



(12) **BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ**

(19) **Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)**
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11) 
1-0020120

(51)⁷ **C07D 211/74**

(13) **B**

(21) 1-2013-02753

(22) 04.09.2013

(30) 102012215900.2 07.09.2012 DE

(45) 25.12.2018 369

(43) 25.03.2014 312

(73) Evonik Degussa GmbH (DE)

Rellinghauser Strasse 1-11, 45128 Essen, Germany

(72) Jochen Niemeyer (DE), Manfred Neumann (DE), Volker Brehme (DE), Mirko Michel (DE), Christoph Schwarz (DE)

(74) Văn phòng luật sư Phạm và Liên danh (PHAM & ASSOCIATES)

(54) **QUY TRÌNH ĐIỀU CHẾ TRIAXETON AMIN**

(57) Sáng chế đề cập đến quy trình điều chế triaxeton amin, bao gồm bước cho axeton phản ứng với amoniac với sự có mặt của chất xúc tác, và tiếp đó xử lý hỗn hợp phản ứng thu được.

Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến quy trình điều chế triaxeton amin, bao gồm bước cho axeton phản ứng với amoniac với sự có mặt của chất xúc tác, và tiếp đó xử lý hỗn hợp phản ứng thu được.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Triaxeton amin (2,2,6,6-tetrametyl-4-piperidinon; TAA) là hợp chất hóa học trung gian quan trọng được sử dụng để tổng hợp nhiều sản phẩm thứ cấp. Các sản phẩm thứ cấp quan trọng trong lĩnh vực này là, ví dụ, chất ổn định quang (chất ổn định quang chứa amin có tác dụng cản trở [hindered amine light stabilizers - HALS]), chất oxy hóa và chất điều biến quá trình polyme hóa (ví dụ, gốc nitroxyl).

Các quy trình điều chế triaxeton amin từ axeton và amoniac đã được mô tả trong nhiều tài liệu khác nhau. Về điều này, các quy trình điều chế được chia sơ bộ thành quy trình tổng hợp TAA trực tiếp (một giai đoạn) từ các nguyên liệu ban đầu, được mô tả, ví dụ, trong DE2429937, US4536581, JP54088275 hoặc trong Zeitschrift für Naturforschung 1976, 328-337 và 338-345, và quy trình tổng hợp gián tiếp (hai giai đoạn) thông qua axetonin (2,2,4,4,6-pentametyl-1,2,5,6-tetrahydropyrimidin), được mô tả, ví dụ, trong DE2429935 hoặc DE2429936, hoặc thông qua phoron (2,6-dimetyl-2,5-heptadien-4-on), ví dụ, trong DE2352127. Trong quy trình tổng hợp TAA hai giai đoạn thông qua axetonin, đầu tiên axetonin được tạo ra từ axeton và amoniac và tiếp đó cho phản ứng tiếp để tạo ra TAA ở bước tiếp theo với việc loại bỏ một đương lượng amoniac. Tuy nhiên, trong quy trình tổng hợp thông qua axetonin này, cả hai hợp chất (TAA và axetonin) luôn được tạo ra một cách đồng thời, mặc dù việc tạo ra axetonin được ưu tiên hơn nhiều về mặt động lực học so với việc tạo ra TAA. Trong quy trình tổng hợp TAA “một giai đoạn”, axetonin được tạo ra không thể được tách ra một cách dễ dàng.

Tình trạng kỹ thuật cũng bộc lộ quy trình tổng hợp TAA bắt đầu từ axeton hoặc các sản phẩm ngưng tụ của axeton. Cơ sở cho quy trình này là trong quá trình phản ứng giữa axeton với amoniac, trước tiên sẽ tạo ra các sản phẩm cộng và ngưng tụ không vòng (ví dụ, rượu diaxeton [4-hydroxy-4-methylpentan-2-on], diaxeton amin [4-amino-4-methylpentan-2-on], mesityl oxit [4-methylpent-3-en-2-on], phoron v.v.). Sau đó, các hợp chất trung gian này được cho phản ứng tiếp để tạo ra TAA, và do đó, có

thể cũng được sử dụng trực tiếp làm nguyên liệu ban đầu cho phản ứng này, ví dụ, dưới dạng dòng quay vòng trong quy trình.

Về cơ bản, quy trình điều chế TAA có thể được thực hiện dưới tác dụng của cả chất xúc tác đồng thể (phần lớn bằng muối amoni) lẫn chất xúc tác dị thể (ví dụ, thông qua chất trao đổi ion có tính axit).

Phần lớn các tài liệu trong tình trạng kỹ thuật đều đề cập đến các phản ứng có xúc tác đồng thể. Về vấn đề này, có thể kể đến các chất xúc tác phổ biến nhất là canxi clorua (ví dụ, trong Chemical Industries 2003, 89, 559-564; Zeitschrift für Naturforschung 1976, 328-337 và 338-345), amoni clorua (ví dụ, trong JP2003-206277; JP2001-031651; JP04154762) và các dẫn xuất hydrazin (ví dụ, trong JP54088275; JP54112873A). Tuy nhiên, nhiều vấn đề nảy sinh khi sử dụng các chất xúc tác này. Ví dụ, việc sử dụng canxi clorua có nhược điểm là phản ứng diễn ra rất chậm. Trong trường hợp dùng amoni clorua, tuy tốc độ phản ứng cao hơn, nhưng clorua được sử dụng có tính ăn mòn cao đối với thép. Còn các dẫn xuất hydrazin lại có độ độc rất cao.

Các quy trình điều chế được mô tả bao gồm cả quy trình theo mẻ (xem các tài liệu nêu trên) lẫn quy trình liên tục (ví dụ, trong JP02204480; JP02145571).

Nói chung, TAA được điều chế trong môi trường, trong đó axeton có mặt với một lượng dư lớn và được dùng làm cả chất phản ứng lẫn dung môi. Do vậy, khi kết thúc phản ứng, sản phẩm thô được tạo ra, ngoài TAA, còn bao gồm một lượng lớn axeton, và cả amoniac không phản ứng, nước được tạo ra bởi quá trình ngưng tụ và, trong trường hợp quy trình có xúc tác đồng thể, chất xúc tác. Ngoài ra, các hợp phần thứ cấp khác cũng có mặt, ví dụ, các sản phẩm ngưng tụ không vòng (ví dụ, rượu diaxeton, diaxeton amin, mesityl oxit, phoron v.v.), các sản phẩm ngưng tụ dạng vòng (ví dụ, axetonin, TMDH-pyridin [2,2,4,6-tetrametyl-2,3-dihydropyridin]) hoặc các sản phẩm ngưng tụ có khối lượng phân tử cao hơn ("nồi hơi áp suất cao").

Các quy trình phổ biến nhất để tách TAA tinh khiết ra khỏi hỗn hợp nêu trên là xử lý bằng cách chưng cất và kết tinh.

Việc xử lý bằng cách chưng cất có thể được thực hiện trong cả quy trình theo mẻ (ví dụ, trong JP2003-206277; JP2001-031651; JP04154763; DE 2429937) lẫn trong quy trình liên tục (ví dụ, trong JP2003-160561). Đã biết là, trong trường hợp quy trình có xúc tác đồng thể, mà được thực hiện, ví dụ, bằng cách sử dụng muối amoni, chất xúc tác axit cần phải được khử hoạt tính trước khi chưng cất bằng cách bổ sung

bazơ nếu không sản phẩm sẽ bị phân hủy trong quá trình chưng cất (ví dụ, trong JP04154763).

Quy trình kết tinh thường bao gồm việc bổ sung nước vào dung dịch đặc chứa TAA trong dung môi không phân cực (ví dụ, trong hydrocacbon), việc kết tủa TAA hydrat, tùy ý rửa nó bằng một lượng dung môi nữa. Bước quy trình này phần lớn được thực hiện cùng với bước tách bằng chưng cất trước đó bằng cách sử dụng nồi hơi áp suất thấp và vì vậy, chỉ thay thế việc tinh chế bằng chưng cất (ví dụ, trong JP04154763).

Các quy trình để điều chế TAA có xúc tác đồng thể được mô tả trong tình trạng kỹ thuật chủ yếu bao gồm bước phản ứng, bước sự khử hoạt tính chất xúc tác cũng như bước tách TAA tiếp theo bằng cách chưng cất theo mẻ (ví dụ, JP2001-031651, JP04154763, US4536581, JP 05140104). Các quy trình được mô tả này ít thích hợp cho việc sản xuất công nghiệp, do chúng khó được thực hiện hoặc có các vấn đề nảy sinh trong quá trình xử lý.

Chẳng hạn, quy trình tổng hợp sử dụng các muối vô cơ làm chất xúc tác đòi hỏi phải sử dụng thép đặc biệt và đắt tiền để chế tạo thiết bị nhằm tránh các vấn đề về ăn mòn. Tuy nhiên, trong trường hợp đặc biệt khi sử dụng chất xúc tác chứa halogenua (ví dụ, trong trường hợp chất xúc tác này, amoni clorua và canxi clorua thường được sử dụng phổ biến nhất trong tình trạng kỹ thuật), thì việc sử dụng nhiều thép và thép không gỉ lại không được phép.

Ngoài ra, đối với tất cả các chất xúc tác vô cơ hoà tan một cách đồng nhất, vấn đề nảy sinh là chúng tích tụ trong sản phẩm chưng cất đáy trong quá trình xử lý chưng cất sản phẩm thô. Đặc biệt với các quy trình công nghiệp, sự tích tụ này dẫn đến các vấn đề kỹ thuật do các cặn lắng có thể tạo ra trong nồi hơi chưng cất hoặc trên thiết bị trao đổi nhiệt. Mặc dù một số tài liệu trong tình trạng kỹ thuật (ví dụ, JP2001-031651, JP04154763, US4536581, JP05140104) mô tả việc bổ sung bazơ và tiếp theo loại bỏ pha nước, các quy trình này chỉ được dùng để khử hoạt tính cần thiết của chất xúc tác nêu trên (ví dụ, sự bổ sung NaOH vào khi sử dụng NH_4Cl làm chất xúc tác và sự tạo ra NaCl, nước và amoniac). Sau khi tách riêng pha nước, một số chất xúc tác đã khử hoạt tính vẫn có mặt trong pha hữu cơ và được tích tụ ở đáy trong quá trình chưng cất.

Mặc dù việc loại bỏ hoàn toàn chất xúc tác đã khử hoạt tính là có thể thực hiện được về mặt kỹ thuật, các quy trình đã biết để loại bỏ phân đoạn muối bằng cách chiết đường như có vấn đề do chúng đòi hỏi phải sử dụng một lượng lớn chất hỗ trợ, mà

dẫn đến một lượng lớn nước thải cần xử lý. Do vậy, mặc dù việc trộn sản phẩm thô với bazơ được thực hiện lặp đi lặp lại, liên tục, tiếp theo là tách pha (chiết dòng giao nhau; ví dụ, xem K. Sattler, Thermische Trennverfahren [Thermal Separation Processes], 3rd Edition, 2001, Wiley-VCH Weinheim, p. 542ff.), sẽ loại bỏ được hoàn toàn muối, nhưng quy trình này chỉ thực hiện được bằng cách sử dụng một lượng lớn bazơ và sự bổ sung chúng ở dạng rắn.

Một lựa chọn khác là quy trình chiết ngược dòng (bổ sung một chất chiết mới vào bước chiết cuối và quay vòng chất chiết này đến bước chiết trước đó) được mô tả trong JP2003-206277. JP2003-206277 mô tả quy trình chiết ngược dòng hai giai đoạn, mặc dù nó cũng có thể được vận hành với số giai đoạn nhiều hơn. Tuy nhiên, quy trình được mô tả trong JP2003-206277 cũng có các nhược điểm nêu trên. Do vậy, việc loại bỏ muối một cách thỏa đáng chỉ đạt được bằng cách sử dụng một lượng lớn bazơ, dẫn đến sự tạo ra dòng chất thải lớn.

Mục đích của sáng chế là đề xuất quy trình cải tiến để sản xuất triaxeton amin trong công nghiệp. Quy trình này cần phải khắc phục được các vấn đề nêu trên. Cụ thể, quy trình này cần phải làm giảm được lượng chất thải được tạo ra. Quy trình này cần phải được thực hiện bằng cách sử dụng chất xúc tác rẻ tiền và không độc, mà có thể được sử dụng một cách hiệu quả trong quy trình liên tục. Cuối cùng, quy trình cải tiến này cũng cần phải cho phép xử lý triaxeton amin một cách đơn giản và hiệu quả.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Bất ngờ là đã phát hiện ra rằng mục đích nêu trên đạt được bằng quy trình theo sáng chế. Vì vậy, đối tượng thứ nhất của sáng chế là:

1. Quy trình điều chế triaxeton amin, bao gồm các bước:
 - a) cho chất tương đương axeton phản ứng với bazơ thứ nhất, được chọn từ amoniac, với sự có mặt của chất xúc tác, tạo ra hỗn hợp sản phẩm chứa axeton;
 - b) khử hoạt tính của hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước a) bằng cách bổ sung ít nhất 1 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a) của quy trình này, của một bazơ khác, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô chứa axeton;
 - c) loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước b), tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton, hàm lượng axeton nhỏ hơn 40 phần trăm theo khối lượng có mặt trong sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton;

d) chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton thu được ở bước c) bằng cách bổ sung chất hỗ trợ, mà là bazơ, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết.

2. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng 1 khác biệt ở chỗ còn bao gồm bước e), trong đó sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết thu được ở bước d) được tinh chế để thu được triaxeton amin.

Quy trình theo sáng chế có ưu điểm là chất xúc tác được sử dụng ở bước a) và được khử hoạt tính ở bước b) được loại bỏ trước khi tinh chế sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết ở bước e), có thể thực hiện, ví dụ, bằng cách chưng cất. Quy trình này ngăn ngừa sự tích tụ của chất xúc tác đã khử hoạt tính trong sản phẩm đáy của quá trình chưng cất. Về vấn đề này, quy trình theo sáng chế cho phép làm giảm phân đoạn chất xúc tác đã khử hoạt tính xuống dưới giới hạn dò, và trong quá trình này sử dụng một lượng chất hỗ trợ nhỏ hơn một cách đáng kể so với tình trạng kỹ thuật, kết quả là lượng dòng chất thải được tạo ra cũng được giữ ở mức thấp.

3. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 2, khác biệt ở chỗ chất tương đương axeton là một hoặc nhiều hợp chất được chọn từ nhóm bao gồm axeton, mesityl oxit, rượu diaxeton, phoron, diaxeton amin, axetonin.

4. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 3, khác biệt ở chỗ chất tương đương axeton là axeton.

5. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 4, khác biệt ở chỗ việc loại bỏ axeton ra khỏi hỗn hợp sản phẩm triaxeton amin thô ở bước c) được thực hiện bằng cách chưng cất.

6. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 5, khác biệt ở chỗ bazơ khác ở bước b) được chọn từ nhóm bao gồm hydroxit kim loại kiềm, hydroxit kim loại kiềm thổ, cacbonat kim loại kiềm, cacbonat kim loại kiềm thổ.

7. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 6, khác biệt ở chỗ natri hydroxit hoặc kali hydroxit được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

8. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 7, khác biệt ở chỗ natri hydroxit được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

9. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 8, khác biệt ở chỗ dung dịch nước natri hydroxit được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

10. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 9, khác biệt ở chỗ dung dịch nước natri hydroxit, chứa NaOH với lượng nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

11. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 10, khác biệt ở chỗ dung dịch nước natri hydroxit, chứa NaOH với lượng nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng), được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

12. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 7, khác biệt ở chỗ kali hydroxit được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

13. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 7 và 12, khác biệt ở chỗ dung dịch nước kali hydroxit được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

14. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 7 và 12 đến 13, khác biệt ở chỗ dung dịch nước kali

hydroxit, chứa KOH với lượng nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

15. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 7 và 10 đến 14, khác biệt ở chỗ dung dịch nước kali hydroxit, chứa KOH với lượng nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng), được sử dụng làm bazơ khác ở bước b).

16. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 15, khác biệt ở chỗ lượng bazơ khác được bổ sung vào ở bước b) nằm trong khoảng từ 1,0 đến 2,0 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

17. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 16, khác biệt ở chỗ lượng bazơ khác được bổ sung vào ở bước b) nằm trong khoảng từ 1,0 đến 1,4 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

18. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 17, khác biệt ở chỗ lượng bazơ khác được bổ sung vào ở bước b) là 1,2 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

19. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 18, khác biệt ở chỗ bazơ được chọn từ nhóm bao gồm hydroxit kim loại kiềm, hydroxit kim loại kiềm thổ, cacbonat kim loại kiềm, cacbonat kim loại kiềm thổ được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

20. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 19, khác biệt ở chỗ bazơ được chọn từ nhóm bao gồm natri hydroxit hoặc kali hydroxit được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

21. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 20, khác biệt ở chỗ bazơ, cụ thể là natri hydroxit, được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

22. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 21, khác biệt ở chỗ bazơ, cụ thể là dung dịch nước natri hydroxit, được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

23. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 22, khác biệt ở chỗ bazơ, cụ thể là dung dịch nước natri hydroxit, chứa NaOH với lượng nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

24. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 23, khác biệt ở chỗ bazơ, cụ thể là dung dịch nước natri hydroxit, chứa NaOH với lượng nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng), được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

25. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 20, khác biệt ở chỗ bazơ, cụ thể là kali hydroxit, được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

26. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 20 và 25, khác biệt ở chỗ bazơ, cụ thể là dung dịch nước kali hydroxit, được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

27. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 20 và 25 đến 26, khác biệt ở chỗ bazơ, cụ thể là dung dịch nước kali hydroxit, chứa KOH với lượng nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), được sử dụng làm chất hỗ trợ ở bước d).

28. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 20 và 25 đến 27, khác biệt ở chỗ dung dịch nước kali

hydroxit, chứa KOH với lượng nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng), được sử dụng làm bazơ ở bước d).

29. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 28, khác biệt ở chỗ lượng bazơ được bổ sung vào ở bước d) làm chất hỗ trợ nằm trong khoảng từ 1,0 đến 6,0 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

30. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 29, khác biệt ở chỗ lượng bazơ được bổ sung vào làm chất hỗ trợ ở bước d) nằm trong khoảng từ 1,0 đến 4,0 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

31. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 30, khác biệt ở chỗ lượng bazơ được bổ sung vào làm chất hỗ trợ ở bước d) nằm trong khoảng từ 1,0 đến 2,0 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

32. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 31, khác biệt ở chỗ lượng bazơ được bổ sung vào làm chất hỗ trợ ở bước d) nằm trong khoảng từ 1,0 đến 1,4 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

33. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 32, khác biệt ở chỗ lượng bazơ được bổ sung vào làm chất hỗ trợ ở bước d) là 1,2 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

34. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 33, khác biệt ở chỗ bước tách pha được thực hiện bổ sung giữa bước b) và bước c).

35. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 34, khác biệt ở chỗ bước tách pha được thực hiện bổ sung giữa bước b) và bước c), và pha hữu cơ chứa sản phẩm triaxeton amin thô được sử dụng ở bước c) đến bước d).

36. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 35, khác biệt ở chỗ chất tương đương axeton được sử dụng ở bước a) là axeton và tỷ lệ mol giữa axeton và amoniac được sử dụng trong phản ứng ở bước a) nằm trong khoảng từ 3:1 đến 20:1.

37. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 36, khác biệt ở chỗ chất tương đương axeton được sử dụng ở bước a) là axeton và tỷ lệ mol giữa axeton và amoniac được sử dụng trong phản ứng ở bước a) nằm trong khoảng từ 6:1 đến 9:1.

38. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 37, khác biệt ở chỗ phản ứng ở bước a) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 20°C đến 80°C.

39. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 38, khác biệt ở chỗ phản ứng ở bước a) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 40°C đến 80°C.

40. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 39, khác biệt ở chỗ phản ứng ở bước a) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 60°C đến 70°C.

41. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 40, khác biệt ở chỗ phản ứng ở bước a) được thực hiện ở áp suất nằm trong khoảng từ 1 đến 16 bar (100-1600 kPa).

42. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 41, khác biệt ở chỗ phản ứng ở bước a) được thực hiện ở áp suất nằm trong khoảng từ 1 đến 10 bar (100-1000 kPa).

43. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 42, khác biệt ở chỗ phản ứng ở bước a) được thực hiện ở áp suất nằm trong khoảng từ 1 đến 6 bar (100-600 kPa).

44. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 43, khác biệt ở chỗ amoniac được bổ sung vào ở bước a) ở dạng khí hoặc ở dạng lỏng.

45. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 2 đến 44, khác biệt ở chỗ quy trình này còn bao gồm bước e), trong đó sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết thu được ở bước d) được tinh chế bằng cách chưng cất để thu được triaxeton amin.

46. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 45, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) được chọn từ nhóm bao gồm axit Brönsted, muối amoni của axit Brönsted, muối phosphoni của axit Brönsted, axit Lewis.

47. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là axit Brönsted.

48. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 47, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) được chọn từ nhóm bao gồm axit clohydric, axit sulphuric, axit nitric, axit hữu cơ có công thức RCOOH , axit sulphonc có công thức RSO_3H , trong đó R được chọn từ nhóm bao gồm các gốc hydrocacbon bão hòa, chưa bão hòa, mạch nhánh, mạch thẳng, vòng kín, béo mạch hở, thơm, được thế, không được thế.

49. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là muối phosphoni của axit Brönsted.

50. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 49, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là muối phosphoni của axit Brönsted, trong đó axit Brönsted được chọn từ nhóm bao gồm axit clohydric, axit sulphuric, axit nitric, axit hữu cơ có công thức RCOOH , axit sulphonic có công thức RSO_3H , trong đó R được chọn từ nhóm bao gồm các gốc hydrocarbon bão hòa, chưa bão hòa, mạch nhánh, mạch thẳng, vòng kín, béo mạch hở, thơm, được thế, không được thế.

51. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là muối amoni của axit Brönsted.

52. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 51, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là muối amoni của axit Brönsted, trong đó axit Brönsted được chọn từ nhóm bao gồm axit clohydric, axit sulphuric, axit nitric, axit hữu cơ có công thức RCOOH , axit sulphonic có công thức RSO_3H , trong đó R được chọn từ nhóm bao gồm các gốc hydrocarbon bão hòa, chưa bão hòa, mạch nhánh, mạch thẳng, vòng kín, béo mạch hở, thơm, được thế, không được thế.

53. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 51 đến 52, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là amoni clorua hoặc amoni nitrat.

54. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 51 đến 53, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là amoni nitrat.

55. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là axit Lewis.

56. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 55, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là axit Lewis, trong đó axit Lewis được chọn từ nhóm bao gồm các hợp chất chứa các nguyên tố thuộc nhóm thứ tư của Bảng tuần hoàn các nguyên tố, các hợp chất chứa các nguyên tố thuộc nhóm thứ mười ba của Bảng tuần hoàn các nguyên tố, các muối của các kim loại kiềm, các muối của các kim loại kiềm thổ.

57. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 55 đến 56, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là axit Lewis, trong đó axit Lewis được chọn từ nhóm bao gồm halogenua, alkoxit, các hợp chất alkyl chứa các nguyên tố thuộc nhóm thứ tư và thứ mười ba của Bảng tuần hoàn các nguyên tố.

58. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 55 đến 57, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là axit Lewis, trong đó axit Lewis được chọn từ nhóm bao gồm AlCl_3 , BF_3 , TiCl_4 , Al(OR)_3 , B(OR)_3 , Ti(OR)_4 , AlR_3 , trong đó R được chọn từ nhóm bao gồm các gốc hydrocacbon bão hòa, chưa bão hòa, mạch nhánh, mạch thẳng, vòng kín, béo mạch hở, thơm, được thế, không được thế.

59. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 55 đến 56, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là axit Lewis, trong đó axit Lewis được chọn từ nhóm bao gồm các muối của các kim loại kiềm, các muối của các kim loại kiềm thổ.

60. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 46 và 55 đến 56 và 59, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là axit Lewis, trong đó axit Lewis được chọn từ nhóm bao gồm CaCl_2 , MgCl_2 , LiCl .

61. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 60, khác biệt ở chỗ tỷ lệ mol giữa amoniac và chất xúc tác ở bước a) nằm trong khoảng từ 1:0,8 đến 1:0,02.

62. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 61, khác biệt ở chỗ tỷ lệ mol giữa amoniac và chất xúc tác ở bước a) nằm trong khoảng từ 1:0,2 đến 1:0,05.

63. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 62, khác biệt ở chỗ ở bước d) bazơ được sử dụng làm chất hỗ trợ và bazơ được sử dụng ở bước d) và bazơ được sử dụng ở bước b) là giống nhau về mặt hóa học.

64. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 63, khác biệt ở chỗ dung môi ở bước a) được chọn từ nhóm bao gồm dung môi béo, tốt hơn là pentan, hexan, heptan, octan, decan, xyclohexan, tetrametylsilan; dung môi thơm, tốt hơn là benzen, toluen, xylen; các hợp chất ete, tốt hơn là dietyl ete, dipropyl ete, dibutyl ete, metyl tert-butyl ete; dung môi được halogen hóa, tốt hơn là diclometan, clorofom, tetraclometan; các rượu, tốt hơn là metanol, etanol, propanol, isopropanol, butanol, tert-butanol; este, tốt hơn là metyl axetat, etyl axetat, propyl axetat, butyl axetat; axeton.

65. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 64, khác biệt ở chỗ dung môi ở bước a) là axeton.

66. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 65, khác biệt ở chỗ bước chiết ở bước d) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 20°C đến 80°C.

67. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 66, khác biệt ở chỗ bước chiết ở bước d) được thực hiện ở nhiệt độ ít nhất là 20°C, tốt hơn nếu ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 20°C đến

99°C, đặc biệt tốt hơn nếu ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 45°C đến 90°C, đặc biệt còn tốt hơn nếu ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 45°C đến 80°C, tốt nhất là ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 45°C đến 65°C, và lý tưởng là ở nhiệt độ 60°C.

68. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 67, khác biệt ở chỗ sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton thu được ở bước c) có hàm lượng axeton nhỏ hơn 40% (% khối lượng), cụ thể là nhỏ hơn 20% (% khối lượng), tốt hơn nếu nhỏ hơn 15% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu nhỏ hơn 10% (% khối lượng), đặc biệt còn tốt hơn nếu nhỏ hơn 2,5% (% khối lượng), tốt nhất là nhỏ hơn 1,5% (% khối lượng), lý tưởng là nhỏ hơn 1% (% khối lượng).

69. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 68, khác biệt ở chỗ bước chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton ở bước d) được thực hiện dưới dạng chiết dòng giao nhau.

70. Theo một phương án khác của sáng chế, quy trình theo đối tượng bất kỳ trong số các đối tượng từ 1 đến 69, khác biệt ở chỗ bước chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton ở bước d) được thực hiện dưới dạng chiết ngược dòng.

Mô tả chi tiết sáng chế

Quy trình theo sáng chế không những thích hợp để điều chế triaxeton amin, mà còn để điều chế sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết. Ở bước đầu tiên [bước a)] của quy trình theo sáng chế, cho axeton phản ứng với bazơ thứ nhất, được chọn từ amoniac, được thực hiện với sự có mặt của chất xúc tác, tạo ra hỗn hợp sản phẩm chứa axeton. Phản ứng này có thể được thực hiện một cách liên tục hoặc theo mẻ. Trong trường hợp thực hiện theo mẻ, tốt hơn nếu tất cả nguyên liệu ban đầu được kết hợp, sau đó hỗn hợp phản ứng này được gia nhiệt. Các lò phản ứng thích hợp trong lĩnh vực này là tất cả các loại lò phản ứng thông thường, ví dụ, lò phản ứng có khuấy, các lò phản ứng vòng hoặc các lò phản ứng có thiết bị trao đổi nhiệt bên trong.

Phản ứng có thể thực hiện trong tất cả các dung môi mà không cản trở phản ứng. Cụ thể, các dung môi có thể là dung môi béo, tốt hơn là pentan, hexan, heptan, octan, decan, xyclohexan, tetrametylsilan; dung môi thơm, tốt hơn là benzen, toluen,

xylen; các hợp chất ete, tốt hơn là dietyl ete, dipropyl ete, dibutyl ete, metyl tert-butyl ete; dung môi được halogen hóa, tốt hơn là diclometan, clorofom, tetraclometan; các rượu, tốt hơn là metanol, etanol, propanol, isopropanol, butanol, tert-butanol; este, tốt hơn là metyl axetat, etyl axetat, propyl axetat, butyl axetat; axeton.

Đặc biệt tốt hơn nếu, phản ứng được thực hiện trong chính axeton.

Trong quy trình phản ứng liên tục, tốt hơn nếu tất cả hóa chất được đo đồng thời ở nhiệt độ phản ứng. Trong trường hợp phản ứng liên tục, có thể sử dụng lò phản ứng bất kỳ mà người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này đã biết, ví dụ, ống chảy liên tục, bể khuấy liên tục, bể khuấy theo tầng, cũng như có thể sử dụng tổ hợp các loại bể này. Về vấn đề này, tốt hơn nếu sử dụng tổ hợp gồm một hoặc nhiều lò phản ứng có hệ tuần hoàn bên trong hoặc bên ngoài, tiếp đó là lò phản ứng sau có đặc tính ống chảy.

Thời gian phản ứng trong quá trình vận hành theo mẻ thường nằm trong khoảng từ 1 đến 15 giờ, tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 3 đến 9 giờ, đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 5 đến 7 giờ. Thời gian phản ứng cho quy trình phản ứng liên tục được tính là tổng thời gian lưu của các chất phản ứng trong lò phản ứng và nằm trong khoảng đã định của quy trình vận hành theo mẻ.

