



19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 367 411**

51 Int. Cl.:  
**C07D 251/60** (2006.01)  
**C07D 251/62** (2006.01)  
**B01J 19/18** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **09716759 .7**  
96 Fecha de presentación : **24.02.2009**  
97 Número de publicación de la solicitud: **2254874**  
97 Fecha de publicación de la solicitud: **01.12.2010**

54 Título: **Procedimiento para la producción de melamina de alta pureza a partir de urea.**

30 Prioridad: **04.03.2008 EP 08004013**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**03.11.2011**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**03.11.2011**

73 Titular/es: **UREA CASALE S.A.**  
**Via Guillo Pocobelli 6**  
**6900 Lugano-Besso, CH**

72 Inventor/es: **Sioli, Giancarlo**

74 Agente: **Arias Sanz, Juan**

ES 2 367 411 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

## DESCRIPCIÓN

Procedimiento para la producción de melamina de alta pureza a partir de urea

**Campo de aplicación**

5 En su aspecto general, la presente invención se refiere a un procedimiento no catalítico de alta presión para la producción de melamina de alta pureza a partir de urea.

En particular, la presente invención se refiere a un procedimiento para purificar melamina de impurezas como ureido-melamina, oxotriazinas, melam, melem, mediante un tratamiento fisicoquímico apropiado.

La presente invención también se refiere a una planta no catalítica de alta presión para la producción de melamina de alta pureza.

10 **Técnica anterior**

15 Los procedimientos modernos de síntesis de melamina se pueden clasificar en dos categorías: los procedimientos de baja presión catalíticos y los procedimientos de alta presión no catalíticos. Todos los procedimientos se caracterizan por tres fases de procedimiento: a) síntesis de melamina mediante pirólisis de urea; b) purificación de melamina y recuperación; c) tratamiento de descarga gaseosa. Se da una visión general de la técnica anterior en Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, vol. A 16, p. 171-181 (1990).

En un procedimiento no catalítico de alta presión, un fundido de urea del lavador de gas de escape se alimenta al reactor de alta presión, que funciona a una presión en el intervalo de 70 bar a 200 bar y a una temperatura en el intervalo de 360-420°C. La urea se piroliza a melamina de acuerdo con la siguiente ecuación:



20 El producto de la reacción es una melamina en bruto, en fase líquida, denominado fundido de melamina, que contiene impurezas de varios tipos, que comúnmente son precursores o derivados de la propia molécula de melamina, o urea sin reaccionar. Dependiendo del procedimiento de producción, la melamina en bruto tiene una concentración de impurezas en el intervalo de desde el 6 hasta el 12% en peso. Éstas incluyen al menos oxi-amino-triazinas (es decir, amelina, amelida), policondensados de melamina (es decir, melam, melem, melon), ureido-melamina, urea, amoníaco disuelto y dióxido de carbono.

25 Sin embargo, los usuarios de melamina necesitan un producto comercial de muy alta pureza, normalmente no menos del 99,8%. Por lo tanto, la melamina en bruto ha de purificarse separando dichas impurezas, hasta alcanzar el nivel de pureza requerido.

30 Este problema ha generado mucho trabajo en este campo técnico, con el objetivo de encontrar soluciones adecuadas para obtener melamina de alta pureza de una manera sencilla y con costes de funcionamiento y de inversión razonables.

35 A este respecto, de acuerdo con la tecnología usada principalmente en los procedimientos de producción de melamina no catalíticos de alta presión, la purificación/recuperación de melamina pura tiene lugar por medio de la disolución del fundido de melamina, como se obtiene mediante el reactor de alta presión, y la posterior cristalización de melamina a partir de la solución acuosa.

40 Un procedimiento de purificación básico del tipo anterior se da a conocer en el documento US 3161638 (Allied Chemical corporation). Este documento da a conocer un procedimiento para producir melamina de alta pureza en el que todos los efluentes del reactor de síntesis de melamina (fases líquida y gaseosa) se despresurizan y se enfrían hasta aproximadamente 160°C en presencia de una solución de agua (licor madre acuoso reciclado descrito a continuación en el presente documento), de modo que toda la melamina, la urea sin reaccionar y las distintas impurezas, pasan a la solución para procesarse corriente abajo.

45 El efluente desactivado (solución) se hace pasar en primer lugar en un extractor a baja presión para retirar una fase gaseosa, que consiste sustancialmente en amoníaco saturado con agua y dióxido de carbono, por contacto directo con vapor, reciclándose la fase gaseosa a la planta de síntesis de urea, y después a un digestor en el que dicha solución se calienta hasta aproximadamente 170°C en presencia de amoníaco anhidro añadido a la solución templada hasta que alcanza el nivel del 12-15% en peso. Durante la estancia en el digestor bajo estas condiciones, los policondensados se transforman casi totalmente en melamina y, en menor grado, en oxi-amino-triazinas (OAT).

50 La solución amoniacal purificada del digestor se filtra y después se alimenta a un cristizador en el que la temperatura disminuye hasta 40-50°C, permitiendo así la cristalización de la mayor parte de la melamina. La presencia de amoníaco en el cristizador sirve para mantener OAT en solución y por tanto para separar un producto caracterizado por un alto grado de pureza (+ 99,9% en peso). Entonces, la melamina cristalizada se separa en un separador de

líquido/sólido de una corriente acuosa que contiene la OAT formada en la reacción y en los distintos equipos del circuito acuoso debido a la hidrólisis de melamina.

5 Esta corriente acuosa (llamada licor madre) que, aparte de OAT, aún contiene melamina residual (aproximadamente el 0,8-1% en peso) y gran cantidad de amoníaco, no se puede reciclar directamente al aparato de desactivación, porque, de lo contrario, el contenido en OAT seguiría aumentando y, una vez se alcanza la concentración de saturación, podría precipitar en el cristizador contaminando el producto.

10 Por lo tanto, el procedimiento de acuerdo con el documento US 3.161.368 mantiene la purificación del licor madre antes de reciclarlo al desactivador separando en primer lugar amoníaco en una sección de recuperación de amoníaco y enfriando después la solución libre de amoníaco resultante de modo que provoca la precipitación y la separación de OAT, que después se elimina del ciclo acuoso.

Sin embargo, el procedimiento ilustrado anteriormente, aunque se usa actualmente en varias plantas, requiere un consumo de energía alto y equipos costosos, en particular para separar OAT del licor madre.

15 Una mejora del procedimiento ilustrado anteriormente se da a conocer en el documento US 2004/0162429 (Eurotecnica). En particular, esta solicitud de patente da a conocer un procedimiento para la producción de melamina de alta pureza en el que la salida de fase líquida del reactor de pirólisis que contiene melamina, urea sin reaccionar, OAT y policondensados, se alimenta a un reactor corriente abajo (reactor posterior) (que funciona en condiciones de presión y temperatura iguales a las del reactor de pirólisis) donde entra en contacto íntimo con amoníaco gaseoso anhidro supercalentado añadido en cantidades iguales a desde 1:10 hasta 1:1 en peso sobre la melamina líquida en bruto.

20 El amoníaco supercalentado que pasa a través de la masa líquida de la melamina en bruto permite la transformación de OAT en melamina, reduciendo así su contenido hasta un valor inferior a 6.000 ppm, mientras que el contenido en policondensados se reduce hasta menos del 1% en peso.

25 Entonces, la melamina líquida purificada se trata en un aparato de desactivación a 160-170°C en presencia del 10% en peso mínimo de solución acuosa de amoníaco para retirar los policondensados. La solución acuosa resultante en la salida del aparato de desactivación y que contiene el 7-8% en peso de melamina se enfría provocando que se separe por cristalización una melamina de alta pureza del licor madre.

De este modo, sería posible reciclar una mayor parte del líquido madre (aproximadamente el 80%) directamente al aparato de desactivación sin contaminar los cristales del producto.

30 Sin embargo, el procedimiento ilustrado en el documento US 2004/0162429 aún requiere un reactor posterior costoso, lo que afecta de modo significativo a los costes de funcionamiento e inversión de las plantas de melamina de alta presión. Además, la concentración relativamente baja de melamina tiene la consecuencia de tratar grandes volúmenes de licor madre.

