



P 0200461 A2

"Eljárás aldehidek ketonokkal történő kondenzálására többfázisú reakcióban"

### Kivonat

### KÖZZÉTÉTELI PÉLDÁNY

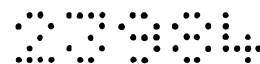
A találmány tárgya eljárás (I) általános képletű  $\alpha, \beta$ -telítetlen keton-származékok előállítására, a képletben R1 és R2 jelentése 1-20 szénatomos, előnyösen 1-16 szénatomos egyenes vagy elágazó szénláncú, telített vagy telítetlen alifás vagy cikloalifás-alifás szénhidrogéncsoport vagy 5-12 szénatomos telített vagy telítetlen cikloalifás szénhidrogéncsoport, amely adott esetben alkilcsoporttal szubsztituálva lehet, és/vagy endoalkilén-csoportot tartalmaz, valamint 7-15 szénatomos aralifás szénhidrogéncsoport, előnyösen benzilcsoport, vagy aromás szénhidrogéncsoport, előnyösen fenilcsoport, R3 jelentése hidrogénatom vagy 1-10 szénatomos alifás szénhidrogéncsoport, vagy R1 és R3 jelentése a kapcsolódó szénatomokkal együtt alicikus gyűrű, ahol az R1, R2 és R3 jelentésében előforduló egy vagy több metilén-csoport, amely a karbonilcsoporthoz képest  $\alpha$ -helyzettől eltérő helyzetben áll, oxigénatommal vagy kénatommal szubsztituálva lehet, (II) általános képletű aldehid és (III) általános képletű keton reagáltatásával, a képletekben R1, R2 és R3 jelentése a fenti, ahol a reakciót folyadékfázisban végezzük egy csőreaktorban, oly módon, hogy a katalizátor a folyamatos fázisban, és legalább egy kiindulási anyag diszpergált fázisban található, és a csőreaktor terhelési faktora legalább 0,8.

}

3 példát + 2 rajz

-----  
200

Jell : I, II, III 2<sup>o</sup> et. képlet



**KÖZZÉTÉTELI  
PÉLDÁNY**

P 02 00461

**Eljárás aldehidek ketonokkal történő kondenzálására többfázisú reakcióban**

A találmány tárgya eljárás többfázisú reakció megvalósítására, elsősorban  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékok előállítására aldehidek ketonokkal történő kondenzálásával.

Az  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékokat reakcióképességük miatt számos szerves szintézisben alkalmazzák. Ezek a vegyületek kiindulási anyagként használhatók illatanyagok és gyógyszer hatóanyagok előállítására.

A Houben-Weyl: *Methoden der organischen Chemie*, 7/1. kötet, 77. oldal és *Organic Reactions*, 16. kötet, 27-47, 69-78, 177. oldal irodalmakból ismert, hogy aldehidek ketonokkal  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékokká kondenzálhatók. A kondenzálást előnyösen 5-25 °C hőmérsékleten végzik (*Organic Reactions*, 77. oldal). Az eljárásnál alkalmazott számos katalizátor, például alkálifém- és alkáliföldfém-hidroxid, szerves bázis, alkálifémsó vagy alkoholát, egyide-



júleg elősegíti az aldehid, illetve a keton önmagában történő kondenzálását, és ezért melléktermékek kialakulásához vezet. Az ilyen elegyek feldolgozása jelentős ráfordítást igényel, mivel az alkalmazott katalizátort el kell távolítani vagy semlegesíteni kell. A kívánt végtermék kitermelése gyakran nem kielégítő.

A DE 2.150.992 számú irat eljárást ismertet  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékok aldehidekből és ketonokból történő előállítására. Ennek során az aldolkondenzációt lényegében cinkoxidból álló kontakt katalizátorral katalizálják. A reakciót 140-200 °C hőmérsékleten végzik. A ketont feleslegben alkalmazzák. A reakcióelegyet desztillációs úton dolgozzák fel. Ha a keton/aldehid molarány 1,3:1-5,7:1, és az  $\alpha,\beta$ -telítetlen ketonnak a sztöchiometrikusnál kisebb mennyiségben alkalmazott aldehidre vonatkoztatott kitermelése 66-82 %, akkor a szelektivitás az alkalmazott reagensektől függően 75-93 %. Mivel a reakcióelegy legfeljebb 20-60 % kívánt végterméket tartalmaz, az elválasztáshoz szükséges ráfordítás jelentős.

Az EP 0.792.862 számú irat eljárást ismertet aldehidek ketonokkal történő reagáltatására komplex magnézium-alumínium-hidroxid jelenlétében. A sztöchiometrikusnál kisebb mennyiségben alkalmazott aldehid a felhasznált ketonnal mind aldol-addíciós terméket, mind aldol-kondenzációs terméket képez, melyek molaránya 0,7:1-1,40:1. Ha az aldehidre vonatkoztatott kitermelés 96-98 %, akkor az említett két

termék együttes szelektivitása az aldehidre vonatkoztatva csupán 71-79 %.

Az US 5.583.263 számú irat kétlépéses eljárást ismertet  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékok előállítására elsősorban n-butiraldehid és aceton reakciójával. Az első lépésben a kiindulási anyagok elegyét, amely az acetont feleslegben tartalmazza, bázikus ioncserélő gyantán  $\beta$ -hidroxiketonná alakítják. Az n-butiraldehid teljes átalakításnál legfeljebb 88 %-os szelektivitással 4-hidroxiheptanonná alakítható. Ennek során az acetontól legfeljebb 95 %-os szelektivitással diacetonalkohol keletkezik. Az első lépés reakcióelegyét a második lépésben savas katalízis során  $\alpha,\beta$ -telítetlen ketonná dehidratizálják. Katalizátorként erős savat vagy erősen savas ioncserélő gyantát alkalmaznak. A hept-3-én-2-on kitermelése, ami az n-butiraldehid és az aceton kondenzációs terméke, az n-butiraldehidre vonatkoztatva 85 %. A diacetonból mezitiloxid keletkezik. Az eljárás tulajdonképpen két  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származék előállításának összekapcsolt folyamata. Az eljárást hátránya, hogy a céltermék csak egy aldol-kondenzációs termék, különösen az aldehid és keton aldol-kondenzációjának terméke.

A WO 91/07368 számú irat egy másik kétlépéses eljárást ismertet  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékok aldehidekből és acetontól történő előállítására. Az első lépésben az aldehidet feleslegben alkalmazott acetonnal ciklusos amin katalizátor (perhidroizoindol- és -pirrolidin-származék) és víz jelenlétében a megfelelő

$\beta$ -hidroxiketonná alakítják. Az aldol-addíció után a reakcióelegyet vizes ásványi savval (kénsavval vagy sósavval) pH = 4,5 értékre állítják, és ledesztillálnak egy vízből és acetontól álló elegyet. A reakcióelegyet ezután vízlehasítással a kívánt végtermékké alakítják, amelyhez sósavból és kloroformból álló eleggyel reagáltatják, és visszafolyatás közben forralják. A céltermék izolálását fázisszétválasztással, mosással és desztillálással végzik. Az  $\alpha,\beta$ -telítetlen metilketon-származék kitermelése az alkalmazott aldehidre vonatkoztatva 80-90 %. Az eljárás hátránya elsősorban a feldolgozás nehézsége és segédanyagok alkalmazása.

