



УКРАЇНА

(19) UA

(11) 46072

(13) C2

(51) 6 C07D251/60,251/62

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ  
І НАУКИ УКРАЇНИДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ  
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ  
ВЛАСНОСТІОПИС  
ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

## (54) СПОСІБ ОДЕРЖАННЯ ЧИСТОГО МЕЛАМІНУ

1

(21) 98063040

(22) 04 12 1996

(24) 15 05 2002

(86) PCT/EP96/05389, 04 12 1996

(31) A 1994/95

(32) 07 12 1995

(33) AT

(46) 15 05 2002, Бюл. № 5, 2002 р.

(72) Канці Лоренцо, ІТ, Коуфал Герхард, ІТ,  
Мюллнер Мартин, АТ

(73) АГРОЛІНЦ МЕЛАМІН ГМБХ, АТ

(56) US, A, 4565867, 21 01 1986

US, A, 3116294, 31 12 1963

US, A, 3637686, 25 01 1972

(57) 1 Способ получения чистого меламина, состоящий в том, что быстро снижают давление жидкого содержащего аммиак меламина, от парциального давления аммиака  $p_1$  в пределах между 400 и 50 бар до парциального давления аммиака  $p_2$  в пределах между 200 бар и атмосферным давлением, где  $p_1$  всегда больше, чем  $p_2$  при температуре от 0 до 60°C, которая выше точки отвердевания меламина, и зависит от соответствующего преобладающего парциального давления аммиака, однако ниже 350°C, причем более высокие давления позволяют достичь большего температурного интервала от точки отвердевания меламина, чем более низкие давления, в результате чего чистый меламин выделяется в твердом виде, затем, в любой последовательности, при заданных условиях производят дальнейшее снижение давления продукта реакции до атмосферного давления, его охлаждают до комнатной температуры, после чего чистый меламин изолируется

2 Способ по пункту 1, отличающийся тем, что подлежащий очистке меламин, который уже находится в расплавленной или жидкой фазе, такой как, например, на выходе из реактора высокого давления для синтеза меламина путем разложения мочевины, доводят до парциального давления аммиака, желательного до снижения давления в пределах между 400 и 50 бар, предпочтительно между 400 и 80 бар, особенно предпочтительно между примерно 300 и 100 бар и до температуры от 0 до 60°C, предпочтительно от 0 до 40°C, особенно предпочтительно от 0 до 20°C, которая выше точки отвердевания меламина и зависит от соответствующего преобладающего парциального

2

давления аммиака

3 Способ по пункту 2, отличающийся тем, что в нем снижают температуру

4 Способ по одному из пунктов 2 и 3, отличающийся тем, что в нем температуру снижают при скорости охлаждения от 0,8 до 10 °C/мин

5 Способ по одному из пунктов от 2 до 4, отличающийся тем, что в нем подают аммиак

6 Способ по одному из пунктов от 2 до 5, отличающийся тем, что газовую смесь  $\text{NH}_3/\text{CO}_2$ , образующуюся при разложении мочевины, отделяют от жидкого меламина, а содержание  $\text{CO}_2$ , растворенного в жидком меламине, снижают путем введения газообразного аммиака

7 Способ по одному из пунктов от 1 до 6, отличающийся тем, что до снижения давления жидкий меламин оставляют в таком состоянии в течение времени от 5 минут до 20 часов, предпочтительно от 10 минут до 10 часов, особенно предпочтительно в пределах между 30 минутами и 4 часами

8 Способ по одному из пунктов от 1 до 7, отличающийся тем, что до снижения давления жидкий меламин насыщают аммиаком

9 Способ по одному из пунктов от 1 до 8, отличающийся тем, что снижение давления жидкого, содержащего аммиак, меламина осуществляют по возможности ближе или чуть выше точки отвердевания меламина в зависимости от соответствующего парциального давления аммиака

