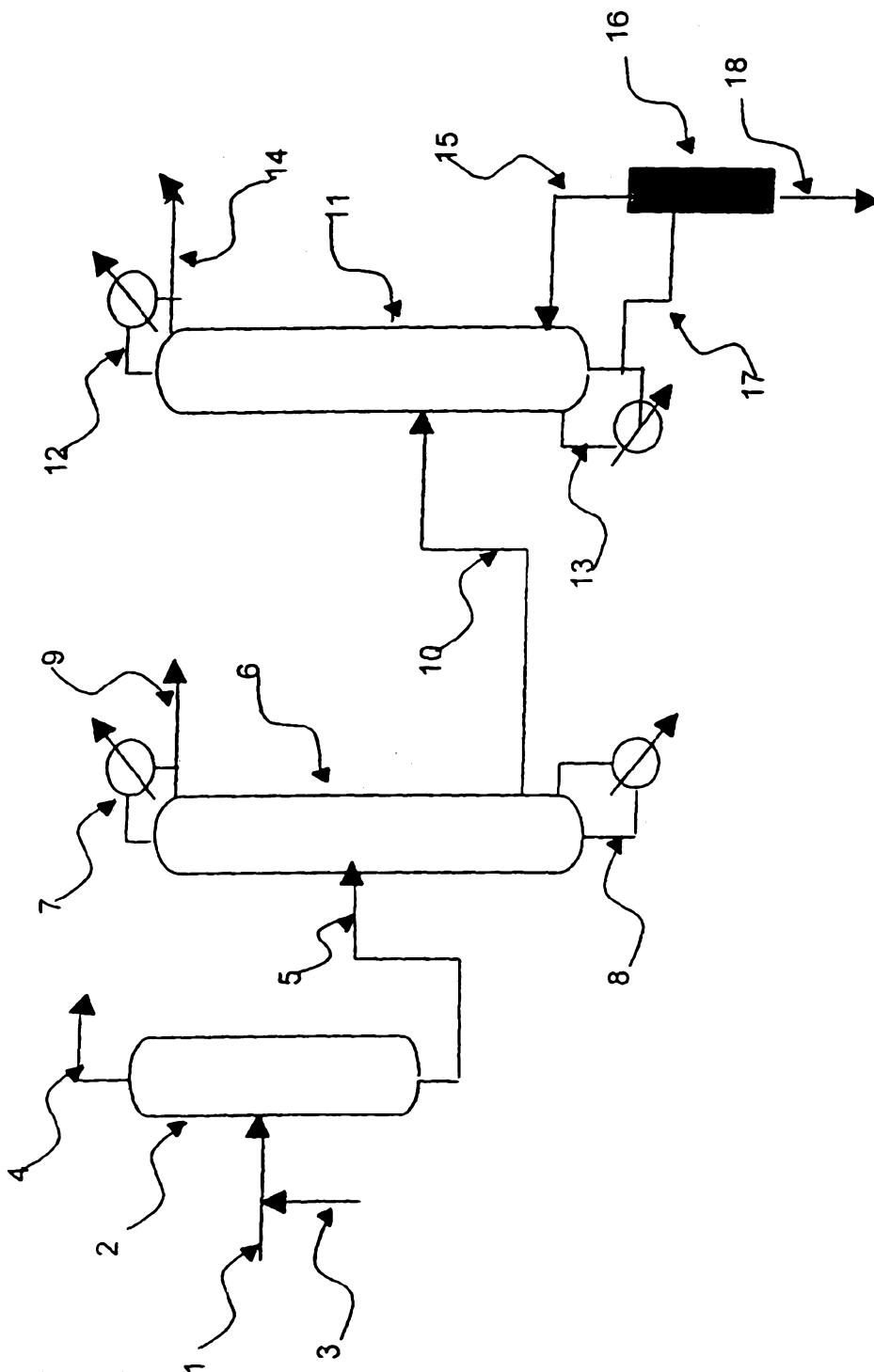
30

2006.07.07.

