



(19) **UA** (11) **59 456** (13) **C2**
(51)МПК ⁷ **B 01J 38/12, C 07D 201/08**

МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ
УКРАИНЫ

ГОСУДАРСТВЕННЫЙ ДЕПАРТАМЕНТ
ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ УКРАИНЫ

(21), (22) Заявка: 2001021192, 15.07.1999

(24) Дата начала действия патента: 15.09.2003

(30) Приоритет: 22.07.1998 FR 98/09528

(46) Дата публикации: 15.09.2003

(86) Заявка PCT:
PCT/FR99/01729, 19990715

(72) Изобретатель:

Брюнель Жан-Пьер, FR,
Недес Кристоф, FR

(73) Патентовладелец:

РОДИА ФАЙБЕР ЭНД РЕЗИН
ИНТЕРМЕДИЭЙТС, FR

(54) СПОСОБ РЕГЕНЕРАЦИИ КАТАЛИЗАТОРА ДЛЯ ЦИКЛИЗИРУЮЩЕГО ГИДРОЛИЗА АМИНОНИТРИЛА В ЛАКТАМЫ И СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ЛАКТАМОВ ЦИКЛИЗИРУЮЩИМ ГИДРОЛИЗОМ

(57) Реферат:

Заявленное изобретение относится к способу регенерации катализатора для циклизирующего гидролиза аминонитрила для получения лактамов. Более детально, он относится к регенерации твердых катализаторов, которые используются в процессах получения лактамов циклизирующим гидролизом аминонитрилов. Этот регенерационный процесс заключается в обработке использованного катализатора в конце

цикла при температуре в пределах от 300 до 600 °С в окислительной среде.

Официальный бюлетень "Промышленная собственность". Книга 1 "Изобретения, полезные модели, топографии интегральных микросхем", 2003, N 9, 15.09.2003. Государственный департамент интеллектуальной собственности Министерства образования и науки Украины.

У А 5 9 4 5 6 С 2

У А 5 9 4 5 6 С 2



(19) **UA** ⁽¹¹⁾ **59 456** ⁽¹³⁾ **C2**
(51) Int. Cl.⁷ **B 01J 38/12, C 07D 201/08**

MINISTRY OF EDUCATION AND SCIENCE OF
UKRAINE

STATE DEPARTMENT OF INTELLECTUAL
PROPERTY

(12) **DESCRIPTION OF PATENT OF UKRAINE FOR INVENTION**

(21), (22) Application: 2001021192, 15.07.1999

(24) Effective date for property rights: 15.09.2003

(30) Priority: 22.07.1998 FR 98/09528

(46) Publication date: 15.09.2003

(86) PCT application:
PCT/FR99/01729, 19990715

(72) Inventor:

Brunelle Jean-Pierre, FR,
Nedez Christophe, FR

(73) Proprietor:

RHODIA FIBER AND RESIN INTERMEDIATES,
FR

(54) **METHOD FOR REACTIVATION A CATALYSTS FOR CYCLIZING HYDROLYSIS OF AN AMINONITRILE FOR MAKING LACTAMS AND METHOD FOR PRODUCTION LACTAMS BY CYCLIZING HYDROLYSIS**

(57) Abstract:

The invention concerns a method for reactivating a catalyst for cyclizing hydrolysis of an aminonitrile for making lactams. More particularly, it concerns the reactivation of solid catalysts used in processes for producing lactams by cyclizing hydrolysis of aminonitriles. Said reactivating method consists in treating the

spent catalyst at a temperature ranging between 300°C and 600°C with an oxidizing atmosphere.

Official bulletin "Industrial property". Book 1 "Inventions, utility models, topographies of integrated circuits", 2003, N 9, 15.09.2003. State Department of Intellectual Property of the Ministry of Education and Science of Ukraine.

U A 5 9 4 5 6 C 2

U A 5 9 4 5 6 C 2



(19) **UA** ⁽¹¹⁾ **59 456** ⁽¹³⁾ **C2**
(51)МПК ⁷ **B 01J 38/12, C 07D 201/08**

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ

ДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ

(12) ОПИС ВИНАХОДУ ДО ПАТЕНТУ УКРАЇНИ

(21), (22) Дані стосовно заявки:
2001021192, 15.07.1999

(24) Дата набуття чинності: 15.09.2003

(30) Дані стосовно пріоритету відповідно до Паризької конвенції : 22.07.1998 FR 98/09528

(46) Публікація відомостей про видачу патенту (деклараційного патенту): 15.09.2003

