

(19)



Евразийское
патентное
ведомство

(21) 202491266 (13) A1

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОЙ ЗАЯВКЕ

(43) Дата публикации заявки
2024.08.20

(51) Int. Cl. C07C 45/00 (2006.01)
C07C 49/04 (2006.01)

(22) Дата подачи заявки
2022.12.14

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ МЕТИЛИЗОБУТИЛКЕТОНА

(31) 202210005993.6

(32) 2022.01.04

(33) CN

(86) PCT/CN2022/139038

(87) WO 2023/130930 2023.07.13

(71) Заявитель:
СЕННИКС КО., ЛТД. (CN)

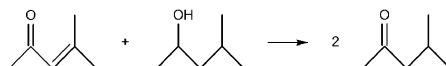
(72) Изобретатель:

Мяо Чжэньгань, Ли Шиу, Сян Инцзе
(CN)

(74) Представитель:

Билык А.В., Поликарпов А.В.,
Соколова М.В., Путинцев А.И.,
Черкас Д.А., Игнатьев А.В., Дмитриев
А.В., Бельтюкова М.В. (RU)

(57) В настоящем изобретении предложен способ получения метилизобутилкетона. Способ включает реакцию оксида мезитила и метилизобутилового спирта под действием катализатора на основе меди с получением метилизобутилкетона. В настоящем изобретении оксид мезитила и метилизобутиловый спирт используют для переноса водорода in-situ под действием катализатора на основе меди с получением метилизобутилкетона в одну стадию. Весь процесс реакции не требует внешней водородной системы. Реакцию проводят при нормальном давлении, и технологическая схема является короткой, имеет преимущества в высокой степени использования атомов, высокой безопасности и прочем и подходит для популяризации и промышленного применения.



A1

202491266

202491266

A1

СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ МЕТИЛИЗОБУТИЛКЕТОНА

ОБЛАСТЬ ТЕХНИКИ

Настоящее изобретение относится к способу получения метилизобутилкетона, в частности, к способу получения метилизобутилкетона из оксида мезитила и метилизобутилового спирта в одну стадию.

УРОВЕНЬ ТЕХНИКИ

Метилизобутилкетон (МИБК), также известный как 4-метил-2-пентанон, представляет собой бесцветную, устойчивую и горючую жидкость с приятным запахом. Его диапазон воспламенения в воздухе составляет 1,4%~7,5%, поэтому его категорически запрещено держать рядом с источниками огня, и необходимо хранить при низких температурах в герметичных контейнерах, избегая длительного контакта с кожей. МИБК мало растворим в воде, но полностью смешивается с некоторыми органическими растворителями, что делает его прекрасным растворителем. В последние годы, благодаря быстрому развитию автомобильной промышленности, на него продолжает расти рыночный спрос как на основное сырье для получения стабилизатора каучука БРРД (N-(1,3-диметилбутил)-N'-фенил-п-фенилендиамин).

В настоящее время большинство компаний использует в качестве сырья ацетон, использует кислотные макропористые смолы в качестве носителя катализатора на основе драгоценного металла палладия, и синтезирует МИБК с помощью одностадийной конденсации и гидрирования в реакторе с неподвижным слоем, а затем отделяет и очищает его во множестве колонн для получения продуктов МИБК. Например, в CN103274913A, предложен способ и устройство для получения метилизобутилкетона, при этом способ включает следующие стадии: (a) ацетон и водород в качестве сырья подают в трубчатый реактор с неподвижным слоем для проведения реакции с катализатором В621, продукты реакции сначала отделяют конденсацией с получением водорода, а затем раствор, полученный при конденсации, направляют в последующую систему разделения; (b) раствор продукта направляют в колонну для отделения легких компонентов, а кубовую жидкость из колонны направляют в колонну для отделения ацетона; (c) давление в ацетоновой колонне поддерживают немного ниже атмосферного, при этом тяжелые компоненты, полученные в кубе, направляют в дегидратационную колонну для удаления воды; (d) легкие компоненты, полученные в верхней части дегидратационной колонны, направляют в колонну для сточных вод для обработки с получением органических легких компонентов;