Tốt hơn, nếu phản ứng này được thực hiện ở nhiệt độ cao, cụ thể là ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 20 đến 80°C, tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 40 đến 80°C, đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 60 đến 70°C.

Phản ứng này có thể được thực hiện dưới áp suất thực của các hợp phần hoặc dưới áp suất tăng. Do vậy, phản ứng này có thể được thực hiện ở áp suất nằm trong khoảng từ 1 đến 16 bar (100-1600 kPa), tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1 đến 10 bar (100-1000 kPa), đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1 đến 6 bar (100-600 kPa).

Trong quá trình phản ứng, chất tương đương axeton được cho phản ứng trực tiếp với amoniac. Trong ngữ cảnh của sáng chế, thuật ngữ “chất tương đương axeton” được dùng để chỉ chính axeton và các sản phẩm cộng hoặc ngưng tụ của axeton với chính nó (ví dụ, mesityl oxit, rượu diaxeton, phoron) và/hoặc các sản phẩm cộng hoặc ngưng tụ của axeton với amoniac (ví dụ, diaxeton amin, axetonin), mà cũng có thể được phản ứng một cách hiệu quả để tạo ra TAA. Cụ thể, thuật ngữ “chất tương đương axeton” trong ngữ cảnh của sáng chế có nghĩa là một hoặc nhiều hợp chất được chọn từ nhóm bao gồm mesityl oxit, rượu diaxeton, phoron, diaxeton amin, axetonin, axeton. Tốt hơn nếu, thuật ngữ “chất tương đương axeton” trong ngữ cảnh của sáng

chế có nghĩa là axeton. Ngoài ra, sự có mặt của các hợp phần trợ hoặc không phản ứng trong hỗn hợp phản ứng này cũng là có thể.

Tốt hơn, nếu amoniac được đo ở dạng chất tinh khiết, có nghĩa là ở dạng khí, và có mặt trong quá trình phản ứng được hòa tan trong axeton hoặc được hoà tan trong hỗn hợp phản ứng.

Phản ứng này được thực hiện với sự có mặt của chất xúc tác. Trong bản mô tả này, tất cả các chất xúc tác được đề cập đến trong tình trạng kỹ thuật cho loại phản ứng này đều thích hợp, ví dụ, axit Brönsted, các muối của axit này hoặc axit Lewis. Thuật ngữ “axit Brönsted” trong ngữ cảnh của sáng chế bao gồm cụ thể là axit clohydric, axit sulphuric, axit nitric, axit hữu cơ (RCOOH) hoặc axit sulphonic (RSO_3H), trong đó R được chọn từ nhóm bao gồm các gốc hydrocacbon bão hòa, chưa bão hòa, mạch nhánh, mạch thẳng, vòng kín, béo mạch hở, thơm, được thế, không được thế. Trong ngữ cảnh của sáng chế, các gốc hydrocacbon được thế là các gốc hydrocacbon được thế bằng các nguyên tử khác loại, cụ thể là các gốc hydrocacbon được thế bằng một hoặc nhiều gốc $-\text{OH}$, $-\text{NH}$, $-\text{CN}$, alkoxy và/hoặc halogen, tốt hơn nếu được thế bằng một hoặc nhiều gốc halogen, đặc biệt tốt hơn nếu được thế bằng một hoặc nhiều gốc được chọn từ nhóm bao gồm F, Cl, Br và/hoặc I, đặc biệt rất tốt nếu được thế bằng một hoặc nhiều gốc được chọn từ nhóm bao gồm F và/hoặc Cl.

Trong ngữ cảnh của sáng chế “các muối của axit Brönsted” cụ thể là muối amoni (tức là các muối với amoniac, amin, hydrazin, hydrooxylamin) hoặc muối phosphoni (tức là các muối với phosphan). Trong ngữ cảnh của sáng chế, axit Lewis cụ thể là các hợp chất thuộc nhóm thứ tư hoặc thứ mười ba của Bảng tuần hoàn các nguyên tố, tốt hơn là halogenua (AlCl_3 , BF_3 , TiCl_4), alkoxit [$\text{Al}(\text{OR})_3$, $\text{B}(\text{OR})_3$, $\text{Ti}(\text{OR})_4$] hoặc các hợp chất alkyl (ví dụ, AlR_3 trong đó R được chọn từ nhóm bao gồm các gốc hydrocacbon bão hòa, chưa bão hòa, mạch nhánh, mạch thẳng, vòng kín, béo mạch hở, thơm, được thế, không được thế).

Trong ngữ cảnh của sáng chế, axit Lewis còn là các muối kim loại kiềm hoặc kim loại kiềm thổ của axit Lewis (ví dụ, CaCl_2 , MgCl_2 , LiCl).

Tốt hơn nếu, chất xúc tác được chọn từ nhóm bao gồm muối amoni, cụ thể là từ nhóm bao gồm các muối của amoniac và axit Brönsted mạnh [ví dụ, axit clohydric, axit sulphuric, axit nitric, axit hữu cơ (RCOOH) hoặc axit sulphonic (RSO_3H), trong đó R được chọn từ nhóm bao gồm các gốc hydrocacbon bão hòa, chưa bão hòa, mạch nhánh, mạch thẳng, vòng kín, béo mạch hở, thơm, được thế, không được thế.

Đặc biệt rất tốt nếu amoni nitrat được sử dụng làm chất xúc tác trong phản ứng ở bước a). Amoni nitrat có ưu điểm là có lợi, không độc, không chứa halogenua và do đó, có tính ăn mòn kém.

Tỷ lệ sử dụng của các nguyên liệu ban đầu có thể được chọn trong khoảng rộng, cụ thể là axeton được sử dụng với lượng dư so với amoniac. Tốt hơn là, tỷ lệ mol giữa axeton được sử dụng và amoniac nằm trong khoảng từ 3:1 đến 20:1, với tỷ lệ nằm trong khoảng từ 6:1 đến 9:1 được ưu tiên.

Tốt hơn nếu chất xúc tác dùng trong phản ứng được sử dụng với lượng nhỏ hơn hệ số tỷ lệ. Tỷ lệ mol giữa amoniac và chất xúc tác, tốt hơn là amoni nitrat, đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1:0,8 đến 1:0,02. Đặc biệt còn tốt hơn nếu tỷ lệ mol giữa axeton: amoniac: amoni nitrat nằm trong khoảng 7 - 8: 0,9 - 1,1 : 0,085 - 0,98.

Kết quả của phản ứng xảy ra ở bước a) của quy trình này là hỗn hợp sản phẩm thường bao gồm TAA với lượng nằm trong khoảng từ 20 đến 30% (% khối lượng), axeton với lượng nằm trong khoảng từ 50 đến 60% (% khối lượng), nước với lượng nằm trong khoảng từ 5 đến 15% (% khối lượng), các hợp phần hữu cơ thứ cấp với lượng nằm trong khoảng từ 10 đến 20% (% khối lượng) và chất xúc tác với lượng nằm trong khoảng từ 0,5 đến 3% (% khối lượng), tính theo hỗn hợp sản phẩm, trong đó tổng các phân đoạn của tất cả các hợp phần là 100% (% khối lượng).

Trong ngữ cảnh của sáng chế, thuật ngữ “hỗn hợp sản phẩm” có nghĩa là hỗn hợp phản ứng mà thu được sau khi phản ứng xảy ra [bước a)] của quy trình theo sáng chế và được cho phản ứng với bazơ ở bước b) tiếp theo.

Hỗn hợp sản phẩm thu được ở bước a) của quy trình này được khử hoạt tính ở bước b) tiếp theo bằng cách bổ sung một bazơ khác, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô chứa axeton. Về vấn đề này, lượng bazơ khác được sử dụng, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a) của quy trình này, là ít nhất 1 đương lượng mol. Lượng bazơ khác được sử dụng, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a) của quy trình này, tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1,0 đến 2,0 đương lượng mol, đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1,0 đến 1,4 đương lượng mol, và là tốt nhất là 1,2 đương lượng mol.

Việc bổ sung bazơ khác ở bước b) vào sẽ làm khử hoạt tính chất xúc tác, có tác dụng ngăn cản triaxeton amin có trong hỗn hợp sản phẩm thu được sau bước a) khỏi bị phân hủy trong các bước xử lý tiếp theo. Về vấn đề này, việc bổ sung bazơ khác ở

bước b) theo sáng chế sẽ không loại bỏ một cách thỏa đáng chất xúc tác đã khử hoạt tính ra khỏi pha hữu cơ, nhưng chỉ được dùng để khử hoạt tính chất xúc tác.

Trong ngữ cảnh của sáng chế, thuật ngữ “khử hoạt tính” có nghĩa là hoạt tính xúc tác của chất xúc tác được sử dụng ở bước a) bị dừng lại. Điều này xảy ra bằng bazơ $[M+B^-]$, ví dụ, được mô tả trong JP2003-206277; JP2001-031651; JP04154763; US4536581; G. Sosnovsky & M. Konieczny, *Synthesis*, 1976, 735-736; JP05140104; *Plastic Additives* 2006, 5(59), 46; A. Formenti & P. Piccinelli, *Chimica e l'Industria*, 2000, 82(5), 569-571]. Bazơ này phản ứng với chất xúc tác axit tương ứng từ bước a), ví dụ, muối amoni (AH^+X^-) để tạo ra amin tự do tương ứng (A), axit liên hợp (HB), và muối tro (M^+X^-). Ví dụ, nếu việc khử hoạt tính amoni clorua (AH^+X^-) bằng NaOH (M^+B^-) được dự tính, thì amoniac (A), nước (HB) và natri clorua (M^+X^-) được tạo ra.

Trong ngữ cảnh của sáng chế, “bazơ khác” cụ thể có nghĩa là bazơ được bổ sung vào ở bước b) là bazơ khác với amoniac. Tốt hơn nếu, bazơ khác được sử dụng ở bước b) khác biệt ở chỗ nó là bazơ mạnh hơn amoniac. “Bazơ mạnh hơn amoniac” có nghĩa là bazơ khác được sử dụng có trị số pK_B thấp hơn trị số pK_B của amoniac, tốt hơn nếu thấp hơn trị số pK_B của ít nhất dung dịch nước amoniac 5%.

Các bazơ khác có thể được sử dụng ở bước b) của quy trình này nói chung có thể là tất cả các bazơ mà người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này đã biết thỏa mãn các yêu cầu này. Đặc biệt tốt hơn nếu các bazơ khác có thể được chọn từ nhóm bao gồm hydroxit kim loại kiềm, hydroxit kim loại kiềm thổ, cacbonat kim loại kiềm, cacbonat kim loại kiềm thổ. Các bazơ này có thể được sử dụng riêng biệt hoặc kết hợp. Chúng có thể được sử dụng ở dạng chất rắn do pha hữu cơ chứa nước, và các bazơ rắn cùng với nước của phản ứng có thể tạo ra pha nước. Tuy nhiên, bazơ khác cũng có thể được sử dụng ở dạng lỏng. Ví dụ, nó có thể được sử dụng ở dạng dung dịch nước, tốt hơn nếu bazơ có mặt với nồng độ nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu với nồng độ nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng). Theo một phương án khác, bazơ là natri hydroxit (NaOH) hoặc kali hydroxit (KOH), đặc biệt tốt hơn là natri hydroxit.

KOH hoặc NaOH, tốt hơn nếu NaOH, có thể được sử dụng trong quy trình này ở dạng rắn. Theo phương án khác được ưu tiên của sáng chế, KOH hoặc NaOH được sử dụng ở dạng lỏng, ví dụ, được hòa tan trong dung môi, cụ thể là dưới dạng dung dịch nước. Phương án này là đặc biệt có lợi cho quy trình liên tục. Trong bản mô tả

này, dung dịch nước chứa KOH hoặc NaOH được sử dụng, trong đó tốt hơn nếu nồng độ của KOH hoặc NaOH nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng). Được ưu tiên đặc biệt là sử dụng dung dịch nước chứa NaOH, trong đó tốt hơn nếu nồng độ của NaOH nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng).

Cho hỗn hợp sản phẩm thu được sau bước a) phản ứng với bazơ khác theo bước b) sẽ tạo ra dung dịch (“sản phẩm TAA thô”) gồm pha hữu cơ và pha nước. Pha hữu cơ này bao gồm triaxeton amin. Pha nước có thể được để lại trong sản phẩm thô này và bước c) tiếp theo có thể thực hiện cùng với sự có mặt của pha nước này.

Trong ngữ cảnh của sáng chế, thuật ngữ “sản phẩm triaxeton amin thô” được dùng để chỉ dung dịch được tạo ra khi, ở bước b), hỗn hợp sản phẩm thu được ở bước a) được trộn với một bazơ khác. Dung dịch này gồm pha nước và pha hữu cơ.

Theo một phương án được ưu tiên khác của sáng chế, pha nước này có thể được tách riêng trước khi thực hiện bước c) tiếp theo và chỉ pha hữu cơ (“pha hữu cơ chứa sản phẩm TAA thô”) có thể được sử dụng trong quy trình tiếp theo. Bất ngờ, đã phát hiện ra rằng bằng cách tách riêng pha nước sau bước b) và xử lý tiếp pha hữu cơ chứa sản phẩm TAA thô thu được, do việc tách pha ở bước c) đến d) tiếp theo theo quy trình theo sáng chế, độ bền của TAA tăng lên. Điều này góp phần làm tăng hiệu suất của quy trình. Điều này là đặc biệt có lợi nếu, ở bước b), bazơ được bổ sung vào nhiều hơn cần thiết để khử hoạt tính chất xúc tác, tức là nhiều hơn 1 đương lượng mol bazơ, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

Theo phương án này [trong đó việc tách pha chỉ được thực hiện sau khi bổ sung bazơ khác vào ở bước b) và chỉ pha hữu cơ thu được của sản phẩm TAA thô được sử dụng ở bước c) tiếp theo], trong ngữ cảnh của sáng chế, thuật ngữ “sản phẩm triaxeton amin thô” ở bước c) được dùng để chỉ pha hữu cơ chứa sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước b).

Ở bước c) của quy trình này, việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô ở bước b) được thực hiện, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton. Do vậy, việc chiết ở bước d) không chỉ được thực hiện ở giai đoạn sản phẩm triaxeton amin thô chứa axeton, mà còn được thực hiện sau khi loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô. Về vấn đề này, bất ngờ đã phát hiện ra rằng việc chiết ở bước d) được thực hiện một cách hiệu quả hơn đáng kể sau khi loại bỏ axeton.

Trong ngữ cảnh của sáng chế, “việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước b)” có nghĩa là việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô hoặc pha hữu cơ chứa sản phẩm triaxeton amin thô, sao cho hàm lượng axeton nhỏ hơn 40% (% khối lượng), cụ thể là nhỏ hơn 20% (% khối lượng), tốt hơn nếu nhỏ hơn 15% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu nhỏ hơn 10% (% khối lượng), đặc biệt còn tốt hơn nếu nhỏ hơn 2,5% (% khối lượng), tốt nhất là nhỏ hơn 1,5% (% khối lượng), lý tưởng là nhỏ hơn 1% (% khối lượng) có mặt trong sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton thu được. Theo một phương án khác, hàm lượng axeton trong sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton là 20%, 19%, 18%, 17%, 16%, 15%, 14%, 13%, 12%, 11%, 10%, 9%, 8%, 7%, 6%, 5%, 4%, 3%, 2%, 1% (hàm lượng tính theo phần trăm khối lượng), tốt hơn nếu hàm lượng axeton càng nhỏ càng tốt.

Việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô có thể được thực hiện cụ thể bằng cách chưng cất. Việc chưng cất loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô có thể thực hiện, ví dụ, trong quá trình chưng cất ở áp suất khí quyển hoặc dưới áp suất thấp. Trong bản mô tả này, tất cả các thiết bị mà người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này đã biết có thể được sử dụng, ví dụ, lò phản ứng có khuấy, giàn bay hơi kiểu màng rơi hoặc thiết bị làm bay hơi kiểu màng mỏng, trong mỗi trường hợp cùng với cột chưng cất thích hợp hoặc thiết bị khác thích hợp để chưng cất. Việc chưng cất có thể được thực hiện theo cách gián đoạn hoặc liên tục, các điều kiện chưng cất và thời gian lưu chính xác được chọn sao cho có thể thu được hàm lượng axeton mong muốn ở đáy. Cụ thể, áp suất được sử dụng trong quá trình chưng cất nằm trong khoảng từ 0,4 – 2 bar (40-200 kPa).

Trong ngữ cảnh của sáng chế, thuật ngữ “sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton” dùng để chỉ dung dịch được tạo ra sau khi thực hiện bước c) nếu việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô được thực hiện ở bước c) của quy trình này.

Dấu hiệu đặc trưng của quy trình theo sáng chế là ở bước d) của quy trình này. Ở bước d), việc chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton thu được ở bước c) được thực hiện bằng cách bổ sung chất hỗ trợ, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết. Trong ngữ cảnh của sáng chế, thuật ngữ “sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết” được dùng để chỉ pha hữu cơ thu được ở bước d) mà chứa triaxeton amin. Chất hỗ trợ là bazơ. Trong bản mô tả này, đặc biệt còn tốt hơn nếu bazơ được sử dụng

ở bước d) của quy trình này tương ứng với bazơ được sử dụng ở bước b). Trong ngữ cảnh của sáng chế, “tương ứng” có nghĩa là bazơ giống nhau về mặt hóa học được sử dụng ở cả bước b) và d). Ví dụ, natri hydroxit được sử dụng ở cả bước b) và d).

Kết quả của kết cấu quy trình theo sáng chế, bước chiết được thực hiện ở giai đoạn sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton thu được ở bước c), mà không ở giai đoạn của sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước b) và vẫn chứa axeton.

Bất ngờ, đã thấy rằng việc chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton được thực hiện một cách hiệu quả hơn đáng kể so với việc chiết sản phẩm triaxeton amin thô mà vẫn chứa một lượng lớn axeton. Do vậy, lượng bazơ cần thiết có thể giảm xuống một cách đáng kể so với tình trạng kỹ thuật. Ngoài ra, điều này cho phép làm giảm lượng chất hữu cơ của pha nước thu được. Ưu điểm khác nữa là điều này cho phép sử dụng bazơ lỏng, ví dụ, dung dịch nước NaOH, ở bước d) của quy trình này với các ưu điểm nêu trên. Việc loại bỏ trực tiếp axeton ra khỏi hỗn hợp sản phẩm thu được sau bước a) của quy trình này là không thể như đã được mô tả do, ví dụ, việc chưng cất tốt hơn nếu được thực hiện để loại bỏ axeton sẽ làm, với sự có mặt của chất xúc tác có hoạt tính, phân hủy ít nhất một phần triaxeton amin. Bất ngờ, đã phát hiện ra rằng việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô tuy nhiên là có thể nếu chất xúc tác thu được trong sản phẩm triaxeton amin thô được khử hoạt tính bằng cách bổ sung bazơ. Sau khi khử hoạt tính chất xúc tác xảy ra ở bước b) của quy trình này, tốt hơn nếu việc chưng cất loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô tiếp đó có thể thực hiện ở bước c) của quy trình này. Sau bước c) của quy trình này, sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton được tạo ra như nêu trên, vẫn chứa muối và nước, cả trong trường hợp của phương án theo sáng chế nêu trên, trong đó việc tách pha được thực hiện giữa bước b) và d) của quy trình này và chỉ pha hữu cơ chứa sản phẩm triaxeton amin thô được sử dụng ở bước c) của quy trình này. Ở bước d) của quy trình này, dung dịch thu được sau bước c) của quy trình này tiếp đó được khử muối bằng cách bổ sung bazơ khác.

Trong ngữ cảnh của sáng chế, việc “khử muối” có nghĩa là muối được tạo ra trong quá trình khử hoạt tính chất xúc tác ở bước b) được loại bỏ ra khỏi dung dịch thu được ở bước c), cụ thể là đến trị số nhỏ hơn 250ppm, tốt hơn nếu nhỏ hơn 150ppm, đặc biệt tốt hơn nếu nhỏ hơn 100ppm, đặc biệt còn tốt hơn nếu nhỏ hơn 50ppm, tốt nhất là nhỏ hơn 25ppm, lý tưởng là nhỏ hơn 1ppm.

Lượng bazơ được bổ sung vào ở bước d) nằm trong khoảng từ 1,0 đến 6,0 đương lượng mol, tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1,0 đến 4,0 đương lượng mol, đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1,0 đương lượng mol đến 2,0 đương lượng mol, đặc biệt còn tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 1,0 đến 1,4 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a) của quy trình này. Tốt nhất là, bazơ được sử dụng ở bước d) của quy trình này với lượng là 1,2 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a) của quy trình này.

Bazơ được sử dụng có thể là bazơ bất kỳ mà người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này đã biết. Cụ thể, bazơ có thể được chọn từ nhóm bao gồm hydroxit kim loại kiềm, hydroxit kim loại kiềm thổ, cacbonat kim loại kiềm và cacbonat kim loại kiềm thổ. Các bazơ này có thể được sử dụng riêng biệt hoặc kết hợp. Các bazơ này có thể được sử dụng ở dạng rắn. Chúng cũng có thể được sử dụng ở dạng lỏng. Ví dụ, chúng có thể được sử dụng ở dạng dung dịch nước, trong đó tốt hơn nếu bazơ này có mặt với nồng độ nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu với nồng độ nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng).

Tốt hơn nếu bazơ là natri hydroxit (NaOH) hoặc kali hydroxit (KOH), đặc biệt tốt hơn nếu là natri hydroxit. Theo phương án khác được ưu tiên của sáng chế, KOH hoặc NaOH được sử dụng ở dạng lỏng, ví dụ, được hòa tan trong dung môi, tốt hơn nếu dưới dạng dung dịch nước. Phương án này là đặc biệt có lợi cho quy trình liên tục. Được đặc biệt ưu tiên là sử dụng dung dịch nước chứa KOH hoặc NaOH, trong đó nồng độ của KOH hoặc NaOH nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng). Được đặc biệt ưu tiên hơn nữa là sử dụng dung dịch nước chứa NaOH, trong đó nồng độ của NaOH nằm trong khoảng từ 40% đến 60% (% khối lượng), đặc biệt tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 45% đến 55% (% khối lượng).

Công đoạn chiết theo bước d) được thực hiện ở nhiệt độ tại đó cả hai pha là lỏng, cụ thể là ở nhiệt độ ít nhất là 20°C, tốt hơn nếu ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 20°C đến 99°C, đặc biệt tốt hơn nếu ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 45°C đến 90°C, đặc biệt còn tốt hơn nếu ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 45°C đến 80°C, tốt nhất là ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 45°C đến 65°C, và lý tưởng là ở nhiệt độ 60°C.

Công đoạn chiết này có thể thực hiện về nguyên tắc theo nhiều cách khác nhau, ví dụ, việc chiết có thể thực hiện cả theo cách gián đoạn lẫn cách liên tục. Trong trường hợp chiết gián đoạn, ví dụ, trộn dung dịch thu được ở bước c) với bazơ trong

bể khuấy, tiếp đó có thể thực hiện việc tách pha trong cùng thùng chứa hoặc thùng chứa thứ hai. Trong phương án liên tục, việc chiết có thể thực hiện bằng cách trộn dung dịch thu được ở bước c) với bazơ, ghép đôi với việc tách pha trong một hoặc nhiều thùng chứa trộn-lắng hoặc một hoặc nhiều cột chiết.

Các phương pháp chiết theo sáng chế được mô tả trong W.R.A. Vauck, H.A. Müller, Grundoperationen chemischer Verfahrenstechnik [Basic Operations of Chemical Processing Technology], 11th Edition, trang 787-805, trong đó phương pháp chiết ngược dòng được mô tả cụ thể ở các trang 792-794, và phương pháp chiết dòng giao nhau được mô tả cụ thể ở các trang 790-792.

Phương pháp chiết dòng giao nhau có thể thực hiện trong bản mô tả này trong ít nhất một giai đoạn, tốt hơn nếu trong ít nhất hai giai đoạn, đặc biệt tốt hơn nếu trong ít nhất là ba, đặc biệt còn tốt hơn nếu trong ít nhất là bốn giai đoạn. Đối với phương pháp chiết dòng giao nhau, thuật ngữ “giai đoạn” được dùng để chỉ việc vận hành riêng biệt, trong đó chất mang lỏng chất đầy chất chiết cần được chiết được trộn với chất chiết mới cho đến khi sự cân bằng giữa các phần được thiết lập, và sau đó được tách riêng bằng cách để lắng.

Phương pháp chiết ngược dòng có thể thực hiện trong ít nhất một giai đoạn tách theo lý thuyết, tốt hơn nếu trong ít nhất hai giai đoạn tách theo lý thuyết, đặc biệt tốt hơn nếu trong ít nhất ba giai đoạn tách theo lý thuyết, đặc biệt còn tốt hơn nếu trong ít nhất bốn giai đoạn tách theo lý thuyết. Đối với phương pháp chiết ngược dòng, thuật ngữ “giai đoạn tách theo lý thuyết” được dùng để chỉ việc trộn hai pha lỏng cùng với việc chuyển và tách chất chiết sau khi đạt được sự cân bằng giữa các pha.

Bước e) tùy ý của quy trình này khác biệt ở chỗ sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết thu được ở bước c) được tinh chế để thu được triaxeton amin. Tốt hơn, nếu việc tinh chế được thực hiện bằng cách chưng cất. Trong bản mô tả này, việc chưng cất có thể thực hiện theo từng mẻ hoặc liên tục. Được đặc biệt ưu tiên là chưng cất liên tục trong nhiều bước, cụ thể là trong ba bước, bao gồm việc tách riêng mesityl oxit/nước, tiếp theo tách riêng cặn nổi hơi trung gian và cuối cùng tinh chế TAA bằng cách chưng cất.

Không cần mô tả chi tiết hơn, giả thiết rằng người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này có thể sử dụng phần mô tả nêu trên trong phạm vi rộng nhất. Do đó, các phương án được ưu tiên và các ví dụ chỉ được hiểu là nhằm mô tả và không nhằm giới hạn phạm vi của sáng chế theo cách bất kỳ.

Sáng chế được minh họa dưới đây có dựa vào các ví dụ. Các phương án khác theo sáng chế thu được theo cách tương tự.

Ví dụ thực hiện sáng chế

1. Quy trình chung

A) Cho axeton phản ứng với amoniac với sự có mặt của chất xúc tác, tạo ra hỗn hợp sản phẩm

A1) Điều chế hỗn hợp sản phẩm theo quy trình theo mẻ – quy mô nhỏ

Nạp axeton (1000g, 17,2mol) và amoni nitrat (17,6g, 0,220mol) vào nồi hấp bằng thép dung tích 2L ở nhiệt độ trong phòng. Amoni (40,0g, 2,35mol) được đo ở dạng khí, và hỗn hợp này được gia nhiệt đến nhiệt độ 65°C và được khuấy ở nhiệt độ 65°C trong thời gian 6 giờ. Sau khi làm nguội đến nhiệt độ trong phòng, nồi hấp được giảm áp và sản phẩm thô (1050g) được lấy ra. Quy trình này tạo ra hỗn hợp sản phẩm đồng nhất có thành phần sau (Bảng 1):

Bảng 1: Thành phần của hỗn hợp sản phẩm thu được trong ví dụ A1. Dữ liệu tính theo % (% khối lượng)										
Nước	Amoni nitrat	Axeton	Mesityl oxit	Rượu diacetone	Diacetone amin	TMDH- pyridin	Axetonin	Phoron	TAA	Phần còn lại
8,61	1,67	51,18	2,85	0,60	1,88	1,97	1,79	0,06	25,03	4,41

Hỗn hợp sản phẩm được nêu trong bảng 1 là hỗn hợp mà được sử dụng tiếp trong Ví dụ 1-10.

A2) Điều chế hỗn hợp sản phẩm theo quy trình theo mẻ – quy mô lớn

Ngoài ra, hỗn hợp sản phẩm còn được điều chế trên quy mô lớn hơn. Nhằm mục đích này, nạp axeton (56,0kg, 964mol) và amoni nitrat (990g, 12,4mol) vào nồi hấp bằng thép dung tích 90L ở nhiệt độ trong phòng. Amoni (2,24kg, 132mol) được đo ở dạng khí, và hỗn hợp này được gia nhiệt đến nhiệt độ 65°C và được khuấy ở nhiệt độ 65°C trong thời gian 6 giờ. Sau khi làm nguội đến nhiệt độ trong phòng, nồi hấp được giảm áp và sản phẩm thô (59kg) được lấy ra. Quy trình này tạo ra sản phẩm thô đồng nhất có thành phần sau (Bảng 2):

Bảng 2: Thành phần của hỗn hợp sản phẩm thu được trong ví dụ A2. Dữ liệu tính theo % (% khối lượng)										
Nước	Amoni nitrat	Axeton	Mesityl oxit	Rượu diacetone	Diacetone amin	TMDH- pyridin	Axetonin	Phoron	TAA	Phần còn lại
9,34	1,63	50,23	2,15	0,55	1,69	2,04	0,84	0,06	27,39	4,08

A3) Điều chế hỗn hợp sản phẩm theo quy trình liên tục

Đối với quy trình liên tục, bể khuấy liên tục đun nóng được sử dụng trong đó axeton, amoniac và dung dịch amoni nitrat có thể được đo một cách liên tục. Dòng xả từ bể khuấy được cho đi qua lò hậu phản ứng có thể đun nóng được riêng biệt (1,6 L), có đặc tính dòng-ống. Vào thời điểm bắt đầu phản ứng, bể khuấy này được nạp lượng nguyên liệu ban đầu mong muốn và nhiệt độ mong muốn trong bể khuấy lẫn trong lò hậu phản ứng được thiết đặt. Việc bổ sung có định lượng nguyên liệu ban đầu được bắt đầu, và dòng xả phản ứng từ lò hậu phản ứng được gom lại. Về vấn đề này, tỷ lệ mol của nguyên liệu ban đầu trong quá trình nạp ban đầu tương ứng với tỷ lệ của nguyên liệu ban đầu trong quá trình bổ sung có định lượng dòng nạp liên tục. Tỷ lệ nguyên liệu ban đầu của axeton: amoniac = 7,33:1 và amoniac: amoni nitrat = 10,6:1 được chọn.