Az EP 0.816.321 számú irat  $\alpha,\beta$ -telítetlen metilketon-származékok szakaszos előállítását ismerteti aldehidet acetonnal történő keresztezett aldol-kondenzálásával. Katalizátorként 2 %-os nátriumhidroxidot alkalmaznak, és az acetont feleslegben adagolják. A reakciót 70-72 °C hőmérsékleten végzik, a reakcióidő mintegy 4,5 óra. Izovarelaldehid és acetont reagáltatása esetén például 6-metil-3-hept-2-ont kapnak 66 %-os kitermeléssel és 6-metil-4-hidroxi-heptán-2-ont kapnak 3,3 %-os kitermeléssel, az izovarelaldehidre vonatkoztatva, melynek átalakulása 98,3 %. Az eljárás hátránya a szakaszos üzemmód és a kívánt végtermék alacsony kitermelése.

Mivel az ismert eljárások az eljárási ráfordítás és/vagy a tér-idő kitermelés vonatkozásában nem



kielégítőek, szükség van gazdaságos eljárások kidolgozására.

Az ismert eljárásoknál legalább egy többfázisú reakció (szilárd/folyadék vagy folyadék/folyadék) lejátszódik. Ezért olyan oldószereket kell alkalmazni, melyek javítják a többfázisú reakciót, elsősorban az egymással rosszul elegyedő oldószerek vonatkozásában.

Kétfázisú reakció alatt olyan reakciót értünk, amely két nem- vagy csak részben elegyedő folyadékfázis részvételével játszódik le. Egy aldehid és egy keton aldol-kondenzációja során két folyadékfázis van jelen, amelyek nem elegyednek. A reakció elején mindkét fázis kiindulási anyagból és katalizátoroldatból, a reakció befejeződése után termékből és katalizátorfázisból áll.

Kétfázisú reakciók esetén meg kell oldani az anyagátmenet problémáját. A kiindulási anyagot a katalizátorfázisba kell átjuttatni, és a terméket abból vissza kell juttatni. Mivel a transzport folyamatok gyakran lassabbak, mint maga a reakció, ezeket a reakciókat az anyagátmenet sebessége határozza meg, vagyis transzportgátolt reakcióról van szó.

Ahhoz, hogy a kétfázisú reakciók, elsősorban az egymással alig elegyedő fázisok között lejátszódó kétfázisú reakciók tér-idő kitermelését iparilag elfogadható szinten tartsuk, az anyagokat egymás közt a lehető legjobban kell érintkeztetni. Ehhez a fázisok között a lehető legnagyobb  $a_s$  anyagátmeneti felületet kell biztosítani. További követelmény, hogy a fázisok

a reakció lejátszódása után könnyen szétválaszthatók legyenek. Egy erős összekeverés ezért nehézséget okozhat, mivel emulzió kialakulásához vezethet.

A nagy  $a_s$  anyagátmeneti felület mellett minden többfázisú reakciónál a lehető legnagyobb  $k_l$  anyagátmeneti koefficienszt kell elérni. Ehhez az úgynevezett KLA-értéket, vagyis az anyagátmeneti egyenletben a  $k_l$  és  $a_s$  értékek eredményét maximális értéken kell tartani. Az anyagátmeneti egyenlet

$$j = k_l \times a_s \times (C^* - C)$$

ahol

$j$  a reagálandó komponenseknek a fázis határfelületen átlépő árama (mol/s)

$k_l$  anyagátmeneti koefficiens (m/s)

$a_s$  a reaktor fázishatárfelülete ( $m^2$ )

$C^*$  a kiindulási anyag maximális oldékonysága a második fázisban ( $mol/m^3$ )

$C$  a kiindulási anyag valóságos koncentrációja ( $mol/m^3$ ), ami szintén a reakciósebességtől függ.

A többfázisú reakciók másik problémája az exotherm reakcióknál jelentkező hő elvezetése. Amennyiben az anyagátmenet javításával növeljük a reakciósebességet, természetesen több hő elvezetésével kell számolni, ami a hőmérséklet nemkívánt emelkedéséhez vezethet.

Ezért a kétfázisú aldol-kondenzációt gyakran keverőedényben végzik. Ezzel állandó visszakeveredés jár együtt, ami csökkenti a reagensek hatékony kon-

centrációját, és ezáltal a tér-idő kitermelést. Ezért a hátrányért drága reakciótérrel kell fizetni.

A kétfázisú reakciónak áramlásos csőreaktorban történő megvalósítása esetén számolni kell a fázisok szétkeveredésének veszélyével, és ezáltal a reakciósebesség erős csökkenésével.

A fentiek figyelembevételével szükség van olyan eljárás kidolgozására, mely kiküszöböli a fent említett hátrányokat és technikailag egyszerűen megvalósítható.

Technikailag az új eljárásnak a többfázisú reakció következő igényeit kell kielégíteni:

- nagymértékű és stabil anyagátmenet biztosítása a résztvevő fázisok között,
- egyszerű megvalósíthatóság, lehetőleg a szokásos technikai berendezésekben,
- egyszerű és biztonságos hőelvezetés,
- nagy üzemelési biztonság,
- egyszerű és biztonságos méretnövelés.

Ezekhez  $\alpha, \beta$ -telítetlen ketonok előállítása esetén a következő speciális igények társulnak:

- nagy szelektivitás, elsősorban a nagy forráspontú melléktermékek elkerülése,
- aldehid-aldehid melléktermékek csekély képződése,
- keton-keton melléktermékek csekély képződése,
- nagy tér-idő kitermelés, kis reaktor.

A találmány szerinti eljárással egy meglepően egyszerű eljárást találtunk kétfázisú reakciók megvalósítására, amelyek csőreaktorban, adott esetben töl-

tettel vagy beépített elemekkel töltött csőreaktorban megvalósítható, és aldehidek ketonnal végzett aldolkondenzálásához alkalmazható telítetlen ketonok nagy tér-idő kitermeléssel és szelektivitással történő előállítására.

A találmány tárgya tehát eljárás (I) általános képletű  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékok előállítására, a képletben

R1 és R2 jelentése 1-20 szénatomos, előnyösen 1-16 szénatomos egyenes vagy elágazó szénláncú, telített vagy telítetlen alifás vagy cikloalifás-alifás szénhidrogéncsoport vagy 5-12 szénatomos telített vagy telítetlen cikloalifás szénhidrogéncsoport, amely adott esetben alkilcsoporttal szubsztituálva lehet, és/vagy endoalkiléncsoportot tartalmaz, valamint 7-15 szénatomos aralifás szénhidrogéncsoport, előnyösen benzilcsoport, vagy aromás szénhidrogéncsoport, előnyösen fenilcsoport,

R3 jelentése hidrogénatom vagy 1-10 szénatomos alifás szénhidrogéncsoport, vagy

R1 és R3 jelentése a kapcsolódó szénatomokkal együtt aliciklusos gyűrű,

ahol az R1, R2 és R3 jelentésében előforduló egy vagy több metiléncsoport, amely a karbonilcsoporthoz képest  $\alpha$ -helyzettől eltérő helyzetben áll, oxigénatommal vagy kénatommal szubsztituálva lehet,

(II) általános képletű aldehid és (III) általános képletű keton reagáltatásával, a képletekben

R1, R2 és R3 jelentése a fenti,

ahol a reakciót folyadékfázisban végezzük egy csőreaktorban, oly módon, hogy a katalizátor a folyamatos fázisban, és legalább egy kiindulási anyag diszpergált fázisban található, és a csőreaktor terhelési faktora legalább 0,8.