10 Способ по одному из пунктов от 1 до 9, отличающийся тем, что снижение давления жидкого, содержащего аммиак, меламина осуществляют до пределов между атмосферным давлением и давлением приблизительно в 200 бар, предпочтительно до пределов между атмосферным давлением и давлением приблизительно в 150 бар, особенно предпочтительно до пределов между атмосферным давлением и давлением приблизительно в 50 бар

11 Способ по одному из пунктов от 1 до 10, отличающийся тем, что снижение давления производят в резервуаре, который заполняют жидким меламином

12 Способ по одному из пунктов от 1 до 10, отличающийся тем, что снижение давления осуществляют путем перемещения или нагнетания меламина в одном или нескольких резервуарах

13 Способ по пункту 11 или 12, отличающийся

(13) C2

(11) 46072

(19) UA

тем, что в резервуарах создают аммиачную атмосферу

14 Способ по пункту 12 или 13, **отличающийся** тем, что в резервуарах преобладает приблизительно такая же температура, как и в резервуаре, в котором производят снижение давления

15 Способ по одному из пунктов от 1 до 4, **отличающийся** тем, что после снижения давления уже твердый меламин оставляют под давлением в пределах между 200 бар и атмосферным давлением в течение времени от 1 минуты до 20 часов, предпочтительно в пределах между 10 минутами и 10 часами, особенно предпочтительно между 30 минутами и 3 часами

16 Способ по п. 15, **отличающийся** тем, что после снижения давления уже твердый меламин оставляют под давлением при температуре ниже 290°С

17 Способ по пункту 15, **отличающийся** тем, что уже твердый меламин оставляют пребывать при температуре в пределах между примерно 280 и 250°С

18 Способ по одному из пунктов от 1 до 17, **отличающийся** тем, что уже отвердевший меламин

охлаждают до комнатной температуры путем гашения в холодной жидкой среде, например, посредством жидкого аммиака, смешения с холодными газами или с помощью теплообменников

19 Способ по одному из пунктов от 1 до 18, **отличающийся** тем, что его осуществляют непрерывно

20 Способ по одному из пунктов от 1 до 19, **отличающийся** тем, что его осуществляют непосредственно после выхода меламина из резервуара с высоким давлением

21 Способ по одному из пунктов 1 и от 7 до 20, **отличающийся** тем, что подлежащий очистке меламин, который первоначально представляет собой твердое вещество, нагревают под парциальным давлением аммиака в пределах между 400 и 50 бар, предпочтительно между 400 и 80 бар, особенно предпочтительно между 300 и 100 бар, до температуры, которая примерно от 0 до 60°С, предпочтительно от 0 до 40°С, особенно предпочтительно от 0 до 20°С выше точки отвердевания меламина и зависит от соответствующего преобладающего парциального давления аммиака

Многочисленные способы получения меламина уже опубликованы в литературе. Исходным материалом для этого является мочевины, которая разлагается либо при высоком давлении и без катализатора, либо при низком давлении, с использованием катализатора для образования меламина, аммиака и  $\text{CO}_2$ .

Несмотря на то, что известные способы высокого давления, например, способы "Меламин Кемиклз", "Монтэдисон" или "Ниссан", в которых меламин сначала образуется как жидкость, имеют более низкий расход энергии по сравнению с способами низкого давления, если не имеется никаких ступеней очистки, меламин будет содержать загрязнения, такие как мелам, мелем, аммелин, аммелид или урендомеламин, которые влияют в дальнейшем на процесс производства меламина.

Меламин, полученный способом высокого давления, вырабатывают, например, согласно US 4,565,867 ("Меламин Кемиклз") путем отделения отработанных газов  $\text{CO}_2$  и  $\text{NH}_3$  от жидкого меламина, причем давление и температуру поддерживают предпочтительно в таких же величинах, как и в реакторе. Жидкий меламин затем подают на агрегат охлаждения, в котором снижают его давление от 105 - 175 бар до 14 - 42 бар одновременно его быстро охлаждают и гасят жидким аммиаком при температуре от 350 - 430°С до 48 - 110°С, в результате чего меламин выделяется как твердый продукт.