(86) Номер та дата подання міжнародної заявки відповідно до договору РСТ:
PCT/FR99/01729, 19990715

(72) Винахідник(и):
Брюнель Жан-П'єр , FR,
Недес Крістоф , FR

(73) Власник(и):
РОДІА ФАЙБЕР ЕНД РЕЗІН ІНТЕРМЕДІЄЙТС,
FR

(54) СПОСІБ РЕГЕНЕРАЦІЇ КАТАЛІЗАТОРА ДЛЯ ЦИКЛІЗУЮЧОГО ГІДРОЛІЗУ АМІОНІТРИЛУ В ЛАКТАМИ ТА СПОСІБ ОДЕРЖАННЯ ЛАКТАМІВ ЦИКЛІЗУЮЧИМ ГІДРОЛІЗОМ

(57) Реферат:

Заявлений винахід відноситься до способу регенерації каталізатора для циклізуючого гідролізу амінітрилу для одержання лактамів. Більш детально, він відноситься до регенерації твердих каталізаторів, які використовуються в

процесах одержання лактамів циклізуючим гідролізом амінітрилів. Цей регенераційний процес полягає в обробці використаного каталізатора в кінці циклу при температурі в межах від 300 до 600°C в окиснювальному середовищі.

U A 5 9 4 5 6 C 2

U A 5 9 4 5 6 C 2

Опис винаходу

Даний винахід стосується способу регенерації катализатора для циклізуючого гідролізу амінітрилу для одержання лактамів.

Ще більш детально цей винахід стосується регенерації твердих катализаторів, що використовуються у процесах одержання лактамів за допомогою циклізуючого гідролізу амінітрилів.

Тепер, лактами, такі як ϵ -капролактама, є основними сполуками у виробництві багатьох продуктів і більш особливо у виробництві поліамідів, таких як ПА 6 та його кополімерів.

Серед різних відомих процесів синтезу лактамів, один із процесів - циклізуючий гідроліз відповідного амінітрилу, що більш детально - відповідного нерозгалуженого амінітрилу, у присутності води та катализатора.

Катализатори, що використовуються в цих процесах можуть класифікуватися в декількох категоріях- об'ємні тверді катализатори, такі як металеві оксиди, які описані у заявці на патент WO 98/0669, катализатори, що мають деяку пористість, такі як діоксид кремнію, який описано в патенті США 4,628,085, або, більш особливо, активований оксид алюмінію, описаний у патенті США 2,357,484 та пористий оксид алюмінію, який описано в міжнародній заявці на патент WO 96/22974, наприклад.

У процесах циклізуючого гідролізу амінітрилів у лактами та більш точно амінокапронітрилів у ϵ -капролактама, патент США 5,646,277, детально розкриває, що реакцію важко проводити в газовій фазі, особливо в промисловому масштабі, тому що їх активність є нестабільною.

Щоб уникати цих проблем, ця заявка розкриває проведення реакції циклізуючого гідролізу в рідкій фазі, можливо в присутності розчинника.

Вищезгадані документи описують використання гетерогенного каталізу за допомогою твердих катализаторів, таких як оксид алюмінію, кремнію або оксиди металів, для реакції циклізуючого гідролізу в газовій фазі амінітрилу. Час циклу та нестійкість цих катализаторів не згадані в цих документах тому, що описані приклади відповідають тільки тривалостям реакційного часу протягом декількох годин.

Заявник помітив у довгострокових випробуваннях, тобто для тривалості випробувань більше ніж 200 годин, що ті вищезгадані тверді катализатори, та особливо деякі оксиди алюмінію, показують трохи швидке зниження у каталітичній діяльності.

Одне можливе рішення для підвищення економічності процесу одержання лактаму, і більш загально - економічності процесів, де використовують катализатор, полягає в тому, щоб регенерувати витрачені катализатори.

Однак, є багато процесів регенерації і, для того ж самого типу катализатора, ці процеси регенерації часто відрізняються в залежності від реакції, яку вони катализують. Крім того, у залежності від характеру реакції, яку вони катализують, регенерація катализатора може бути можливою чи не може бути можливою.

Таке відбувається, тому що причини дезактивації катализатора численні та непередбачені. Однак, також непередбачено, що обробка катализатора для поліпшення деяких з цих властивостей також відновлює каталітичну діяльність катализатора, принаймні до прийнятного рівня.

У випадку реакції циклізуючого гідролізу амінітрилу, ніякий документ не описує можливість регенерації катализаторів наприкінці циклу.