продукт, полученный в кубе дегидратационной колонны, направляют в колонну для продукта для очистки, и в верхней части колонны для продукта получают продукт метилизобутилкетон. По сравнению с традиционным одностадийным способом, улучшена средняя степень конверсии ацетона, при этом процесс является простым и имеет меньше побочных продуктов. Кроме того, улучшена максимальная степень переработки и потребления энергии. Однако в связи с тем, что выбор катализаторов и различных параметров в технологическом процессе еще не идеален, это приводит к большим потерям энергии и материалов, большому количеству побочных продуктов, высоким рабочим температурам и давлению, а также в дальнейшем необходимо усиление капиталовложений в оборудование и безопасности. В CN105130778A используют катализатор на основе сильно кислотной катионообменной смолы, обработанной ацетатом палладия для оптимизации процесса разделения и очистки побочного продукта диизобутилкетона (ДИБК), с достижением увеличения выхода органического вещества и сокращения потребления энергии. Однако в связи с использованием катализаторов на основе драгоценного металла палладия общая стоимость синтеза относительно высока, и давление реакции высоко, что приводит к большим капиталовложениям в оборудование и высокой общей себестоимости продукции.

СУЩНОСТЬ ИЗОБРЕТЕНИЯ

Для устранения недостатков в предшествующем уровне техники в настоящем изобретении предложен новый способ получения метилизобутилкетона, включающий новое сырье и новую каталитическую систему, с достижением при этом положительного экономического эффекта. В настоящем изобретении используют оксид мезитила (МО) и метилизобутиловый спирт (МИБС) для переноса водорода *in situ* с помощью катализатора на основе меди с получением метилизобутилкетона в одну стадию. Весь процесс реакции не требует внешней водородной системы. Реакцию проводят при нормальном давлении, а технологическая схема является короткой. Способ имеет преимущества в высокой степени использования атомов и высокой безопасности и подходит для промышленного применения.

В частности, в настоящем изобретении предложен способ получения метилизобутилкетона, который включает проведение реакции оксида мезитила и метилизобутилового спирта под действием катализатора на основе меди с получением метилизобутилкетона.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения катализатор на основе меди содержит оксид меди, и масса оксида меди составляет более или равна 50% от общей массы катализатора на основе меди.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения катализатор на основе меди представляет собой медно-цинково-алюминиевый катализатор.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения медно-цинково-алюминиевый катализатор содержит оксид меди, оксид цинка и оксид алюминия.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения масса оксида меди составляет более или равна 50% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения масса оксида меди составляет от 50% до 70% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, масса оксида цинка составляет от 10% до 30% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, и масса оксида алюминия составляет от 5% до 15% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения масса оксида меди составляет от 54% до 64% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, масса оксида цинка составляет от 14% до 24% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, и масса оксида алюминия составляет от 7,8% до 8% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения в реакции мольное отношение подаваемых оксида мезитила к метилизобутиловому спирту составляет (0,1-2):1, предпочтительно (0,8-1,2):1.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения метилизобутилкетон добавляют в реакционную систему в начале реакции.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения температура реакции составляет от 140°C до 250°C, предпочтительно 180±20°C.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения давление реакции представляет собой атмосферное давление.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения объемная скорость реакции составляет 0,05-0,2 час⁻¹, предпочтительно 0,1±0,02 час⁻¹.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения водород не вводят во время реакции.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения реакцию осуществляют в реакторе с неподвижным слоем, например, однотрубном реакторе.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения реакцию осуществляют под защитой инертного газа.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения способ включает: нагревание реактора, заполненного катализатором на основе меди, до температуры реакции, загрузку равномерно перемешанного оксида мезитила и метилизобутилового спирта из нижней части реактора для реакции и выгрузку материалов из верхней части реактора.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения равномерно смешанные оксид мезитила и метилизобутиловый спирт предварительно нагревают до температуры реакции, а затем подают в реактор для проведения реакции.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения реактор представляет собой однострунный реактор диаметром 20 ± 2 мм и высотой 700 ± 100 мм, в котором высота загрузки слоя катализатора на основе меди составляет 500 ± 50 мм.