В соответствии с US 3,116,294 ("Монтекатини") сначала аналогичным образом отделяют отработанные газы  $\text{CO}_2$  и  $\text{NH}_3$ , затем жидкий меламин обрабатывают на противотоке  $\text{NH}_3$ , для удаления все еще растворенного  $\text{CO}_2$ , а продукт реакции собирают в добавочном реакторе, где он находится в течение определенного времени. Наконец, меламин забирают из второго реактора и быстро

охлаждают путем гашения водой или смешивания с холодными газами.

Однако чистота меламина, который получают по одному из этих способов, недостаточна для многих применений, например в приготовлении меламино-формальдегидных смол для поверхностных покрытий, так как содержание мелама, в частности, слишком высокое.

Согласно US 3,637,686 ("Ниссан") неочищенный расплав меламина, полученный при термическом разложении мочевины, быстро охлаждают до 200 - 270°С жидким  $\text{NH}_3$  или холодным газом  $\text{NH}_3$  и в дальнейшем охлаждают на второй ступени до 100 - 200°С водным раствором  $\text{NH}_3$ . Затем продукт реакции должен быть рекристаллизован для того, чтобы достигнуть удовлетворительной чистоты меламина.

Задачей настоящего изобретения является создание способа, который даст возможность получить чистый меламин, имеющий чистоту более, чем 99,8% и заметно сниженное содержание загрязнений, в частности, мелама и мелама.

Неожиданно, эта задача может быть решена применением способа, в котором быстро снижают давление жидкого, содержащего аммиак меламина при температуре точки отвердевания меламина или чуть выше, в зависимости от преобладающего соответственного парциального давления аммиака, причем точка отвердевания зависит от начальной температуры снижения давления и желаемого окончательного давления, при увеличении температуры примерно до 60°С, после чего выделяется твердый меламин.

Настоящее изобретение, следовательно, относится к способу изготовления чистого меламина, в котором быстро снижают давление жидкого, содержащего аммиак меламина от парциального давления аммиака  $p_1$  в пределах между 400 и 50

бар до парциального давления аммиака  $p_2$  между 200 бар и атмосферным давлением, где  $p_1$  всегда больше, чем  $p_2$ , при температуре, от 0 до 60°C, которая выше, чем точка отвердевания меламина, и зависит, в частности, от преобладающего парциального давления аммиака, но ниже 350°C, более высокие давления позволяют достичь большего температурного интервала точки отвердевания меламина, чем более низкие, в результате чего чистый меламин выделяется в твердом виде, затем, в любой последовательности, давление продукта продолжают снижать, чтобы оно соответствовало атмосферному, а охлаждение производят до комнатной температуры после чего чистый меламин отделяют. Способ по данному изобретению, пригоден для очистки меламина, который производится по любому известному ранее способу, меламина в особенности, содержащего загрязнения, такие как мелем и мелам, меламин может находиться либо в расплавленном, состоянии либо в жидкой фазе, либо в кристаллической форме.