### **Sumario de la invención**

35 Por lo tanto, el problema técnico subyacente de la presente invención es el de proporcionar un procedimiento para obtener melamina de una alta pureza de modo simple y fiable, así como con un consumo de energía y costes de inversión bajos, de modo que se superen los inconvenientes mencionados anteriormente de la técnica anterior.

Este problema se soluciona mediante un procedimiento para obtener melamina de una alta pureza caracterizado porque comprende las etapas de:

40 - desactivar un fundido de melamina, privado de gases de escape de la síntesis de melamina y que contiene impurezas de melamina tales como amelina, amelida y policondensados, con una solución acuosa que comprende amoníaco bajo condiciones tales como para convertir sustancialmente policondensados en melamina, obteniendo una solución de melamina sustancialmente libre de policondensados,

- recuperar la melamina de dicha solución de melamina mediante cristalización de melamina, obteniendo cristales de melamina y un licor madre de cristalización de melamina,

45 - tratar dicho licor madre de melamina de cristalización bajo condiciones tales como para convertir al menos una parte de su contenido en amelina en amelida y melamina, obteniendo un líquido madre tratado que tiene al menos un contenido en amelina reducido.

50 En el procedimiento de la invención, la etapa de desactivación se lleva a cabo preferentemente a una temperatura en el intervalo de 150°C a 190°C con una solución acuosa que comprende amoníaco a una concentración en el intervalo de desde el 20% hasta el 35% durante un tiempo de desde 10 minutos hasta 30 minutos para obtener una melamina en la que la concentración de melamina está en el intervalo de desde el 8 hasta el 16% en peso.

Lo más preferentemente, dicho fundido de melamina se desactiva a una temperatura de 160° a 180°C y a una presión de 15-80 bar como se determina por la presión de vapor total de la solución a la temperatura y concentración de amoníaco seleccionadas.

5 Lo más preferentemente, la concentración de melamina en la solución está comprendida en el intervalo de desde el 9% hasta el 13% en peso.

De acuerdo con una realización de la invención, el amoníaco gaseoso también se añade a dicha solución acuosa que comprende amoníaco en la etapa de desactivación.

10 Se ha observado que bajo las condiciones de funcionamiento seleccionadas de la desactivación del fundido de melamina de acuerdo con la presente invención, las impurezas asociadas a la melamina, concretamente policondensados que se forman durante la síntesis de melamina, se convierten totalmente en melamina mediante la reacción con amoníaco. Al mismo tiempo, las condiciones de funcionamiento seleccionadas son tales que evitan una formación adicional de OAT.

15 De acuerdo con la presente invención, la solución de amoníaco y melamina, que contiene OAT sustancialmente en forma de amelina y amelida, obtenida en la etapa de desactivación se hace pasar a una etapa de cristalización, en la que se enfría por debajo de 30-60°C, preferentemente 40-50°C, provocando la separación de cristales de melamina de muy alta pureza. La presión de cristalización resulta ser ligeramente superior a la atmosférica, como se determina por la presión de vapor de la solución amoniada a la temperatura seleccionada. En las condiciones seleccionadas, amelina  $C_3N_3(NH_2)_2(OH)$  y amelida  $C_3N_3(NH_2)(OH)_2$  permanecen en solución.

20 De acuerdo con la presente invención, se ha observado que, después de la separación de cristales de melamina, el licor madre resultante se puede tratar de modo que se obtenga la conversión de mayor parte de la amelina presente en melamina, y de una menor parte de ella en amelida. Esto tiene la doble ventaja de recuperar algo más de melamina, y de transformar amelina, apenas soluble en amoníaco acuoso, en la amelida mucho más soluble, permitiendo el reciclaje del licor madre a la etapa de desactivación sin el riesgo de precipitar amelina en la siguiente etapa de cristalización.

25 De acuerdo con la invención, este tratamiento ventajoso del licor madre comprende la etapa de calentar el licor madre a una temperatura en el intervalo de 150 a 190°C durante un periodo de tiempo que varía desde 1 a 4 horas antes de reciclarlo con el fin de desactivar y diluir el fundido de melamina proporcionado como producto del reactor.

También se puede añadir amoníaco gaseoso en la etapa de tratamiento de licor madre para compensar las pérdidas de amoníaco en la etapa de cristalización o durante la retirada de amelida como se explica a continuación.

30 Esta etapa de tratamiento, que se realiza sobre el flujo total del licor madre, antes de su reciclaje a la etapa de desactivación y dilución, difiere sustancialmente del tratamiento proporcionado por la patente de los Estados Unidos 3.161.638, en la que todo el amoníaco se extrae de la solución, con un gran gasto de energía, haciendo que precipiten tanto amelina como amelida en forma sólida, para retirarse por filtración, debido a su pobre solubilidad en el agua no amoniada.

35 Además, se ha observado que la etapa de calentamiento descrita anteriormente no sólo permite la conversión de amelina a melamina y amelida sino que también puede hidrolizar, en forma de  $NH_3$  y  $CO_2$ , urea no convertida en la reacción principal de síntesis de melamina, junto con el fundido de melamina, y pasar corriente abajo a la etapa de desactivación.

40 De acuerdo con otro aspecto de la presente invención, para evitar una acumulación de amelida en el bucle cerrado del licor madre hasta su límite de solubilidad, a riesgo de precipitar amelida durante la cristalización de melamina, el procedimiento que comprende además las etapas de:

- separar una parte de licor madre del flujo de licor madre obtenido después de dicha etapa de calentamiento,
- retirar sustancialmente la amelida de dicha parte de licor madre, y
- devolver dicha parte de licor madre sustancialmente privada de amelida a dicho flujo de líquido madre.

45 De acuerdo con la invención, la parte de licor madre separada del flujo de licor madre obtenido después de dicha etapa de calentamiento es muy pequeña, y preferentemente está comprendida en el intervalo del 5% al 20% en peso.

50 Preferentemente, la retirada de amelida se lleva a cabo mediante desamonización (extracción de amoníaco de) dicha parte separada del licor madre provocando que precipite amelida y mediante separación de la amelida sólida por filtración. Después de la retirada del sólido por filtración, el filtrado se devuelve como tal al bucle de licor madre principal.

Otras características y ventajas de la presente invención se presentarán con más claridad a partir de la siguiente descripción no limitante de algunas realizaciones del procedimiento para obtener melamina de una alta pureza de acuerdo con la invención, realizada con referencia a los dibujos adjuntos.

### **Breve descripción de los dibujos**

5 En estos dibujos:

- la figura 1 muestra un diagrama de flujo de una planta de melamina de acuerdo con la presente invención;

- la figura 2 muestra un aparato de desactivación de la planta de melamina de la figura 1 de acuerdo con una realización de la presente invención;

10 - la figura 3 muestra un aparato de desactivación de la planta de melamina de la figura 1 de acuerdo con otra realización de la presente invención,

- la figura 4 muestra un aparato de acuerdo con una realización de la presente invención para tratar licor madre de melamina de cristalización con el fin de convertir amelina en amelida y melamina,

- la figura 5 muestra un aparato de acuerdo con otra realización de la presente invención para tratar licor madre de melamina de cristalización con el fin de convertir amelina en amelida y melamina.

### **Descripción detallada de realizaciones preferidas**

Con referencia a la figura 1, se muestra un diagrama de flujo de un sistema de planta para la fabricación de melamina a partir de urea en un procedimiento de alta presión.

20 En esta planta de melamina, que está indicada en su totalidad con el número de referencia 1, el bloque 2 indica un reactor de alta presión para la síntesis de melamina, el bloque 3 indica una sección de desactivación para un fundido de melamina obtenido en el reactor 2, el bloque 4 indica una sección de cristalización de melamina, el bloque 5 indica un separador de líquido/sólido para recuperar cristales de melamina de alta pureza y el bloque 6 indica una sección de tratamiento de licor madre para la conversión de amelina.