ОПИСАНИЕ ГРАФИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ

Фиг. 1 представляет собой принципиальную схему одностадийного получения метилизобутилкетона из оксида мезитила и метилизобутилового спирта.

ПОДРОБНОЕ ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ

Для того, чтобы дать возможность специалистам в данной области техники понять характеристики и эффекты настоящего изобретения, ниже приведены определения терминов и выражений, используемых в описании и формуле изобретения. Если не указано иное, все технические и научные термины, употребляемые в настоящем документе, имеют значения, обычно приписываемые им специалистами в области техники, к которой относится настоящее изобретение. В случае противоречия определения, используемые в настоящем документе, должны иметь приоритетное значение.

Теории или механизмы, описанные и раскрытые в настоящем документе, независимо от того, правдивы они или ошибочны, не должны быть рассмотрены как ограничивающие объем настоящего изобретения каким-либо образом, что означает, что изобретение может быть осуществлено без ограничений какой-либо конкретной теорией или механизмом.

В настоящем изобретении термины «содержит», «включает» и другие подобные термины включают значения «состоящие преимущественно из» и «состоящие из», например, когда в настоящем документе указано, что «А включает В и С», «А состоит преимущественно из В и С» и «А состоит из В и С», это следует понимать как раскрытие настоящего изобретения.

В настоящем изобретении все характеристики, такие как числовые значения, количества, содержания и концентрации, указанные в форме числовых диапазонов или процентных диапазонов используют только для сокращения и удобства. Соответственно, описания числовых диапазонов или процентных диапазонов необходимо считать охватывающими и раскрывающими все возможные поддиапазоны и отдельные значения внутри диапазонов (включая целые числа и дроби).

В настоящем изобретении, если не указано иное, процентное содержание означает массовое процентное содержание, а отношение означает отношение масс.

В настоящем изобретении при описании воплощений или примеров следует понимать, что они не ограничивают настоящее изобретение до этих воплощений или примеров. И наоборот, все заменители, модификации и эквиваленты способов и материалов, описанных в настоящем изобретении, могут быть рассмотрены в объеме изобретения.

В настоящем изобретении для лаконичности использованы не все возможные комбинации каждого технического признака в любом воплощении или описанном примере. Таким образом, поскольку противоречия в комбинировании таких технических признаков отсутствуют, каждый технический признак в каждом воплощении или примере можно произвольно комбинировать, и все возможные комбинации следует рассматривать в объеме изобретения.

В настоящем изобретении расчетная формула для степени конверсии метилизобутилового спирта (МИБС) следующая: степень конверсии МИБС = $(1 - \text{остаточное количество МИБС} / \text{введенное количество МИБС}) \times 100\%$. Расчетная формула для степени конверсии оксида мезитила (МО) следующая: степень конверсии МО = $(1 - \text{остаточное количество МО} / \text{введенное количество МО}) \times 100\%$. Расчетная формула для селективности метилизобутилкетона (МИБК) следующая: селективность МИБК = $\frac{\text{полученное количество МИБК}}{(\text{преобразованное количество МИБС} \times n(\text{МИБК})/n(\text{МИБС}) + \text{преобразованное количество МО} \times n(\text{МИБК})/n(\text{МО}))} \times 100\%$, где n представляет собой количество вещества.