Если очищенный меламин уже представлен в расплавленном виде или в жидкой фазе, такой как на выходе из реактора высокого давления для синтеза меламина путем разложения мочевины, давление и температура расплавленного или жидкого меламина приводят к начальному парциальному давлению аммиака, при этом желательное снижение давления в пределах между 400 и 500 бар, предпочтительно между 400 и 80 бар, особенно предпочтительно между 300 и 100 бар, и к соответствующей температуре, определенной выше, т.е. к температуре которая примерно от 0 до 60°C, предпочтительно примерно от 0 до 40°C, особенно предпочтительно от 0 до 20°C, которая выше точки отвердевания меламина и зависит от соответствующего преобладающего парциального давления аммиака. При этом следует заметить, что при более высоких давлениях разница температур между точкой отвердевания меламина и температурой, которая должна быть установлена в начале процесса снижения давления, может быть большей, чем при низких давлениях, так как точка отвердевания расплава при более высоком давлении и более низкой температуре будет такой, как при более низком давлении. Для того, чтобы достичь температуры, желаемой для снижения давления, ее в случае необходимости, уменьшают. Особенно предпочтительно иметь температуру ниже 350°C. Охлаждение могут производить либо быстро, либо медленно. Предпочтительно, чтобы его осуществляли медленно при скорости охлаждения от 0,8 до 10°C/мин. При этом меламина расплав может впитывать больше аммиака при более низкой температуре, при которой и предпочтительно его подавать. Особенно выгодно снижать давление жидкого меламина, содержащего аммиак, по возможности близко или выше точки отвердевания меламина, в зависимости от соответствующего преобладающего парциального давления аммиака.

С помощью данного изобретения в дальнейшем имеется возможность очищать твердый, загрязненный меламин. Подлежащий очистке меламин, который представлен в кристаллической

форме или как порошок, сначала нагревают при парциальном давлении аммиака в пределах между 400 и 50 бар, предпочтительно в пределах между 400 и 80 бар, особенно предпочтительно в пределах между 300 и 100 бар и при температуре, от 0 до 60°C, предпочтительно от 0 до 40°C, особенно предпочтительно от 0 до 20°C которая выше точки отвердевания меламина, и зависит от соответствующего преобладающего парциального давления аммиака. Чтобы надежно расплавить твердый меламин, целесообразно сначала нагреть его до приблизительно 370°C и затем охладить до желаемой температуры снижения давления для того, чтобы меламин был полностью расплавлен. Предпочтительно, чтобы желаемая температура снижения давления была ниже 350°C.

Снова следует принять во внимание, что разница температур при более высоких давлениях может быть большей, чем при более низких давлениях.

Предпочтительно, чтобы соответствующий изобретению способ осуществлялся непосредственно после получения меламина под высоким давлением. Примеры способов высокого давления, таких как, например, "Меламин Кемиклз", "Монтэдисон" или "Ниссан", описаны, в частности, в энциклопедии Ульмана по промышленной химии, 5-е издание, том A16, стр. 174-179. Согласно этим способам, мочевины обычно разлагаются в температурном диапазоне от 370 до 430°C и при давлении примерно от 70 до 300 бар. Меламин, образующийся при этих процессах, окончательно получается в жидкой фазе.

По данному изобретению способа, в случае необходимости, начальное парциальное давление аммиака, желаемое для быстрого снижения давления, устанавливают в пределах между примерно 400 и 50 бар. Чтобы установить соответствующую начальную температуру для снижения давления, жидкий меламин, получаемый способом разложения мочевины, охлаждают от температуры, преобладающей в реакторе, посредством подходящих охладительных аппаратов, например, теплообменников, до соответствующей величины, т.е. до температуры от 0 до 60°C, предпочтительно примерно от 0 до 40°C, особенно предпочтительно от 0 до 20°C которая выше точки отвердевания меламина, и зависит от соответствующего установленного парциального давления аммиака. Охлаждение при этом способе можно производить любым образом - либо быстро, либо медленно. Предпочтительно осуществлять охлаждение со скоростью, которая находится между 0,8°C/мин и 10°C/мин, предпочтительно при дальнейшей подаче аммиака. Температура может также быть снижена посредством программы охлаждения, в которой, например, фазы охлаждения и выдерживания или нормы охлаждения могут чередоваться.

