

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 391 134**

51 Int. Cl.:
C07C 209/50 (2006.01)
C07C 211/07 (2006.01)
C07C 211/08 (2006.01)
B01J 25/00 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **08829534 .0**
96 Fecha de presentación: **27.08.2008**
97 Número de publicación de la solicitud: **2197576**
97 Fecha de publicación de la solicitud: **23.06.2010**

54 Título: **Procedimiento de producción de compuestos que contienen nitrógeno**

30 Prioridad:
07.09.2007 JP 2007232478

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:
21.11.2012

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
21.11.2012

73 Titular/es:
KAO CORPORATION (100.0%)
14-10, NIHONBASHI KAYABACHO 1-CHOME
CHUO-KU
TOKYO 103-8210, JP

72 Inventor/es:
TERASAKA, MICHIO y
FUKUSHIMA, TETSUAKI

74 Agente/Representante:
CARPINTERO LÓPEZ, Mario

ES 2 391 134 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 de producción de compuestos que contienen nitrógeno

Campo de la invención

5 La presente invención se refiere a un procedimiento para producir compuestos que contienen nitrógeno, y más particularmente a un procedimiento para producir aminas alifáticas terciarias de alta pureza a partir de amidas de ácido alifáticas.

Antecedentes de la invención

10 Las aminas alifáticas terciarias son importantes productos intermedios en campos de aplicación domésticos e industriales, y se han utilizado en muchas aplicaciones como, por ejemplo, suavizante de telas, agentes antiestáticos, aditivos para gasolina, champús, enjuagues, bactericidas y detergentes.

15 Como el procedimiento para producir aminas alifáticas terciarias, se conoce un procedimiento de reducción de amidas en el que se utiliza una amida obtenida a partir de ácidos grasos regenerados económicos como materia prima. Como el procedimiento de reducción de amidas, se conocen convencionalmente diversos procedimientos que utilizan un catalizador a base de cobalto, un catalizador a base de metal noble, etc. Sin embargo, cualquiera de estos procedimientos convencionales requiere inevitablemente el uso de un disolvente, lo que resulta en problemas como baja productividad.

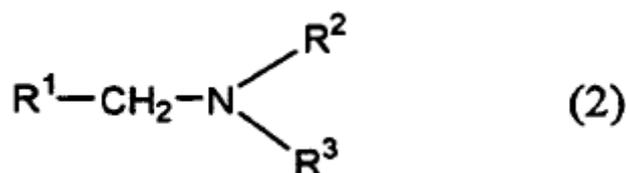
20 También se conoce el procedimiento que utiliza un catalizador a base de cobre/cromo. Por ejemplo, el documento JP 3-500300A desvela un procedimiento para producir aminas terciarias en el que se hace pasar un flujo de hidrógeno y dimetilamina que reaccionan con una amida en bruto bajo una presión de 1 a 10 MPa en un reactor discontinuo cargado con un catalizador de cobre/cromo/manganeso. El documento EE.UU. 2006-287556A desvela un procedimiento para la producción de aminas en el que la reacción se lleva a cabo en presencia de hidrógeno y una fuente de amina opcional a una presión de 0,2 a 5 MPa en un reactor de lecho fijo cargado con un catalizador de hidrogenación como un catalizador de cobre/cromo. Sin embargo, estos catalizadores utilizados en los procedimientos convencionales anteriores deben ser manejados con gran cuidado para garantizar la seguridad, etc., en su eliminación. Por lo tanto, existe una demanda para el desarrollo de catalizadores libres de cromo. Además, en estos procedimientos convencionales en los que los compuestos de amida son reducidos haciendo fluir un gas mixto de hidrógeno y la fuente de amina (dimetilamina) a través de los mismos, hay todavía presentes problemas que mejorar, tales como una baja selectividad para las aminas terciarias deseadas en el procedimiento descrito en el documento JP 3-500300A, y la necesidad de hacer fluir una gran cantidad en exceso de hidrógeno a través de la amida en bruto en el procedimiento descrito en el documento EE.UU. 2006-287556A.

35 Se desvela también un procedimiento para producir aminas terciarias en el que un compuesto de amida se reduce en una atmósfera de hidrógeno utilizando otro catalizador a base de cobre como un catalizador de cobre/zinc, un catalizador de cobre/zinc/rutenio y un catalizador de cobre/níquel/rutenio (consultar el documento JP 2001-302596A). Sin embargo, este procedimiento sigue siendo insatisfactorio debido a la presencia de una gran cantidad de subproductos tales como alcoholes. Además, se desvela un procedimiento para producir aminas terciarias lineales mediante el uso de catalizadores de cobre de Raney granulares o catalizadores de cobalto de Raney granulares (documento JP 62-51646A). Sin embargo, el material de partida utilizado en el procedimiento anterior es un alcohol. Por lo tanto, no se conoce convencionalmente si los catalizadores a base de esponjas de cobre son útiles en técnicas para la producción de aminas terciarias a partir de compuestos amida.

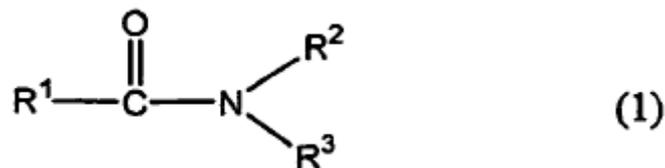
40 El documento GB-A 1 206 981 describe un procedimiento para preparar un catalizador Raney mediante el tratamiento de una aleación de aluminio con un metal activo para la hidrogenación catalítica como níquel, cobalto, hierro o cobre, con una solución acuosa con una cantidad suficientemente grande de un álcali fuerte inorgánico para eluir la totalidad o una parte importante del aluminio de la aleación. Pueden emplearse también aleaciones que contienen un tercer componente como boro, titanio, cromo, manganeso, molibdeno, circonio, plomo, estaño y tungsteno.

Sumario de la invención

45 La presente invención se refiere a un procedimiento para producir una amina terciaria representada por la siguiente fórmula general (2):



en la que R^1 es un grupo hidrocarbonado alifático lineal o ramificado que tiene de 5 a 23 átomos de carbono; y R^2 y R^3 son, respectivamente, un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene de 1 a 6 átomos de carbono y pueden ser iguales o diferentes, dicho procedimiento incluye la etapa (a) de reducir un compuesto de amida representado por la siguiente fórmula general (1):



5

en la que R^1 , R^2 y R^3 son los mismos definidos anteriormente,

en presencia de un catalizador de esponja de cobre obtenido por lixiviación de partículas de aleación que contienen cobre y aluminio y el secado de las partículas de aleación así lixiviadas.

Descripción detallada de la invención

10 La presente invención proporciona un procedimiento para producir aminas alifáticas terciarias de alta pureza que contienen una cantidad menor de subproductos con un alto rendimiento sometiendo amidas de ácido alifáticas a reducción por hidrogenación en presencia de un catalizador a base de cobre libre de cromo bajo condiciones moderadas sin disolventes.