25 Generalmente, en la presente descripción y en las reivindicaciones adjuntas, y donde no se indique de forma diferente, por los términos: "medios de alimentación o de conexión o línea de flujo", se quiere decir tuberías, líneas o conductos de conexión, bombas, compresor, eyectores u otros dispositivos de tipo conocido, que se usan para transportar un flujo líquido o gaseoso desde una ubicación a otra en la planta.

La línea de flujo 7 indica un flujo de urea líquida alimentada al reactor 2 en el que se convierte en melamina por pirólisis. El reactor 2 funciona normalmente a una presión en el intervalo de 70 bar a 200 bar y a una temperatura en el intervalo de 360-420°C.

30 La masa reactiva se descarga por el reactor como dos salidas separadas, concretamente un flujo del gas 8 que comprende amoníaco y dióxido de carbono y vapores de melamina, y un flujo 9 de melamina en bruto en fase líquida o fundida que también contiene algunas impurezas tales como OAT y policondensados.

El flujo gaseoso 8 normalmente se recicla a la planta de síntesis de urea después de la separación de los vapores de melamina (que se devuelven a su vez al reactor 2) en una unidad de lavado de gas convencional (no mostrado).

35 Por el contrario, el flujo 9 de melamina en bruto se alimenta a la sección de desactivación 3 donde se pone en contacto íntimo con un flujo 10 de licor madre, procediendo éste de la sección de tratamiento 6 para la conversión de amelina, de una forma que se dará a conocer mejor en la siguiente descripción, obteniendo una solución de melamina en amoníaco concentrado-agua en la que los policondensados presentes sustancialmente se convierten totalmente en melamina.

40 La sección de desactivación 3 se mantiene a una temperatura de 150-190°C, bajo presión de forma autógena, y a travesada por un pequeño flujo de amoníaco gaseoso, inyectado a través de la línea 11, mientras que el exceso se libera a través de la línea 12.

45 La solución de melamina descargada de la sección de desactivación 3 se alimenta, a través de la línea de flujo 13, a la sección de cristalización 4 donde la temperatura disminuye hasta 30°C-60°C, bajo presión de forma autógena, provocando la precipitación de cristales de melamina de muy alta pureza, mientras que las impurezas residuales y la melamina residual permanecen en la solución.

La corriente de líquido que contiene las impurezas residuales y la melamina residual (denominada licor madre), y la melamina cristalizada se descargan de la sección de cristalización 4 y se alimentan, a través de la línea de flujo 14, a la sección de separación de líquido/sólido 5 en la que la melamina cristalizada se separa del licor madre.

Los cristales de melamina, tal como se descargan por la línea de flujo 15, se mojan con licor madre, que se retira por la técnica habitual de lavar la torta de cristales con agua, obteniendo un filtrado (que contiene melamina disuelta), que se devuelve al bucle de licor madre. Los cristales se secan y se proporcionan al empaquetado final.

5 De la sección de separación 5 se transfiere el licor madre, a través de la línea de flujo 16, a la sección de tratamiento 6, en la que el flujo de líquido se calienta hasta 150-190°C, bajo presión de forma autógena, y se mantiene en esa condición durante un tiempo de 1 a 4 horas, dependiendo de la temperatura de funcionamiento (cuanto mayor sea la temperatura, más corto es el tiempo de residencia). De este modo, la melamina en solución se convierte principalmente en melamina, y en menor grado en amelida.

10 Finalmente, el licor madre tratado cierra el bucle reciclando, a través de la línea de flujo 10, a la sección de desactivación 3.

15 Una parte muy pequeña del licor madre de la sección 6 se purga fuera a través de la línea de flujo 17, para evitar una acumulación excesiva de amelida dentro del bucle de licor madre, y por lo tanto a riesgo de precipitar amelida durante la cristalización de melamina. Esta corriente sufre una eliminación de amoníaco y, posiblemente se neutraliza en una sección de retirada de amelida 18 obteniendo la precipitación de amelida, que se separa por filtración y se descarga a través de la línea de flujo 19, mientras que el filtrado, que contiene melamina, se devuelve al bucle de licor madre a través de la línea de flujo 20.

La figura 2 muestra un aparato de acuerdo con una realización de la presente invención para la desactivación de melamina adecuada para usar en la sección de desactivación 3 de la planta de melamina de la figura 1. Este aparato de desactivación está indicado, en su totalidad, con el número de referencia 20.

20 El aparato 20 comprende un recipiente 21, de tipo cilíndrico, vertical, que está diseñado y construido de modo que se haga funcionar eficazmente a una presión sustancialmente igual o inferior a la presión de funcionamiento del reactor 2, por ejemplo, una presión de 20-100 bar, preferentemente 30-70 bar y a una temperatura de funcionamiento de la desactivación de melamina preferentemente en el intervalo de 150-190°C.

25 El recipiente 21 está provisto internamente de un agitador mecánico indicado en su totalidad con 26 y deflectores 23 que se extienden verticalmente desde la cubierta del recipiente 21 para transferir al líquido bajo agitación una cantidad significativa de energía. El agitador 26 incluye una barra vertical 27 que se extiende a lo largo del eje vertical del recipiente 1 desde su parte superior a la parte inferior del recipiente 21, y un rotor 22 en el extremo inferior de la barra 27. El rotor agitador 22 puede ser de turbina, o de tipo de hélice y preferentemente es una turbina de palas planas. El agitador 26 está controlado por un motor adecuado 28 situado en el exterior del recipiente 21.

30 El recipiente 21 también está provisto internamente de serpentines de transferencia de calor 24 que se pueden obtener como canalizaciones cruzadas internamente por un fluido de transferencia de calor, como por ejemplo, por una corriente de aceite diatérmico o agua en ebullición presurizada. En particular, el fluido de transferencia de calor entra en el recipiente 21 y los serpentines 24 a través de una canalización de entrada 29 y se descarga de ellos a través de una canalización de salida 30.

35 El recipiente 21 también comprende aperturas adecuadas (no mostrado) para la entrada de licor madre procedente de la sección de tratamiento 6, para la entrada de fundido de melamina procedentes del reactor 2, para la entrada y la salida de amoníaco gaseoso y para la salida de solución de melamina.

40 En particular, de acuerdo con la presente invención, el licor madre se introduce en el recipiente 21 a través de la canalización 10. El fundido de melamina se deja entrar a través de la canalización 9, que se extiende preferentemente en el interior del recipiente 21 desde su parte superior hasta la proximidad de una parte superior del rotor agitador 22. De este modo, ventajosamente, tan pronto como el fundido llega a la parte superior del rotor agitador 22, se dispersa inmediatamente dentro de la fase líquida presente en el recipiente 21.

45 El amoníaco gaseoso se alimenta al recipiente por la canalización 11, que se extiende ventajosamente dentro del recipiente 21 desde su fondo hasta una parte inferior del rotor agitador 22. De este modo, tan pronto como el amoníaco llega a la parte inferior del rotor agitador 22, se subdivide inmediatamente en microgotitas muy finas, y se dispersa dentro de la fase líquida presente en el recipiente 21. El exceso de amoníaco se libera a través de la canalización 12.

50 De acuerdo con la invención, en el recipiente 21, el fundido de melamina se pone en contacto con el licor madre y se desactiva a una temperatura de 150°C a 190°C, preferentemente de 160°C-180°C, mientras que la solución resultante se mantiene en contacto íntimo con amoníaco gaseoso, durante un tiempo en el intervalo de 15 minutos a 90 minutos.

De este modo, la melamina pasa a la solución en una concentración preferentemente de desde el 8% hasta el 16% en peso mientras, al mismo tiempo, algunas de las impurezas tales como policondensados, que se forman en el reactor 2, se convierten en melamina por reacción por amoníaco, obteniendo la práctica desaparición del contenido en policondensado en la solución de melamina resultante.

5 A este respecto, de acuerdo con la invención, el amoníaco presente en el licor madre y el amoníaco gaseoso se introducen preferentemente en el recipiente 21 de modo que mantenga una concentración en dicha solución en el intervalo del 20% al 35% en peso, en el intervalo establecido de temperaturas, a la presión de equilibrio alcanzada por el recipiente de desactivación. Además, el amoníaco gaseoso está altamente disperso de forma ventajosa y se distribuye en la masa líquida gracias al rotor agitador 22 que produce un sistema de contacto gas-líquido altamente eficaz.