Перед охлаждением смесь газов  $\text{NH}_3/\text{CO}_2$ , образующуюся при реакции, отделяют от жидкого меламина, а содержание  $\text{CO}_2$ , растворенного в жидком меламине, уменьшают путем введения газообразного аммиака. В дальнейшем возможно перед снижением давления жидкого меламина в течение времени от 5 минут до 20 часов позво-

лить ему находиться под установленным парциальным давлением аммиака. Предпочтительно его пребывание таким образом между 10 минутами и 10 часами, особенно предпочтительно между 30 минутами и 4 часами. Также возможно по желанию оставлять его так на более длительное время.

Подлежащий очистке меламин, содержащий аммиак, находится в жидком виде до снижения давления. Во время снижения давления, его быстро уменьшают, в зависимости от начального установленного давления до величины между атмосферным давлением и давлением приблизительно в 200бар, предпочтительно до величины между атмосферным давлением и давлением приблизительно в 150бар, особенно предпочтительно до величины между атмосферным давлением и давлением приблизительно в 50бар.

При этом, растворенный в меламине аммиак улетучивается, благодаря чему увеличивается приблизительно на 60°C точка отвердевания меламина при существенном освобождении от аммиака, так что жидкий меламин немедленно затвердевает, а образование побочных продуктов, особенно мелема, предотвращается. С одной стороны, благодаря снижению давления температура в системе уменьшается, но, с другой стороны, из-за отвердевания меламина высвобождается теплота от кристаллизации. Предполагается, что способ происходит почти полностью автотермически.

Выгодно, то что расплав меламина насыщается аммиаком до снижения давления. Однако, также возможно осуществить снижение давления, используя расплав меламина не насыщенный аммиаком, но, в этом случае, нельзя полностью воспользоваться преимуществом повышения точки плавления.

Снижение давления можно производиться непосредственно в резервуаре или в аппарате, в который вводится жидкий меламин. Однако, снижение давления можно также осуществляться перемещением или нагнетанием меламина в один или более добавочных резервуаров путем применения подходящих распылительных устройств. В этом случае, предпочтительно, чтобы в резервуаре была атмосфера аммиака. К тому же, особенно выгодно снижать давление меламина в резервуаре, в котором преобладает приблизительно такая же температура, как и в резервуаре, где происходило снижение давления.

Теперь твердый меламин может находиться, при необходимости, под преобладающим парциальным давлением аммиака и при преобладающих температурах еще какое-то время, например, в течение от 1 минуты до 20 часов. Предпочтительно, чтобы твердый меламин находился в этих условиях в промежутке времени между 10 минутами и 10 часами, особенно предпочтительно - между 30 минутами и 3 часами. Предпочтительно при этом поддерживать температуру ниже 290°C. Особенно предпочтительно выдерживать теперь твердый меламин при температуре между 280 и 250°C, во время этого периода температура может поддерживаться либо постоянной, либо изменяться от непрерывной до прерывной. Непосредственно после этого процесса снижения давления

или через какое-то время, твердый меламин можно любым образом и в зависимости от технических условий вначале охладить до комнатной температуры, а в дальнейшем снизить давление до атмосферного либо одновременно, либо давление и температуру меламина можно снижать в обратном порядке.

Уже отвердевший меламин охлаждают до комнатной температуры, например, путем гашения в холодной жидкой среде, к примеру, посредством жидкого аммиака, смешиванием с холодными газами, охлаждением посредством теплообменников, например, с помощью температурных программ, или путем простого удаления нагревательной среды.

Соответствующий изобретению способ может осуществляться, по необходимости, либо прерывно, либо непрерывно. Особенно выгодно выполнять способ по данному изобретению, непрерывно.