Tùy thuộc vào các thông số chính xác của phản ứng [nhiệt độ, thời gian lưu (residence time - RT) trong các lò phản ứng], thu được hỗn hợp sản phẩm được nêu trong Bảng 3 [5 thử nghiệm từ i) đến v) được tiến hành]:

Bảng 3: Điều chế liên tục TAA - Thành phần của hỗn hợp sản phẩm thu được trong ví dụ A3. Dữ liệu tính theo % (% khối lượng)

Thử nghiệm	Điều kiện phản ứng		Thành phần										Phần còn lại	
	lưu thời tính theo giờ	Nhiệt độ tính theo °C	Nước	Amoni nitrat	Axeton	Mesityl oxit	Diaxeton rượu	Diaxeton amin	TMDH- pyridin	Axetonin	Phoron	TAA		
i)	Bể khuấy	2,5	65	9,22	1,54	56,95	1,33	0,56	2,21	2,16	6,28	0,04	15,61	4,11
	Lò hậu phản ứng	2,5	65	10,03	1,56	52,75	2,01	0,78	2,05	2,93	2,99	0,05	20,27	4,58
ii)	Bể khuấy	2,5	65	9,17	1,55	57,23	1,19	0,50	3,02	1,68	6,33	0,02	15,95	3,36
	Lò hậu phản ứng	2,5	60	9,93	1,56	53,74	1,64	0,67	2,63	2,20	3,92	0,04	20,15	3,51
iii)	Bể khuấy	2,5	70	10,43	1,54	55,62	1,63	0,58	2,81	1,84	6,09	0,05	15,65	3,76
	Lò hậu phản ứng	2,5	60	10,98	1,55	52,44	1,98	0,74	2,41	2,38	3,78	0,05	19,19	4,51
iv)	Bể khuấy	3,0	65	9,38	1,55	57,30	1,20	0,47	2,97	1,60	6,14	0,04	16,17	3,19
	Lò hậu phản ứng	2,5	65	10,02	1,56	54,45	1,74	0,62	2,42	2,10	3,41	0,05	20,52	3,10
v)	Bể khuấy	2,5	65	8,03	1,55	60,00	0,93	0,41	3,18	1,44	6,45	0,04	14,72	3,26
	Lò hậu phản ứng	3,0	65	8,84	1,57	55,24	1,85	0,68	2,52	2,09	3,08	0,06	20,20	3,88

B) Phản ứng của hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A) với bazơ khác để tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô

Sản phẩm phản ứng thu được từ bước A1) [1000g, chứa 16,7g (0,208mol) amoni nitrat, 512g axeton và 250g TAA] được trộn với 20,0g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng) (0,250 mol; tương ứng với 1,20 đương lượng mol NaOH tính theo chất xúc tác). Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Quy trình này tạo ra 1018g sản phẩm triaxeton amin thô hai pha chứa 250g triaxeton amin. Sản phẩm này bao gồm 1001g pha hữu cơ (chứa 12,6g natri nitrat, 510g axeton và 249g TAA) và 17,0g pha nước (chứa 4,9g natri nitrat và 1,7g natri hydroxit).

C) Loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô, kết quả là thu được sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton

C1) Loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước B)

Hỗn hợp hai pha thu được từ bước B) được đun đến sôi ở áp suất khí quyển. Axeton được tách riêng bằng cột chưng cất (cột thủy tinh 30cm với bộ chia hơi và bình ngưng hồi lưu) (nhiệt độ đỉnh 57-62°C).

C2) Loại bỏ axeton theo phương án được ưu tiên để sử dụng pha hữu cơ của sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước B)

Pha hữu cơ của sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước B) được tách riêng. Sau đó, pha này được đun đến sôi dưới áp suất khí quyển. Axeton được tách riêng bằng cột chưng cất (cột thủy tinh 30cm với bộ chia hơi và bình ngưng hồi lưu) (nhiệt độ đỉnh 57-62°C).

D) Chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton thu được ở bước C) bằng cách bổ sung chất hỗ trợ để thu được sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết

D1) Quy trình chung để thực hiện bước chiết dòng giao nhau (hai hoặc ba giai đoạn)

Sản phẩm nạp là sản phẩm thô nghèo axeton thu được từ bước C1 hoặc C2. Sản phẩm này được tách ở nhiệt độ 60°C thành hai pha của nó (bước chiết thứ nhất). Pha hữu cơ được trộn với natri hydroxit, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15

phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Pha hữu cơ tùy ý được trộn một lần nữa với natri hydroxit, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ ba).

D2) Quy trình chung để thực hiện bước chiết ngược dòng (ba giai đoạn)

Sản phẩm nạp là sản phẩm thô nghèo axeton thu được từ bước C1) hoặc C2). Ở 60°C, bổ sung pha nước thu được từ bước chiết thứ hai vào sản phẩm này, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ nhất). Bổ sung pha nước thu được từ bước chiết thứ ba vào pha hữu cơ thu được, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Natri hydroxit được bổ sung vào pha hữu cơ thu được, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ ba). Việc bổ sung pha nước trong mỗi trường hợp từ bước chiết tiếp theo được thực hiện thích hợp từ thử nghiệm tương tự đã được thực hiện từ trước.

Cũng có thể thực hiện việc chiết ngược dòng hai giai đoạn hoặc nhiều giai đoạn theo cách tương tự với việc chiết ngược dòng ba giai đoạn này [như trong các Ví dụ G9), G10].

E) Ví dụ so sánh: Loại bỏ muối ra khỏi sản phẩm thô từ hỗn hợp sản phẩm mà không cần thực hiện bước B) và C) trên đây

E1) Quy trình chung để thực hiện bước chiết dòng giao nhau mà không cần thực hiện bước B) và C) trên đây

Sản phẩm nạp là hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1), A2) hoặc A3). Sản phẩm này được trộn ở nhiệt độ trong phòng với natri hydroxit, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ nhất). Pha hữu cơ được trộn lần thứ hai với natri hydroxit, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Tùy ý, pha hữu cơ được trộn lần thứ ba với natri hydroxit, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ ba).

E2) Quy trình chung để thực hiện bước chiết ngược dòng (ba giai đoạn)

Sản phẩm nạp là sản phẩm phản ứng thu được từ bước A1), A2) hoặc A3). Ở nhiệt độ trong phòng, bổ sung pha nước thu được từ bước chiết thứ hai vào sản phẩm này, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ nhất). Bổ sung pha nước thu được từ bước chiết thứ ba vào pha hữu cơ thu được, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Natri hydroxit được bổ sung vào pha hữu cơ thu được, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ ba).

Việc bổ sung pha nước tương ứng thu được từ bước chiết tiếp theo được thực hiện thích hợp ở bước này từ thử nghiệm tương tự đã được thực hiện trước.

Cũng có thể thực hiện việc chiết ngược dòng hai giai đoạn hoặc nhiều giai đoạn theo cách tương tự với việc chiết ngược dòng ba giai đoạn này [như trong Ví dụ G3), G4), G5)].

F) Các phương pháp đo

F1) Xác định hàm lượng nitrat

Ion nitrat được xác định bằng sắc ký ion theo tiêu chuẩn DIN EN ISO 10304. Thiết bị được sử dụng là máy sắc ký ion Metrohm với bộ dò độ dẫn điện. Cột được sử dụng là Metrohm Metrosep Anion Dual 2. Dung môi rửa giải được sử dụng là dung dịch nước chứa 2,0mmol NaHCO_3 , 1,3mmol Na_2CO_3 , 2% axeton. Vòng tiêm được sử dụng là 10 μl hoặc 100 μl (đối với các mẫu có trị số ngưỡng < 20mg/kg).

Khoảng hiệu chỉnh của vòng 10 μl là 0,5-100mg/l. Khoảng hiệu chỉnh của vòng 100 μl là 0,05-2,0mg/l.

F2) Xác định hàm lượng các hợp phần hữu cơ

Hàm lượng của tất cả các hợp phần hữu cơ được xác định bằng cách sử dụng sắc ký khí trên thiết bị sắc ký khí HP 5890. Cột được sử dụng là HP-50+, 30m $\times$ 0,25mm $\times$ 0,25mm. Khí mang được sử dụng là nitơ. Nhiệt độ của bộ dò là 280°C, nhiệt độ của kim phun là 250°C. Profin nhiệt độ là 50°C trong 2 phút, sau đó đun nóng với tốc độ 5°C/phút đến 260°C (0 phút).

F3) Xác định hàm lượng nước

Hàm lượng nước được xác định bằng phép chuẩn độ Karl-Fischer trên máy chuẩn độ Mettler Toledo V20 Volumetric Karl-Fischer. Dung dịch được sử dụng là Hydranal Composite 5K /Môi trường K.

G) Các ví dụ theo sáng chế và các ví dụ so sánh

G1) Ví dụ 1 (ví dụ so sánh; chiết dòng giao nhau ba lần từ hỗn hợp sản phẩm mà không loại bỏ axeton)

1kg hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) [Bảng 1; 250g TAA, 1,67% (% khối lượng) NH_4NO_3] được trộn ở nhiệt độ trong phòng với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ nhất). Quy trình này tạo ra 1001g pha hữu cơ OP1 [chứa 249g TAA và 1,26% (% khối lượng) NaNO_3] và 17g pha nước WP1 [chứa 28,8% (% khối lượng) NaNO_3]. OP1 được trộn một lần nữa ở nhiệt độ trong phòng với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Quy trình này tạo ra 960g pha hữu cơ OP2 [chứa 248g TAA và 0,53% (% khối lượng) NaNO_3] và pha nước WP2 [chứa 16,6% (% khối lượng) NaNO_3]. Sau đó, OP2 được trộn ở nhiệt độ trong phòng lần thứ ba với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ ba). Quy trình này tạo ra 932g pha hữu cơ OP3 [chứa 244g TAA và 1800ppm NaNO_3] và pha nước WP3 [chứa 7,9% (% khối lượng) NaNO_3].

Hàm lượng TAA trong OP3 được xác định bằng cách sắc ký khí và sắc ký ion là 244g TAA [97,6% tính theo hàm lượng TAA trong hỗn hợp sản phẩm thu được từ A1, được xác định bằng cách sắc ký khí]. Hàm lượng NaNO_3 trong OP3 là 1800ppm (được xác định bằng cách sắc ký ion). Hàm lượng này tương ứng với lượng nạp NaOH là 123g NaOH trên mỗi kg TAA đã tinh chế hoặc 3,61 đương lượng mol tính theo chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng.

Ví dụ 1 cho thấy rằng nếu không thực hiện việc loại bỏ axeton, việc sử dụng 3,61 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng ở bước

A1) là không đủ trong quy trình dòng giao nhau nhằm loại bỏ hoàn toàn NaNO_3 ra khỏi OP3.

G2) Ví dụ 2 (ví dụ so sánh; chiết dòng giao nhau ba lần từ hỗn hợp sản phẩm mà không loại bỏ axeton)

1kg hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) [Bảng 1; 250g TAA, 1,67% (% khối lượng) NH_4NO_3] được trộn ở nhiệt độ trong phòng với 15g NaOH rắn, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ nhất). Quy trình này tạo ra 972g pha hữu cơ OP1 [chứa 250g TAA và 0,71% (% khối lượng) NaNO_3] và pha nước WP1 [chứa 25,1% (% khối lượng) NaNO_3]. OP1 một lần nữa được trộn ở nhiệt độ trong phòng với 15g NaOH rắn, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Quy trình này tạo ra 925g pha hữu cơ OP2 [chứa 248g TAA và 0,12% (% khối lượng) NaNO_3] và 56,1g pha nước WP2 [chứa 10,3% (% khối lượng) NaNO_3]. Sau đó, OP2 được trộn ở nhiệt độ trong phòng lần thứ ba với 15g NaOH rắn, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ ba). Quy trình này tạo ra 895g pha hữu cơ OP3 [chứa 247g TAA, hàm lượng NaNO_3 là nhỏ hơn giới hạn dò] và pha nước WP3 [chứa 2,7% (% khối lượng) NaNO_3].

Hàm lượng TAA trong OP3 xác định được là 247g TAA [98,8% tính theo hàm lượng TAA trong hỗn hợp sản phẩm thu được từ A1, được xác định bằng cách sắc ký khí]. Hàm lượng NaNO_3 trong OP3 là nhỏ hơn giới hạn dò là $< 25\text{ppm}$; được xác định bằng cách sắc ký ion. Hàm lượng này tương ứng với lượng nạp NaOH là 182g NaOH trên mỗi kg TAA đã tinh chế hoặc 5,41 đương lượng mol tính theo chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng.

Việc so sánh giữa Ví dụ 1 và 2 cho thấy rằng trong trường hợp chiết dòng giao nhau việc làm nghèo NaNO_3 trong OP3 xuống dưới giới hạn dò mà không cần làm giảm hàm lượng axeton trong sản phẩm triaxeton amin thô chỉ có thể thực hiện được bằng cách sử dụng 182g NaOH trên mỗi kg TAA đã tinh chế hoặc 5,4 đương lượng mol [tính theo chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng trong A1)]. Ngoài ra, NaOH phải có mặt ở dạng rắn.

G3) Ví dụ 3 (ví dụ so sánh; chiết ngược dòng ba lần từ hỗn hợp sản phẩm mà không cần loại bỏ axeton)

Lượt thứ nhất:

Bước 1/1): 1kg hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) {Bảng 1; 250g TAA, 16,7g, [0,208mol, 1,67% (% khối lượng)] NH_4NO_3 } được trộn ở nhiệt độ trong phòng với pha nước tái tạo thứ nhất SWP1. SWP1 bao gồm 73,2 g nước, 14,8 g NaNO_3 , 20,0 g NaOH . Sau khi bổ sung SWP1 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/1 thu được được tách ra. Pha nước WP1/1* thu được được bỏ đi.

Bước 1/2): Sau đó, OP1/1 được trộn với pha nước tái tạo thứ hai SWP2. Pha nước tái tạo thứ hai SWP2 này bao gồm 50,0g nước, 6,1g NaNO_3 và 20,0g NaOH . Sau khi bổ sung SWP2 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/2 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/2*. Pha WP1/2* được lưu giữ.

Bước 1/3): Sau đó, OP1/2 được trộn với 20g NaOH rắn. Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/3 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/3* thu được. Pha WP1/3* được lưu giữ.

Bước 1/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP1/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ hai:

Bước 2/1): Lặp lại bước 1/1, ngoại trừ việc chiết được không được thực hiện với SWP1, mà với WP1/2* từ bước 1/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/1). Pha nước WP2/1* thu được được bỏ đi.