En el recipiente 21, las condiciones de temperatura se controlan por el fluido de intercambio de calor que fluye en los serpentines 24 que retira calor del recipiente 21 para mantener la masa líquida total a la temperatura deseada.

10 La fase líquida descargada fuera del recipiente 21 se transfiere a la sección de cristalización sucesiva 4 de la planta 1, donde se enfría inmediatamente hasta la temperatura de cristalización final, en el intervalo de 30 a 60°C bajo presión de forma autógena. La transferencia se puede realizar de forma sencilla bajo la presión diferencial a través de la canalización 13 por medio de un dispositivo de control de nivel o por una bomba.

15 La figura 3 muestra un aparato de acuerdo con otra realización de la presente invención para la desactivación de melamina adecuada para usar en la sección de desactivación 3 de la planta de melamina de la figura 1. Este aparato de desactivación está indicado, en su totalidad, con el número de referencia 40.

A los elementos del aparato 40 de la figura 3 que son estructural o funcionalmente equivalentes a los elementos correspondientes del aparato 20 de la figura 2, se les asignan los mismos números de referencia de estos elementos.

20 El aparato 40 incluye un recipiente 41 y un bucle cerrado, indicado en su totalidad con el número de referencia 42, en el exterior del recipiente 41. El bucle cerrado 42 incluye una bomba de succión 44, un intercambiador de calor 45, una canalización 43 que conecta el fondo del recipiente 41 a la bomba 44, una canalización 46 que conecta la bomba 44 al intercambiador de calor 45 y una canalización 47 que conecta el intercambiador de calor 45 al recipiente 41.

25 En esta realización, todos los fluidos que van a mezclarse entre sí íntimamente, concretamente el licor madre que procede de la línea de flujo (canalización) 10, el fundido de melamina que procede de la línea de flujo (canalización) 9 y el amoníaco gaseoso que procede de la línea de flujo (canalización) 11 se mezclan en la canalización 43 y la fase líquida/gaseosa resultante se deja circular de forma continua en el bucle cerrado 42 y en el recipiente 41 a través de la bomba 44. Esto permite que el amoníaco se distribuya finamente en la masa de líquido.

El control de la temperatura del líquido se realiza por el intercambiador de calor 45 cruzado en el lado del procedimiento por la fase líquida/gaseosa de la que se retira el calor según sea necesario por un fluido de intercambio de calor.

30 Un flujo de solución de melamina se descarga de forma continua fuera del recipiente 41 a través de la canalización 13 y se envía a la etapa de cristalización en la sección 4 como se indica anteriormente.

35 La figura 4 muestra un aparato de acuerdo con una realización de la presente invención para tratar licor madre de melamina de cristalización con el fin de convertir amelina en amelida y melamina. Este aparato está indicado, en su totalidad, con el número de referencia 60 y es adecuado para usar en la sección de tratamiento 6 de la planta de melamina de la figura 1.

40 El aparato 60 comprende un único recipiente a presión 61 de volumen total suficiente para permitir que el líquido madre fluya el tiempo de residencia deseado a la temperatura seleccionada. El recipiente de presión 61 está provisto internamente con un agitador mecánico 66 y deflectores 63 que se extienden verticalmente, ayudando a que el líquido bajo agitación tenga calor transferido desde la serpentina 64, cruzado internamente por un líquido de calentamiento, como por ejemplo, vapor de condensación. En particular, el fluido de transferencia de calor entra en el recipiente 61 y los serpentines 64 a través de una canalización de entrada 69 y se descarga de ellos a través de una canalización de salida 65.

45 El agitador 66 incluye una barra vertical 67 que se extiende a lo largo del eje vertical del recipiente 61 desde su parte superior a la parte inferior del recipiente 61, y un rotor 62 en el extremo inferior de la barra 67. El rotor agitador 62 puede ser de turbina, o de tipo de hélice y preferentemente es una turbina de palas planas. El agitador 66 está controlado por un motor adecuado 68 situado en el exterior del recipiente 61.

50 El recipiente 61 también está provisto internamente de serpentines de transferencia de calor 24 que se pueden conseguir como canalizaciones cruzadas internamente por un fluido de transferencia de calor, como por ejemplo, por una corriente de aceite diatérmico o vapor. En particular, el fluido de transferencia de calor entra en el recipiente 21 y los serpentines 24 a través de una canalización de entrada 29 y se descarga de ellos a través de una canalización de salida 30.

El licor madre se introduce en el recipiente 61 a través de la canalización 16, mientras que el líquido tratado sale a través de la canalización 10.

La figura 5 muestra un aparato de acuerdo con otra realización de la presente invención para tratar licor madre de melamina de cristalización con el fin de convertir amelina en amelida y melamina. Este aparato está indicado, en su totalidad, con el número de referencia 70 y es adecuado para usar en la sección de tratamiento 6 de la planta de melamina de la figura 1.

- 5 El aparato 70 comprende dos recipientes a presión 71A y 71B, de la misma configuración que para el recipiente 61 descrito anteriormente, ajustados en serie sobre el flujo de líquido. Esta configuración tiene la ventaja de usar recipientes mucho más pequeños, es decir, que tienen un volumen inferior que en el caso de un único recipiente 61.

De acuerdo con otra realización de la invención (no mostrado), el licor madre procedente de la sección de separación sólido/líquido 5 se puede pre-calentar a la temperatura deseada en un intercambiador apropiado corriente arriba del recipiente 61 del aparato 60 o del recipiente 71A del aparato 70. En este caso, los serpentines de transferencia de calor 64 en el recipiente 61 o en los recipientes 71A y 71B no se requieren más.

En el recipiente 61 del aparato 60 y en los recipientes 71A y 71B del aparato 70, debido al incremento de temperatura, la solución de amoníaco que constituye el licor madre aumenta de presión hasta 15-80 bar de presión, dependiendo de la concentración de amoníaco usada.

- 15 El licor madre tratado, empobrecido en amelina y enriquecido en melamina (y parte de amelida) se transfiere a la sección de desactivación 3, que funciona aproximadamente a la misma temperatura y presión que la sección de conversión de amelina 6.

Los siguientes ejemplos están destinados a mostrar mejor cómo se puede practicar la invención, y las ventajas de la misma, pero no se deben interpretar como limitantes de su alcance.

20 **Ejemplo 1**

Una muestra de 100 g de fundido de melamina, que se proporcionó por una tecnología de alta-presión después de la separación del gas de escape, y se mantuvo en fase líquida a 390°C, 80 bar de presión, tuvo la siguiente composición (porcentajes en peso):

	melamina	89,7%
25	OAT	1,0%
	poli-condensados	2,2
	urea sin convertir	5,0%
	NH <sub>3</sub> disuelto	1,3%
	CO <sub>2</sub> disuelto	0,8%

- 30 Se ha transferido rápidamente la muestra a un reactor de tanque agitado, mantenido a 170°C, en el que previamente se han situado 800g de solución acuosa de amoníaco con una concentración del 31%. El recipiente alcanzó una presión interna de 41 bar.

Después de 10 minutos bajo agitación, se transfirió rápidamente el contenido del reactor en otro recipiente agitado, equipado para enfriar rápidamente hasta aproximadamente 40°C la solución de melamina obtenida. Después de alcanzar la temperatura deseada, la presión interna del recipiente fue aproximadamente de 1 bar.

Una muestra de fase líquida, sometida a análisis, mostró una concentración de melamina del 0,67%, amelina del 0,08%, que es menor que su límite de solubilidad en amoníaco con una concentración del 31%, amelida al 0,02%, muy lejos de su su límite de solubilidad (2%). No se detectaron poli-condensados. La urea resultó estar parcialmente hidrolizada. Los cristales de melamina separados fueron de muy alta pureza.