В настоящем изобретении предложен новый способ получения метилизобутилкетона, содержащий новое сырье и новую каталитическую систему. Как показано на Фиг.1, в настоящем изобретении используют оксид мезитила (МО) и метилизобутиловый спирт (МИБС) для передачи водорода *in situ* под действием катализатора на основе меди для получения метилизобутилкетона в одну стадию. Весь процесс реакции не требует внешней водородной системы. Реакцию проводят при

нормальном давлении, и технологическая схема является короткой. Способ по настоящему изобретению имеет преимущества в высокой степени использования атомов и высокой безопасности и подходит для промышленного применения.

Способ получения метилизобутилкетона по настоящему изобретению включает введение оксида мезитила и метилизобутилового спирта в реакцию по переносу водорода *in situ* под действием катализатора на основе меди.

В настоящем изобретении катализатор на основе меди содержит оксид меди, при этом масса оксида меди составляет более или равна 50% от общей массы катализатора на основе меди, например, >50%, 54% или 64%. Предпочтительно катализатор на основе меди представляет собой медно-цинково-алюминиевый катализатор. Основными компонентами медно-цинково-алюминиевого катализатора являются оксид меди, оксид алюминия и оксид цинка, остальными компонентами может быть активированный уголь. В некоторых воплощениях настоящего изобретения медно-цинково-алюминиевый катализатор состоит из оксида меди, оксида алюминия, оксида цинка и активированного угля. В медно-цинково-алюминиевом катализаторе содержание оксида меди может составлять 50-70% от общей массы катализатора, например, 52%, 54%, 60%, 64%, 65%, предпочтительно от 54% до 64%; содержание оксида цинка может быть от 10% до 30% от общей массы катализатора, например, 12%, 14%, 20%, 24%, 25%, предпочтительно от 14% до 24%; и содержание оксида алюминия может составлять от 5% до 15% от общей массы катализатора, например, 7%, 8%, 9%, 10%, предпочтительно от 7,8% до 8%. Сохранение состава и пропорций катализатора в указанных выше диапазонах ведет к переносу водорода *in situ* и сокращению технологической схемы. Катализаторами на основе меди, подходящими для настоящего изобретения, являются доступные на рынке медно-цинково-алюминиевые катализаторы. В некоторых воплощениях настоящего изобретения используют медно-цинково-алюминиевый катализатор с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24% и содержанием оксида алюминия 8%, или с содержанием оксида меди 64%, содержанием оксида цинка 14% и содержанием оксида алюминия 7,8%. Используемый в настоящем изобретении катализатор может иметь цилиндрическую форму.

В настоящем изобретении мольное отношение подаваемых оксида мезитила к метилизобутиловому спирту может быть от 0,1:1 до 2:1, например, от 0,5:1 до 1,5:1, предпочтительно от 0,8:1 до 1,2:1, например, около 1:1. Выбор предпочтительного мольного отношения является преимущественным для улучшения степени конверсии оксида мезитила, метилизобутилового спирта и для селективности метилизобутилкетона.

В настоящем изобретении метилизобутилкетон может дополнительно находиться в исходной реакционной системе. Например, оксид мезитила, метилизобутиловый спирт и метилизобутилкетон могут быть смешаны и введены в зону реакции, или только оксид мезитила и метилизобутиловый спирт могут быть смешаны и введены в зону реакции. Когда исходная реакционная система содержит метилизобутилкетон, начальные моли метилизобутилкетона могут быть в 0,5-2 раза больше общего количества молей оксида мезитила и метилизобутилового спирта, например в 1 раз.

В настоящем изобретении давление реакции может быть нормальным, что совершенно безопасно.

В настоящем изобретении температура реакции может быть от 140°C до 250°C, например, 140°C, 160°C, 180°C, 200°C или 250°C, предпочтительно около 180°C. Объемная скорость реакции может составлять от 0,05 до 0,2 час⁻¹, например, 0,06 час⁻¹, 0,08 час⁻¹, 0,1 час⁻¹, 0,12 час⁻¹ или 0,15 час⁻¹, и предпочтительно около 0,1 час⁻¹. Получение метилизобутилкетона при вышеуказанных условиях реакции, особенно при предпочтительных условиях реакции позволяет повысить степень конверсии оксида мезитила и метилизобутилового спирта и селективность метилизобутилкетона.