Один з об'єктів даного винаходу повинний виправити ці недоліки, шляхом пропонування процесу регенерації катализатору циклізуючого гідролізу амінітрилу у лактама.

Для цієї мети, у винаході пропонується процес регенерації катализатору циклізуючого гідролізу амінітрилу у лактама, згаданий катализатор є твердою речовиною, і більш загально представляє собою простий чи змішаний оксид, який може бути пористим, чи не може бути пористим. Цей катализатор може також складатися з пористої підложки, на яку адсорбуються чи осаджуються каталітичне активні елементи.

Цей процес регенерації складається з обробки витраченого катализатору чи катализатору одержаного наприкінці циклу при температурі між 300°C і 600°C в окислювальному середовищі.

Загальна характеристика реакції циклізуючого гідролізу амінітрилу описана нижче.

Термін "похідне амінітрилу" повинен розумітися, як позначення сполук наступної загальної формули (I):



у якій:

R представляє заміщений чи незаміщений аліфатичний, циклоаліфатичний чи арилаліфатичний радикал, що містить від 3 до 12 вуглецевих атомів.

За допомогою прикладу, можуть бути згадані аліфатичні амінітрили, переважно аліфатичні ω -нітрили, такі

як ω -аміновалеронітрил, ω -амінокапронітрил; ω -амінооктанітрил, ω -амінононанітрил, ω -амінодеканітрил, ω -амінододеканітрил, ω -амінододеканітрил та метиламіновалеронітрил.

Переважною сполукою, і найбільш важливою, є амінокапронітрил, що перетворюється на ϵ -капролактама. Остання сполука є мономером для найлону-6, який використовується для виробництва різних виробів, таких як литі частини, пряжі, волокна, нитки чи плівки.

Переважно, винахід стосується твердих катализаторів, які використовуються, особливо, в реакціях циклізуючого гідролізу в газовій фазі.

Таким чином, реакція циклізуючого гідролізу потребує присутності води. Молярне відношення води до амінітрилу, які використовуються в цій реакції, звичайно знаходяться між 0,5 та 50 й, переважно між 1 та

20. Верхнє значення цього відношення не є критичним у винаході, але більш високі відношення наврядчи мають будь-яке значення з економічних причин.

Циклізуюча реакція гідролізу може бути проведена в рідкій або газовій фазі.

Таким чином, в одному втіленні, реагенти амінітрил та вода реагують у рідкому стані під тиском, можливо в присутності розчинника, як описано в патентах США 5,646,277, WO 95/14665 та WO 96/00722.

Амінітрил та вода можуть реагувати у вигляді їх суміші у газовій фазі.

У цьому випадку, реагенти взаємодіють у газовій фазі в реакторі, що містить визначену кількість каталізатору.

Вільний об'єм реактора може бути заповнений інертною твердою речовиною такою як, наприклад, кварцом, щоб покращити здатність до випаровування і дисперсію реагентів.

Можна використовувати, без будь-яких турбувань, як носій, будь-який інертний газ такий як азот, гелій або аргон.

Температура, при якій проходить процес винаходу, повинна бути досить висока для того, щоб реагенти однозначно та в повній мірі знаходилися в газовій фазі. Ця температура, взагалі, знаходиться між 200°C і 450°C і переважно між 250°C та 400°C.

Час, протягом якого амінітрил знаходиться в контакт з каталізатором не є критичним параметром. Зокрема він може змінюватися в залежності від апарата, який використовується в цьому процесі. Цей час контакту переважно знаходиться між 0,5 та 200 секундами і навіть більше, переважно, між 1 та 100 секундами.

Тиск не є критичним параметром процесу. Таким чином, можна працювати при значеннях тиску 10^{-3} бар до 200бар. Переважно, процес проводять при значеннях тиску від 0,1 до 20бар.

Процес не виключає використання розчинника, що є інертним в умовах реакції, такого як, наприклад, спирт, алкан, циклоалкан, ароматичний вуглеводень або один із цих вищезазначених вуглеводнів у галогенованій формі, і таким чином, процес не виключає присутність рідкої фази в реакційному потоці.

Ці умови для проведення реакції циклізуючого гідролізу даються винятково за допомогою ознаки.

Конкретно, процес регенерації за винаходом також застосовується до каталізаторів, які використовуються у реакціях циклізуючого гідролізу, при різних умовах, особливо у випадку таких каталізаторів, які використовуються, коли реакцію проводять у рідкій фазі, можливо, в присутності розчинника або таких каталізаторів які використовуються в процесах, коли реакцію проводять у газовій фазі.