40 **Ejemplo 2**

Un licor madre de la siguiente composición (porcentajes en peso):

	- Melamina	0,84 %
	- amelina	0,12 %
	- amelida	0,15 %
45	- amoníaco	30,4%
	- balance hídrico hasta	100 %



similar al recuperado en el ejemplo 1 de la etapa de cristalización de melamina, se ha alimentado de forma continua, a la velocidad de 800 g/h, en un reactor de tanque de agitación de 1 litro calentado para mantener la temperatura constante a 180°C. Se ha inyectado amoníaco gaseoso en el mismo reactor para elevar la presión hasta 66 bar. Manteniendo constante el nivel de líquido interno, se descargó el producto, se enfrió y se analizó. La amelina desapareció sustancialmente, y se convirtió aproximadamente en un 80% en melamina, el resto en amelida.

Se ha repetido el mismo experimento en condiciones más leves, reduciendo a la mitad la concentración de amoníaco y haciéndolo funcionar a 170°C, 24 bar de presión. Con el fin de observar una conversión sustancial de amelina, se ha reducido el caudal hasta 250 g/h. Mientras, el producto principal de la reacción fue amelida.

### **Ejemplo 3**

Se llevó a cabo el procedimiento de acuerdo con la invención para obtener melamina de una alta pureza en una planta piloto de acuerdo con la figura 1.

Se proporcionó un fundido de melamina que tenía la misma composición descrita en el ejemplo 1 por el reactor de urea de alta presión 2.

Se alimentó este fundido de melamina, a una velocidad de 100 kg/h, en la sección de desactivación 3 en un reactor de tipo de tanque agitado (recipiente 21) equipado como se describe anteriormente con referencia a la fig.2, acomodando el reactor 21 150 litros de volumen líquido y teniendo lugar el procedimiento de desactivación y dilución en el reactor 21 a 170°C.

El mismo reactor 21 recibió de forma continua 810 kg/h de solución de amoníaco acuosa, reciclada que contenía 250 kg/h de amoníaco, y aproximadamente 550 kg/h de agua, siendo principalmente el resto melamina y amelida disueltas (licor madre reciclado). Dicha solución de amoníaco acuosa procedió de la sección de conversión de amelina 6, que también funcionaba a 170°C y del reactor de desactivación 21 y la sección de conversión de amelina 6 funcionó aproximadamente a la misma presión interna de forma autógena de 44 bar.

La temperatura del reactor de desactivación 21, que recibía el fundido de melamina a 380-390°C y la solución de amoníaco a 170°C, se controló a una temperatura de 170°C por enfriamiento adecuado.

El líquido que se desaguó exceso en continuo del reactor de desactivación fue una solución de una concentración del 10,7-10,9% de melamina, prácticamente libre de policondensados de melamina. Se despresurizó y se alimentó de forma continua a la sección de cristalización 4 en un cristizador-enfriador de aproximadamente 1 m<sup>3</sup> de volumen, en el que se mantuvo la temperatura de la materia del procedimiento a 45°C. Se estabilizó la presión del cristizador a 1,2 bar.

Los cristales de melamina precipitaron, formando con el licor madre una suspensión, que se extrajo gradualmente del cristizador, y se alimentó en una centrifuga, que proporcionó la separación de cristales, y se lavó con agua desmineralizada, mientras que se recogió el licor madre filtrado en un tanque, a presión atmosférica.

El licor madre, que estaba saturado en un 0,84% por melamina, y que contenía el 0,12% de amelina y el 0,17% de amelida, se alimentó de forma continua, a una velocidad de aproximadamente 940 litros/h, a la sección de conversión de amelina 6 en un reactor de tanque agitado (recipiente 60), provisto de una serpentina de vapor interna, que calentó el líquido y lo mantuvo a 170°C, como se describe anteriormente con referencia a la figura 4. También se introdujo un pequeño flujo de amoníaco gaseoso, para compensar las pérdidas en la separación de los cristales en el reactor 60, hasta alcanzar una presión interna de 44 bar. El volumen del reactor fue de 2 m<sup>3</sup>, que proporcionó entonces un tiempo de residencia de fase líquida de aproximadamente 2 horas.

Gracias a este funcionamiento, la amelina apenas soluble se convirtió en melamina y amelida, permitiendo recircular la solución de amoníaco acuosa (licor madre) sin el riesgo de precipitación de amelina durante la etapa de cristalización de melamina. Además, parte de urea (0,45%) que quedó en la solución como residual del fundido de melamina, se hidrolizó eficazmente en este reactor 60.

El 80% de la corriente de licor madre tratado se reenvió directamente a la sección de desactivación 3 mientras que el 20% restante de la corriente de líquido madre tratado se purgó para retirar amelida, en el promedio de aproximadamente 0,4 kg/h, para evitar la acumulación excesiva en el bucle del procedimiento. Se realizó la retirada en la sección de retirada de amelida 18 extrayendo el amoníaco disuelto, lo que hace que la amelida sea insoluble en el agua residual y separando la amelida por filtración. Posteriormente, la corriente de líquido madre sustancialmente privada de amelida y que aún contenía algo de melamina, se recuperó de la sección de tratamiento 18 y se devolvió al bucle del procedimiento en la corriente de líquido madre para reciclarse a la sección de desactivación 3.

De este modo, la concentración de OAT en el bucle del procedimiento nunca alcanzó el límite de solubilidad, por encima del cual podría precipitar y contaminar la melamina producida. Además, el rendimiento del procedimiento fue muy alto, concretamente se recuperó más del 98% de melamina que tenía alta pureza (más del 99,8%) del fundido original que contenía melamina como tal, o bajo la forma de poli-condensados y OAT.

**Ejemplo 4**

5 Se llevó a cabo un estudio con el objetivo de reducir en la medida de lo posible la fracción de licor madre que se va a purgar para la eliminación de amelida, después de su generación a partir de amelina, como se muestra en los ejemplos precedentes, evitando al mismo tiempo el riesgo de precipitación de amelina o amelida en la solución de amoníaco acuosa en la etapa de cristalización de melamina en la sección de cristalización 4.

10 De acuerdo con este estudio, se ha observado que haciendo funcionar la planta del ejemplo 3 precedente en las mismas condiciones, pero reduciendo las purgas desde el 20% hasta el 10% de la solución de amoníaco acuosa recirculante (líquido madre reciclado), se evita el riesgo de precipitación de OAT en la cristalización de melamina en un 5% por incremento de la proporción entre la solución de amoníaco acuosa y el fundido de melamina en la sección de desactivación 3.

Además, la reducción de la purga hasta el 5% del líquido madre reciclado fue posible incrementando un 20% la proporción de solución de amoníaco acuosa/ fundido de melamina en la sección de desactivación 3.