15 El procedimiento para producir una amina terciaria de acuerdo con la presente invención incluye la etapa de (a) reducir un compuesto de amida representado por la fórmula general (1) anterior en presencia de un catalizador de esponja de cobre obtenido por lixiviación de partículas de aleación que contienen cobre y aluminio y a continuación el secado de las partículas de aleación así lixiviadas.

20 En cada una de las fórmulas generales (1) y (2) anteriores, R^1 representa un grupo hidrocarbonado alifático lineal o ramificado que tiene de 5 a 23 átomos de carbono. Mientras que el grupo hidrocarbonado alifático ramificado también incluye un grupo alicíclico. Además, el grupo hidrocarbonado alifático puede ser saturado o insaturado.

25 R^1 es preferentemente un grupo alquilo o un grupo alqueno lineal o ramificado que tiene de 5 a 21 átomos de carbono y más preferentemente 7 a 21 átomos de carbono, desde el punto de vista de la utilidad de la amina terciaria resultante. Los ejemplos específicos del grupo alquilo o alqueno como R^1 incluyen varios grupos heptilo, varios grupos octilo, varios grupos nonilo, varios grupos decilo, varios grupos undecilo, varios grupos dodecilo, varios grupos tridecilo, varios grupos tetradecilo, varios grupos pentadecilo, varios grupos hexadecilo, varios grupos heptadecilo, varios grupos octadecilo, varios grupos nonadecilo, varios grupos eicosanilo, varios grupos heneicosanilo, varios grupos tricosanilo, varios grupos heptenilo, varios grupos octenilo, varios grupos nonenilo, varios grupos decenilo, varios grupos undecenilo, varios grupos dodecenilo, varios grupos tridecenilo, varios grupos tetradecenilo, varios grupos pentadecenilo, varios grupos hexadecenilo, varios grupos heptadecenilo, varios grupos octadecenilo, varios grupos nonadecenilo, varios grupos icosenilo, varios grupos heneicosenilo y varios grupos behenilo. Entre estos grupos, se prefieren varios grupos heptilo, varios grupos nonilo, varios grupos undecilo, varios grupos tridecilo, varios grupos pentadecilo, varios grupos heptadecilo, varios grupos nonadecilo, varios grupos heneicosanilo, varios grupos heptenilo, varios grupos nonenilo, varios grupos undecenilo, varios grupos tridecenilo, varios grupos pentadecenilo, varios grupos heptadecenilo, varios grupos nonadecenilo y varios grupos heneicosenilo. El término "varios" usado en la presente memoria, significa todos aquellos grupos que tienen una cadena lineal o una cadena ramificada.

35 En cada una de las fórmulas generales (1) y (2) anteriores, R^2 y R^3 son cada uno independientemente un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene de 1 a 6 átomos de carbono. Los ejemplos de R^2 y R^3 incluyen, respectivamente, metilo, etilo, n-propilo, isopropilo, n-butilo, isobutilo, sec-butilo, tert-butilo, varios grupos pentilo, y varios grupos hexilo. Entre estos grupos, los preferidos son metilo, etilo y propilo desde el punto de vista de la utilidad de la amina terciaria resultante. R^2 y R^3 pueden ser iguales o diferentes.

45 Los ejemplos del compuesto de amida representado por la fórmula general (1) anterior incluyen N,N-dimetil amidas de ácido alifáticas como N,N-dimetil caprilamida, N,N-dimetil 2-etilhexan amida, N,N-dimetil caprinamida, N, N-dimetil lauroil amida, N,N-dimetil miristoil amida, N,N-dimetil palmitoil amida, N,N-dimetil estearoil amida, N,N-dimetil isoestearoil amida, N,N-dimetil oleil amida y N,N-dimetil behenil amida, y compuestos obtenidos mediante la sustitución del grupo N,N-dimetilo de estas amidas de ácido alifáticas con N,N-dietilo, N,N-dipropilo, N-etil-N-metilo, N-metil-N-propilo o N-etil-N-propilo.

50 Por otro lado, los ejemplos de la amina terciaria representada por la fórmula general (2) anterior incluyen compuestos de amina correspondientes a los compuestos de amida ejemplificados anteriormente de la fórmula general (1). Los ejemplos específicos de la amina terciaria incluyen N,N-dimetil-aminas alifáticas como N,N-dimetil

octil amina, N,N-dimetil-2-etilhexil-amina, N,N-dimetil decil amina, N,N-dimetil lauril amina, N,N-dimetil miristil amina, N,N-dimetil hexadecil amina, N,N-dimetil estearil amina, N,N-dimetil isoestearil amina, N,N-dimetil oleil amina y N,N-dimetil behenil amina; y compuestos obtenidos mediante la sustitución del grupo N,N-dimetilo de estas aminas alifáticas con N,N-dietilo, N,N-dipropilo, N-metil-N-propilo, N-etil-N-metilo, N-metil-N-propilo o N-etil-N-propilo.

- 5 El catalizador utilizado en el procedimiento para producir la amina terciaria de acuerdo con la presente invención contiene un catalizador de esponja de cobre obtenido por lixiviación de partículas de aleación que contienen cobre y aluminio y a continuación el secado de las partículas de aleación así lixiviadas. Una parte del aluminio en el catalizador de esponja de cobre puede ser sustituido con silicio. Además, el catalizador contiene preferentemente, además de cobre y aluminio, por lo menos un elemento seleccionado del grupo que consiste de cinc, molibdeno, manganeso, magnesio, hierro, rutenio y vanadio desde los puntos de vista de una buena actividad y una buena selectividad del catalizador resultante. El catalizador de esponja de cobre se obtiene más preferentemente por lixiviación de las partículas de aleación y a continuación el secado de las partículas de aleación así lixiviadas en una atmósfera de oxígeno o aire desde los puntos de vista de una buena actividad y una buena selectividad del catalizador resultante.
- 10
- 15 En general, el "catalizador de esponja" es el llamado antiguamente "catalizador de Raney", y la definición y los procedimientos generales de producción del mismo se describen en "15107 Chemical Products, publicado por The Chemical Daily Co., Ltd. El "catalizador de esponja" utilizado en la presente invención incluye aquellos catalizadores obtenidos por lixiviación de las partículas de aleación anteriores y a continuación el secado de las partículas de aleación así lixiviadas. La "lixiviación" usada en la presente memoria significa un procedimiento en el que porciones catalíticamente inactivas (aluminio o silicio contenidos en la aleación) se separan por elución con un álcali de las partículas de aleación anteriores para permitir que las partículas de aleación exhiban una buena actividad catalítica. Con el procedimiento de lixiviación, es posible obtener un catalizador que tiene una gran área específica.
- 20

25 Las partículas de aleación contienen al menos cobre y aluminio. La relación de masas de aluminio a cobre (aluminio/cobre) en las partículas de aleación es preferentemente de 0,2 a 6,0, más preferentemente de 0,3 a 2,5 y aún más preferentemente de 0,4 a 1,5 desde los puntos de vista de buena actividad, selectividad y durabilidad del catalizador resultante.