Необходимость вводить газообразный водород в процессе реакции по настоящему изобретению отсутствует. Реакцию проводят под защитой инертного газа, например, азота. Например, для замены воздуха в реакторе перед проведением реакции можно использовать инертный газ.

Реакцию по настоящему изобретению предпочтительно проводят в реакторе с неподвижным слоем, то есть катализатор предпочтительно находится в реакторе неподвижно, и поток сырья вступает в реакцию при прохождении через катализатор. Реактор с неподвижным слоем может быть трубчатым реактором, например, одноструйным реактором.

В настоящем изобретении реактор, заполненный катализатором на основе меди, может быть нагрет до температуры реакции, равномерно смешанные оксид мезитила и метилизобутиловый спирт подают через нижнюю часть реактора, а материалы выгружают из верхней части реактора. Равномерно смешанный оксид мезитила и метилизобутиловый спирт можно предварительно нагреть до температуры реакции перед подачей в реактор. Можно использовать одноструйный реактор диаметром 20±2 мм и высотой 700±100 мм, в котором высота заполнения слоя катализатора на основе меди может составлять 500±50 мм.

В некоторых воплощениях настоящего изобретения способ получения метилизобутилкетона включает: нагрев реактора, заполненного катализатором на основе

меди, до температуры реакции, затем введение инертного газа для продувки реактора и добавление равномерно смешанного оксида мезитила, метилизобутилового спирта и, возможно, метилизобутилкетона в систему предварительного нагрева для их предварительного нагрева до температуры реакции, а затем подачу их в реактор для проведения реакции. Скорость, с которой сырье поступает в систему предварительного нагрева, может составлять 0,125-0,5 мл/мин, например, 0,25 мл/мин.

Настоящее изобретение демонстрирует следующие полезные эффекты:

1. В настоящем изобретении весь процесс реакции не требует внешнего водорода и циркуляционных систем высокого давления. Реакцию проводят при нормальном давлении, и реакция является высоко безопасной;

2. В настоящем изобретении используют относительно недорогой катализатор на основе меди вместо дорогостоящего катализатора на основе драгоценного металла палладия, таким образом, значительно снижают себестоимость продукции;

3. Настоящее изобретение представляет собой совершенно новый способ получения МИБК, отличающийся от традиционного способа, при этом компоненты продукта относительно просты, а последующего отделения и очистки продукта достигают проще.

Настоящее изобретение описано в следующих примерах. Эти примеры являются лишь иллюстративными и не ограничивают объем настоящего изобретения. Способы и реагенты, используемые в примерах, если не указано иное, являются традиционными способами и реагентами в данной области техники. В примерах медно-цинково-алюминиевый цилиндрический катализатор, в котором соотношение оксида меди, оксида цинка и оксида алюминия составляет 54:24:8, является доступным на рынке под маркой Sichuan Chemical CB-5; медно-цинково-алюминиевый цилиндрический катализатор, в котором соотношение оксида меди, оксида цинка и оксида алюминия составляет 64:14:7,8, является доступным на рынке под маркой Sichuan Chemical AF104.

Пример 1

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в однотрубный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Включают систему нагрева для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 140 °С сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, и равномерно перемешивают материалы и

закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 140°C ее подают в реактор из нижней части реактора, материалы выгружают из верхней части реактора при объемной скорости реакции 0,1 час⁻¹, и после конденсации образцы анализируют методом газовой хроматографии (ГХ). Степень конверсии МИБС составляет 82,14%, степень конверсии МО составляет 80,1%, а селективность МИБК составляет 98,60%.