## REIVINDICACIONES

1. Procedimiento para obtener melamina de una alta pureza de no menos del 99,8%, caracterizado porque comprende las etapas de:
  - 5 - desactivar un fundido de melamina, privado de gases de escape de la síntesis de melamina y que contiene impurezas de melamina tales como amelina, amelida y policondensados, con una solución acuosa que comprende amoníaco de modo que convierta sustancialmente policondensados en melamina, obteniendo una solución de melamina sustancialmente libre de policondensados,
  - recuperar la melamina de dicha solución de melamina mediante cristalización de melamina, obteniendo cristales de melamina y un licor madre de cristalización de melamina,
  - 10 - tratar dicho licor madre de melamina de cristalización convirtiendo al menos una parte de la amelina contenida en dicho licor madre de cristalización de melamina en amelida y melamina, obteniendo un líquido madre tratado que tiene un contenido en amelina menor que dicho licor madre de cristalización de melamina.
2. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado porque dicha etapa de desactivación se lleva a cabo a una temperatura en el intervalo de 150°C a 190°C con una solución acuosa que comprende amoníaco a una concentración en el intervalo de desde el 20% hasta el 35% durante un tiempo de desde 10 minutos hasta 30 minutos para obtener una melamina en la que la concentración de melamina está en el intervalo de desde el 8 hasta el 16% en peso.
3. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 2, caracterizado porque el amoníaco gaseoso también se añade a dicha solución acuosa que comprende amoníaco en la etapa de desactivación.
- 20 4. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 2 ó 3, caracterizado porque dicha etapa de desactivación se lleva a cabo a una temperatura en el intervalo de 160°C a 180°C y dicha concentración de melamina en la solución de melamina está en el intervalo del 9% al 13% en peso.
5. Procedimiento de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque dicha etapa de recuperación de melamina se lleva a cabo enfriando dicha solución de melamina a 30-60°C, preferentemente 40-50°C, provocando de este modo la separación de cristales de melamina.
- 25 6. Procedimiento de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque dicha etapa de tratamiento comprende las fases de funcionamiento de calentar dicho licor madre de melamina de cristalización hasta una temperatura en el intervalo de 150°C a 190°C y mantener el licor madre calentado a esa temperatura durante un tiempo de 1 a 4 horas.
- 30 7. Procedimiento de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque dicha solución acuosa que contiene amoníaco comprende al menos una parte de dicho líquido madre tratado obtenido en la etapa de tratamiento y reciclado a la etapa de desactivación.
8. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 7, caracterizado porque comprende además las etapas de:
  - separar una parte de licor madre del licor madre tratado obtenido en dicha etapa de tratamiento,
  - 35 - retirar la amelida de dicha parte separada de licor madre, y
  - devolver dicha parte separada de licor madre sustancialmente privada de amelida a dicho líquido madre tratado.
9. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 8, caracterizado porque dicha parte de licor madre separada del licor madre tratado está comprendida en el intervalo del 5% al 20% de todo el líquido madre tratado.
- 40 10. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 8 ó 9, caracterizado porque dicha etapa de retirar amelida de dicha parte separada de licor madre comprende las fases de funcionamiento de:
  - extraer el amoníaco de dicha parte separada de licor madre, provocando de este modo que la amelida precipite, y
  - separar la amelida sólida por filtración.
- 45 11. Planta no catalítica de alta presión para la producción de melamina de alta pureza que comprende un reactor (2) para la síntesis de melamina, una sección de desactivación (3) para obtener una solución de melamina de un fundido de melamina descargado del reactor (2), una sección de cristalización de melamina (4) y una sección de separación de líquido/sólido (5) para separar cristales de un licor madre de melamina, estando dicho reactor (2) y dichas secciones (3,4,5) en comunicación fluida entre sí, caracterizada porque comprende además:
  - una sección de tratamiento (6) para la conversión de amelina en amelida y melamina,

- medios (16) para alimentar un flujo de licor madre de cristalización de melamina que sale de la sección de separación de líquido/sólido (5) a dicha sección de tratamiento (6),
  - medios (10) para alimentar un flujo de licor madre tratado que sale de dicha sección de tratamiento (6) a dicha sección de desactivación (3),
- 5
- una sección de retirada de amelida (18),
  - medios para alimentar una parte del flujo del licor madre que sale de dicha sección de tratamiento (6) a la sección de retirada de amelida (18), y
  - medios (10, 20) para reciclar el licor madre que sale de la sección de retirada de amelida (18) a dicha sección de desactivación (3).
- 10
12. Planta no catalítica de alta presión de acuerdo con la reivindicación 11, caracterizada porque dicha sección de desactivación (3) comprende un aparato (20,40) para desactivar dicho fundido de melamina que comprende un recipiente (21;41) provisto de al menos una apertura para la entrada de líquido madre de melamina, fundido de melamina y amoníaco gaseoso como flujos separados o flujo mezclado y con al menos una apertura para la salida de dicha solución de melamina, medios para distribuir íntimamente amoníaco en dicha solución de melamina y medios para controlar la temperatura de dicha solución de melamina.
- 15
13. Planta no catalítica de alta presión de acuerdo con la reivindicación 12, caracterizada porque dichos medios para distribuir íntimamente amoníaco en dicha solución de melamina se proporcionan en el interior de dicho recipiente (21) y comprende un agitador (26) que tiene una barra vertical (27) y un rotor (22) en el extremo inferior de la barra (27), y porque dichos medios para controlar la temperatura de dicha solución de melamina se proporcionan en el interior de dicho recipiente (21) y comprende serpentinas de transferencia de calor (24) cruzadas internamente por un fluido intercambiador de calor.
- 20
14. Planta no catalítica de alta presión de acuerdo con la reivindicación 10, caracterizada porque dicha sección de tratamiento (6) comprende un aparato (60,70) para tratar dicho licor madre de cristalización de melamina que comprende al menos un recipiente (61; 71A, 71B) provisto de una apertura para la entrada de líquido madre de cristalización de melamina y una apertura para la salida del líquido madre tratado, medios (66,67) para agitar dicho licor madre de cristalización de melamina y medios (64) para calentar dicho licor madre de cristalización de melamina.
- 25
15. Planta no catalítica de alta presión de acuerdo con la reivindicación 14, caracterizada porque comprende dos recipientes (71A, 71B) ajustados en serie en comunicación fluida entre sí.
- 30