Bước 2/2): Sau đó, OP2/1 được trộn với WP1/3* từ bước 1/3 và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/2). Pha nước WP2/2* thu được được lưu giữ.

Bước 2/3): Lắp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP2/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP2/3 thu được. Pha nước WP2/3* thu được được lưu giữ.

Bước 2/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP2/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ ba:

Bước 3/1): Lắp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP2/2* từ bước 2/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/1). Pha nước WP3/1* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và triaxeton amin trong OP3/1 và WP3/1* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/2): Sau đó, OP3/1 được trộn với WP2/3* từ bước 2/3, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/2). Pha nước WP3/2* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và triaxeton amin trong OP3/2 và WP3/2* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/3): Lắp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP3/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP3/3 thu được. Pha nước WP3/3* thu được được lưu giữ.

Bước 3/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP3/3 và WP3/3* được xác định.

Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha hữu cơ OP3/1, OP3/2 và OP3/3 được xác định và được thể hiện trong bảng 4. Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha nước WP3/1*, WP3/2* và WP3/3* cũng được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Tóm lại, trong lượt thứ ba của ví dụ 3, 20g NaOH (rắn; 0,500mol) được sử dụng để chiết muối NaNO_3 (0,208mol) trong 1kg hỗn hợp sản phẩm. Do vậy, 2,40 đương lượng mol NaOH được tiêu thụ trên NaNO_3 có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, lần lượt thu được trực tiếp từ lượng chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng. Tính được so với lượng TAA có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, lượng natri hydroxit được sử dụng là 80 g NaOH/kg TAA. Trong pha hữu cơ OP3/3 thu được, trị số 800ppm NaNO_3 vẫn được thiết lập. Điều này cho thấy rằng lượng NaOH này là không đủ trong quá trình chiết ngược dòng nhằm loại bỏ NaNO_3 ra khỏi pha hữu cơ xuống dưới giới hạn dò nếu không thực hiện việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô.

G4) Ví dụ 4 (ví dụ so sánh; chiết ngược dòng ba lần từ hỗn hợp sản phẩm mà không loại bỏ axeton)

Lượt thứ nhất:

Bước 1/1): 1kg hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) {Bảng 1; 250g TAA, 16,7g, [0,208mol, 1,67% (% khối lượng)] NH_4NO_3 } được trộn ở nhiệt độ trong phòng với pha nước tái tạo thứ nhất SWP1. SWP1 bao gồm 89,3g nước, 15,2g NaNO_3 , 30,0g NaOH . Sau khi bổ sung SWP1 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/1 thu được được tách ra. Pha nước WP1/1* thu được được bỏ đi.

Bước 1/2): Sau đó, OP1/1 được trộn với pha nước tái tạo thứ hai SWP2. Pha nước tái tạo thứ hai SWP2 này bao gồm 62,5g nước, 6,3g NaNO_3 và 30,0g NaOH . Sau khi bổ sung SWP2 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/2 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/2*. Pha WP1/2* được lưu giữ.

Bước 1/3): Sau đó, OP1/2 được trộn với 30g NaOH rắn. Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/3 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/3* thu được. Pha WP1/3* được lưu giữ.

Bước 1/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP1/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ hai:

Bước 2/1): Lặp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP1/2* từ bước 1/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/1). Pha nước WP2/1* thu được được bỏ đi.

Bước 2/2): Sau đó, OP2/1 được trộn với WP1/3* từ bước 1/3 và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/2). Pha nước WP2/2* thu được được lưu giữ.

Bước 2/3): Lắp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP2/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP2/3 thu được. Pha nước WP2/3* thu được được lưu giữ.

Bước 2/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP2/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ ba:

Bước 3/1): Lắp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP2/2* từ bước 2/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/1). Pha nước WP3/1* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/1 và WP3/1* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/2): Sau đó, OP3/1 được trộn với WP2/3* từ bước 2/3, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/2). Pha nước WP3/2* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/2 và WP3/2* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/3): Lắp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP3/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP3/3 thu được. Pha nước WP3/3* thu được được lưu giữ.

Bước 3/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP3/3 và WP3/3* được xác định.

Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha hữu cơ OP3/1, OP3/2 và OP3/3 được xác định và được thể hiện trong bảng 4. Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha nước WP3/1*, WP3/2* và WP3/3* cũng được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Tóm lại, trong lượt thứ ba của ví dụ 4, 30g NaOH (rắn; 0,750mol) được sử dụng để chiết muối NaNO_3 (0,208mol) trong 1kg hỗn hợp sản phẩm. Do vậy, 3,61 đương lượng mol NaOH được tiêu thụ trên NaNO_3 có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, lần lượt thu được trực tiếp từ lượng chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng. Tính toán theo lượng TAA đã tinh chế, lượng NaOH được sử dụng là 121g NaOH/kg TAA. Trong pha hữu cơ OP3/3 thu được, trị số của NaNO_3 được thiết lập, là nhỏ hơn giới hạn dò là 25ppm. Điều này cho thấy rằng chỉ một lượng 3,6 đương lượng mol NaOH (rắn; tính theo lượng chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm) là đủ trong quá trình chiết ngược dòng nhằm loại bỏ NaNO_3 ra khỏi pha hữu cơ xuống dưới

giới hạn dò nếu không thực hiện việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô.

G5) Ví dụ 5 (ví dụ so sánh; chiết ngược dòng ba lần từ hỗn hợp sản phẩm mà không loại bỏ axeton)

Lượt thứ nhất:

Bước 1/1): 1kg hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) {Bảng 1; 250g TAA, 16,7g, [0,208mol, 1,67% (% khối lượng)] NH_4NO_3 } được trộn ở nhiệt độ trong phòng với pha nước tái tạo thứ nhất SWP1. SWP1 bao gồm 166,0g nước, 8,5g NaNO_3 , 30,0g NaOH . Sau khi bổ sung SWP1 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/1 thu được được tách ra. Pha nước WP1/1* thu được được bỏ đi.

Bước 1/2): Sau đó, OP1/1 được trộn với pha nước tái tạo thứ hai SWP2. Pha nước tái tạo thứ hai SWP2 này bao gồm 76,0g nước, 1,5g NaNO_3 và 30,0g NaOH . Sau khi bổ sung SWP2 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/2 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/2*. Pha WP1/2* được lưu giữ.

Bước 1/3): Sau đó, OP1/2 được trộn với 60g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng). Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng và pha hữu cơ OP1/3 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/3* thu được. Pha WP1/3* được lưu giữ.

Bước 1/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP1/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ hai:

Bước 2/1): Lặp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP1/2* từ bước 1/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/1). Pha nước WP2/1* thu được được bỏ đi.

Bước 2/2): Sau đó, OP2/1 được trộn với WP1/3* từ bước 1/3 và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/2). Pha nước WP2/2* thu được được lưu giữ.

Bước 2/3): Lặp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP2/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP2/3 thu được. Pha nước WP2/3* thu được được lưu giữ.

Bước 2/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP2/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ ba:

Bước 3/1): Lặp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP2/2* từ bước 2/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/1). Pha nước WP3/1* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/1 và WP3/1* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/2): Sau đó, OP3/1 được trộn với WP2/3* từ bước 2/3, và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/2). Pha nước WP3/2* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/2 và WP3/2* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/3): Lặp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP3/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP3/3 thu được. Pha nước WP3/3* thu được được lưu giữ.

Bước 3/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP3/3 được xác định.

Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha hữu cơ OP3/1, OP3/2 và OP3/3 được xác định và được thể hiện trong bảng 4. Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha nước WP3/1*, WP3/2* và WP3/3* cũng được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Tóm lại, trong lượt thứ ba của ví dụ 5, 30g NaOH (0,750mol) được sử dụng để chiết muối NaNO_3 (0,208mol) trong 1kg hỗn hợp sản phẩm. Tuy nhiên, trái với ví dụ 4, nó được bổ sung ở dạng dung dịch nước 50% (% khối lượng). Vì vậy, tỷ lệ này tương ứng với tỷ lệ 3,61 đương lượng mol NaOH trên chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm. Tính toán theo lượng TAA có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, lượng NaOH được sử dụng là 121g NaOH/kg TAA. Trong pha hữu cơ OP3/3 thu

được, trị số 600ppm của NaNO_3 được thiết lập. Điều này cho thấy rằng trong ví dụ so sánh 4, chỉ có thể làm giảm hàm lượng NaNO_3 trong pha hữu cơ xuống dưới giới hạn dò bằng cách sử dụng 3,6 đương lượng NaOH rắn.

G6) Ví dụ 6 (ví dụ theo sáng chế; chiết dòng giao nhau ba lần từ sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton cùng với việc loại bỏ axeton)

Hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) (1kg, chứa 16,7g (0,208mol) amoni nitrat, 512g axeton và 250g TAA) được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng) (10g NaOH , 0,250mol, 1,2 đương lượng mol NaOH , tính theo chất xúc tác amoni nitrat). Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô. Hỗn hợp này được đem chưng cất axeton. Trong bản mô tả này, việc đun nóng được thực hiện đến sôi dưới áp suất khí quyển và axeton được tách riêng bằng cột chưng cất (cột thủy tinh 30cm với bộ chia hơi và bình ngưng hồi lưu) (nhiệt độ đỉnh 57 - 62°C).

Quy trình này tạo ra 420g sản phẩm chưng cất, ngoài axeton, bao gồm một lượng vết nước [0,9% (% khối lượng)] và 0,05% (% khối lượng) mesityl oxit. Phân cặn thu được là 578g hỗn hợp hai pha bao gồm 90g axeton và 240g TAA. Vì vậy, hàm lượng axeton của sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton là 16% (% khối lượng).

Hỗn hợp hai pha này được tách riêng hai pha của nó ở nhiệt độ 60°C, tạo ra 545g pha hữu cơ OP1 [chứa 240g TAA và 1,5% (% khối lượng) NaNO_3] và 30,9g pha nước WP1 [chứa 26,3% (% khối lượng) NaNO_3]. Pha hữu cơ được tách riêng (bước chiết thứ nhất) và được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Quy trình này tạo ra 501g pha hữu cơ OP2 [chứa 237g TAA và 0,33% (% khối lượng) NaNO_3] và 57,9g pha nước WP2 [chứa 16,2% (% khối lượng) NaNO_3]. OP2 được trộn một lần nữa ở nhiệt độ 60°C với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ ba). Quy trình này tạo ra 475g pha hữu cơ OP3 (chứa 237g TAA và 500ppm NaNO_3) và 39,7g pha nước WP3 [chứa 3,2% (% khối lượng) NaNO_3].

Hàm lượng TAA trong OP3 được xác định bằng cách sắc ký khí và sắc ký ion là 244g TAA [98,8% tính theo hàm lượng TAA trong hỗn hợp sản phẩm A1, được xác

định bằng cách sắc ký khí]. Hàm lượng NaNO_3 trong OP3 là 500ppm (được xác định bằng cách sắc ký ion). Hàm lượng này tương ứng với lượng nạp NaOH là 127g NaOH trên mỗi kg TAA đã tinh chế hoặc 3,6 đương lượng mol NaOH tính theo chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng. Ví dụ này chứng minh tác dụng của việc loại bỏ axeton đến hàm lượng NaNO_3 trong dung dịch này. Ở hàm lượng axeton 16% trong cặn chung cất hai pha, 500ppm NaNO_3 vẫn còn lại trong pha hữu cơ OP3 sau khi chiết.

G7) Ví dụ 7 (ví dụ theo sáng chế; chiết dòng giao nhau ba lần từ sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton cùng với việc loại bỏ axeton)

Hỗn hợp sản phẩm của quá trình điều chế TAA từ bước A1) [1kg, chứa 16,7g (0,208mol) amoni nitrat, 512g axeton và 250g TAA] được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng) (10g NaOH, 0,250mol, 1,2 đương lượng mol NaOH, tính theo chất xúc tác amoni nitrat), thu được sản phẩm triaxeton amin thô. Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Hỗn hợp thu được được đem chưng cất axeton. Trong bản mô tả này, hỗn hợp này được đun đến sôi dưới áp suất khí quyển và axeton được tách riêng bằng cột chưng cất (cột thủy tinh 30cm với bộ chia hơi và bình ngưng hồi lưu) (nhiệt độ đỉnh 57 - 62°C).

Quy trình này tạo ra 490g sản phẩm chưng cất, ngoài axeton, bao gồm một lượng vết nước [(1,1% (% khối lượng))] và 0,3% (% khối lượng) mesityl oxit. Thu được ở dạng cặn là sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton, 528g hỗn hợp hai pha, bao gồm 19g axeton và 235g TAA. Vì vậy, hàm lượng axeton trong phần cặn là 3,6% (% khối lượng).

Hỗn hợp hai pha này được tách riêng hai pha của nó ở nhiệt độ 60°C, tạo ra 444g pha hữu cơ OP1 [chứa 233g TAA và 0,30% (% khối lượng) NaNO_3] và 80,4g pha nước WP1 [chứa 26,3% (% khối lượng) NaNO_3]. Pha hữu cơ được tách riêng (bước chiết thứ nhất) và được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Quy trình này tạo ra 417g pha hữu cơ OP2 (chứa 232g TAA và 300ppm NaOH) và 42,3g pha nước WP2 [chứa 3,3% (% khối lượng) NaNO_3]. OP2 được trộn một lần nữa ở nhiệt độ 60°C với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra

(bước chiết thứ ba). Quy trình này tạo ra 399g pha hữu cơ OP3 (chứa 228g TAA và < 25ppm NaNO_3) và 31,5g pha nước WP3 [chứa 0,3% (% khối lượng) NaNO_3].

Hàm lượng TAA trong OP3 được xác định bằng cách sắc ký khí và sắc ký ion. Vì vậy, OP3 bao gồm 228g TAA [97,0% tính theo hàm lượng TAA trong hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1, được xác định bằng cách sắc ký khí]. Hàm lượng NaNO_3 trong OP3 là nhỏ hơn giới hạn dò là 25ppm (được xác định bằng cách sắc ký ion). Hàm lượng này tương ứng với lượng nạp NaOH là 132g NaOH trên mỗi kg TAA đã tinh chế hoặc 3,61 đương lượng mol NaOH, tính theo chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng. Ví dụ này chứng minh tác dụng của việc loại bỏ axeton đến hàm lượng NaNO_3 trong dung dịch này. Ở hàm lượng axeton 16% trong cặn chưng cất hai pha, 500ppm NaNO_3 vẫn còn lại trong pha hữu cơ OP3 sau khi chiết, trong khi nếu hàm lượng axeton giảm xuống 3,6% (% khối lượng) trong sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton, trong các điều kiện tương tự như trong ví dụ này, phân đoạn NaNO_3 trong pha OP3 giảm xuống dưới giới hạn dò.