Каталізатори, що можуть бути регенеровані за допомогою процесу за винаходом це, у більшості, мінеральні оксиди, що мають високу пористість та більш переважно оксиди, що мають макропористість, тобто ті в яких, принаймні частина об'єму пор відповідають порам із діаметром більше ніж 500А. Об'єм пор, що відповідає макропористості переважно більший ніж 5мл/100г. Ця величина пор та характеристики пористості стосуються свіжих каталізаторів та каталізаторів, регенерованих за допомогою процесу винаходу. Це так, тому що один з важливих результатів процесу за винаходом - регенерація специфічної поверхневої області та розподілення об'єму пор належним чином, щоб істотно відновити характеристики свіжого каталізатора.

Як придатні оксиди, можна згадати прості чи змішані оксиди наступних елементів: кремній, титан, цирконій, ванадій, ніобій, тантал, вольфрам, молібден, залізо, рідкоземельні елементи та алюміній.

Таким чином, процес винаходу застосовується, особливо, до каталізаторів, на основі оксиду алюмінію, описаних в заявці на патент WO 96/22974 та до таких оксидів алюмінію, що містять принаймні один інший простий чи змішаний оксид елементів, що адсорбуються або є підложкою для оксиду алюмінію.

Серед оксидів алюмінію, придатних для каталізу реакції циклізуючого гідролізу амінітрилів, процес регенерації за винаходом застосовується більш особливо і переважно до оксидів алюмінію, що мають або специфічну поверхневу область більше ніж $10\text{м}^2/\text{г}$, та загальний об'єм пор більше ніж чи дорівнює $10\text{мл}/100\text{г}$, об'єм пор відповідає порам, що мають діаметр більше чим 500А, що є більшим ніж чи рівним $10\text{мл}/100\text{г}$, або специфічну поверхневу область більше чим $50\text{м}^2/\text{г}$, загальний об'єм пор більше ніж чи дорівнює $20\text{мл}/100\text{г}$, та об'єм пор відповідає порам, що мають діаметр більше чим 70А, що є більшим ніж чи рівним $20\text{мл}/100\text{г}$, або специфічну поверхневу область більше чим $50\text{м}^2/\text{г}$, загальний об'єм пор більше ніж чи дорівнює $15\text{мл}/100\text{г}$ та об'єм пор відповідає порам, що мають діаметр більше чим 200А, що є більшим ніж чи рівним $15\text{мл}/100\text{г}$, переважно більше ніж чи дорівнює $20\text{мл}/100\text{г}$.

Такі оксиду алюмінію описані у заявці на патент WO 96/22974. Як згадано вище, ці оксиди алюмінію можуть також включати оксиди елементів, осаджених на поверхні чи адсорбованих на поверхні пор для того, щоб збільшити каталітичну активність. Оксиди металів переважно можуть бути елементами, які вибрані з наступного переліку: кремній, титан, цирконій, ванадій, ніобій, тантал, вольфрам, молібден, фосфор, бор, залізо, лужні метали, лужноземельні метали та рідко-земельні метали.

Процес регенерації, який запропонований, може також бути застосований до каталізаторів, оснований на простих або змішаних оксидах металів, об'ємно-каталітичного типу, подібно до тих, які наведені та описані в заявці до патенту WO 98/0669.

Процес регенерації каталізаторів для циклізуючого гідролізу амінітрильних сполук міститься, в переважній характеристиці винаходу, в використанні як окиснювального середовища газової суміші, яка містить 0,2% кисню в об'ємі. Переважно, ця суміш є будь-якою з двох повітря/ інертний газ або кисень/інертно-газова суміш.

Під терміном "інертний газ" слід розуміти, що на увазі маються гази, які не мають окиснювальної або відновлювальної активності, такі як азот, інертні гази, діоксид вуглецю та водяна пара.

Вміст кисню в обробляючих газах є переважно низьким на початку процесу регенерації каталізатору. Ця концентрація кисню може поступово зростати.

Таким чином, об'ємна концентрація кисню в обробляючому газі є переважно в межах між 1% та 10% (межа включається) та змінюється протягом процесу, поміж цих двох меж.

Температура обробки каталізатору є важливим критерієм процесу, так як обробка при високій температурі призводить до каталізатору, який є регенованим, проте має низьку активність. Таким чином, температура обробки є відповідно однією з переважних характеристик винаходу та знаходиться між 370°C та 500°C, і навіть переважніше між 370°C та 450°C.