Выгодно, когда после отделения  $\text{NH}_3$  и  $\text{CO}_2$  расплав меламина будет находиться под давлением аммиака приблизительно в 70 - 300бар, предпочтительно при преобладающем давлении реактора, температура при дальнейшей подаче аммиака уменьшается, по возможности ближе к точке отвердевания, преобладающей при этом парциальном давлении аммиака, затем давление снижают примерно на 5бар в сторону атмосферного давления, если меламин находится в соответствующих условиях, и далее происходит снижение давления и охлаждение до комнатной температуры. Отдельные этапы способа, согласно изобретению процесса, такие:

при заданных условиях отделение газовой смеси  $\text{NH}_3/\text{CO}_2$ ,

при заданных условиях снижение содержания растворенного  $\text{CO}_2$ ,

при заданных условиях нахождение в месте пребывания и охлаждение до температуры снижения давления,

снижение давления,

при заданных условиях нахождение в месте пребывания в твердом состоянии,

при заданных условиях дальнейшее снижение давления до атмосферного и охлаждение до комнатной температуры, может быть осуществлено, например, в отдельных резервуарах или это устройствах, пригодных для каждого отдельного этапа. Однако, также возможно произвести один или более из этих этапов в общих устройствах. Операция по осуществлению способа должна, однако, соответствовать заданным условиям.

Чтобы определить зависимость точки отвердевания меламина от преобладающего парциального давления аммиака были проведены соответствующие эксперименты по охлаждению.

Меламин, полученный согласно способу по данному изобретению, находится в кристаллической форме или в порошке, имеет чистоту более, чем 99,8% и значительно сниженное содержание, в частности, мелема и мелама.

Пример 1 - 6

Определение точки отвердевания меламина в зависимости от парциального давления аммиака.

9,9г меламина, содержащего 0,1г мелема, бы-

ли взвешены в автоклаве вместе с количеством аммиака, требуемым для установки определенного давления  $p$ , и расплавлены. Смесь реакции находилась при  $370^{\circ}\text{C}$  в течение нескольких часов  $h$  для установления равновесия. Смесь реакции была затем оставлена для охлаждения, а изменение температуры контролировалось, причем точка отвердевания наступила через краткое температурное увеличение. Параметры способа такие, как давление, время пребывания и определяемая точка отвердевания ( $Sp$ ), приведены в табл. 1. Зависимость точки отвердевания меламина от соответствующего преобладающего парциального давления аммиака показана на Фиг.

Таблица 1

| Пример | $p$ (бар) | $h$ | $Sp$ ( $^{\circ}\text{C}$ ) |
|--------|-----------|-----|-----------------------------|
| 1      | 350       | 6   | 294                         |
| 2      | 300       | 6   | 300                         |
| 3      | 250       | 6   | 306                         |
| 4      | 200       | 6   | 317                         |
| 5      | 150       | 6   | 328                         |
| 6      | 110       | 6   | 331                         |

## Пример 7 - 19

9,9г меламина, имеющего содержание мелама 1300ppm (частей на миллион), 0,1г мелама и количество аммиака, требуемого, для достижения желаемого давления  $p_1$  до снижения давления, были помещены в лабораторный автоклав, имеющий объем 70мл. Автоклав был затем нагрет до температуры  $T_1$  охлажден при заданных условиях за  $X$  минут до температуры  $T_2$  и выдержан при этой температуре в течение  $t_1$  минут. Затем давление было быстро снижено до определенного давления  $p_2$  и непосредственно после этого при заданных условиях выдерживалось в течение  $t_2$  минут при преобладавших тогда условиях реакции.

Когда этот процесс был завершен, смесь резко охладили и снизили давление в водяной ванне, а полученный меламина был подвержен анализу.

Параметры способа, такие как давление  $p_1$  и  $p_2$ , температура  $T_1$  и  $T_2$ , время охлаждения от  $T_1$  до  $T_2$  за  $X$  минут, время нахождения  $t_1$  и  $t_2$  и окончательное содержание мелама (ME) и мелама (MA), приведены в таблице 2.