Előnyösen alkalmazható az 1-15 szénatomos, különösen előnyösen 4 vagy 5 szénatomos aldehid. A keton előnyösen 3-15 szénatomos. Ketonként különösen előnyös az aceton.

R1, R2 és R3 jelentése mindhárom általános képletben azonos.

A találmány szerinti eljárásban alkalmazott csőreaktor adott esetben töltetet vagy beépített elemeket tartalmaz. A találmány értelmében töltetként különböző testek alkalmazhatók, például Raschig-gyűrű, nyereg, Pall-gyűrű, tányér, dróthálógyűrű, dróthálószövet. A beépített elemekre példaként említhetők a szűrőlapok, áramlástörők, kolonnatestek, perforált lemezek vagy más keverőeszközök. A találmány értelmében beépített elemként alkalmazhatók továbbá a több szűk, párhuzamosan kapcsolt csőből álló szerkezetek, amelyek így többcsöves reaktort alakítanak ki. Különösen előnyösen alkalmazhatók a strukturált keverőpakolások vagy páramentesítő pakolások.

A találmány szerinti eljárás vonatkozásában különös jelentőséggel bír a csőreaktor minimális keresztmetszeti terhelésének betartása, illetve átlépése. A reaktor felfelé irányuló üzemelése esetén (áramlási irány alulról felfelé) át kell lépni a fluidizációs pontot.



A reaktort tehát azon pont felett üzemeltetjük, ahogy általában a fluidizációs oszlopokat üzemeltetjük. Lefelé irányuló üzemeltetés esetén (áramlási irány fentről lefelé) a keresztmetszeti terhelést úgy kell beállítani, hogy a reaktor teljes egészében fluid állapotban legyen. A reaktort tehát azon pont felett üzemeltetjük, amikor még permetező fázisról (trickle-bed) lehet beszélni.

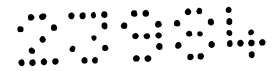
A reaktor minimálisan betartandó terhelésének pontosabb meghatározásához a

$$B = PD/PS$$

egyenlettel a csőreaktorra B terhelési faktort számolunk, ahol PD a reaktorban üzemi körülmények között bekövetkező hosszirányú nyomásesét jelenti (Pa/m) és PS a hosszirányú nyomással azonos dimenziójú számérték, ami a reaktorban található valamennyi komponens M tömegárama (kg/s) és üzemi körülmények között valamennyi komponens V térfogatárama ( $m^3/s$ ) aránya a  $g = 9,81 m/s^2$  állandóval szorozva, vagyis

$$PS = (M/V) \times g.$$

A PS érték tulajdonképpen egy függőlegesen álló csőben a többfázisú elegy esetében méterenként jelentkező statikus nyomás, ha valamennyi fázis azonos sebességgel áramlik. A PS érték egy tiszta számérték, amely a reaktorba bevezetett anyagáramokból adódik, és független a reaktor áramlási irányától, valamennyi fázis áramlási sebességétől vagy a reaktor fluid állapotától.



A PD nyomáskeresést (Pa/m) számértékként használjuk az üzemelési körülmények megállapításához, mely érték egy-, illetve többfázisú áramoknál a szokásos módszerekkel meghatározható. A csőreaktorok, beépített elemeket vagy töltetet tartalmazó csőreaktorok esetében jelentkező PD nyomáskeresés meghatározható például a *VDI-Wärmeatlas*, 7. kibővített kiadás, VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf (1994), La1-Lgb7 fejezet, valamint Heinz Brauer: *Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmungen*, Verlag Sauerländer, Aarau és Frankfurt am Main (1971) szerint.

A PD nyomáskeresés egy üres csövön keresztül áramoltatott egyfázisú rendszer esetében a

$$PD = Cw \times \rho / 2 \times w^2 / D$$

egyenlettel számolható, ahol

$\rho$  az áramló közeg sűrűsége üzemi körülmények között ( $\text{kg/m}^3$ ),

$w$  az áramlási sebesség (térfogatáram/keresztmetzet) ( $\text{m/s}$ ),

$D$  a cső átmérője ( $\text{m}$ ),

$Cw$  az átáramoltatott cső ellenállási együtthatója (mértékegység nélkül).

A töltetet vagy beépített elemeket tartalmazó csőreaktorban jelentkező áramoknál a  $w$  sebességet effektív sebességgel ( $w/\psi$ ), és a  $D$  csőátmérőt a töltet vagy beépített elem hidraulikus csatornaátmérőjével ( $d_H$ ) kell helyettesíteni, vagyis az egyenlet

$$PD = Cw \times \rho / 2 \times (w/\psi)^2 \times 1/d_H$$

ahol

$d_H$  a hidraulikus csatornaátmérő (m),

$\psi$  az üres csőrész (mértékegység nélkül),

$C_w$  az ellenállási együttható (mértékegység nélkül).

A töltetre jellemző  $d_H$  és  $\psi$  adatok gyakran hozzátartoznak a töltet szállítási jellemzőihez. Nagyszámú töltetre megtalálhatók ezek az adatok ezenkívül a fent idézett VDI-Wärmeatlas műben.

A  $\psi$  üres csőrész kísérletileg is meghatározható, amennyiben megmérjük a reaktor térfogatát töltet nélkül és töltettel együtt. A hidraulikus csatornaátmérő, amennyiben nem ismert, meghatározható a töltet vagy beépített elem  $F$  fajlagos felületéből ( $m^2/m^3$ ), ami ismert vagy kísérletileg meghatározható, az alábbi egyenlet alapján:

$$d_H = 4\psi/F.$$

Az ellenállási együtthatót csövek, beépített elemek és töltetek esetében általában az  $Re$  Reynolds-szám függvényében írják le, ami információt ad a kiválasztott körülmények között bekövetkező áramlási állapotról. Töltetek és beépített elemek esetében szinte mindig alkalmazható a következő egyenlet:

$$C_w = K_1/Re^n + K_2/Re^m$$

ahol általában  $n = 1$  és  $m = 0$  (S. Ergun: *Chem. Engng. Progr.* **48**, 89 (1948)) vagy  $n = 1$  és  $m = 0,1$  (Brauer és munkatársai idézett műve). A  $K_1$  és  $K_2$  töltetre jellemző állandó, ami megismerhető a gyári adatokból vagy az irodalomból (például VDI-Wärmeatlas vagy Brauer és munkatársai idézett műve). Ezek az értékek kísérletileg is meghatározhatók, amennyiben

a töltött csőreaktort egy adott folyadékkal különböző sebességekkel üzemeltetjük, és a szükséges állandót az ismert adatokból és a mért  $C_w$  nyomásesésből az  $Re$  Reynolds-szám függvényében meghatározzuk.

A dimenziómentes  $Re$  Reynolds-szám az alábbi egyenletekkel számolható:

Üres cső esetében

$$Re = w \times (\rho/\eta) \times D$$

Beépített elemet vagy töltetet tartalmazó csőnél

$$Re = (w/\psi) \times (\rho/\eta) \times dH$$

ahol  $\eta$  jelentése az adott viszkozitás ( $Pa \times s$ ) és  $\rho$  jelenti az áramló közeg sűrűségét ( $kg/m^2$ ).

