



BREVET DE INVENȚIE

(12)

Hotărârea de acordare a brevetului de invenție poate fi revocată
în termen de 6 luni de la data publicării

(21) Nr. cerere: 94-01935

(22) Data de depozit: 05.12.94

(30) Prioritate:

(41) Data publicării cererii:
BOPI nr.

(42) Data publicării hotărârii de acordare a brevetului:
29.12.95 BOPI nr. 12/95

(45) Data eliberării și publicării brevetului:
BOPI nr.

(61) Perfecționare la brevet:
Nr.

(62) Divizată din cererea:
Nr.

(86) Cerere internațională PCT:
Nr.

(87) Publicare internațională:
Nr.

(56) Documente din stadiul tehnicii:
RO 72049; 102039

(71) Solicitant: S.C. CHIMCOMPLEX S.A. Borzești, Onești, județul Bacău, RO

(73) Titular: (71)

(72) Inventatori: Adam Victor, Deliu Ion, Niculescu Gheorghe, Oprescu Ion, Popescu Mariana, Vaideanu Nicușor, RO

(54) Procedeu de obținere a *gamma*-butirolactonei, prin hidrogenarea anhidridei maleice

(57) **Rezumat:** Prezenta invenție se referă la un procedeu de obținere a *gamma*-butirolactonei, prin hidrogenarea catalitică a anhidridei maleice, aplicabil în instalații existente, utilizând catalizatori comerciali, de tip cromit de cupru. Procedeu, prin utilizarea unui hidrogen uscat și demercurizat, în rapoarte molare mai mari de 40/1 față de anhidrida maleică, asigură o viață a catalizatorului de peste

8000 h, cu o conversie totală a anhidridei maleice, cu selectivitate de peste 78% în *gamma*-butirolactonă. Procedeu realizează reacția de hidrogenare, cu o diferență de temperatură, de maximum 30° C, în stratul catalitic, și permite utilizarea gazului de purjă, în fabricații consumatoare de hidrogen.

Revendicări: 1

RO 110338 B1



Prezenta invenție se referă la un procedeu de obținere a *gama* butirolactonei, prin hidrogenarea anhidridei maleice utilizată în obținerea N-metilpirolidonei.

Sunt cunoscute procedee de obținere a *gama*-butirolactonei, care prevăd intervale de temperaturi cuprinse între 260-350°C și presiuni sub 3 bari, cu viteze volumare exprimate în anhidridă maleică cuprinse între 0,03 și 0,5 m³/m³, cu raporturi molare anhidridă maleică-hidrogen de până la 16/1, utilizând diferite raporturi de amestecare între catalizatori și masa inertă (brevete RO 72049; 102039).

Dezavantajele majorității procedeelor constau în randamente mici ale reacției de hidrogenare a anhidridei maleice la *gama*-butirolactonă.

Randamentele mici ale reacției de hidrogenare a anhidridei maleice au ca efect apariția de produse secundare nedorite, care îngreunează procesul de separare a *gama*-butirolactonei.

Pe lângă reacția principală, au loc, datorită supraîncălzirilor locale, de regulă la intrare în patul catalitic, reacții de descompunere a anhidridei maleice.

Efectul termic al acestor reacții fiind cu aproximativ 20% mai mare ca al reacției principale de formare a *gama*-butirolactonei diminuează activitatea catalizatorului, ceea ce necesită dese regenerări, fapt ce duce în final la o durată de viață mai scurtă a catalizatorului.

Procedeul conform invenției elimină dezavantajele menționate, prin aceea că reacția se realizează la presiune sub 2 bari, la un raport molar hidrogen/anhidridă maleică de 40...44/1 la o temperatură cuprinsă între 240 și 325°C cu o viteză de curgere a reactanților de peste 0,6 m/s și un timp de staționare de minimum 7 s, calculat din raportul între înălțimea stratului de catalizator și viteza de curgere, calculată în condițiile de reacție.

Procedeul, conform invenției, prezintă următoarele avantaje:

- crește selectivitatea procesului în *gama*-butirolactonă la valori peste 80%, se reduce astfel consumul de materii prime;
- scade consumul de catalizator pe tonă de produs finit, prin mărirea duratei de viață a catalizatorului;

- se reduc consumurile de utilități prin scăderea numărului de cicluri de oxidare
- reducere a catalizatorului;

- scade gradientul de temperatură dintre intrarea și ieșirea din patul catalitic, se elimină astfel posibilitatea supraîncălzirilor locale;

- utilizarea gazului purjat ca materie primă în fabricații consumatoare de hidrogen.

Se dă în continuare un exemplu de realizare a invenției.

Un reactor de tip schimbător de căldură multitubular, ce are tuburi cu diametrul de 60 x 3,5 mm și înălțimea de 5 m, termostatat prin recirculare forțată de ulei termostabil în spațiul intertubular, se încarcă cu 15 m³ de catalizator din tipul cromit de cupru, stabilizat cu oxizi de mangan și bariu, fasonat prin extrudare la dimensiunile de 3 x 5 mm, care se oxidează în curent de aer și se reduce în mediu de hidrogen.

După reducere, se alimentează reactorul, la o viteză volumară de 6 m³/m³.h, raportată la volumul de catalizator, cu anhidridă maleică vaporizată din topitură, prin pulverizare în hidrogen proaspăt și recirculat, aflate în raport de 1 la 7, ce circulă cu un debit care asigură un raport molar hidrogen/anhidridă maleică de 40...44/1.

Viteza de curgere în reactor, calculată în condițiile de reacție, este de peste 0,6 m/s, iar timpul de staționare a reactanților în patul catalitic de 7 s.

Amestecul de reactanți se încălzește, pe seama căldurii aduse de curentul de hidrogen, la temperatura de peste 240°C în scopul evaporării totale a anhidridei maleice și pentru amorsarea reacției la intrarea în patul catalitic.

Temperatura în reactor se menține între 325 și 295°C prin, recirculare forțată de ulei termostabil în spațiul intertubular.

Se lucrează în aceste condiții timp de 550 h, perioadă în care conversia anhidridei maleice a fost de 100% și selectivitatea în *gama*-butirolactonă peste 78%.

Concentrația de peste 96% în hidrogen a gazului recirculat, separat după condensarea produșilor de reacție, necesară pentru a menține în stare redusă catalizatorul, se obține prin eliminarea continuă din sistem a 1/16 părți din cantitatea de hidrogen din amestecul

de reacție. Gazul eliminat din sistem în cazul exemplului poate fi utilizat în amestec cu hidrogen electrolitic pentru fabricare de acid clorhidric.

După o perioadă medie de 550 h de reacție, moment marcat de scăderea selectivității în *gamma*-butirolactonă sub 78%, se oprește alimentarea cu reactanți, se purjează reactorul și se reiau ciclurile de oxidare-reducere a catalizatorului.

5

10

Revendicare

Procedeu de obținere a *gamma*-butirolactonei, prin hidrogenarea anhidridei maleice în sistem gaz-solid, în prezență de catalizator cromit de cupru în pat fix, caracterizat prin aceea că reacția se realizează la o presiune sub 2 bari, la un raport molar hidrogen/anhidridă maleică de 4...44/l, la o temperatură cuprinsă între 240 și 325°C cu o viteză de curgere reactanților de peste 0,6 m/s și un timp de staționare de minimum 7 s, calculat din raportul între înălțimea stratului de catalizator și viteza de curgere, calculată în condițiile de reacție.

Președintele comisiei de examinare: chim. Novac Maria
Examinator: ing. Marin Elena