30 En la presente invención, el catalizador de esponja de cobre contiene preferentemente, además de cobre y aluminio, otros elementos como un co-catalizador desde los puntos de vista de una buena actividad y una buena selectividad del catalizador resultante. Como el co-catalizador, se prefiere por lo menos un elemento seleccionado del grupo que consiste de cinc, molibdeno, manganeso, magnesio, hierro, rutenio y vanadio, y más preferido es al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste de zinc, magnesio, hierro y vanadio. El catalizador de esponja de cobre contiene más preferentemente cobre, aluminio y zinc, y aún más preferentemente contiene cobre, aluminio, zinc y magnesio. De este modo, las partículas de aleación utilizadas en la presente invención contienen además preferentemente el componente de metal que actúa como un co-catalizador y más preferentemente al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste de zinc, magnesio, hierro y vanadio. Específicamente, las partículas de aleación están compuestas aún más preferentemente de cobre, aluminio y zinc, y además aún más preferentemente compuestas de cobre, aluminio, zinc y magnesio.

35

40 De este modo, el catalizador de esponja de cobre se obtiene por lixiviación y a continuación el secado de las partículas de aleación anteriores. El tratamiento de lixiviación puede ser llevado a cabo específicamente mediante la suspensión de las partículas de aleación en agua y la disolución de las partículas de aleación en la misma con un álcali, etc., para separar por elución porciones catalíticamente inactivas de las mismas.

45 Los ejemplos del álcali utilizado en el tratamiento de lixiviación incluyen hidróxido de sodio, hidróxido de litio, hidróxido de potasio, hidróxido de rubidio e hidróxido de cesio. Entre estos álcalis, desde el punto de vista de los costes de producción bajos, los preferidos son hidróxido de sodio e hidróxido de potasio. Estos álcalis pueden ser utilizados en forma de una solución acuosa. La cantidad del álcali utilizado en el tratamiento de lixiviación es preferentemente de 0,1 a 4 moles y más preferentemente de 0,5 a 3 moles por 1 mol de los metales a ser separados por elución con el álcali tales como aluminio y silicio. La proporción de los metales como aluminio, que son separados por elución y disolución con el álcali de las partículas de aleación es preferentemente de 40 a 99,9% en masa y más preferentemente de 50 a 99,5% en masa sobre la base de los metales tales como aluminio que están contenidos en la aleación.

50

La temperatura utilizada en el tratamiento de lixiviación no está particularmente limitada siempre y cuando los metales como el aluminio se disuelvan en el álcali. Desde el punto de vista de una buena disolubilidad de los metales como aluminio, la temperatura de lixiviación es preferentemente desde la temperatura ambiente hasta 100 °C y más preferentemente de 40 a 95 °C.

55 En la presente invención, después de la lixiviación, pero antes del secado, las partículas de aleación así lixiviadas pueden ser envejecidas opcionalmente bajo condiciones dadas para el propósito de controlar la cantidad de porciones residuales catalíticamente inactivas como aluminio en las mismas. Además, las partículas de aleación lixiviadas también pueden ser opcionalmente sometidas a lavado con agua y/o filtración para eliminar el álcali sin reaccionar o los productos de reacción del álcali con aluminio, etc., de las mismas.

5 El catalizador de esponja de cobre utilizado en la presente invención se obtiene por secado de las partículas de aleación lixiviadas. El secado de las partículas lixiviadas se lleva a cabo preferentemente en una atmósfera de oxígeno o aire con el fin de oxidar una superficie de los metales respectivos contenidos en las mismas desde los puntos de vista de una buena actividad, selectividad y durabilidad del catalizador resultante. La temperatura de secado es preferentemente de 60 a 500 °C y más preferentemente de 100 a 400 °C desde los puntos de vista de una buena actividad, selectividad y durabilidad del catalizador resultante.

10 El catalizador de esponja de cobre utilizado en la presente invención puede obtenerse, por ejemplo, mediante la suspensión de las partículas de aleación anteriores en agua de intercambio iónico, la adición de la solución acuosa de álcali anterior a la suspensión resultante para lixiviar las partículas de aleación bajo condiciones dadas y después, opcionalmente, someter las partículas lixiviadas a envejecimiento, lavado con agua y/o filtración, secando las partículas resultantes a una temperatura deseada bajo un flujo de aire.

15 El catalizador de esponja de cobre utilizado en la presente invención contiene preferentemente cobre en una cantidad de desde 20 a 90% en masa, más preferentemente de 30 a 85% en masa y aún más preferentemente de 35 a 85% en masa en términos de cobre metálico desde los puntos de vista de buena actividad, selectividad y durabilidad del catalizador resultante. Además, la relación de masas de aluminio a cobre (aluminio/cobre) en el catalizador de esponja de cobre es preferentemente de 0,003 a 0,8, más preferentemente de 0,005 a 0,7 y aún más preferentemente de 0,007 a 0,7 desde los puntos de vista de buena actividad, selectividad y durabilidad del catalizador resultante. Además, el catalizador de esponja de cobre utilizado en la presente invención es preferentemente capaz de satisfacer los intervalos de contenido de cobre y la relación de masas de aluminio/cobre.

20 El catalizador de esponja de cobre así obtenido utilizado en la presente invención puede contener también elementos distintos del cobre como un co-catalizador como el descrito anteriormente.

25 En la presente invención, como se ha descrito anteriormente, en la producción del catalizador, el co-catalizador puede ser incluido previamente en las partículas de aleación que contienen cobre y aluminio. Alternativamente, el co-catalizador puede ser añadido separadamente de las partículas de aleación que contienen cobre y aluminio. En la presente invención, desde los mismos puntos de vista descritos anteriormente, se utiliza preferentemente tal catalizador de esponja de cobre obtenido por lixiviación de partículas de aleación que contienen cobre, aluminio y zinc y posteriormente calcinación de las partículas de aleación así lixiviadas.

30 El contenido del co-catalizador en el catalizador de esponja de cobre es controlado desde los puntos de vista de una buena actividad y una buena selectividad del catalizador resultante tal que la relación de masas del co-catalizador a cobre (co-catalizador/cobre) es preferentemente de 0,002 a 0,8, más preferentemente de 0,003 a 0,6 y aún más preferentemente de 0,003 a 0,5.