A nyomásesés kétfázisú rendszereknél (itt folyadék-folyadék az aldehid-kezon elegy/katalizátoroldat vonatkozásában) aránytalanul gyorsan növekszik. Egy  $P_{1112}$  kétfázisú áram nyomásesését Lockhart-Martinelli után (Brauer és munkatársai idézett műve) gyakran a két fázis egyikének nyomásesésére, például a tisztán áramló  $P_{11}$  folyadékfázis nyomásesésére vonatkoztatják, és a másik önmagában áramló  $P_{12}$  fázis nyomáseséséhez viszonyítják.

A kétfázisú áramlásban jelentkező nyomásesés kiszámítására gyakran dimenziómentes kifejezéseket használnak  $\phi^2 = P_{1112}/P_{11}$  és  $X^2 = P_{11}/P_{12}$  egyenletek alapján. Kiterjedten vizsgálták a  $\phi^2$  és  $X^2$  közötti további összefüggéseket. Ezekre a következő irodalmak idézhetők:

Y. Sato, T. Hirose, F. Takahashi, M. Toda: „Pressure Loss and Liquid Hold Up in Packed Bed Reactor with

Cocurrent Gas-Liquid Down Flow”, *J. Chem. Chem. Eng. Of Japan*, **6**(2), 147-152 (1973);

D. Sweeney: „A Correlation for Pressure Drop in Two-Phase Concurrent Flow in Packed Beds”, *AIChE-Journal*, **13**(7), 663-669 (1967);

V.W. Weekman, J.E. Myers: „Fluid-Flow Characteristics of Concurrent Gas-Liquid Flow in Packed Beds”, *AIChE-Journal*, **10**(6), 11, 951-957 (1964);

R.P. Larkins, R.P. White, D.W. Jeffrey: „Two-Phase Concurrent Flow in Packed Beds”, *AIChE-Journal*, **7**(1), 6, 231-239 (1961) és

N. Midoux, M. Favier, J.-C. Charpentier: „Flow Pattern, Pressure Loss and Liquid Holdup Data in Gas-Liquid Down-Flow Packed Beds with Foaming and Nonfoaming Liquids”, *J. Chem. Eng. Of Japan*, **9**(5), 350-356 (1976).

A számításához gyakran a Midoux által javasolt egyenletet használják. Például:

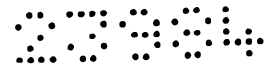
$$\phi^2 = 1 + 1/X + 1,14X^{0,54}$$

Ezt a Lockart-Martinelli néven ismert összefüggést a legtöbb műben grafikusán ábrázolják, részletes kezelését több tankönyv és publikáció, például Brauer és munkatársai idézett műve ismerteti.

A  $P_{1112}$  kétfázisú áramlás nyomásesése a tisztán áramló  $P_{11}$  folyadékfázis kísérletileg meghatározott vagy a fent leírt módon becsült nyomáseséséből a

$$P_{1112} = \phi^2 \times P_{11}$$

egyenletből adódik. Az L reaktorhossz (m) figyelembevételével



$$PD = P_{1112}/L.$$

Egy többfázisú áramlás nyomásesése tehát a kémiai technológia szokásos eszközeivel kiszámolható. Ugyanez érvényes a korábban definiált dimenziómentes B nyomásesésre, vagyis a többfázisú reaktor terhelési faktorára.

A dimenziómentes B terhelési faktor nagysága a találmány szerinti eljárás egyik fontos jellemzője. B értéke ennek megfelelően 0,8 vagy ennél nagyobb, előnyösen 0,9 vagy ennél nagyobb, különösen előnyösen 1 vagy ennél nagyobb.

A B nagyobb/egyenlő 0,8 tartományban egy fentről lefelé üzemeltetett reaktor fluid állapotba kerül. Hangsúlyozzuk, hogy a fenti jellemző betartása esetén a találmány szerinti eljárás előnyei akkor is elérhetők, ha a reaktort lentől felfelé vagy ellenkező irányban üzemeltetjük.

A reaktor nagyobb keresztmetszeti terhelése, amikor B értéke jóval meghaladja az 1 értéket, és ami felismerhető a reaktorban jelentkező nyomáskülönbség növekedéséből, bármikor lehetséges, és akár előnyös, amennyiben a növekvő tér-idő kitermelés igazolja az azonos módon növekvő energiafelhasználást. A felső határt ezért csak gyakorlati megfontolások, így energiafelhasználás vagy reakció után a fázisok szétválasztásának nehézsége határozza meg.

Látható tehát, hogy az egyes fázisok térfogatáramlása, illetve az ebből levezethető üres cső sebességek ( $w = V/(\pi D^2/4)$ ) mellett jelentős szerepet tölt



be a reaktor mérete ( $L$  hossz és  $D$  átmérő), és elsősorban az alkalmazott töltet adatai ( $d_H$  hidraulikus átmérő és  $\psi$  üres cső rész). Az említett paraméterek megfelelő megválasztásával az eljárás könnyen igazítható a különböző elvárásokhoz, ahol a  $B \geq 0,8$ , előnyösen  $B \geq 0,9$ , különösen előnyösen  $B \geq 1$  érték betartása fontos.

Lassú reakció esetén például a töltet hidraulikus átmérőjét kis értéken, illetve fajlagos felületét nagy értéken tartjuk, és így  $B$  esetében a kívánt érték már kis áramlási sebességeknél is elérhető. Így egy technikailag jól méretezett reaktor teljes hosszában kielégítő tartózkodási idő biztosítható. Nagyon gyors reakciónál fordított eljárási mód javasolható.

A találmány szerinti eljárás megvalósításának másik kritériuma a katalizátort tartalmazó  $M_1$  folyékony fázis tömegáramának aránya az  $M_2$  diszperz fázis tömegáramához. A találmány értelmében az  $M_1$  katalizátorfázis tömegárama lényegesen nagyobb, mint az  $M_2$  diszperz fázis tömegárama. A találmány szerinti eljárásban az  $M_1$  folyamatos fázis és az  $M_2$  diszperz fázis  $M_1/M_2$  tömegaránya nagyobb, mint 2, előnyösen nagyobb, mint 10. Gyakran lehetséges és előnyösen az  $M_1/M_2 > 100$  arány beállítása. Az  $M_1/M_2 > 2$  érték esetén a katalizátorfázis a folyamatos fázis, míg a diszperz fázis finom cseppekké esik szét.

A finom cseppek mérete a szokásos mérnöki eszközökkel becsülhető. Alkalmas például az olyan dimenziómentes jellemző, mint a



$$d_s/d_H = k \times \text{Re}_{1112}^m \times \text{We}_{1112}^n$$

ahol

$d_s$  a cseppek átmérője Sauter szerint (Brauer és munkatársai idézett műve),

$d_H$  a hidraulikus töltetátmérő,

$\text{Re}_{1112}$  a többfázisú áramlás Reynolds-száma ( $w_{1112} \times (\rho/\eta) \times (d_H/\psi)$ ),

$\text{We}_{1112}$  a többfázisú áramlás Weber-száma ( $w_{1112}^2 \times (\rho/\sigma) \times (d_H/\psi^2)$ ),

$k$ ,  $m$ ,  $n$  empirikus állandók (ismert vagy kísérletekkel megállapítható),

$w$  üres cső sebesség (m/s) ( $V/(\pi D^2/4)$ ),

$V$  az adott üzemi körülményekre jellemző térfogatáram ( $\text{m}^3/\text{s}$ ),

$\rho$  az adott üzemi körülményekre jellemző sűrűség ( $\text{kg}/\text{m}^3$ ),

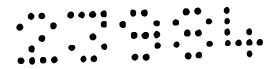
$\eta$  az adott üzemi körülményekre jellemző viszkozitás ( $\text{Pa} \times \text{s}$ ) és

$\gamma$  az adott üzemi körülményekre jellemző határfelületi feszültség ( $\text{N}/\text{m}$ ), és a

11 index az első folyadékfázist, a

12 index a második folyadékfázist jelenti.