G8) Ví dụ 8 (ví dụ theo sáng chế; chiết dòng giao nhau hai lần từ sản phẩm TAA thô nghèo axeton)

Hỗn hợp sản phẩm của quá trình điều chế TAA từ A1 [1kg, chứa 16,7g (0,208mol) amoni nitrat, 512g axeton và 250g TAA] được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng) (10g NaOH, 0,250mol, 1,2 đương lượng mol NaOH, tính theo chất xúc tác amoni nitrat). Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Hỗn hợp thu được được đem chưng cất axeton. Trong bản mô tả này, hỗn hợp này được đun đến sôi dưới áp suất khí quyển và axeton được tách riêng bằng cột chưng cất (nhiệt độ đỉnh 57 – 62°C).

Quy trình này tạo ra 490g sản phẩm chưng cất, ngoài axeton, bao gồm một lượng vết nước [1,1% (% khối lượng)] và 0,3% (% khối lượng) mesityl oxit. Phần cặn thu được là 528g hỗn hợp hai pha, sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton, bao gồm 19g axeton và 235g TAA. Vì vậy, hàm lượng axeton trong phần cặn là 3,6% (% khối lượng).

Hỗn hợp hai pha này được tách riêng hai pha của nó ở nhiệt độ 60°C, tạo ra 441g pha hữu cơ OP1 [chứa 234g TAA và 0,27% (% khối lượng) NaNO_3] và 81g pha

nước WP1 [chứa 21,7% (% khối lượng) NaNO_3]. Pha hữu cơ được tách riêng (bước chiết thứ nhất) và được trộn với 40g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng), và hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và các pha được tách ra (bước chiết thứ hai). Quy trình này tạo ra 405g pha hữu cơ OP2 (chứa 231g TAA và 110ppm NaNO_3) và 69,4g pha nước WP2 [chứa 1,92% (% khối lượng) NaNO_3].

Hàm lượng TAA trong OP2 được xác định bằng cách sắc ký khí và sắc ký ion. Vì vậy, OP2 bao gồm 231g TAA [98,3% tính theo hàm lượng TAA trong hỗn hợp sản phẩm A1, được xác định bằng cách sắc ký khí]. Hàm lượng NaNO_3 trong OP2 là 110ppm (được xác định bằng cách sắc ký ion). Hàm lượng này tương ứng với lượng nạp NaOH là 130g NaOH trên mỗi kg TAA đã tinh chế hoặc 3,61 đương lượng mol NaOH, tính theo chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng. Ví dụ này chứng minh rằng có lợi khi thực hiện quá trình chiết dòng giao nhau ba giai đoạn để loại bỏ hoàn toàn NaNO_3 ra khỏi pha hữu cơ.

G9) Ví dụ 9 (ví dụ theo sáng chế; chiết ngược dòng ba lần từ hỗn hợp sản phẩm cùng với việc loại bỏ axeton)

Hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) (1kg, chứa 16,7g (0,208mol) amoni nitrat, 512g axeton và 250g TAA) được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng) (10g NaOH, 0,250mol, 1,2 đương lượng mol NaOH, tính theo chất xúc tác amoni nitrat). Sản phẩm triaxeton amin thô này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Hỗn hợp thu được được đem chưng cất axeton. Trong bản mô tả này, hỗn hợp này được đun đến sôi dưới áp suất khí quyển và axeton được tách riêng bằng cột chưng cất (nhiệt độ đỉnh 57 - 62°C). Ngay khi axeton không còn đi qua cột, quá trình chưng cất kết thúc. Thu được 490g sản phẩm chưng cất, ngoài axeton, bao gồm một lượng vết nước [1,1% (% khối lượng)] và 0,3% (% khối lượng) mesityl oxit. Phần cặn thu được là 528g hỗn hợp hai pha, sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton, bao gồm 19g axeton và 235g TAA. Vì vậy, hàm lượng axeton trong phần cặn là 3,6% (% khối lượng). Sau đó, phần cặn được đưa vào bước chiết ngược dòng, được thực hiện ở nhiệt độ 60°C, và quy trình này là như sau:

Lượt thứ nhất:

Bước 1/1): 528g hỗn hợp hai pha [235g TAA, 17,7 g (0,208mol, 3,35 % khối lượng) NaNO_3] được trộn ở nhiệt độ 60°C với pha nước tái tạo thứ nhất SWP1. SWP1 bao gồm 70,0g nước, 14,0g NaNO_3 , 10,0g NaOH. Sau khi bổ sung SWP1 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và pha hữu cơ OP1/1 thu được được tách ra. Pha nước WP1/1* thu được được bỏ đi.

Bước 1/2): Sau đó, OP1/1 được trộn với pha nước tái tạo thứ hai SWP2. Pha nước tái tạo thứ hai SWP2 này bao gồm 40,0g nước, 6,0g NaNO_3 và 10,0g NaOH. Sau khi bổ sung SWP2 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ 60°C và pha hữu cơ OP1/2 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/2*. Pha WP1/2* được lưu giữ.

Bước 1/3): Sau đó, OP1/2 được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng). Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ 60°C và pha hữu cơ OP1/3 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/3* thu được. Pha WP1/3* được lưu giữ.

Bước 1/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP1/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ hai:

Bước 2/1): Lặp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP1/2* từ bước 1/2. Pha hữu cơ mới (OP2/1) thu được. Pha nước WP2/1* thu được được bỏ đi.

Bước 2/2): OP2/1 được chiết bằng WP1/3* từ bước 1/3. Pha hữu cơ mới (OP2/2) thu được. Pha nước WP2/2* thu được được lưu giữ.

Bước 2/3): Lặp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP2/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP2/3 thu được. Pha nước WP2/3* thu được được lưu giữ.

Bước 2/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP2/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ ba:

Bước 3/1): Lặp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP2/2* từ bước 2/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/1). Pha nước WP3/1*

thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/1 và WP3/1* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/2): OP3/1 được chiết bằng WP2/3* từ bước 2/3. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/2). Pha nước WP3/2* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/2 và WP3/2* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/3): Lặp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP3/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP3/3 thu được. Pha nước WP3/3* thu được được lưu giữ.

Bước 3/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP3/3 được xác định.

Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha hữu cơ OP3/1, OP3/2 và OP3/3 được xác định và được thể hiện trong bảng 4. Tương tự, hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha nước WP3/1*, WP3/2* và WP3/3* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Tóm lại, trong lượt thứ ba của ví dụ 9, 20g NaOH [ở dạng dung dịch nước 50% (% khối lượng); 0,500mol] được sử dụng, với 10g NaOH được sử dụng để khử hoạt tính và 10g NaOH nữa được sử dụng để chiết muối NH_4NO_3 (0,208mol) trong 1kg hỗn hợp sản phẩm. Vì vậy, tỷ lệ này tương ứng với tỷ lệ 2,40 đương lượng mol NaOH trên NH_4NO_3 có mặt trong hỗn hợp sản phẩm. Tính toán theo lượng TAA (235 g) thu được từ căn hai pha, lượng NaOH được sử dụng là 87g NaOH/kg TAA. Trong pha hữu cơ OP3/3 thu được, không thể biết chắc có NaNO_3 hay không; trị số này nhỏ hơn giới hạn dò, tức là < 25ppm. Điều này cho thấy rằng việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm TAA thô và chiết sản phẩm TAA thô nghèo axeton với hàm lượng axeton là 3,6% (% khối lượng), lượng 2,40 đương lượng NaOH, tính theo lượng NaNO_3 có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, là đủ để loại bỏ NaNO_3 ra khỏi pha hữu cơ xuống dưới giới hạn dò.

G10) Ví dụ 10 (ví dụ theo sáng chế; chiết ngược dòng ba lần từ hỗn hợp sản phẩm cùng với việc loại bỏ axeton và sử dụng pha hữu cơ chứa sản phẩm triaxeton amin thô)

Hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước A1) [1kg, chứa 16,7g (0,208mol) amoni nitrat, 512g axeton và 250g TAA] được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng)

khối lượng) (10g NaOH, 0,250mol, 1,2 đương lượng mol NaOH, tính theo chất xúc tác amoni nitrat). Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ trong phòng. Quy trình này tạo ra 1001g pha hữu cơ (chứa 12,6g NaNO_3 , 510g axeton, 249g TAA) và 17,0g pha nước (chứa 4,9g NaNO_3 , 1,7g NaOH). Pha hữu cơ chứa sản phẩm triaxeton amin thô được tách ra khỏi pha nước và được đun đến sôi dưới áp suất khí quyển. Axeton được tách riêng bằng cột chưng cất (nhiệt độ đỉnh 57 - 62°C). Ngay khi axeton không còn đi qua cột, quá trình chưng cất kết thúc. Quy trình này tạo ra 488g sản phẩm chưng cất, ngoài axeton, bao gồm một lượng vết nước [0,9% (% khối lượng)] và cả 0,3% (% khối lượng) mesityl oxit. Phần cặn thu được là 531g hỗn hợp hai pha bao gồm 22g axeton và 247g TAA. Vì vậy, hàm lượng axeton trong phần cặn là 4,1% (% khối lượng).

Sau đó, phần cặn được đưa vào bước chiết ngược dòng, được thực hiện ở nhiệt độ 60°C, và quy trình này là như sau:

Lượt thứ nhất:

Bước 1/1): 531g hỗn hợp hai pha [247g TAA, 17,7 g (0,208mol, 3,35% khối lượng) NaNO_3] được trộn ở nhiệt độ 60°C với pha nước tái tạo thứ nhất SWP1. SWP1 bao gồm 60,0g nước, 4,6g NaNO_3 , 10,0g NaOH. Sau khi bổ sung SWP1 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút và pha hữu cơ OP1/1 thu được được tách ra. Pha nước WP1/1* thu được được bỏ đi.

Sau đó, bước 1/2) OP1/1 được trộn với pha nước tái tạo thứ hai SWP2. Pha nước tái tạo thứ hai SWP2 này bao gồm 30,0g nước, 0,6g NaNO_3 và 10,0g NaOH. Sau khi bổ sung SWP2 vào, hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ 60°C và pha hữu cơ OP1/2 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/2*. Pha WP1/2* được lưu giữ.

Sau đó, bước 1/3) OP1/2 được trộn với 20g dung dịch nước NaOH 50% (% khối lượng). Hỗn hợp này được khuấy trong thời gian 15 phút ở nhiệt độ 60°C và pha hữu cơ OP1/3 thu được được tách ra khỏi pha nước WP1/3* thu được. Pha WP1/3* được lưu giữ.

Bước 1/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP1/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ hai:

Bước 2/1): Lắp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP1/2* từ bước 1/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/1). Pha nước WP2/1* thu được được bỏ đi.

Bước 2/2): OP2/1 được chiết bằng WP1/3* từ bước 1/3. Pha hữu cơ mới thu được (OP2/2). Pha nước WP2/2* thu được được lưu giữ.

Bước 2/3): Lắp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP2/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP2/3 thu được. Pha nước WP2/3* thu được được lưu giữ.

Bước 2/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP2/3 được xác định (không được thể hiện trong bảng 4).

Lượt thứ ba:

Bước 3/1): Lắp lại bước 1/1, ngoại trừ không thực hiện việc chiết bằng SWP1, mà bằng WP2/2* từ bước 2/2. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/1). Pha nước WP3/1* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/1 và WP3/1* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/2): OP3/1 được chiết bằng WP2/3* từ bước 2/3. Pha hữu cơ mới thu được (OP3/2). Pha nước WP3/2* thu được được lưu giữ. Hàm lượng NaNO_3 và TAA trong OP3/2 và WP3/2* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Bước 3/3): Lắp lại bước 1/3, ngoại trừ pha OP3/2 được sử dụng thay cho OP1/2. Pha hữu cơ mới OP3/3 thu được. Pha nước WP3/3* thu được được lưu giữ.

Bước 3/4): Hàm lượng TAA và NaNO_3 trong OP3/3 được xác định.

Hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha hữu cơ OP3/1, OP3/2 và OP3/3 được xác định và được thể hiện trong bảng 4. Tương tự, hàm lượng của NaNO_3 và TAA trong các pha nước WP3/1*, WP3/2* và WP3/3* được xác định và được thể hiện trong bảng 4.

Tóm lại, trong lượt thứ ba của ví dụ 10, 20g NaOH [ở dạng dung dịch nước 50% (% khối lượng); 0,500mol] được sử dụng, với 10g NaOH được sử dụng để khử hoạt tính và 10 g nữa được sử dụng để chiết muối NaNO_3 (0,208mol) trong 1kg hỗn

hợp sản phẩm. Vì vậy, tỷ lệ này tương ứng với tỷ lệ mol 2,40 đương lượng mol NaOH trên NaNO_3 có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, lần lượt thu được trực tiếp từ lượng chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng. Tính toán theo lượng TAA thu được từ căn hai pha (235g), vì vậy lượng NaOH được sử dụng là 82g NaOH/kg TAA. Không thể biết chắc có NaNO_3 trong pha hữu cơ OP3/3 thu được hay không; trị số này nhỏ hơn giới hạn dò, tức là $< 25\text{ppm}$. Điều này cho thấy rằng khi sử dụng pha hữu cơ chứa sản phẩm triaxeton amin thô và loại bỏ axeton ra khỏi pha hữu cơ của sản phẩm triaxeton amin thô cùng với việc làm giảm hàm lượng axeton xuống 4,1% (% khối lượng), lượng 2,40 đương lượng NaOH, tính theo lượng NaNO_3 có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, là đủ để loại bỏ NaNO_3 ra khỏi pha hữu cơ OP3 xuống dưới giới hạn dò.

Ngoài ra, việc so sánh giữa các ví dụ so sánh 9 và 10 cho thấy rằng hiệu suất TAA, tính theo sản phẩm từ quá trình tổng hợp TAA, (97,9% so với 99,2% trong ví dụ so sánh 9 hoặc 10) là cao hơn nếu thực hiện việc tách pha trước khi chiết ngược dòng và chỉ pha hữu cơ được cho qua bước chiết ngược dòng.

Đối với tất cả các ví dụ theo sáng chế trong đó thực hiện bước chiết ngược dòng (ví dụ 9 và 10), lượng NaOH được sử dụng, tính theo lượng TAA thu được, lần lượt là 87g hoặc 82 [g NaOH được sử dụng trên mỗi kg triaxeton amin thu được]. Trái lại, trị số này trong quy trình ngược dòng theo JP2003-206277 là 169 [g TAA/kg TAA]. Quy trình này được nêu chi tiết trong bảng 4 trong ví dụ 11. Kết quả này chứng tỏ rằng quy trình theo sáng chế có ưu điểm bất ngờ so với quy trình được mô tả trong JP2003-06277 là có thể loại bỏ muối ra khỏi pha hữu cơ bằng cách sử dụng chỉ một nửa lượng NaOH.

Kết quả bất ngờ này cũng là hiển nhiên khi so sánh với các ví dụ 1 đến 5. Do vậy, không thể thực hiện việc chiết ngược dòng theo ví dụ 4 để làm giảm NaNO_3 trong pha hữu cơ OP3 xuống dưới giới hạn dò bằng cách sử dụng 2,4 đương lượng mol NaOH (tính theo chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm). Còn lại 800ppm hàm lượng cặn. Trái lại, trong các ví dụ 9 và 10, có thể làm giảm hàm lượng NaNO_3 trong pha hữu cơ xuống dưới giới hạn dò bằng cách sử dụng 2,4 đương lượng mol NaOH (tính theo chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm).