35 El contenido de los elementos metálicos respectivos en el catalizador de esponja de cobre puede determinarse cuantitativamente utilizando un analizador de fluorescencia de rayos X por longitud de onda dispersiva. Más específicamente, 5 g de tetraborato de litio y un agente de extracción ($\text{LiCO}_3\text{:LiBr:LiNO}_3 = 5\text{:}1\text{:}5$) se añaden a 0,1 g de una muestra que contiene los elementos metálicos respectivos, y la mezcla resultante se funde con un álcali a 1050 °C para preparar perlas de vidrio de la misma. Las perlas de vidrio así preparadas se evalúan utilizando un analizador de fluorescencia de rayos X por longitud de onda dispersiva "ZSX100e" disponible de Rigaku Corporation. Los valores de intensidad de rayos X medidos de los elementos metálicos respectivos en la muestra se comparan con los de una curva de calibración de una muestra de control preparada mediante la mezcla de muestras de alta pureza de los elementos metálicos respectivos en concentraciones previstas, determinando así el contenido del elemento metálico respectivo en la muestra.

40 También, el contenido de los elementos del grupo del platino en el catalizador se determina de la manera siguiente. Esto es, 0,5 g de una muestra se cargan junto con hidrogenosulfato de amonio en una cantidad de varios múltiplos de diez de la cantidad de la muestra, en un tubo de ensayo fabricado de vidrio duro, y se descompone bajo calentamiento. A continuación, el producto resultante descompuesto se disuelve en agua con calentamiento, y la solución obtenida se somete a espectrometría de emisión ICP para medir el contenido de los elementos del grupo del platino en la solución.

45 El procedimiento para producir la amina terciaria de acuerdo con la presente invención incluye la etapa de (a) reducir el compuesto de amida representado por la fórmula general (1) en una atmósfera de hidrógeno en presencia del catalizador así producido (etapa (a)). A continuación, se explica en detalle el procedimiento para producir la amina terciaria de acuerdo con la presente invención.

50 En la presente invención, la amida representada por la fórmula general (1) se somete a reducción por hidrogenación en presencia del catalizador preparado anteriormente.

55 La reducción por hidrogenación de la amida se lleva a cabo normalmente bajo condición libre de disolventes desde los puntos de vista de mejorar la productividad y reducir la carga de las instalaciones de producción, y puede ser llevada a cabo en una atmósfera de hidrógeno a presiones normales o bajo una presión de hidrógeno aplicada, o en un flujo de hidrógeno bajo presiones normales o bajo presión aplicada. La reacción puede llevarse a cabo mediante un procedimiento continuo o un procedimiento de lotes. En el procedimiento de lotes, la cantidad de catalizador

utilizada es preferentemente de 0,1 a 20% en masa, más preferentemente de 0,5 a 15% en masa y aún más preferentemente de 1 a 10% en masa en términos del catalizador de esponja de cobre sobre la base del compuesto de amida representado por la fórmula general (1) desde los puntos de vista de una buena reactividad, una buena selectividad y bajos costes de producción. El catalizador utilizado en la presente invención puede ser recuperado después de completarse la reacción y posteriormente vuelto a utilizar desde el punto de vista de reducir los costes de producción.

La temperatura de reacción es usualmente de 140 a 300 °C, preferentemente de 160 a 280 °C y aún más preferentemente de 180 a 270 °C desde los puntos de vista de mejorar la velocidad de reacción y suprimir la producción de subproductos. La cantidad de hidrógeno que fluye a través del sistema de reacción es preferentemente de 0,1 a 15 moles/h, más preferentemente de 0,3 a 10 mol/h, y aún más preferentemente de 0,5 a 5 moles/h por 1 mol del compuesto de amida representado por la general fórmula (1) desde los puntos de vista de obtener una buena reactividad, suprimir la producción de subproductos y facilitar la eliminación del agua producida. La presión de reacción es normalmente desde presiones normales hasta aproximadamente 25 MPaG (G: presión manométrica), preferentemente 0,1 a 10 MPaG y más preferentemente de 0,1 a 5 MPaG desde los puntos de vista de mejorar la velocidad de reacción y suprimir el aumento de la carga de las instalaciones.

La reducción por hidrogenación de la amida se lleva a cabo preferentemente mientras se elimina el agua producida por la reacción desde el punto de vista de promover la reacción. Como el procedimiento de eliminar el agua producida por la reacción, puede utilizarse cualquiera de un procedimiento de purgar el agua fuera del sistema de reacción haciendo fluir hidrógeno o un gas mixto compuesto de hidrógeno y un gas inerte a través del mismo como se ha descrito anteriormente, un procedimiento azeotrópico, un procedimiento de deshidratación ordinario, etc. Por lo tanto, al someter a la amida representada por la fórmula general (1) a reducción por hidrogenación en condiciones moderadas libres de disolventes, puede producirse la amina terciaria de alta pureza representada por la fórmula general (2) que contiene una cantidad menor de subproductos con un rendimiento elevado.

En la presente invención, desde el punto de vista de mejorar la pureza de la amina terciaria obtenida en la etapa (a) con una selectividad todavía más elevada, se prefiere que una dialquil amina que contiene un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene 1 a 6 átomos de carbono e hidrógeno sean además introducidos en el sistema de reacción en presencia de un catalizador (en lo sucesivo denominada en ocasiones "etapa (b)"). En la presente invención, como el catalizador presente en la etapa (b), se utiliza preferentemente el catalizador de esponja de cobre utilizado en la etapa (a) desde los puntos de vista de una buena productividad y bajos costes de producción.

En la etapa (b), la dialquil amina que contiene un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene de 1 a 6 átomos de carbono es introducida además en el sistema de reacción para tratar el producto de reacción obtenido anteriormente en el mismo. Incidentalmente, en la etapa (a), se produce secundariamente un alcohol junto con la amina terciaria como el producto previsto. El alcohol tiene un punto de ebullición cercano al de la amina terciaria prevista, y por lo tanto se separa difícilmente de la amina terciaria por destilación, etc. Por esta razón, en la etapa (b), con el fin de aumentar aún más la pureza de la amina terciaria, una dialquil amina que contiene un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene de 1 a 6 átomos de carbono se introduce en el sistema de reacción para convertir de ese modo el alcohol en una dialquil amina terciaria. La transferencia de la etapa (a) a la etapa (b) se lleva a cabo preferentemente cuando la cantidad del compuesto de amida en bruto utilizado en la etapa (a) se reduce a 5% en masa o menos y más preferentemente cuando se reduce a 1% en masa o menos medido por cromatografía de gases, desde los puntos de vista de una buena productividad y una menor producción de los subproductos.

Los ejemplos del grupo alquilo lineal o ramificado que tiene de 1 a 6 átomos de carbono que está contenido en la dialquil amina utilizada en la etapa (b) incluyen aquellos grupos alquilo ejemplificados respectivamente como cada uno de R² y R³ en la fórmula general (1) o (2). Entre estos grupos alquilo, desde el punto de vista de la utilidad de la amina terciaria resultante, se prefieren metilo, etilo y propilo.