Пример 2

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в однострунный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 160°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 160°C ее подают в реактор из нижней части реактора, материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции 0,1 час⁻¹, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 90,14%, степень конверсии МО составляет 89%, а селективность МИБК составляет 98,52%.

Пример 3

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в однострунный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 180°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 180°C ее подают в реактор из нижней части реактора, материалы выгружают из верхней

части реактора с объемной скоростью реакции $0,1 \text{ час}^{-1}$, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 96,14%, степень конверсии МО составляет 94,23%, а селективность МИБК составляет 98,33%.

Пример 4

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в однострунный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 200°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, и равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 200°C ее подают в реактор из нижней части реактора, материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции $0,1 \text{ час}^{-1}$, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 97,21%, степень конверсии МО составляет 95,72%, а селективность МИБК составляет 96,01%.

Пример 5

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в однострунный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 250°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 250°C ее подают в реактор из нижней части реактора, а материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции $0,1 \text{ час}^{-1}$, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 98,59%, степень конверсии МО составляет 97,31%, а селективность МИБК составляет 92,15%.

Пример 6

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в одностру́бный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 180°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 0,1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 180°C ее подают в реактор из нижней части реактора, а материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции 0,1 час⁻¹, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 54,32%, степень конверсии МО составляет 99,33%, а селективность МИБК составляет 98,15%.

Пример 7

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в одностру́бный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 180°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 2:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 180°C ее подают в реактор из нижней части ректора, а материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции 0,1 час⁻¹, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 99,32%, степень конверсии МО составляет 45,22%, а селективность МИБК составляет 97,26%.

Пример 8

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в одностру́бный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему

нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 180°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,125 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 180°C ее подают в реактор из нижней части реактора, а материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции 0,05 час⁻¹, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 98,89%, степень конверсии МО составляет 97,77%, а селективность МИБК составляет 96,91%.

Пример 9

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 54%, содержанием оксида цинка 24%, содержанием оксида алюминия 8%) загружают в однострунный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 180°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,5 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 180°C ее подают в реактор из нижней части реактора, а материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции 0,2 час⁻¹, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 87,32%, степень конверсии МО составляет 83,15%, а селективность МИБК составляет 98,02%.

Пример 10

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 64%, содержанием оксида цинка 14%, содержанием оксида алюминия 7,8%) загружают в однострунный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 180°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1, затем добавляют МИБК в количестве молей, равном сумме молей МИБС и МО, равномерно перемешивают материалы и

закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 180°C ее подают в реактор из нижней части реактора, и материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции 0,1 час⁻¹, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 97,5%, степень конверсии МО составляет 96,83%, а селективность МИБК составляет 98,22%.

Пример 11

Определенное количество медно-цинково-алюминиевого цилиндрического катализатора (с содержанием оксида меди 64%, содержанием оксида цинка 14%, содержанием оксида алюминия 7,8%) загружают в однетрубный реактор диаметром 20 мм и высотой 700 мм, и высота заполнения слоя катализатора составляет 500 мм. Систему нагрева включают для повышения температуры реакционного устройства. По достижении температуры 180°C сверху вводят сухой азот для продувки реактора в течение 10 мин. МО и МИБС смешивают в молярном отношении 1:1 и смесь закачивают в систему предварительного нагрева со скоростью 0,25 мл/мин с помощью насоса с постоянной производительностью. После предварительного нагрева смеси до 180°C ее подают в реактор из нижней части реактора, и материалы выгружают из верхней части реактора с объемной скоростью реакции 0,1 час⁻¹, а после конденсации образцы анализируют методом ГХ. Степень конверсии МИБС составляет 98,72%, степень конверсии МО составляет 97,93%, а селективность МИБК составляет 98,15%.