Beépített elemként strukturált pakolások, így Sulzer-SMV vagy szűk csövek esetében elfogadhatónak tűnik, hogy a csatornaátmérőnél nagyobb számolt  $d_s$  cseppátmérőnek nincs értelme. Ez azonban nemcsak áteresztő pakolásokra és töltetekre, például dróthálógyűrűkre vagy dróthálósövetekre (úgynevezett páramentesítő pakolásokra) érvényes. A találmány szerinti



eljárásban olyan számolt cseppátmérő használható, amely azonos vagy kisebb, mint a hidraulikus csatornaátmérő:

$$d_s/d_H \leq 1, \text{ előnyösen } < 0,9.$$

A számolt cseppátmérőből meghatározható az anyagátmeneti felület, melynek egyenlete:

$$A_s = 6\varphi_{12}d_s \text{ (m}^2\text{/m}^3\text{)}.$$

A diszperz fázis  $\varphi_{12}$  fázisrésze (aldol-kondenzáció esetében a szerves fázis van diszpergált állapotban) a fázisok üres cső sebessége alapján becsülhető, vagyis

$$\varphi_{12} \sim w_{12}/w_{1112}.$$

A reaktoron átáramló fázisok  $\tau$  tartózkodási ideje megközelítőleg számolható a

$$\tau = L \times \psi/w_{1112}$$

egyenletből. A  $\tau$  tartózkodási idő a találmány szerinti eljárásban általában jóval rövidebb, mint egy óra, értéke általában néhány perc vagy ennél rövidebb. Ennek ellenére, ennél a teljesen szokatlan üzemmódnál, vagyis a reaktorban nagy katalizátoráramlás viszonylag alacsony kiindulási anyag arány mellett, és ezáltal nagyon rövid tartózkodási idő, a legtöbb többfázisú reakciónál meglepően nagy tér-idő kitermelés érhető el. Alternatív módon, azonos tér-idő kitermelés biztosítható lényegesen alacsonyabb hőmérsékleten, mint a szokásos eljárás esetén, mivel a reakciósebesség fokozása, ami például minimalizálja a mellékreakciókat és ezért javítja a szelektivitást, gazdaságilag ezt lehetővé teszi.

A találmány értelmében előnyösen úgy járunk el, hogy az egy vagy több kiindulási anyagot a csőreaktorban a folyamatos fázis által bevitt energiával diszpergáljuk.

A találmány szerinti eljárás rugalmasan igazítható különböző követelményekhez. A speciális követelmények figyelembevételével a találmány szerinti eljárás esetén a következő megvalósítási módok lehetségesek:

Ha az alkalmazás nagyon hosszú keverési zónát igényel, vagy például az anyagáramok elvezetéséhez pihenőzónákra van szükség, akkor a beépített elemekkel vagy töltettel ellátott csőreaktorokat kaszkád-szerűen rendezzük el.

A csőreaktorok kaszkád-szerű elrendezése vagy pakolt vagy üres csőszakaszok alternatív elrendezése ajánlatos akkor, ha különösen alacsony nyomásestést kell biztosítani.

Csőreaktorok párhuzamos elrendezése vagy több csőből álló reaktor alkalmazása előnyös például akkor, ha a beépített elemek funkcióját a csöveknek kell átvenni.

A találmány szerinti eljárás vonatkozásában a hőelvezetés még erősen exoterm reakcióknál, például aldol-kondenzációknál sem kritikus. A katalizátor körfolyamat gyors átfolyása hőhordozóként működik, ezért a reaktor adiabatikus működtetése esetén is csak csekély hőmérsékletkülönbségek lépnek fel, és a reaktorban hőmérsékletcsúcsok nélküli homogén hőmér-



séklet eloszlás alakul ki. A keletkezett hő ezután tettesz szerint a külső katalizátor körfolyamatba beépített szokásos hőcserélővel elvezethető vagy energia előállítására felhasználható. A hőelvezetés javítása érdekében bizonyos esetekben előnyös lehet, ha a katalizátor körfolyamatot magasabb szinten (vagyis nagyobb B értéknél) üzemeltetjük, mint a kísérleti eredményekből adódik, mivel a katalizátor körfolyamattal a reaktoron keresztül egy kis hőmérséklet gradiens állítható be.

A találmány szerinti eljárás a technika állásához képest egy sor előnnyel rendelkezik. Példaként említhetők a következők:

- viszonylag alacsony hőmérsékleten nagy tér-idő kitermelés érhető el;
- a melléktermékek képződése különösen alacsony szinten tartható;
- a katalizátort kíméletesen vesszük igénybe, a dezaktiválódás mértéke nagyon alacsony, a folyamatos kizsilipelődés minimalizált.

Az  $\alpha,\beta$ -telítetlen ketonok aldehidekből ketonokkal képzett aldol-kondenzációval a találmány értelmében történő előállítása esetén további előnyt jelent, hogy a nagy reakciósebesség következtében a katalizátorfázisban nagyon rosszul oldódó aldehidek is gazdaságosan átalakíthatók a megfelelő aldol-kondenzációs termékekké.



A katalizátoroldat, illetve -fázis előállítására olyan oldószerek alkalmazhatók, amelyek kielégítik a következő követelményeket:

- az oldószer a termékfázisban rosszul oldódik;
- a termék nagyon rosszul oldódik a katalizátorból és az oldószerből álló katalizátorfázisban;
- az oldószer megfelelően jól oldja az alkalmazott katalizátort.

A katalizátor oldószereként előnyösen alkalmazható a víz vagy víz és egy szerves oldószer homogén elegye. A katalizátorfázis egy oldószernél több oldószert, például vizet és dietilénlikolt is tartalmazhat.

A katalizátorfázis adott esetben további komponenseket, így fázistranszfer reagenseket, felületaktív anyagokat, amfifil reagenseket vagy tenzideket tartalmazhat.

Katalizátorként általában vízben oldódó lúgos vegyületeket, például alkálifém- vagy alkáliföldfém-hidroxidot, -hidrogénkarbonátot, -karbonátot vagy -karboxilátot alkalmazunk. Előnyösen alkalmazható az alkáliműg. A katalizátor koncentrációja a katalizátoroldatban általában 0,1-15 tömeg%, előnyösen 0,1-5 tömeg%.

A találmány szerinti eljárás előnyösen alkalmazható (II) általános képletű aldehid-származék és (III) általános képletű keton-származék aldol-kondenzációs reakcióban történő reagáltatására. Mivel ebben a reakcióban az alkalmazott aldehid a reakcióképes karbonilegységet biztosítja, az aldehid szerkezete szem-

pontjából semmilyen korlátozás nem érvényesül. A reakcióban a keton a metilén komponenst jelenti. Ketonként ezért csak olyan vegyületek alkalmazhatók, amelyek a karbonilcsoporthoz képest  $\alpha$ -helyzetben álló szénatomon két hidrogénatomot tartalmaznak.