La etapa (b) puede llevarse a cabo en una atmósfera de hidrógeno a presiones normales o bajo presión de hidrógeno aplicada, o en un flujo de hidrógeno bajo presiones normales o bajo presión aplicada. La cantidad de la dialquil amina que fluye es preferentemente de 0,001 a 1 mol/h, más preferentemente de 0,005 a 0,5 mol/h, y aún más preferentemente de 0,01 a 0,3 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto desde los puntos de vista de una buena reactividad y una menor producción de los subproductos.

La temperatura de tratamiento de la etapa (b) es preferentemente de 140 a 270 °C, más preferentemente de 160 a 260 °C y aún más preferentemente de 180 a 250 °C desde los puntos de vista de una buena reactividad y una menor producción de los subproductos. Además, la cantidad de hidrógeno que fluye en la etapa (b) es preferentemente de 0,1 a 15 moles/h, más preferentemente de 0,3 a 10 mol/h, y aún más preferentemente de 0,5 a 5 moles/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto desde los puntos de vista de una buena reactividad, una menor producción de los subproductos y una eliminación facilitada de agua producida por la reacción. La presión de tratamiento de la etapa (b) es preferentemente desde presiones normales a 15 MPaG, más preferentemente desde presiones normales a 5 MPaG y aún más preferentemente desde presiones normales a 3 MPaG desde los puntos de vista de mejorar la velocidad de reacción y suprimir el aumento de la carga de las instalaciones.

Con la provisión de la etapa (b) anterior, dado que pueden seleccionarse las condiciones de reacción adecuadas que son diferentes de las de la etapa (a), puede incrementarse aún más la pureza de la amina terciaria obtenida en la etapa (a) por reducción por hidrogenación de la amida de ácido alifática bajo condiciones moderadas. Como resultado, la amina alifática terciaria que contiene una cantidad menor de los subproductos y que tiene una pureza superior puede ser producida con un rendimiento elevado.

De acuerdo con el procedimiento de la presente invención en el que la amida de ácido alifática se somete a reducción por hidrogenación bajo las condiciones moderadas libres de disolventes, es posible producir la amina alifática terciaria de alta pureza que contiene una cantidad menor de subproductos con un rendimiento elevado. Además, como el catalizador utilizado en el procedimiento es un catalizador libre de cromo, el tratamiento de eliminación del catalizador utilizado puede llevarse a cabo con una alta seguridad.

En el procedimiento para producir la amina terciaria de acuerdo con la presente invención, puede producirse la amina alifática terciaria de alta pureza que contiene una menor cantidad de subproductos. La amina alifática terciaria producida de acuerdo con el procedimiento de la presente invención es un producto intermedio importante en campos de aplicación domésticos e industriales, y puede ser utilizada convenientemente en muchas amplias como, por ejemplo, suavizante de telas, agentes antiestáticos, aditivos para gasolina, champús, enjuagues, bactericidas y detergentes.

La presente invención se describe con más detalle haciendo referencia a los siguientes ejemplos.

Mientras tanto, en los siguientes Ejemplos de Producción, el contenido de los metales respectivos, excepto para Ru en el catalizador se midió utilizando un analizador de fluorescencia de rayos X por longitud de onda dispersiva "ZSX100e" disponible de Rigaku Corporation, y el contenido de Ru en el catalizador se midió usando un analizador espectrométrico de emisión ICP "JY238" disponible de Jobin Yvon Corp., de acuerdo con los procedimientos mencionados anteriormente. Además, el análisis de la composición de los productos de reacción respectivos por cromatografía de gases se llevó a cabo utilizando el siguiente aparato.

Cromatógrafo de gases: "HEWLETT PACKARD Serie 6890"

Columna: "DB-17" disponible de J & W Corp. (diámetro interno x longitud x espesor de la película: 15 m x 0,25 m x 0,5 μm)