Приведенные выше примеры показывают, что в настоящем изобретении используют оксид мезитила и метилизобутиловый спирт для переноса водорода *in situ* под действием катализатора на основе меди для получения метилизобутилкетона в одну стадию. Весь процесс реакции не требует внешней водородной системы. Реакцию проводят при нормальном давлении, и технологическая схема является короткой. Способ позволяет достичь хороших степени конверсии МИБС, степени конверсии МО и селективности, и обладает преимуществами в высокой степени использования атомов и высокой безопасности и подходит для промышленного применения.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ получения метилизобутилкетона, включающий проведение реакции оксида мезитила и метилизобутилового спирта под действием медного катализатора с получением метилизобутилкетона.

2. Способ по п. 1, в котором катализатор на основе меди содержит оксид меди, при этом масса оксида меди составляет более или равна 50% от общей массы катализатора на основе меди.

3. Способ по п. 1, в котором катализатор на основе меди представляет собой медно-цинково-алюминиевый катализатор, и предпочтительно медно-цинково-алюминиевый катализатор содержит оксид меди, оксид цинка и оксид алюминия.

4. Способ по п. 3, в котором в медно-цинково-алюминиевом катализаторе масса оксида меди составляет более или равна 50% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора;

предпочтительно в медно-цинково-алюминиевом катализаторе масса оксида меди составляет от 50% до 70% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, масса оксида цинка составляет от 10% до 30% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, и масса оксида алюминия составляет от 5% до 15% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора;

более предпочтительно в медно-цинково-алюминиевом катализаторе масса оксида меди составляет от 54% до 64% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, масса оксида цинка составляет от 14% до 24% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора, и масса оксида алюминия составляет от 7,8% до 8% от общей массы медно-цинково-алюминиевого катализатора.

5. Способ по п. 1, в котором во время реакции мольное отношение подаваемых оксида мезитила к метилизобутиловому спирту составляет (0,1-2):1, предпочтительно (0,8-1,2):1.

6. Способ по п. 1, в котором метилизобутилкетон добавляют в реакционную систему в начале реакции.

7. Способ по п. 1, в котором реакция имеет одну или более из следующих характеристик:

температура реакции составляет от 140°C до 250°C, предпочтительно 180±20°C;

давление реакции является нормальным давлением;

объемная скорость реакции составляет от 0,05 до 0,2 час⁻¹, предпочтительно 0,1±0,02 час⁻¹;

во время реакции водород не вводят;

реакцию проводят в реакторе с неподвижным слоем, таком как одностру́бный реактор;

реакцию проводят под защитой инертного газа.

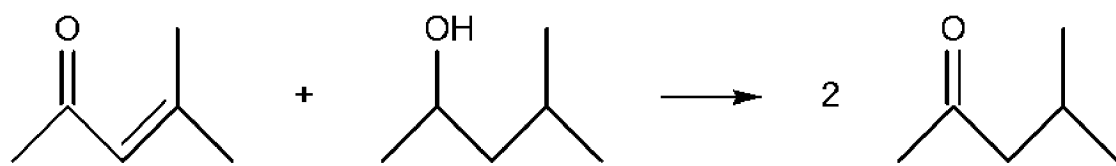
8. Способ по п. 1, включающий нагревание реактора, заполненного катализатором на основе меди, до температуры реакции, загрузку равномерно перемешанных оксида мезитила и метилизобутилового спирта из нижней части реактора для проведения реакции и выгрузку материалов из верхней части реактора.

9. Способ по п. 7, в котором равномерно смешанные оксид мезитила и метилизобутиловый спирт предварительно нагревают до температуры реакции перед загрузкой в реактор для проведения реакции.

10. Способ по п. 7, в котором реактор представляет собой одностру́бный реактор диаметром 20 ± 2 мм и высотой 700 ± 100 мм, в котором высота слоя катализатора на основе меди составляет 500 ± 50 мм.

СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ МЕТИЛИЗОБУТИЛКЕТОНА

1/1



Фиг. 1