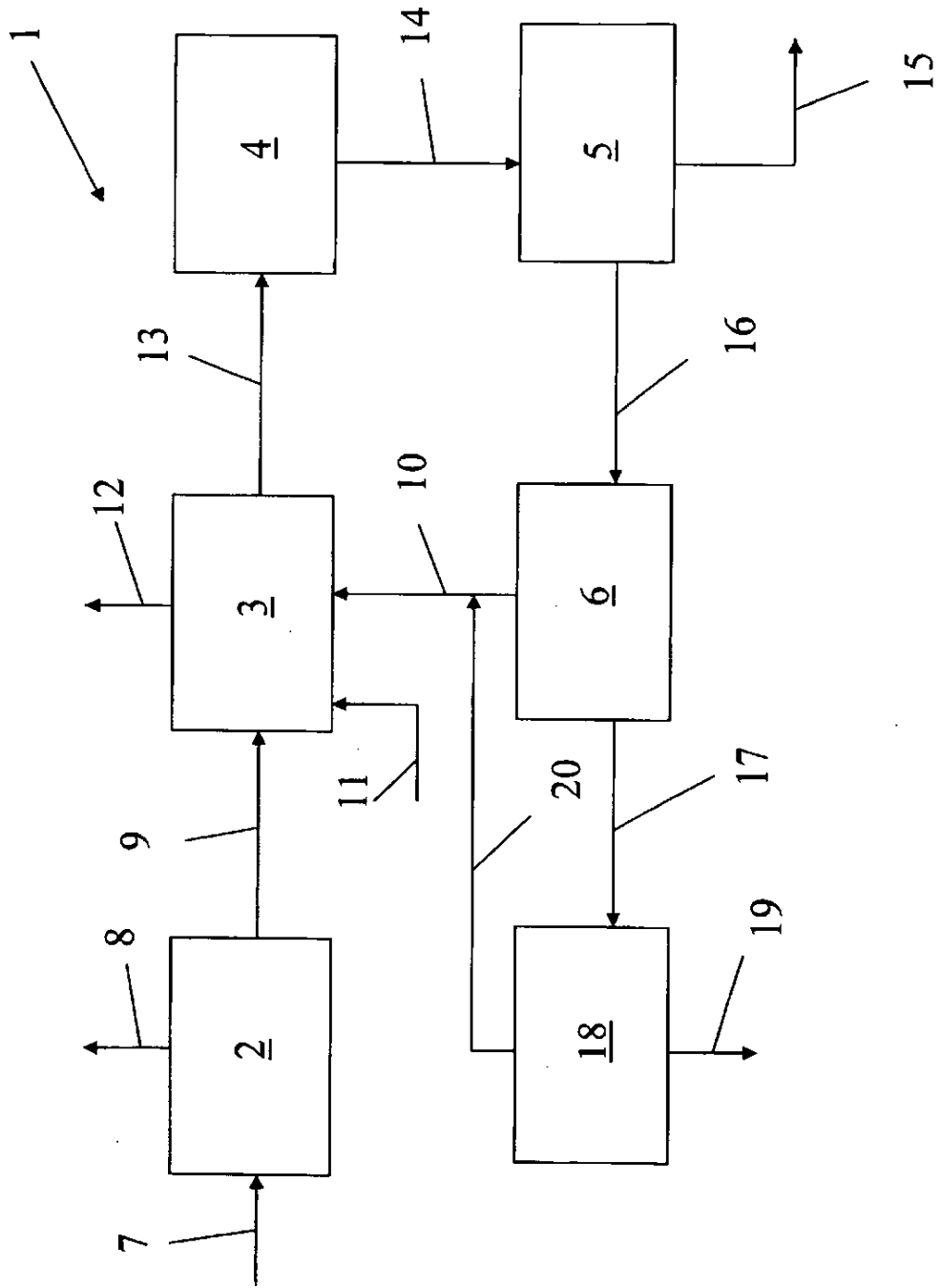
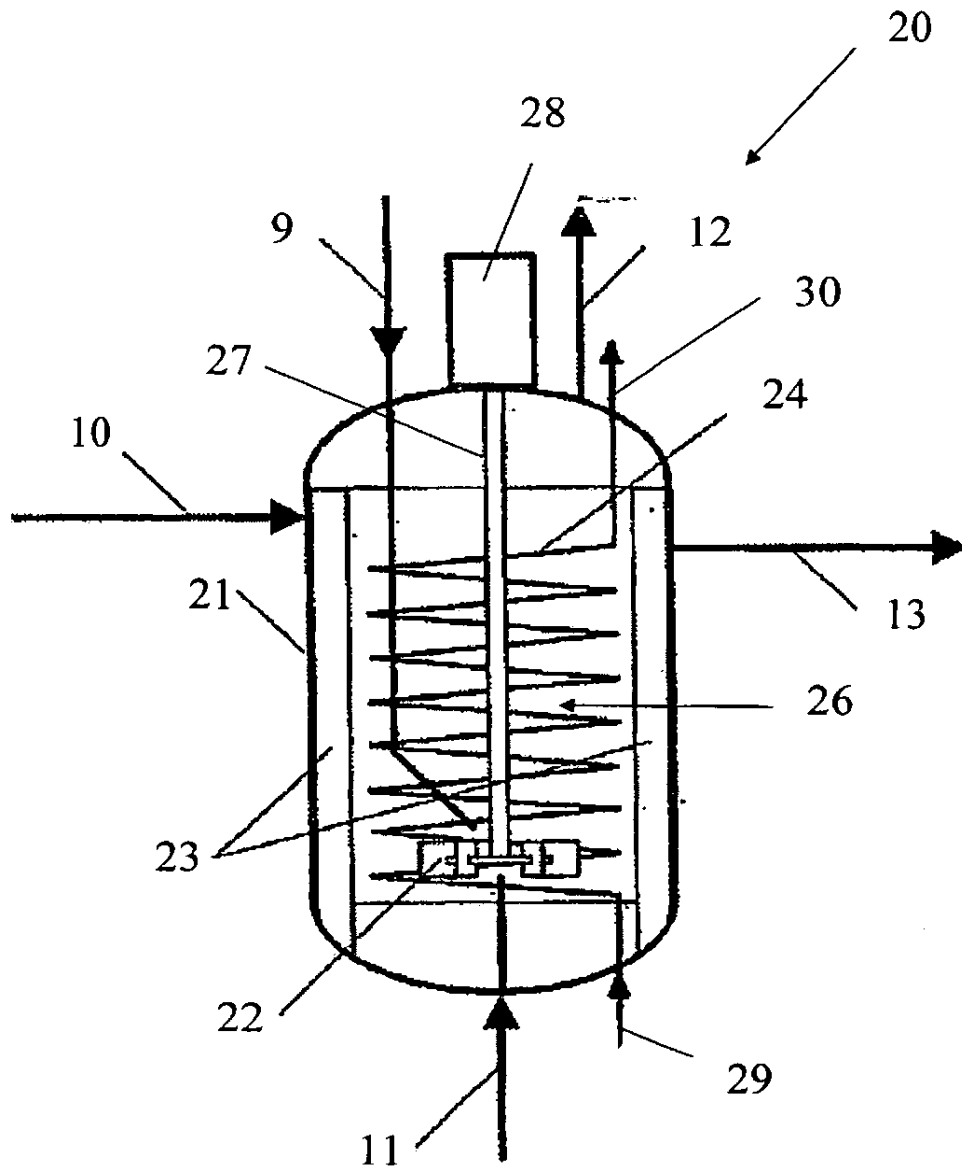
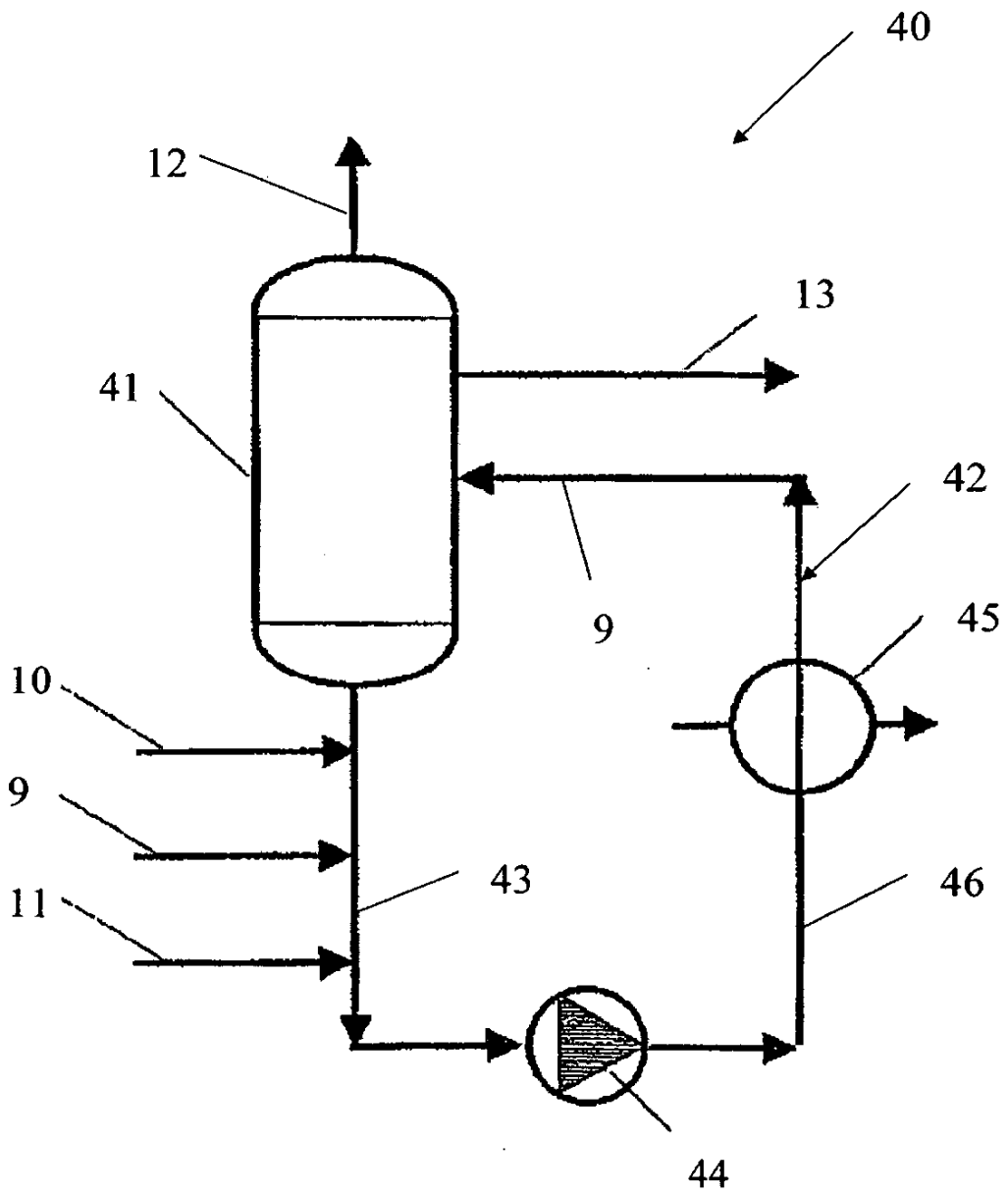