Ejemplo 1 de producción del catalizador

Treinta gramos de partículas de aleación de Cu/Al [Al/Cu (relación de masas): 1,0; tamaño de partícula: 150 μm o menos (se utilizaron partículas pasadas a través de un tamiz para polvo de malla 100; esto se aplica en forma similar a las descripciones siguientes)] se suspendieron en 300 ml de agua de intercambio iónico, y la suspensión resultante se calentó a 80 °C con agitación. Después de alcanzar la temperatura dada, se añadió gota a gota solución acuosa de NaOH 25% a la suspensión en una cantidad tal que la cantidad de NaOH añadida fue de 2 moles por 1 mol de Al contenido en las partículas de aleación. Después de completar la adición gota a gota, la mezcla resultante se envejeció a la misma temperatura durante 2 h para lixiviar las partículas de aleación. A continuación, la mezcla de reacción se sometió a un lavado con agua (decantación) y filtración, y las partículas lixiviadas obtenidas se secaron a 300 °C en aire, obteniéndose así un catalizador de esponja de cobre A. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre A obtenido de esta manera tenía un contenido de Cu de 79,5% en masa y un contenido de Al de 0,8% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,01) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 2 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en Ejemplo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Zn/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,1; Zn/Cu (relación de masas): 0,1; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre B. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre B así obtenido tenía un contenido de Cu de 74,0% en masa, un contenido de Zn de 7,1% en masa y un contenido de Al de 0,6% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,008; Zn/Cu (relación de masas): 0,1) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 3 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en Ejemplo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Zn/Mg/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,18; Zn/Cu (relación de masas): 0,04; Mg/Cu (relación de masas): 0,007; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre C. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre C así obtenido tenía un contenido de Cu de 73,4% en masa, un contenido de Zn de 3,2% en masa, un contenido de Mg de 0,5% en masa y un contenido de Al de 0,9% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,01; Zn/Cu (relación de masas): 0,04; Mg/Cu (relación de masas): 0,007) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 4 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en Ejemplo 3 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Zn/Mg/Al que tienen una composición diferente de la del Ejemplo 3 de Producción del Catalizador (Al/Cu (relación de masas): 1,24; Zn/Cu (relación de masas): 0,23; Mg/Cu (relación de masas): 0,006; tamaño de partícula: 150 μm o menos), se añadió solución acuosa de NaOH 25% en masa en una cantidad tal que la cantidad de NaOH añadida fue de 1,5 moles por 1 mol de Al contenido en las partículas de aleación, y el tratamiento de lixiviación se llevó a cabo a 70 °C, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre D. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre D así obtenido tenía un contenido de Cu de 51,9% en masa, un contenido de Zn de 11,9% en masa, un contenido de Mg de 0,3% en masa y un contenido de Al de 10,8% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,21; Zn/Cu (relación de masas): 0,23; Mg/Cu (relación de masas): 0,006) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 5 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 4 de Producción del Catalizador excepto que el tratamiento de lixiviación se llevó a cabo a 80 °C, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre E. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre E así obtenido tenía un contenido de Cu de 56,6% en masa, un contenido de Zn de 13,8% en masa, un contenido de Mg de 0,3% en masa y un contenido de Al de 4,4% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,08; Zn/Cu (relación de masas): 0,23; Mg/Cu (relación de masas): 0,005) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 6 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 3 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Zn/Mg/Al que tienen una composición diferente de la del Ejemplo 3 de Producción del Catalizador (Al/Cu (relación de masas): 1,33; Zn/Cu (relación de masas): 0,3; Mg/Cu (relación de masas): 0,03; tamaño de partícula: 150 μm o menos), y se añadió solución acuosa de NaOH 25% en masa en una cantidad tal que la cantidad de NaOH añadida fue 1,3 moles por 1 mol de Al contenido en las partículas de aleación, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre F. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre F así obtenido tenía un contenido de Cu de 43,3% por masa, un contenido de Zn de 13,1% en masa, un contenido de Mg de 1,3% en masa y un contenido de Al de 16,7% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,39; Zn/Cu (relación de masas): 0,3; Mg/Cu (relación de masas): 0,03) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 7 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Zn/Ru/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,02; Zn/Cu (relación de masas): 0,02 ; Ru/Cu (relación de masas): 0,004; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, y se utilizó una solución acuosa de NaOH 15% en masa en lugar de la solución acuosa de NaOH 25% en masa, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre G. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre G así obtenido tenía un contenido de Cu de 79,0% en masa, un contenido de Zn de 1,4% en masa, un contenido de Ru de 0,3% en masa y un contenido de Al de 1,2% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,02; Zn/Cu (relación de masas): 0,02; Ru/Cu (relación de masas): 0,004) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 8 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Zn/Mo/Mn/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,19; Zn/Cu (relación de masas): 0,03; Mo/Cu (relación de masas): 0,01; Mn/Cu (relación de masas): 0,01; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre H. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre H así obtenido tenía un contenido de Cu de 74,6% en masa, un contenido de Zn de 2,6% en masa, un contenido de Mo de 0,9% en masa, un contenido de Mn de 0,9% en masa y un contenido de Al de 0,7% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,009; Zn/Cu (relación de masas): 0,04; Mo/Cu (relación de masas): 0,01; Mn/Cu (relación de masas): 0,01) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 9 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Zn/V/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,19; Zn/Cu (relación de masas): 0,04; V/Cu (relación de masas): 0,01; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre I. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre I obtenido de esta manera tenía un contenido de Cu de 71,3% en masa, un contenido de Zn de 2,9% en masa, un contenido de V de 1,0% en masa y un contenido de Al de 1,1% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,02; Zn/Cu (relación de masas): 0,04; V/Cu (relación de masas): 0,01) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 10 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Fe/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,12; Fe/Cu (relación de masas): 0,13; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, y las partículas lixiviadas obtenidas se secaron a 400 °C en aire, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre J. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre J así obtenido tenía un contenido de Cu de 56,6% en masa, un contenido de Fe de 7,1% en masa y un contenido de Al de 1,0% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,02; Fe/Cu (relación de masas): 0,13) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo 11 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron 30 g de partículas de aleación de Cu/Mg/Fe/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,09; Mg/Cu (relación de masas): 0,007; Fe/Cu (relación de masas): 0,08; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, obteniéndose de este modo un catalizador de esponja de cobre K. Como resultado, se confirmó que el catalizador de esponja de cobre K así obtenido tenía un contenido de Cu de 73,4% en masa, un contenido de Mg de 0,5% en masa, un contenido de Fe de 5,7% en masa y un contenido de Al de 0,9% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,01; Mg/Cu (relación de masas): 0,007; Fe/Cu (relación de masas): 0,08) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Mientras tanto, en la composición de metal de cualquiera de los catalizadores producidos en los Ejemplos 1 a 11 de Producción del Catalizador anteriores, el valor obtenido restando una suma de los porcentajes en masa de los elementos metálicos respectivos de 100 corresponde al % en masa de oxígeno contenidos en los mismos.

Ejemplo comparativo 1 de producción del catalizador

Se suspendieron treinta gramos de partículas de aleación de Cu/Al (Al/Cu (relación de masas): 1,0; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en 300 ml de agua de intercambio iónico, y la suspensión resultante se calentó a 80 °C con agitación. Después de alcanzar la temperatura dada, se añadió gota a gota una solución acuosa de NaOH 25% en masa a la suspensión en una cantidad tal que la cantidad de NaOH añadida fue de 1,8 moles por 1 mol de Al contenido en las partículas de aleación. Después de completar la adición gota a gota, la mezcla resultante se envejeció a la misma temperatura durante 2 h para lixiviar las partículas de aleación. A continuación, la mezcla de reacción se lavó con agua (decantación), obteniéndose de este modo un catalizador L en la forma de una suspensión en agua. Como resultado, se confirmó que el catalizador L así obtenido tenía un contenido de Cu de 93,0% en masa y un contenido de Al de 3,0% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,03) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplo comparativo 2 de producción del catalizador

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo Comparativo 1 de Producción del Catalizador excepto que se utilizaron partículas de aleación de Cu/Mo/Al (Al/Cu (relación de masas): 0,82; Mo/Cu (relación de masas): 0,001; tamaño de partícula: 150 μm o menos) en lugar de las partículas de aleación de Cu/Al, y el tratamiento de lixiviación se llevó a cabo a 70 °C, obteniéndose de este modo un catalizador M en forma de una suspensión en agua. Como resultado, se confirmó que el catalizador M así obtenido tenía un contenido de Cu de 92,0% en masa, un contenido de Mo de 0,1% en masa y un contenido de Al de 2,0% en masa (Al/Cu (relación de masas): 0,02; Mo/Cu (relación de masas): 0,001) en términos de los elementos metálicos respectivos.

Ejemplos 1 a 10 y ejemplos comparativos 1 y 2

Se cargó un autoclave rotatorio con 300 g de N,N-dimetil lauroil amida y 5% en masa de cada uno de los catalizadores A a J y los catalizadores L y M producidos, respectivamente, en los Ejemplos 1 a 10 de Producción del Catalizador y los Ejemplos Comparativos 1 y 2 de Producción del Catalizador (sobre la base del compuesto de amida en bruto). El interior del autoclave se purgó con nitrógeno, y a continuación se introdujo hidrógeno en el mismo hasta que la presión interior del autoclave se incrementó a 1,5 MPaG. Posteriormente, mientras se mantenía la presión interior del autoclave en 1,5 MPaG, se introdujo hidrógeno en el sistema de reacción a una velocidad de 40 l/h (1,35 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto). A continuación, la mezcla de reacción obtenida se calentó a 250 °C en los cuales se llevó a cabo la reducción con hidrógeno de la misma. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo. Posteriormente, la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases para medir el contenido de la amida en bruto y la composición de la misma con el paso del tiempo, calculando así una velocidad de reacción en el momento en el que transcurrieron 6 horas desde la iniciación de la reacción y una cantidad (% en masa) de N,N-dimetil lauroil amina producida cuando la cantidad de la amida en bruto se redujo a un 5%. Los resultados se muestran en la Tabla 1. Mientras tanto, los catalizadores L y M sufrieron un deterioro considerable en la actividad debido a la aparición de sinterización durante la reacción, de modo que la reacción se detuvo en su curso medio y, por tanto, no se completó.