Таблица 2

| Прим | $P_1$ (бар) | $T_1$ ( $^{\circ}\text{C}$ ) | $X$ (мин) | $T_2$ ( $^{\circ}\text{C}$ ) | $t_1$ (мин) | $P_2$ (бар) | $t_2$ (мин) | ME (ппм)( | MA (ппм) |
|------|-------------|------------------------------|-----------|------------------------------|-------------|-------------|-------------|-----------|----------|
| 7    | 300         | 310                          | 0         | 310                          | 120         | 150         | 0           | 40        | <300     |
| 8    | 250         | 320                          | 0         | 320                          | 120         | 150         | 0           | 65        | 350      |
| 9    | 250         | 370                          | 60        | 320                          | 120         | 35          | 0           | 190       | 400      |
| 10   | 250         | 370                          | 60        | 320                          | 120         | 50          | 5           | 80        | 410      |
| 11   | 250         | 370                          | 60        | 320                          | 120         | 150         | 5           | 80        | 500      |
| 12   | 250         | 370                          | 60        | 320                          | 120         | 150         | 5           | 45        | 310      |
| 13   | 250         | 370                          | 60        | 320                          | 30          | 150         | 5           | 25        | <300     |
| 14   | 250         | 370                          | 60        | 320                          | 10          | 50          | 5           | 65        | <300     |
| 15   | 250         | 370                          | 30        | 320                          | 10          | 50          | 5           | 185       | 530      |
| 16   | 250         | 370                          | 60        | 320                          | 10          | 150         | 5           | 50        | <300     |
| 17   | 250         | 370                          | 30        | 320                          | 10          | 150         | 5           | 50        | <300     |
| 18   | 250         | 370                          | 7         | 320                          | 10          | 150         | 5           | 45        | <300     |
| 19   | 200         | 335                          | 0         | 335                          | 120         | 150         | 0           | 220       | 440      |

## Пример 20 - 36

$X$ г меламина ( $M_0$ ), содержащего мелама ( $MA_0$ ) 1300ppm,  $Y$ г мелама ( $M_0$ ) и количество аммиака, требуемое для достижения желаемого давления  $p$ , до снижения давления были помещены в лабораторный автоклав  $A_1$ , имеющий объем 100мл. Затем автоклав был нагрет до температуры  $370^{\circ}\text{C}$  ( $T_1$ ) и выдержан при  $T_1$  в течение  $t_1$  минут. Непосредственно после этого автоклав был охлажден до температуры  $T_2$  за  $Z_1$  минут и выдержан при этой температуре в течение  $t_2$  минут.

В примере 20 - 32, в связи с этим, меламина, находящийся в  $A_1$ , был впрыснут в лабораторный автоклав  $A_2$ , имеющий объем 1000мл, выдержан при температуре  $T_3$  и давлении  $p_3$ .

В примере 33 и 34 температура  $T_2$  в автоклаве была снижена до температуры  $T_{2s}$  за  $t_{2s}$  минут. Одновременно с этим температура  $T_3$  в автоклаве  $A_2$  была снижена до температуры  $T_{2s}$  и давление установлено на величину  $P_{3s}$ , а меламина из  $A_1$  впрыснут в  $A_2$ .

В примере 35 и 36 только часть жидкого ме-

ламина из автоклава  $A_1$  была впрыснута в автоклав  $A_2$  в то время как клапан на соединительной трубке между  $A_1$  и  $A_2$  на короткое время был открыт и снова закрыт. Вследствие этого падение давления в  $A_1$  и увеличение давления в  $A_2$  было незначительным.

После перемещения продукта реакции температура  $T_2$  в  $A_1$  изменилась до величины  $T_{21}$ , а давление  $p_1$  - до величины  $p_2$ . В автоклаве  $A_2$  температура  $T_3$  изменилась до величины  $T_{31}$  а давление  $p_3$  - до величины  $p_{31}$ . Меламина ( $M_1$ ), оставшийся в  $A_1$ , был охлажден до температуры  $T_4$  за  $Z_2$  минут, после этого его давление снижено, затем он был быстро охлажден и подвергнут анализу ( $ME_1$ ,  $MA_1$ ).