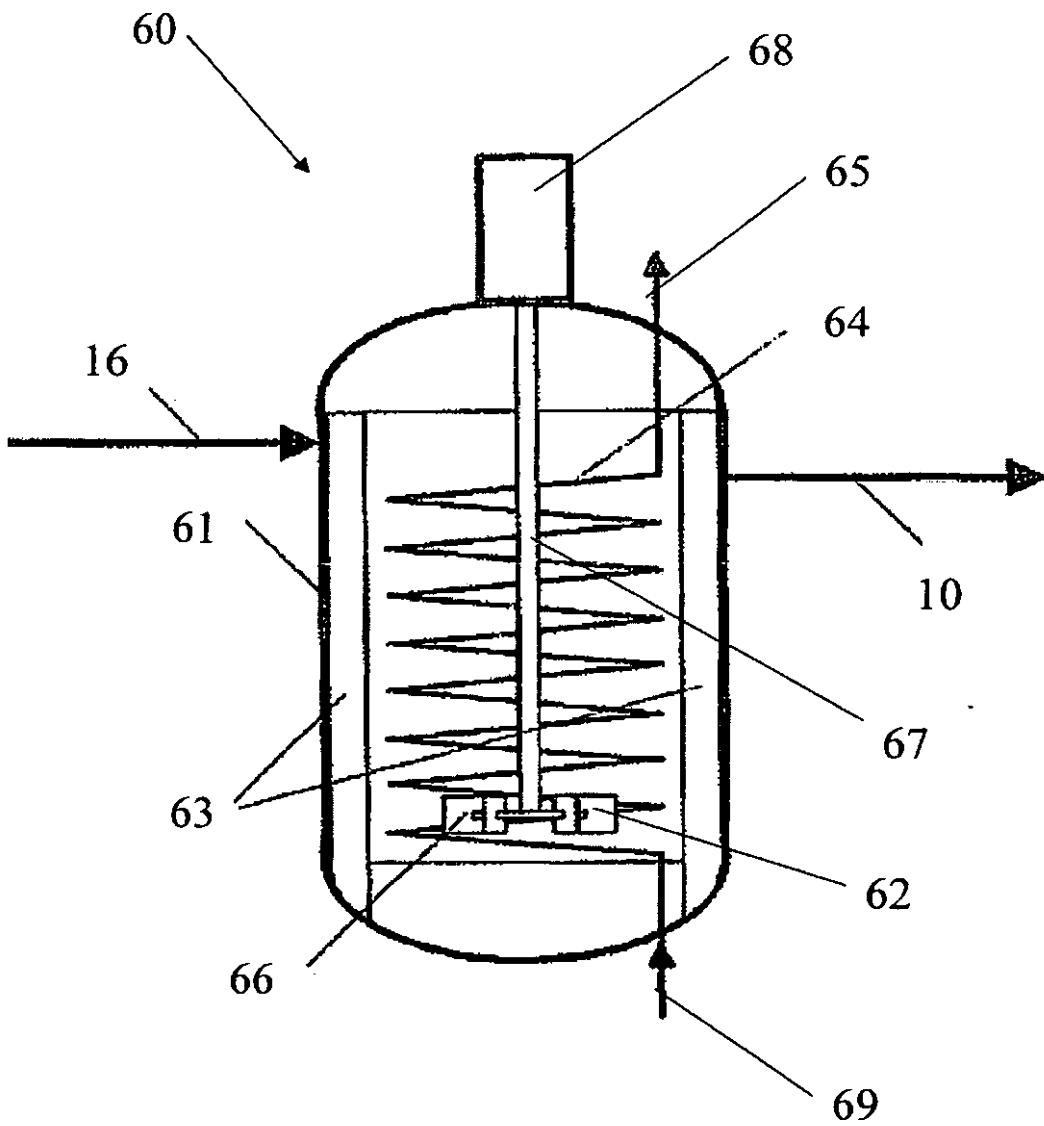
Fig. 1



**Fig. 2**

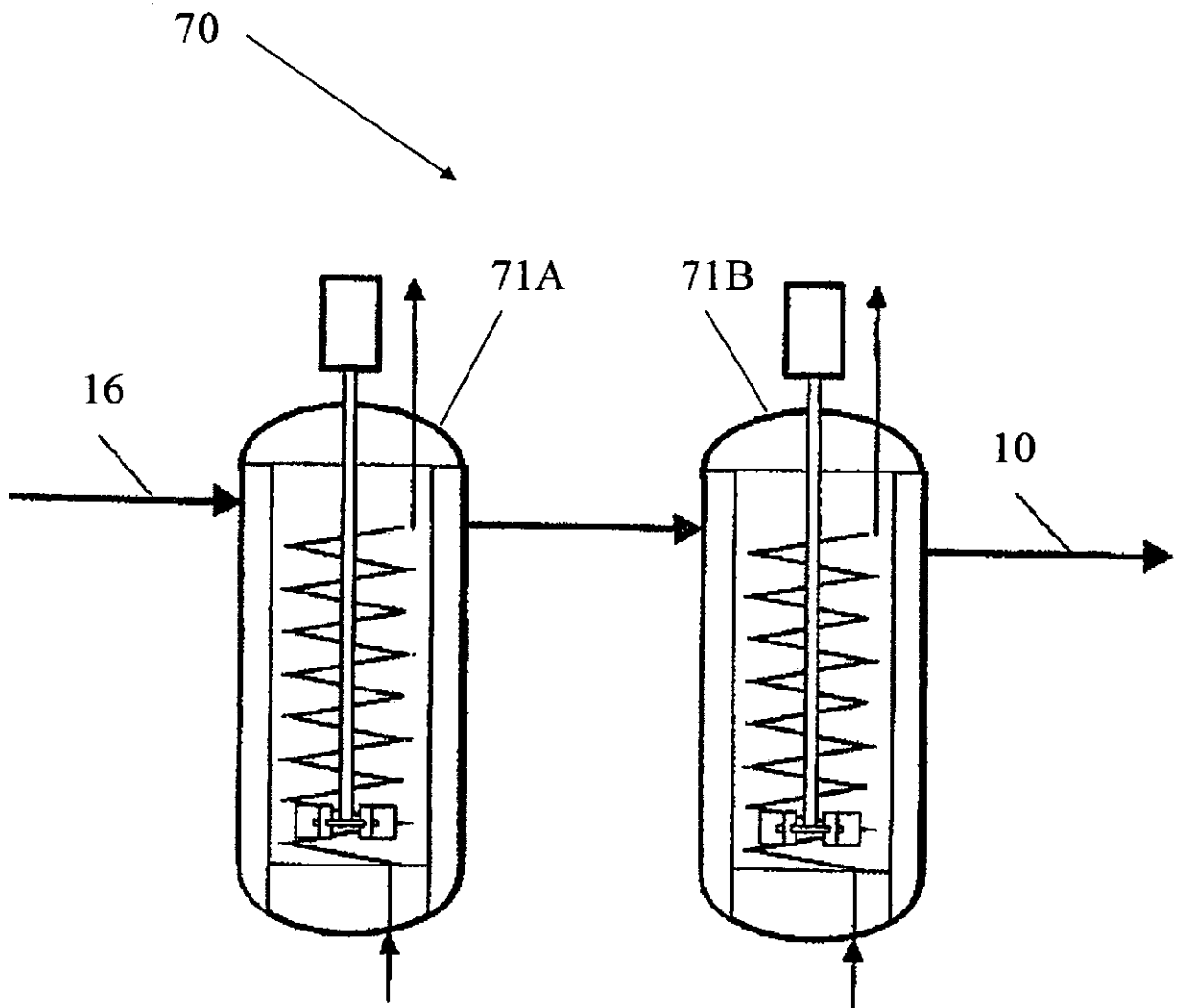


**Fig. 3**



**Fig. 4**





**Fig. 5**