Відповідно до іншого впровадження винаходу, обробка каталізаторів окисненням переважно проводиться після попередньої обробки з водяною парою при температурі між 200°C та 500°C, переважно між 300°C та 400°C. Водяна пара може використовуватись як суміш з газом-носієм, таким як інертний газ, подібно азоту або повітрю, розведеному в інертному газі.

Регенераційний процес виконано, наприклад, в реакторі, який містить каталізатор, пропускаючи через нього окиснювальний газ, такий як повітря, розведене в інертному газі типу азоту. Цей реактор може бути будь-якого типу реакторів та може переважно складатись з заповнених каталізатором труб для реакцій гідролізу. Процес, переважно, виконують при атмосферному тиску.

Відповідно до переважного методу процесу концентрація кисню поступово зростає, це зростання керується та корегується відносно тепла, яке виділюється та видаляється при окисненні сполук.

Інший шлях виконання процесу, що використовує газову обробку, яка містить більш високу концентрацію кисню, полягає в видаленні тепла шляхом охолодження сполук для запобігання утворення окалин в пористому каталізаторі.

Винахід також відноситься до процесу одержання лактамів циклізуючим гідролізом амінонітрилу в присутності каталізатору. Каталізатор є або сумішшю нового каталізатору та каталізатору, регенованого згідно процесу винаходу, або каталізатором, регенованим згідно процесу винаходу.

Далі деталі та переваги винаходу стануть більш зрозумілими в ході висвітлення прикладів, які безпосередньо наведені нижче.

Приклад 1

Оксид алюмінію, який має питому поверхню 139м²/г має повний об'єм порового простору 117мл/100г з об'ємами порового простору, які представлені порами, що мають діаметр більший, ніж 70А та 500А, 116мл/100г та 50мл/100г відповідно.

Цей оксид алюмінію використовується в реакції циклізуючого гідролізу амінокапронітрилу при експлуатаційних умовах, що описані нижче:

В циліндричний реактор з діаметром 40мм та висотою 1м завантажено 166,5г каталізатору, цей каталізатор розподілений в реакторі наступним чином;

- 66,7г каталізатору змішані з 845г скляної дробі в першій частині реактору;

- 100г чистого каталізатору в другій частині реактору.

Вода та амінокапронітрил введени в масових частинах витрат 129г/год та 200г/год відповідно.

Реактор підтримують при температурі 300°C.

Початковий ступінь перетворення амінокапролактама є 99,5%, початкова селективність капролактаму є більшою, ніж 99%.

Випробування було зупинено після здійснення протягом 800 годин.

Ступінь перетворення амінокапронітрилу потім складав 96,5%, селективність капролактаму була більшою, ніж 99%.

Відновлений оксид алюмінію має приведену питому поверхню (80м²/г) та приведений об'єм порового простору (88,5мл/100г).

Цей оксид алюмінію піддали регенераційній обробці відповідно до винаходу. Щоб зробити це, через оксид алюмінію пропустили азотно-газовий потік, що містить 2% кисню від об'єму при витраті 1,5л/хв, та встановили час 20с. Температура збільшувалась на 100°C на годину до 300°C, а потім на 10°C на годину до кінцевої температури обробки.

Кількість кисню, що містилась в азоті, поступово збільшувалась від 2 до 7%. Каталізатор під газовим потоком підтримувався протягом 16 годин до кінцевої температури 460°C.

Відновлений оксид алюмінію має питому поверхню 134 м²/г та повний об'єм порового простору 109мл/100г.

Приклад 2

Цей відновлений оксид алюмінію використовується в реакції циклізуючого гідролізу амінокапронітрилу при умовах ідентичних до тих, що були наведені в прикладі 1.

Початкова ступінь конверсії амінокапронітрилу протягом другого циклу складає 99,4%, селективність капролактану є більшою, ніж 99%.

Після 500 годин проведення дослідів ступінь перетворення амінокапронітрилу складає 96,3%, селективність капролактану все ще є більшою, ніж 99%.

Ці результати, співставлені з тими, що були одержані при використанні нового каталізатору протягом першого циклу, демонструють ефективність регенераційного процесу винаходу.

Формула винаходу

1. Спосіб регенерації каталізатора для циклізуючого гідролізу амінонітрилу в лактамі, де вказаний каталізатор є твердим оксидом, який відрізняється тим, що цей каталізатор обробляють при температурі від 300

до 600°C в окиснювальному середовищі.