Ejemplo 11

5 Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1 excepto que se utilizaron 300 g de N,N-dimetil estearoil amida en lugar de 300 g de N,N-dimetil lauroil amida, y se utilizó el catalizador K en lugar del catalizador A. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo. Posteriormente, la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases para medir el contenido de la amida en bruto en la misma y la composición de la misma con el paso del tiempo, calculando así la velocidad de reacción y la cantidad (% en masa) de N,N-dimetil estearil amina producida. Los resultados se muestran en la Tabla 1.

TABLA 1

	Catalizador	Velocidad de reacción [$\times 10^{-2}$ mol/(kg · H)]	Cantidad producida (% en masa)
Ejemplo 1	A	39,6	84,9
Ejemplo 2	B	43,6	83,5
Ejemplo 3	C	51,1	82,5
Ejemplo 4	D	56,8	79,9
Ejemplo 5	E	55,9	82,9
Ejemplo 6	F	40,1	81,9
Ejemplo 7	G	40,1	81,2
Ejemplo 8	H	46,3	85,1
Ejemplo 9	I	65,6	81,1
Ejemplo 10	I	52,0	81,0
Ejemplo 11	K	39,6	81,7
Ejemplo Comparativo 1	L	$> 66^{*1}$	–
Ejemplo Comparativo 2	M	$> 66^{*1}$	–

10 Nota * 1: La reacción se detuvo en su curso medio debido a la ocurrencia de sinterización en el catalizador.

Ejemplo 12

15 El procedimiento se llevó a cabo de la misma manera que en el Ejemplo 2. Después de confirmar que la cantidad de la amida en bruto contenida en el producto de reacción medida por cromatografía de gases se redujo a 0,5% en masa, sucesivamente, mientras se mantenía la misma temperatura de reacción y presión así como la misma velocidad de introducción de hidrógeno, se introdujo adicionalmente dimetil amina al sistema de reacción a una velocidad de 2 a 1 L/h (de 0,07 a 0,03 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), y la mezcla resultante se hizo reaccionar durante 3 h. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo, y a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Los resultados se muestran en la Tabla 2. Mientras tanto, como resultado del análisis del producto de reacción por cromatografía de gases, se confirmó que el contenido de la amida en bruto en el mismo se redujo por debajo del límite inferior de detección.

Ejemplo 13

25 El procedimiento se llevó a cabo de la misma manera que en el Ejemplo 3. Después de confirmar que la cantidad de la amida en bruto contenida en el producto de reacción medida por cromatografía de gases se redujo hasta el límite inferior de detección, sucesivamente, mientras se mantenía la misma velocidad de introducción de hidrógeno de 40 L/h (1,35 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), pero cambiando la temperatura de reacción y la presión a 220 °C y presiones normales, respectivamente, se introdujo adicionalmente dimetil amina al sistema de reacción a una velocidad de 6 a 4 L/h (de 0,20 a 0,14 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), y la mezcla resultante se hizo reaccionar durante 3 h. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo, y a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Los resultados se muestran en la Tabla 2.

Ejemplo 14

El procedimiento se llevó a cabo de la misma manera que en el Ejemplo 5.

Después de confirmar que la cantidad de la amida en bruto contenida en el producto de reacción medida por cromatografía de gases se redujo a 0,6% en masa, sucesivamente, mientras se mantenía la misma temperatura de 250 °C y la misma velocidad de introducción de hidrógeno de 40 L/h (1,35 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto) pero cambiando la presión de reacción a 0,5 MPaG, se introdujo adicionalmente dimetil amina al sistema de reacción a una velocidad de 2 a 1 L/h (0,07 a 0,03 moles/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), y la mezcla resultante se hizo reaccionar durante 2 h. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo y, a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Los resultados se muestran en la Tabla 2. Mientras tanto, como resultado del análisis del producto de reacción por cromatografía de gases, se confirmó que el contenido de la amida en bruto en el mismo se redujo por debajo del límite inferior de detección.

Ejemplo 15

El procedimiento se llevó a cabo de la misma manera que en el Ejemplo 8. Después de confirmar que la cantidad de la amida en bruto contenida en el producto de reacción medida por cromatografía de gases se redujo por debajo del límite inferior de detección, mientras se mantenía la misma temperatura de reacción de 250 °C y la misma velocidad de introducción de hidrógeno de 40 L/h (1,35 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), pero cambiando la presión de reacción a presiones normales, se introdujo adicionalmente dimetil amina al sistema de reacción a una velocidad de 9 a 8 L/h (de 0,30 a 0,27 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), y la mezcla resultante se hizo reaccionar durante 2 h. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo, y a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Los resultados se muestran en la Tabla 2.

Ejemplo 16

El procedimiento se llevó a cabo de la misma manera que en el Ejemplo 9. Después de confirmar que la cantidad de la amida en bruto contenida en el producto de reacción medida por cromatografía de gases se redujo por debajo del límite inferior de detección, sucesivamente, mientras se mantenía la misma velocidad de introducción de hidrógeno de 40 l/h (1,35 mol/h por 1 mol de el compuesto de amida en bruto), pero cambiando la temperatura de reacción y la presión a 220 °C y presiones normales, respectivamente, se introdujo adicionalmente dimetil amina al sistema de reacción a una velocidad de 6 a 4 L/h (0,20 a 0,14 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), y la mezcla resultante se hizo reaccionar durante 3,5 h. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo, y a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Los resultados se muestran en la Tabla 2.

Ejemplo 17

El procedimiento se llevó a cabo de la misma manera que en el Ejemplo 10. Después de confirmar que la cantidad de la amida en bruto contenida en el producto de reacción medida por cromatografía de gases se redujo por debajo del límite inferior de detección, sucesivamente, mientras se mantenía la misma velocidad de introducción de hidrógeno de 40 L/h (1,35 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), pero cambiando la temperatura de reacción y la presión a 220 °C y presiones normales, respectivamente, se introdujo adicionalmente dimetil amina al sistema de reacción a una velocidad de 3 a 2 L/h (de 0,10 a 0,07 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), y la mezcla resultante se hizo reaccionar durante 2,5 h. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo, y a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Los resultados se muestran en la Tabla 2.