A találmány szerinti eljárásban előnyösen alkalmazható aldehid-származékokra példaként említhető a formaldehid, acetaldehid, propanál, n-butiraldehid, izobutiraldehid, krotonaldehid, valeraldehid, 2-metilbutanál, 3-metilbutanál, dimetilpropanál, triglinaldehid, 3,3-dimetilakrolein, n-hexanál, izohexanál, n-heptanál, citrál,  $\alpha$ - és  $\beta$ -ciklocitrál, benzaldehid, fahéjaldehid, fenilacetaldehid, hidrofahéjaldehid, 2-fenilpropionaldehid, ciklohexilkarbaldehid, ánizsaldehid, farnezál, fitál és A vitamin aldehid.

Alkalmazhatók továbbá olefinek vagy olefin-elegyek hidroformilezésével előállított aldehidek vagy aldehid-elegyek. Példaként említhetők a 4 szénatomos olefin-elegyek hidroformilezésével előállított 5 szénatomos aldehid-elegyek, valamint a technikai dibutén-elegyből hidroformilezéssel előállított izomer izononánálok.

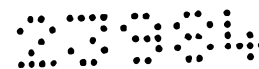
Alkalmazhatók továbbá telítetlen aldehidek, amelyek aldehidek önmagukkal végzett kondenzálódásával állíthatók elő, például az n-butiraldehidből keletkező 2-etilhex-2-enál.

(III) általános képletű keton-származékként alkalmazható például acetón, metiletilketon, metil-n-propilketon, metil-izopropilketon, metil-n-butilketon, metil-i-

zobutilketon, metil-terc-butilketon, dietilketon, diacetil, 6-metil-5-heptén-2-on, 6-metil-3-heptén-2-on, acetofenon, ciklohexanon, ciklohexiletilketon, benzilmetilketon, metilpropenilketon, etilpropenilketon, mezitiloxid, propil-propenilketon, izobutilidén-aceton, 6-metil-3,5-heptadién-2-on,  $\beta$ -ionon, farnezilaceton, geranilaceton, ciklooktanon, izoforon, 3,3,5-trimetil-hexanon és ciklododekanon.

Akár az alkalmazott aldehid, akár az alkalmazott keton lehet a reakciókörülményektől függően szilárd vagy folyékony halmazállapotban (a formaldehidet oldat, előnyösen vizes oldat formájában alkalmazzuk). Ha a kiindulási anyag szilárd, vagy önmagában szilárd kiindulási anyagot akarunk a reaktorba adagolni, akkor oldószerrel kell használni. Oldószerként alkalmazhatók a reakciókörülmények között inert, a katalizátoroldatban rosszul oldódó oldószerrel. Szintén oldószerrel kell használni akkor, ha a termék szilárd halmazállapotú.

A katalizátorfázisban rosszul oldódó szerves oldószer alkalmazásának további előnyei is lehetnek. Ez az oldószer adott esetben jól oldódik a termékfázisban. Alkalmazható például olyan oldószer, amely növeli a kívánt végtermék képződésének szelektivitását. Alkalmazható továbbá olyan oldószer, amely megkönnyíti a reakció megvalósítását és a reakcióelegy feldolgozását. Elképzelhető természetesen a fordított eset is, vagyis olyan oldószer alkalmazása, amely a



termékfázisban rosszul, és a katalizátorfázisban jól oldódik.

Oldószerként alkalmazhatók például éterek vagy szénhidrogének, előnyösen ciklohexán.

A két kiindulási anyag a reaktorba adagolható elkülönítve vagy keverék formájában.

Az aldehid/keton mólarány általában 2:1-1:10, előnyösen 1:1-1:3.

Az adott tartózkodási időt és terhelési faktort a találmány szerinti eljárásnak megfelelően választjuk meg. Ennek során egy vagy több, beépített elemeket tartalmazó csőreaktort üzemeltetünk a leírásnak megfelelően.

A találmány szerinti eljárás során a reakcióhőmérséklet 30-200 °C közötti, előnyösen 60-150 °C közötti. Az össz nyomás 0,1-25 bar.

A csőreaktor üzemeltethető egyenáramban fentről lefelé vagy fordítva. Biztonságtechnikai okokból előnyös a fentről történő adagolás.

A reakcióhő különböző hőcserélőkkel elvezethető. A hőcserélőt nem szükséges a reakciótér közelében elhelyezni, hanem a reaktoron kívül tetszőlegesen elhelyezhető. Az adott hőáram függ a fajlagos reakcióhőtől, valamint a reaktor kívánt hőmérsékletétől és a feldolgozáshoz alkalmazott berendezésektől.

Az elvezetett reakcióhő egyszerűen hasznosítható, például önmagában a folyamatban, desztilláló berendezés fűtésére vagy gőz előállítására.

A reaktorból elvezetett folyadékelegyet egy folyadék-folyadék szétválasztóban mechanikusan katalizátorfázisra és termékfázisra választjuk szét. Ez megvalósítható különböző formájú ülepitőtartályokban vagy centrifugában. Gazdaságossági okokból előnyösen alkalmazhatók az ülepitőtartályok.

A tartózkodási idő az elválasztó berendezésben alapvetően nem kritikus, de előnyösen alacsony értéken tartjuk. Ennek előnye, hogy az elválasztó berendezés kicsi és a ráfordítás ennek megfelelően kevés. Rövid tartózkodási idők esetén gyakorlatilag nem következnek be mellékreakciók az elválasztó berendezésben. A fázisok szétválásának gyors lejátszódásához a két fázis között megfelelően nagy sűrűségkülönbség és alacsony viszkozitás szükséges. Ezek az értékek a hőmérséklet függvényei, és megfelelő kísérletekkel könnyen meghatározhatók.

A katalizátoroldat sűrűsége és viszkozitása az oldószer és a katalizátorkoncentráció megválasztásával változtatható. Emellett, a termékfázis sűrűsége és viszkozitása oldószer alkalmazásával változtatható. A fázisok szétválasztása széles hőmérséklettartományban megvalósítható. Ennek során a szétválasztáshoz alkalmazott hőmérséklet akár nagyobb is lehet, mint a reakció végén a reaktor elvezetésénél mért hőmérséklet. Energetikai okokból azonban nem előnyös a reaktorból elvezetett folyadék hőmérsékleténél nagyobb hőmérséklet alkalmazása. A hőmérséklet alsó határát a két folyadékfázis valamelyikének dermedés-

pontja jelenti. A gyors szétválasztáshoz azonban, mint fent említettük, előnyösen nem alkalmazunk túl alacsony hőmérsékletet.

A keletkező reakcióvizet el kell vezetni a reakciórendszerből. Ha a szerves termékfázissal több vizet választunk el, mint a keletkező reakcióvíz, akkor a víz hiányzó mennyiségét folyamatosan pótolni kell. Egyszerűbb a reakció megvalósítása, ha a szerves termékfázissal pontosan annyi vizet vezetünk el, ami megfelel a reakcióvíznek. A víz oldékonysága termékfázisban és ezáltal a szükséges vízmennyiség oldószer adagolásával beállítható, ezért az oldószer alkalmazása előnyös lehet.