2. Спосіб відповідно до п. 1, який відрізняється тим, що окиснювальне середовище містить принаймні 0,2 % кисню за об'ємом.

3. Спосіб відповідно до п. 1 або п. 2, який відрізняється тим, що окиснювальним середовищем є повітря / інертний газ або кисень / інертна газова суміш.

4. Спосіб відповідно до п. 2 або п. 3, який відрізняється тим, що інертний газ вибирають із групи, яка включає азот, інертні гази, діоксид вуглецю та водяну пару.

5. Спосіб відповідно до одного з пунктів 1-4, який відрізняється тим, що концентрація кисню в окиснювальному середовищі поступово зростає протягом обробки каталізатора.

6. Спосіб відповідно до одного з пунктів 2-5, який відрізняється тим, що концентрація кисню в окиснювальному середовищі знаходиться в межах від 1 до 10 % за об'ємом.

7. Спосіб відповідно до одного з пунктів 1-6, який відрізняється тим, що температура обробки знаходиться в межах від 370 до 500°C, переважно між 370 до 450°C.

8. Спосіб відповідно до одного з пунктів 1-7, який відрізняється тим, що каталізатор є простим або сумішшю оксидів елементів в об'ємній формі.

9. Спосіб відповідно до одного з пунктів 1-7, який відрізняється тим, що каталізатор включає простий або змішаний мінеральний оксид щонайменше одного елемента, що має принаймні об'єм порового простору, який відповідає порам, які мають діаметр більший, ніж

500 \AA .

10. Спосіб відповідно до п. 9, який відрізняється тим, що елемент або елементи вибирають з групи, яка включає кремній, титан, цирконій, ванадій, ніобій, тантал, вольфрам, молібден, залізо, рідкоземельні метали або алюміній.

11. Спосіб відповідно до будь-якого з пунктів 9 або 10, який відрізняється тим, що мінеральним оксидом є оксид алюмінію.

12. Спосіб відповідно до одного з пунктів з 9 по 11, який відрізняється тим, що новий каталізатор має або питому поверхню, більшу ніж $10 \text{ м}^2/\text{г}$ та повний об'єм порового простору, більший або рівний $10 \text{ мл}/100 \text{ г}$, об'єм порового простору, який відповідає порам з діаметром, більшим ніж

500 \AA ,

мл/100 г, або питому поверхню, більшу ніж $50 \text{ м}^2/\text{г}$, повний об'єм порового простору, більший або рівний $20 \text{ мл}/100 \text{ г}$ та об'єм порового простору, який відповідає порам з діаметром, більшим ніж

70 \AA ,

рівним $20 \text{ мл}/100 \text{ г}$, або питому поверхню, більшу ніж $50 \text{ м}^2/\text{г}$, повний об'єм порового простору більший або рівний $15 \text{ мл}/100 \text{ г}$ та об'єм порового простору, який відповідає порам з діаметром, більшим ніж

200 \AA ,

більшим або рівним $15 \text{ мл}/100 \text{ г}$.

13. Спосіб відповідно до одного з пунктів 9-12, який відрізняється тим, що пористий мінеральний оксид включає принаймні один простий або змішаний оксид елементів, які є адсорбованими або осадженими на поверхні пор, елементи вибирають із групи, яка включає кремній, титан, цирконій, ванадій, ніобій, тантал, вольфрам, молібден, фосфор, бор, залізо, лужні метали, лужноземельні метали та рідкоземельні метали.

14. Спосіб відповідно до одного з пунктів 1-13, який відрізняється тим, що перед обробкою окиснювальним середовищем каталізатор, який буде регенований, піддають обробці водяною парою, можливо як сумішшю з газом-носієм, який вибирають із групи, що містить інертні гази або повітря, розбавлене інертним газом, при температурі в межах від 200 до 500°C.

15. Спосіб одержання лактамів циклізуючим гідролізом амініотрилу в присутності каталізатора, який відрізняється тим, що каталізатор являє собою каталізатор, регенований, згідно з процесом, відповідно до одного з пунктів 1-14 або суміш регенованого каталізатора та нового каталізатора.

Офіційний бюлетень "Промислова власність". Книга 1 "Винаходи, корисні моделі, топографії інтегральних мікросхем", 2003, N 9, 15.09.2003. Державний департамент інтелектуальної власності Міністерства освіти і науки України.