TABLA 2

	Introducción de dimetil amina	Composición del producto de reacción (% en masa)			
		DMLA ^{*1}	LA ^{*2}	DLMA ^{*3}	otros
Ejemplo 12	BT ^{*4}	87,4	7,3	2,6	2,2
	AT ^{*5}	93,0	0,9	4,3	1,8
Ejemplo 13	BT ^{*4}	86,7	8,6	2,1	2,5
	AT ^{*5}	94,2	0,7	2,8	2,3

TABLA 2 (continuación)

	Introducción de dimetil amina	Composición del producto de reacción (% en masa)			
		DMLA ^{*1}	LA ^{*2}	DLMA ^{*3}	otros
Ejemplo 14	BT ^{*4}	87,2	6,5	3,9	1,8
	AT ^{*5}	93,3	0,8	4,7	1,2
Ejemplo 15	BT ^{*4}	89,6	6,4	2,1	1,9
	AT ^{*5}	94,4	0,9	2,5	2,2
Ejemplo 16	BT ^{*4}	85,4	6,9	3,8	3,9
	AT ^{*5}	90,4	1,0	4,1	4,5
Ejemplo 17	BT ^{*4}	86,0	7,0	3,9	3,1
	AT ^{*5}	91,4	0,8	4,3	3,5

Nota *1: DMLA = Dimetil lauril amina; * 2: LA = Alcohol laurílico; * 3: DLMA = Dilauril metil amina; * 4: BT = Antes del tratamiento; * 5: AT = Después del tratamiento

Ejemplo comparativo 3

Se cargó un autoclave rotatorio, con 300 g de N,N-dimetil lauroil amida y un catalizador de Cu/Cr "Cu 1800P" disponible comercialmente de NE Chemcat Corp. El interior del autoclave se purgó con nitrógeno, y a continuación se introdujo hidrógeno en el mismo hasta que la presión interior del autoclave se incrementó a 1,5 MPaG. Posteriormente, mientras se mantenía la presión interior del autoclave en 1,5 MPaG, se introdujeron hidrógeno y dimetil amina en el sistema de reacción a velocidades de 40 L/h (1,4 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto) y de 2 a 1 L/h (0,07 a 0,03 mol/h por 1 mol del compuesto de amida en bruto), respectivamente, y se hizo reaccionar la mezcla resultante. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo, y a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Como resultado, se confirmó que el contenido de N,N-dimetil lauroil amida en el producto de reacción era menor que el límite inferior de detección, y el producto de reacción estaba compuesta de 82,9% de N,N-dimetil lauril amina, 12,4% de N,N-dilauril metil amina y 0,6% de alcohol laurílico. Además, se confirmó que la velocidad de reacción en el momento en el que transcurrieron 6 horas desde la iniciación de la reacción fue de 36,4 [$\times 10^{-2}$ mol/(kg \cdot H)], y la cantidad de N,N-dimetil lauril amina producida cuando la cantidad de la amida en bruto se redujo a 5% fue 78,4 (% en masa).

Ejemplo 18

Se repitió el mismo procedimiento que en el Ejemplo 5 excepto por que se utilizó una cantidad total del catalizador separado por filtración y recuperado a partir del producto de reacción obtenido en el Ejemplo 14. Como resultado, se confirmó que la velocidad de reacción en la reacción anterior fue de 57,3 [$\times 10^{-2}$ mol/(kg \cdot H)], y la cantidad de N,N-dimetil lauril amina producida fue de 82,9 (%). Además, después de confirmar que la cantidad de la amida en bruto contenida en el producto de reacción medida por cromatografía de gas se redujo a 0,6% en masa, se llevó a cabo sucesivamente el mismo procedimiento que en el Ejemplo 14. El producto de reacción así obtenido se sometió a filtración para separar el catalizador del mismo, y a continuación la composición de la solución de reacción así separada se analizó por cromatografía de gases. Los resultados se muestran en la Tabla 3. Como resultado del análisis del producto de reacción por cromatografía de gases, se confirmó que la cantidad de la amida en bruto contenida en el mismo se redujo por debajo del límite inferior de detección, y el catalizador recuperado estaba libre de problemas relativos a la actividad y la selectividad incluso cuando se usó repetidamente en la reacción.

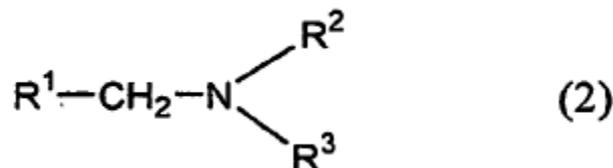
TABLA 3

	Introducción de dimetil amina	Composición del producto de reacción (% en masa)			
		DMLA ^{*1}	LA ^{*2}	DLMA ^{*3}	otros
Ejemplo 18	BT ^{*4}	87,0	6,7	3,5	2,2
	AT ^{*5}	93,5	0,6	4,6	1,3-

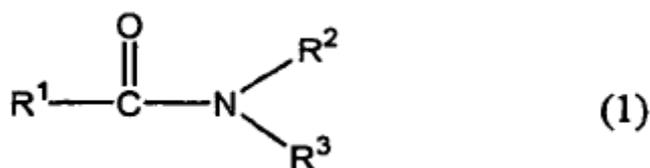
Nota *1: DMLA = Dimetil lauril amina; * 2: LA = Alcohol laurílico; * 3: DLMA = Dilauril metil amina; * 4: BT = Antes del tratamiento; * 5: AT = Después del tratamiento

REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento de producción de una amina terciaria representada por la siguiente fórmula general (2):



5 en la que R¹ es un grupo hidrocarbonado alifático lineal o ramificado que tiene de 5 a 23 átomos de carbono; y R² y R³ son, respectivamente, un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene 1 a 6 átomos de carbono y pueden ser iguales o diferentes, comprendiendo dicho procedimiento la etapa de (a) reducir un compuesto de amida representado por la siguiente fórmula general (1):



en la que R¹, R² y R³ son los mismos que los definidos anteriormente,

10 en presencia de un catalizador de esponja de cobre obtenido por lixiviación de partículas de aleación que contienen cobre y aluminio y secado de las partículas de aleación así lixiviadas.

2. El procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el catalizador de esponja de cobre contiene además al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste en cinc, molibdeno, manganeso, magnesio, hierro, rutenio y vanadio.

15 3. El procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1 o 2, en el que el catalizador de esponja de cobre se obtiene por lixiviación de partículas de aleación que contienen cobre, aluminio y al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste en cinc, molibdeno, manganeso, magnesio, hierro, rutenio y vanadio y secado de las partículas de aleación así lixiviadas.

20 4. El procedimiento de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en el que el catalizador de esponja de cobre se obtiene por lixiviación de las partículas de aleación y el secado de las partículas de aleación así lixiviadas en una atmósfera de oxígeno o aire.

5. El procedimiento de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en el que un contenido de cobre en el catalizador de esponja de cobre es de 20 a 90% en masa en términos de cobre metálico.

25 6. El procedimiento de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, en el que el catalizador de esponja de cobre se utiliza en una cantidad de 0,1 a 20% en masa en base al compuesto de amida representado por la fórmula general (1).

30 7. El procedimiento de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, que comprende además la etapa (b) de tratar la amina terciaria obtenida en la etapa (a) en presencia del catalizador de esponja de cobre como se define en cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5 mediante la introducción de una dialquil amina que contiene un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene 1 a 6 átomos de carbono e hidrógeno.