Ha azonban a katalizátoroldatot higítja a reakcióvíz, akkor a víz egy részét el kell távolítani. Ez megvalósítható úgy, hogy a katalizátoroldatból vizet desztillálunk le. Adott esetben szükség lehet a reakcióelegynek a fázisok szétválasztása előtt történő gyors felforralására, ami a katalizátoroldat töményedését eredményezi.

Az elválasztott szerves termékfázisból a víz desztillációval eltávolítható. Ez különösen egyszerűen megvalósítható akkor, ha a víz a termékfázisban kielégítő mennyiségben található komponensekkel minimális heteroazeotrop elegyet képez. Ez biztosítható a reakciópartnerektől függetlenül akkor, ha az elegyhez a vízzel minimális heteroazeotrop elegyet képező oldószert, például ciklohexánt adagolunk.

A termékáramot a szokásos módszerekkel, például desztillálással termékre, kiindulási anyagra, melléktermékre és adott esetben oldószerral választjuk szét. Az elválasztott kiindulási anyagot és az adott esetben előforduló oldószert a folyamatba visszavezetjük. Ugyanígy előnyös lehet a melléktermékek egy részének, nevezetesen az addíciós termékek visszavezetése, ami növeli a reakció szelektivitását.

Az elválasztott katalizátoroldat adott esetben egy kis részmennyiség elkülönítése és friss katalizátoroldattal történő megfelelő pótlása után a reaktorba visszavezethető.

A találmány szerinti eljárással előállított  $\alpha, \beta$ -telítetlen keton-származékok a megfelelő telített ketonná hidrogénezhetők.

A találmány szerinti eljárással előállított vegyületek értékes köztitermékek, illatanyagok, oldószerek, színezékek, műanyagok és gyógyszer hatóanyagok előállítására. Így például a 6-metilhept-3-én-2-on fontos köztitermék E vitamin szintézisére. Az ilyen anyagok egy része önmagában illatanyagként alkalmazható. Ezenkívül, a telítetlen keton-származékok telített alkohollá hidrogénezhetők, amelyek például észterek vagy olefinek előállítására használhatók.

A találmányt közelebbről az alábbi példákkal mutatjuk be anélkül, hogy az oltalmi kör a példákra korlátozódna.

A példákhoz csatolt első táblázat először a katalizátor összetételét mutatja tömeg% egységekben, majd

a kiindulási anyagok mennyiségét és ezek összetételét tömeg%-ban gázkromatográfiás analízis alapján.

A mindenkori második táblázat alsó részében a termék összetételét adjuk meg szintén tömeg% egységben gázkromatográfiás analízis alapján. A második táblázat felső részében a tér-idő kitermelést (RZA), az aldehid átalakulását (U), a kívánt aldol-kondenzációs termék szelektivitását (S) és a terhelési faktort (B) adjuk meg (kivételem az 1. példa). A megadott katalizátor összetételeknél figyelembe kell venni, hogy a példákban a kiindulási értékeket adjuk meg. A nátrium-hidroxid mennyiségét az aldol-kondenzáció reakcióvize könnyen higíthatja. Ezenkívül, az aldol-kondenzációval párhuzamosan lejátszódó Cannizzaro-reakció semlegesítheti a lúgos katalizátort. A megfigyelt időtartamban azonban mindkét hatás olyan csekély, hogy a kísérletek és a vizsgálati eredmények ismertetése szempontjából elhanyagolható.

### **1. példa (összehasonlító)**

Ebben a példában aceton (Ac) és 3-metilbutanál (3-MBA) aldol-kondenzációját ismertetjük, melynek során 6-metil-3-heptén-2-on (6-MH) keletkezik. Ebben az összehasonlító példában szokásos keverőedényben dolgozunk. A melléktermékként képződő 4-metil-3-pentén-2-on (4-MP), 3-metil-2-izopropil-2-butenál (3-MiPB), 5-metil-2-izopropil-2-hexenál (5-MiPH), 4-hidroxil-6-metilheptán-2-on (6-HMH), valamint az egyéb



magas forráspontú komponensek (HS) mennyiségét a táblázatban tömeg% egységekben adjuk meg.

Egy keverős reaktorba 1000 g katalizátort töltünk. Ehhez adagoljuk a kiindulási anyagok keverékét. A reakciót 80 °C hőmérsékleten és a reakciókomponensek saját nyomásán valósítjuk meg.

Katalizátor	1000 g
c NaOH	7 tömeg%
víz	89 tömeg%
aceton	4 tömeg%
kiindulási anyag	424 l/h
Ac	28,6 tömeg%
3-MBA	38,2 tömeg%
CH	33,2 tömeg%

A kísérlet során az alábbi eredményeket kapjuk:

RZA	1,4 t/m <sup>3</sup> /h
U	0,75
S	0,67
Ac	23,61
3-MBA	10,10
6-MH	44,37
4-MP	0,16
3-MiPB	0,27
5-MiPH	0,72
6-HMH	17,38
HS	3,39



## **2. és 3. példa (általános rész)**

Az aldolizálást egy olyan kísérleti berendezésben végezzük, melynek vázlatos ábrázolását az 1. ábra mutatja. Ennek megfelelően, egy 1 szivattyúval a 2 folyamatos katalizátorfázist körfolyamatban keringtetjük. A katalizátorhoz az aldehidet vagy az aldehid-elegyet egy 3 vezetéken vagy különböző aldehideket egymástól elkülönítve a 3 és egy 4 vezetéken keresztül adagoljuk. A 2. és 3. példában a kiindulási anyagokat csak a 3 vezetéken adagoljuk. Az 5 többfázisú elegyet egy 6 csőreaktorba vezetjük, melynek hossza 3 m, átmérője 17,3 mm, és amely 2 mm hidraulikus átmérőjű statikus keverőelemekkel van ellátva. A kapott 7 elegyet, amely reakciótermékből, reagálatlan kiindulási anyagból és katalizátorból áll, egy 8 gázleválasztóba vezetjük, ahol az illékony részeket egy 9 vezetéken keresztül elvezetjük. Ez a vezeték csak a 2. példában volt nyitva. A 8 gázmentesítés után kapott 10 folyadékáramot egy 11 fázisszétválasztó tartályba vezetjük. Itt a vizes 2 katalizátorfázist elválasztjuk, és a körfolyamatba visszavezetjük. A gáton áthaladó szerves fázist, amely a reakcióterméket tartalmazza, egy 12 vezetéken vezetjük el.

A reakcióhő a reaktoron kívül elhelyezett 13, 14 és 15 hőcserélőkkel vezethető el.

## **2. példa**

Ebbeb a példában találmány szerinti eljárás megvalósítását ismertetjük aceton (Ac) és 3-metilbutanál

(3-MBA) közötti aldol-kondenzáció alapján, melynek során 6-metil-3-heptén-2-on (6-MH) keletkezik. A melléktermékként képződő 4-metil-3-pentén-2-on (4-MP), 3-metil-2-izopropil-2-butenál (3-MiPB), 5-metil-2-izopropil-2-hexenál (5-MiPH), 4-hidroxi-6-metilheptán-2-on (6-HMH), valamint egyéb magas forráspontú komponens (HS) mennyiségét a következő táblázatban tömeg% egységekben adjuk meg.

A reaktort 400 kg/h katalizátorterhelés mellett 80 °C hőmérsékleten és a reakciókomponensek saját nyomásán üzemeltetjük.