J

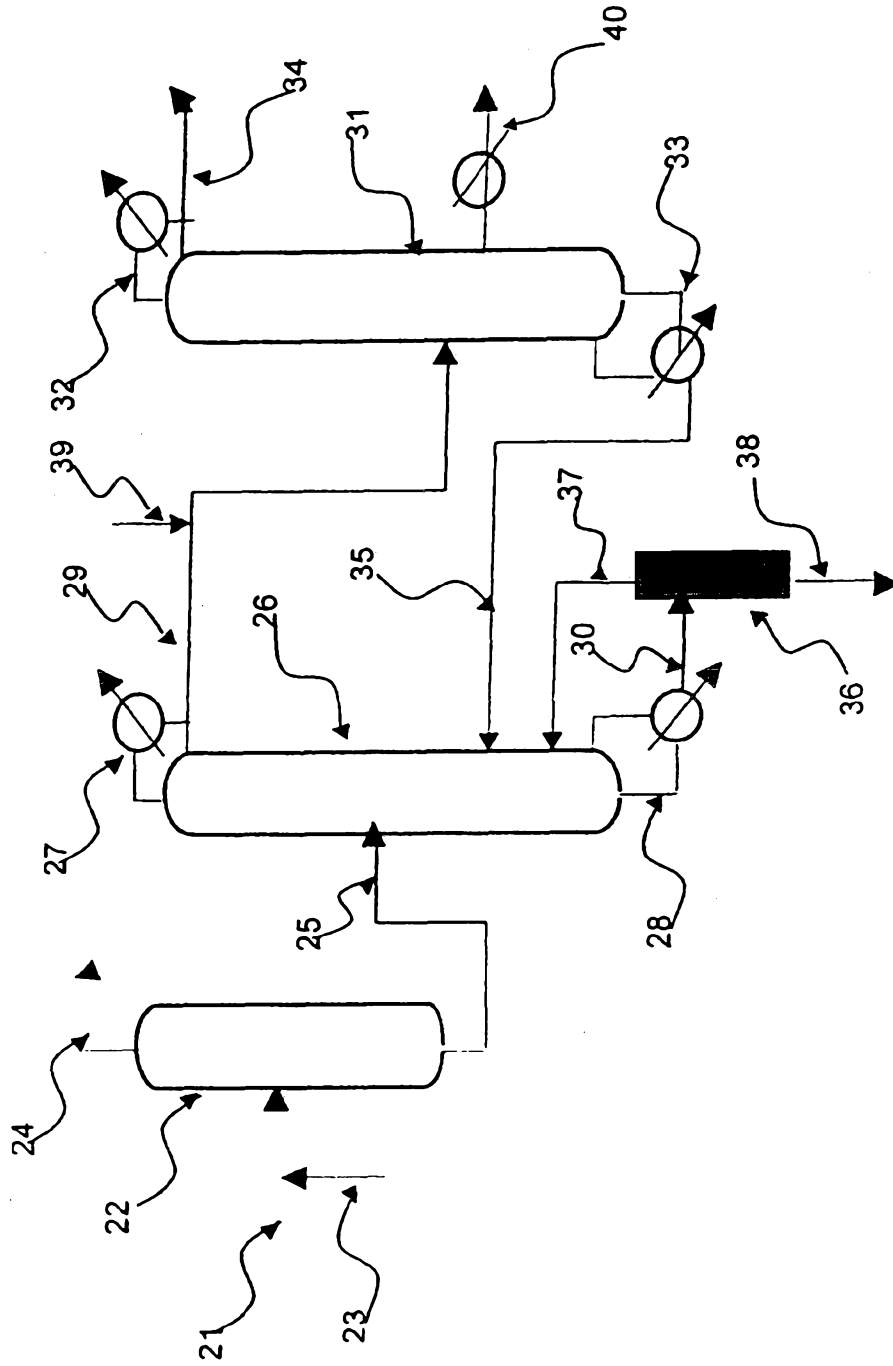
KÖZZÉTÉTELI
PÉLDÁNY

A2



1. ÁBRA

2003.07.07.
D.



2. ÁBRA