Không cần loại bỏ axeton, quy trình này được thực hiện chỉ bằng cách sử dụng 3,61 đương lượng mol NaOH (tính theo chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn

hợp sản phẩm) và thậm chí sau đó, nếu chỉ sử dụng NaOH rắn (ví dụ 4). 2,4 đương lượng mol NaOH (tính theo chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm) là không đủ (ví dụ 3). Khi sử dụng dung dịch nước chứa NaOH (ví dụ 5), việc làm giảm NaNO_3 trong pha hữu cơ OP3 là không thực hiện được thậm chí với 3,61 đương lượng mol NaOH tính theo chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm. Ngoài ra, điều này là điều hiển nhiên khi so sánh với các ví dụ 1 đến 5, vì quy trình theo sáng chế có thể làm giảm một cách đáng kể việc sử dụng NaOH [tính theo chất xúc tác amoni nitrat được sử dụng ở bước A1)].

Điều hiển nhiên khi so sánh ví dụ 7 với các ví dụ 1 và 2 trong trường hợp chiết dòng giao nhau mà không loại bỏ axeton, là chỉ cần sử dụng 5,41 đương lượng mol NaOH, được sử dụng dưới dạng NaOH rắn, tính theo chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, để làm giảm NaNO_3 trong pha hữu cơ OP3 xuống dưới giới hạn dò (ví dụ 2). Khi sử dụng 3,61 đương lượng mol NaOH, được sử dụng ở dạng dung dịch nước, tính theo chất xúc tác amoni nitrat có mặt trong hỗn hợp sản phẩm, quy trình này không được thực hiện (ví dụ 1).

Do vậy, quy trình theo sáng chế cho phép loại bỏ muối một cách hiệu quả hơn ra khỏi pha hữu cơ do quy trình này được thực hiện bằng cách sử dụng NaOH với lượng được giảm một cách đáng kể. Điều này cho phép tiết kiệm đáng kể nguyên liệu và nhờ đó đạt được mục đích của sáng chế. Các kết quả được tóm tắt trong bảng 4.

Bảng 4: Dữ liệu thử nghiệm liên quan đến các thử nghiệm được thực hiện trong các ví dụ 1-10 (các ví dụ 1-5 được thực hiện mà không loại bỏ axeton ở bước C; dữ liệu “%” có nghĩa là tỷ lệ phần trăm tính theo khối lượng)										
Ví dụ/ trình tự/ chú thích	Thông số	Bước chiết thứ nhất		Bước chiết thứ hai		Bước chiết thứ ba		Toàn bộ quy trình		
		Nguyên liệu nạp	Các pha thu được	Nguyên liệu nạp	Các pha thu được	Nguyên liệu nạp	Các pha thu được	Hiệu suất TAA [tính theo sản phẩm thu được từ A1]	NaOH nạp [mol/mol NH ₄ NO ₃ -chất xúc tác]	NaOH nạp [g/kg TAA]
1./A1-E1/ 3 x dòng giao nhau; sử dụng dung dịch NaOH	Pha/ Chất	từ (A1)	NaOH (50%)	OP1	WP1					
	Khối lượng [g]	1000	20	1001	17					
	Hàm lượng TAA [g]	250	-	249	-					
	Hàm lượng NaNO ₃	1,67% NH ₄ NO ₃ ²⁾	-	1,26%	28,8%					
2./A1-E1/ 3 x dòng giao nhau; sử dụng NaOH rắn	Pha/ Chất	từ (A1)	NaOH (rắn)	OP1	WP1					
	Khối lượng [g]	1000	15	972	42,1					
	Hàm lượng TAA [g]	250	-	250	-					
	Hàm lượng NaNO ₃	1,67% NH ₄ NO ₃ ²⁾	-	0,71%	25,1%					
3./A1-E2/ 3 x ngược dòng; sử dụng NaOH rắn; chỉ lượt 3 được thể hiện	Pha/ Chất	từ (A1)	WP2/2*	OP3/1	WP3/1*					
	Khối lượng [g]	1000	WP2/2*	1024	83,5					
	Hàm lượng TAA [g]	250	-	250	-					
	Hàm lượng NaNO ₃	1,67% NH ₄ NO ₃ ²⁾	-	1,27%	20,4%					
						</				

4./ A1-E2/ 3 x ngược dòng; sử dụng NaOH rắn; chỉ lượt 3 được thể hiện	Pha/ Chất	từ (A1)	OP3/1	WP3/1*	OP3/2	WP3/2*	NaOH (rắn)	OP3/3	WP3/3*	99,4% 30 3,61 121
	Khối lượng [g]	1000	1001	121	949	123	30	893	77,2	
	Hàm lượng TAA [g]	250	250	-	250	-	-	249	-	
	Hàm lượng NaNO ₃	1,67% NH ₄ NO ₃ ²⁾	0,82%	15,4%	0,18%	6,9%	-	<25 ppm ¹⁾	2,06%	
5./ A1-E2/ 3 x ngược dòng; sử dụng dung dịch NaOH; chỉ lượt 3 được thể hiện	Pha/ Chất	từ (A1)	OP3/1	WP3/1*	OP3/2	WP3/2*	NaOH (50%)	OP3/3	WP3/3*	99,2% 30 3,61 121
	Khối lượng [g]	1000	1010	129	971	141	60	914	107	
	Hàm lượng TAA [g]	250	249	-	248	-	-	248	-	
	Hàm lượng NaNO ₃	1,67% NH ₄ NO ₃ ²⁾	0,88%	11,4%	0,36%	5,6%	-	600 ppm	2,5%	

¹⁾ Có nghĩa là trị số đã biết chắc đối với hàm lượng NaNO₃ là nhỏ hơn giới hạn dò.

²⁾ Xét đến rằng natri nitrat vẫn không có mặt trong hỗn hợp sản phẩm thu được từ A1, nhưng amoni nitrat có mặt [1,67% (% khối lượng)]

20120

9/A1-B-C1-D1/ 3 x ngược dòng; sử dụng dung dịch NaOH; hàm lượng axeton 3,6%; chỉ lượt 3 được thể hiện	Pha/ Chất Khối lượng [g] Hàm lượng TAA [g] Hàm lượng NaNO ₃ ³⁾	từ C1	WP2/2*	OP3/1	WP3/1*	OP3/1	WP3/1*	OP3/2	WP3/2*	NaOH (50%)	OP3/3	WP3/3*	97,9%	20	2,40	87
10/ A1-B-C2-D1/ 3 x ngược dòng; sử dụng dung dịch NaOH; hàm lượng axeton 4,1%; pha hữu cơ/chỉ lượt 3 được thể hiện	Pha/ Chất Khối lượng Hàm lượng TAA [g] Hàm lượng NaNO ₃ ³⁾	từ C2	WP2/2*	OP3/1	WP3/1*	OP3/1	WP3/1*	OP3/2	WP3/2*	NaOH (50%)	OP3/3	WP3/3*	99,2%	20	2,40	82
11/ JP2003206277/ Ví dụ [018]- [022]	Pha/ Chất Khối lượng Hàm lượng TAA [g] Hàm lượng clorua	- 400 n.s. ⁴⁾ 1,82%	WP2	OP1 n.s. ⁴⁾ n.s. ⁴⁾ 280 ppm	WP1 n.s. ⁴⁾ n.s. ⁴⁾ n.s. ⁴⁾	OP1 n.s. ⁴⁾ n.s. ⁴⁾ 280 ppm	WP1 n.s. ⁴⁾ n.s. ⁴⁾ n.s. ⁴⁾	OP2 340 106 < 25 ppm ¹⁾	WP2 60 - n.s. ⁴⁾	NaOH (48%) 37,3 - -	OP2 340 106 < 25 ppm ¹⁾	WP2 60 - n.s. ⁴⁾	-	17,9	-	169

¹⁾ Có nghĩa là trị số đã biết chắc đối với hàm lượng NaNO₃ là nhỏ hơn giới hạn dò.

³⁾ Hàm lượng natri nitrat sau khi mới chưng cất là cao hơn do lượng sản phẩm thô bị giảm do việc loại bỏ axeton. Tuy nhiên, khối lượng tuyệt đối thu được của NaNO₃ là giống như khối lượng trong sản phẩm triaxeton amin thô tương ứng trước khi chưng cất.

⁴⁾ n.s. = không được chỉ định.

H) Tinh chế sản phẩm triaxeton amin thô chiết được

Sản phẩm triaxeton amin thô chiết được tương ứng với pha hữu cơ OP3/3 từ ví dụ 9 (bảng 4) được xử lý bằng cách chưng cất. Quy trình này được thực hiện theo cách chưng cất phân đoạn bằng cách sử dụng cột với tám đĩa theo lý thuyết. Việc chưng cất được thực hiện đầu tiên ở áp suất khí quyển và sau đó dưới áp suất thấp. Các điều kiện và thành phần chính xác của từng phân đoạn có thể được tìm thấy trong bảng 5.

Hiển nhiên là đặc biệt rượu diaxeton, diaxeton amin và axetonin là không bền trong các điều kiện chưng cất. Tuy nhiên, TAA không có xu hướng bị phân hủy trong các điều kiện chưng cất. Hiệu suất TAA trong quá trình chưng cất là 93,3% (% khối lượng) đối với độ tinh khiết là 94,9%.

Bảng 5: Tinh chế bằng cách chưng cất triaxeton amin; dữ liệu “%” của các hợp phần là tính theo % khối lượng												
Mẫu	Lượng	Nước	Axeton	Mesityl oxit	Diaxeton rượu	Diaxeton amin	TMDH pyridin	Axeto- nin	TAA	Phần còn lại	Tổng	
	kg	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	
Nạp	28,00	2,10	2,89	5,38	7,00	3,41	1,97	3,23	61,00	13,02	100,00	
Phân đoạn 1	0,21	3,53	93,67	0	0	0	0	0,09	1,72	0,99	100,00	
Phân đoạn 2	0,99	17,54	42,17	28,08	0	3,05	0	0,59	0,02	8,55	100,00	
Phân đoạn 3 phía dưới	0,10	81,12	6,9	0,22	0,10	6,91	0,38	4,25	0,02	0,10	100,00	
Phân đoạn 3 phía trên	1,40	5,01	5,22	77,56	0,26	0,99	5,28	0,2	0,02	5,46	100,00	
Phân đoạn 4	1,04	7,53	0,19	0,23	0,51	0,64	46,83	5,38	17,66	21,03	100,00	
Phân đoạn 5	16,80	0,08	0,03	0,01	0,00	0,00	0,02	0,03	94,87	4,97	100,00	
Cặn	3,04	4,14	0,47	0,07	0	0	0,13	0	4	91,19	100,00	
Bẫy lạnh	3,50	1,5	2,55	0,20	0,03	0,06	0,12	0,02	0,22	95,30	100,00	
Khối lượng nạp [kg]	28,00	0,59	0,81	1,51	1,96	0,95	0,55	0,90	17,08	3,65		
Khối lượng trong sản phẩm chưng cất [kg]	27,08	0,60	0,80	1,38	0,01	0,06	0,57	0,07	16,26	7,32		
Sai số [%]	3,29	-2,36	0,66	8,63	99,48	93,74	-3,77	91,82	4,82	-100,85		

Không quan sát thấy việc tạo ra cặn trong quá trình chưng cất. Cho dù nếu bước chưng cất được lặp đi lặp lại mà không cần tinh chế tạm thời sản phẩm đáy của quá trình chưng cất, cũng không quan sát thấy việc tạo ra cặn và/hoặc việc tạo ra các cặn lắng trên bề mặt lò phản ứng hoặc bề mặt của thiết bị trao đổi nhiệt.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Quy trình điều chế triaxeton amin, bao gồm các bước:

a) cho chất tương đương axeton phản ứng với bazơ thứ nhất, được chọn từ amoniac, với sự có mặt của chất xúc tác, tạo ra hỗn hợp sản phẩm chứa axeton;

b) làm ngừng hoạt tính xúc tác của chất xúc tác được sử dụng ở bước a) của hỗn hợp sản phẩm thu được từ bước a) bằng cách bổ sung ít nhất 1 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a) của quy trình này, của một bazơ khác, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô chứa axeton;

c) loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô thu được ở bước b), tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton, hàm lượng axeton nhỏ hơn 40 phần trăm theo khối lượng có mặt trong sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton;

d) chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton thu được ở bước c) bằng cách bổ sung bazơ, nhờ đó dung dịch thu được theo bước c) của quy trình này được khử muối, tạo ra sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết.

2. Quy trình theo điểm 1, khác biệt ở chỗ quy trình này còn bao gồm bước e), trong đó sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết thu được ở bước d) được tinh chế để thu được triaxeton amin.

3. Quy trình theo điểm 1 hoặc 2, khác biệt ở chỗ chất tương đương axeton là một hoặc nhiều hợp chất được chọn từ nhóm bao gồm axeton, mesityl oxit, rượu diaxeton, phoron, diaxeton amin, axetonin.

4. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 3, khác biệt ở chỗ bazơ khác ở bước b) được chọn từ nhóm bao gồm hydroxit kim loại kiềm, hydroxit kim loại kiềm thổ, cacbonat kim loại kiềm, cacbonat kim loại kiềm thổ.

5. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 4, khác biệt ở chỗ, lượng bazơ khác được bổ sung vào ở bước b) nằm trong khoảng từ 1,0 đương lượng mol đến 2,0 đương lượng mol, tính theo lượng chất xúc tác được sử dụng ở bước a).

6. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 5, khác biệt ở chỗ bước tách pha được thực hiện bổ sung giữa bước b) và bước c).

7. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 6, khác biệt ở chỗ phản ứng ở bước a) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 40°C đến 80°C.

8. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 7, khác biệt ở chỗ việc loại bỏ axeton ra khỏi sản phẩm triaxeton amin thô ở bước c) được thực hiện bằng cách chưng cất.
9. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 8, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) được chọn từ nhóm bao gồm axit Brønsted, muối amoni của axit Brønsted, muối phosphoni của axit Brønsted, axit Lewis.
10. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 9, khác biệt ở chỗ chất xúc tác ở bước a) là amoni clorua hoặc amoni nitrat.
11. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 10, khác biệt ở chỗ tỷ lệ mol giữa amoniac và chất xúc tác ở bước a) nằm trong khoảng từ 1:0,8 đến 1:0,02.
12. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 11, khác biệt ở chỗ bước chiết sản phẩm triaxeton amin thô nghèo axeton ở bước d) được thực hiện dưới dạng chiết dòng giao nhau hoặc dưới dạng chiết ngược dòng.
13. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 2 đến 12, khác biệt ở chỗ sản phẩm triaxeton amin thô sau khi chiết ở bước e) được tinh chế bằng cách chưng cất để thu được triaxeton amin.