Katalizátor	4,5 kg
c NaOH	6,7 tömeg%
víz	89,2 tömeg%
aceton	4,1 tömeg%
kiindulási anyag	5,42 l/h
Ac	42,36 tömeg%
3-MBA	33,34 tömeg%
CH	24,30 tömeg%

A kapott eredményeket a következő táblázatban adjuk meg:

RZA	3,2 t/m <sup>3</sup> /h
U	0,86
S	0,95
B	15,34
Ac	33,27
3-MBA	5,26
6-MH	58,37
4-MP	0,66

3-MiPB	0,42
5-MiPH	0,3
6-HMH	0,5
HS	1,2

Az eredményekből látható, hogy a találmány szerinti eljárással nagyobb szelektivitás biztosítható nagyobb tér-idő kitermelés mellett.

### **3. példa**

Ebben a példában acetón (Ac) és pentánál (PAL) találmány szerinti aldol-kondenzálását mutatjuk be, melynek során 3-oktén-2-on (3-ON) keletkezik. A melléktermékként képződő 4-metil-3-pentén-2-on (4-MP), 4-hidroxi-4-metil-3-pentán-2-on (4-HMP), 4-hidroxi-3-oktén-2-on (4-HON), 2-propil-2-heptenál (2-PHL), valamint egyéb magas forráspontú komponensek (HS) mennyiségét a következő táblázatban tömeg% egységekben adjuk meg.

A reaktort 400 kg/h katalizátorterhelés, 80 °C hőmérséklet és a reakciókomponensek saját nyomása mellett üzemeltetjük.

Katalizátor	4981 g
c NaOH	4,0 tömeg%
víz	91,8 tömeg%
acetón	4,2 tömeg%
kiindulási anyag	4,28 l/h
Ac	48,04 tömeg%
3-MBA	51,96 tömeg%



A kapott eredményeket a következő táblázat tartalmazza:

RZA	2,1 t/m <sup>3</sup> /h
U	0,95
S	64,00
B	14,72
Ac	22,52
PAL	3,04
4-MP	0,35
4-HMP	0,23
3-ON	47,46
4-HON	8,03
2-PHL	9,49
HS	8,88.

## Szabadalmi igénypontok

1. Eljárás (I) általános képletű  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékok előállítására, a képletben  
R1 és R2 jelentése 1-20 szénatomos, előnyösen 1-16 szénatomos egyenes vagy elágazó szénláncú, telített vagy telítetlen alifás vagy cikloalifás-alifás szénhidrogéncsoport vagy 5-12 szénatomos telített vagy telítetlen cikloalifás szénhidrogéncsoport, amely adott esetben alkilcsoporttal szubsztituálva lehet, és/vagy endoalkiléncsoportot tartalmaz, valamint 7-15 szénatomos aralifás szénhidrogéncsoport, előnyösen benzilcsoport, vagy aromás szénhidrogéncsoport, előnyösen fenilcsoport,  
R3 jelentése hidrogénatom vagy 1-10 szénatomos alifás szénhidrogéncsoport, vagy  
R1 és R3 jelentése a kapcsolódó szénatomokkal együtt aliciklusos gyűrű,  
ahol az R1, R2 és R3 jelentésében előforduló egy vagy több metiléncsoport, amely a karbonilcsoporthoz képest  $\alpha$ -helyzettől eltérő helyzetben áll, oxigénatommal vagy kénatommal szubsztituálva lehet,  
(II) általános képletű aldehid és (III) általános képletű keton reagáltatásával, a képletekben  
R1, R2 és R3 jelentése a fenti,  
ahol a reakciót folyadékfázisban végezzük egy csőreaktorban, **azzal jellemezve, hogy** a katalizátor a folyamatos fázisban, és legalább egy kiindulási anyag

diszpergált fázisban található, és a csőreaktor terhelési faktora legalább 0,8.

2. Az 1. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** 1-15 szénatomos aldehidet alkalmazunk.

3. Az 1. vagy 2. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** 4 vagy 5 szénatomos aldehidet alkalmazunk.

4. Az 1-3. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** 3-15 szénatomos ketont alkalmazunk.

5. A 4. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** ketonként acetont alkalmazunk.

6. Az 1-5. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** katalizátorként vízben oldható bázikus vegyületet alkalmazunk.

7. A 6. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** katalizátorként alkálifém- vagy alkáliföldfém-hidroxidot, -hidrogénkarbonátot, -karbonátot, -karboxilátot vagy ezek keverékét, előnyösen alkálilúgot alkalmazunk.

8. A 7. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a katalizátort 0,1-15 tömeg%, előnyösen 0,1-

5 tömeg% koncentrációban alkalmazzuk a folyamatos fázisban.

9. Az 1-8. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a katalizátor oldószereként vizet vagy víz és egy szerves oldószer homogén elegyét alkalmazzuk.

10. A 9. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a folyamatos katalizátorfázis oldószereként vizet alkalmazunk.

11. A 9. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a katalizátorfázis oldószereként víz és etilénlikol elegyét alkalmazzuk.

12. Az 1-11. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a B terhelési faktor legalább 0,9.

13. Az 1-11. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a B terhelési faktor legalább 1,0.

14. Az 1-13. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a folyamatos fázis/diszpergált fázis tömegarány legalább 2.

15. Az 1-14. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a kiindulási anyagot a folyamatos fázis által a csőreaktorba bevitt energia által diszpergáljuk.

16. Az 1-15. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** az aldehid/keton mólarány 2:1-1:10, előnyösen 1:1-1:3.

17. Az 1-16. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a termékfázisban jól, és a katalizátorfázisban rosszul oldódó oldószert alkalmazunk.

18. Az 1-16. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a termékfázisban jól, és a katalizátorfázisban rosszul oldódó oldószert alkalmazunk.

19. A 18. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** vízzel minimum-hetero-azeotropot képező oldószert alkalmazunk.

20. A 18. vagy 19. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** oldószerként ciklohexánt alkalmazunk.

21. Az 1-20. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a kapott  $\alpha,\beta$ -telítetlen



keton-származékot a megfelelő telített keton-származékká hidrogénezzük.

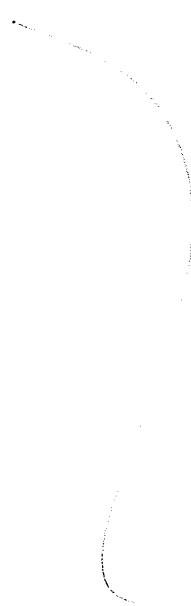
22. Az 1-20. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a kapott  $\alpha,\beta$ -telítetlen keton-származékot a megfelelő telített alkohol-származékká hidrogénezzük.

A meghatalmazott:

DANUBIA  
Szabadalmi és Védjegy Iroda Kft.

19  
*[Handwritten signature]*  
Schläfer László

szabadalmi ügyvivő



*[Handwritten mark]*

30 oldal + 2 rop

Áll : 1,1,111

ált. név

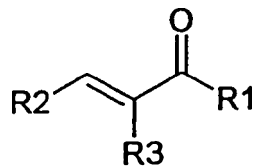


90200461

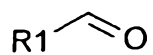
A2

1/2

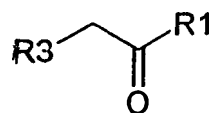
# KÖZZÉTÉTELI PÉLDÁNY



I



II



III