Меламина ( $M_2$ ), впрыснутый в  $A_2$ , был охлажден до температуры  $T_5$  за  $Z_3$  минут, его давление снижено, он был быстро охлажден и подвергнут анализу ( $ME_2$ ,  $MA_2$ ).

Параметры способа, такие как давление  $p_1$ ,  $p_2$ ,  $p_3$  и  $p_{31}$ , температура  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_{21}$ ,  $T_{2s}$ ,  $T_3$ ,  $T_{31}$ ,  $T_4$  и  $T_5$ , время охлаждения  $z_1$ ,  $z_2$  и  $z_3$  минут, время пребы-

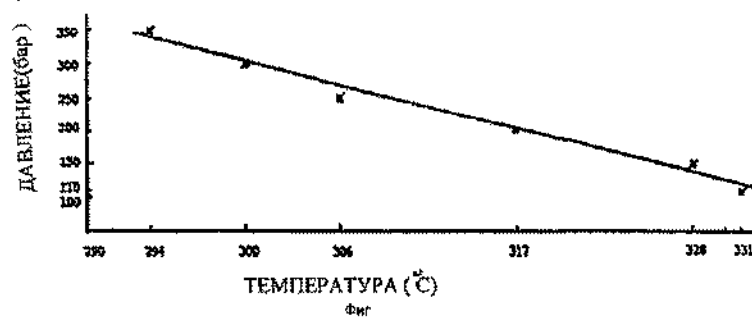
вания  $t_1$ ,  $t_2$  и  $t_{2s}$ , и начальный ( $M_0$ ) и конечные ( $M_1$ ,  $M_2$ ) веса меламина, начальное содержание меле-

ма ( $ME_0$ ) и конечные содержания мелама ( $ME_1$ ,  $ME_2$ ) и мелама ( $MA_1$ ,  $MA_2$ ) приведены в таблице 3

Таблица 3

| Автоклав А1 (T <sub>1</sub> = 370°C) до передачи продукта реакции |                      |                      |                      |                       |                      |                       |                       |                       |                       |
|---|----------------------|----------------------|----------------------|-----------------------|----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| Прим  | xM <sub>0</sub> (г)  | yME <sub>0</sub> (г) | P <sub>1</sub> (бар) | t <sub>1</sub> (мин)  | Z <sub>1</sub> (мин) | T <sub>2</sub> (°C)   | t <sub>2</sub> (мин)  | T <sub>2s</sub> (°C)  | t <sub>2s</sub> (мин) |
| 20  | 99                   | 01                   | 250                  | 0                     | 60                   | 320                   | 10                    |                       |                       |
| 21  | 99                   | 01                   | 250                  | 0                     | 60                   | 315                   | 10                    |                       |                       |
| 22  | 99                   | 01                   | 250                  | 0                     | 60                   | 310                   | 10                    |                       |                       |
| 23  | 99                   | 01                   | 350                  | 0                     | 60                   | 300                   | 10                    |                       |                       |
| 24  | 297                  | 03                   | 250                  | 90                    | 60                   | 320                   | 10                    |                       |                       |
| 25  | 198                  | 02                   | 250                  | 120                   | 60                   | 320                   | 10                    |                       |                       |
| 26  | 198                  | 02                   | 250                  | 120                   | 60                   | 320                   | 10                    |                       |                       |
| 27  | 99                   | 01                   | 300                  | 0                     | 60                   | 315                   | 10                    |                       |                       |
| 28  | 99                   | 01                   | 200                  | 0                     | 60                   | 330                   | 10                    |                       |                       |
| 29  | 99                   | 01                   | 350                  | 0                     | 60                   | 303*                  | 10                    |                       |                       |
| 30  | 99                   | 01                   | 350                  | 0                     | 60                   | 310                   | 10                    |                       |                       |
| 31  | 99                   | 01                   | 200                  | 60                    | 60                   | 330                   | 10                    |                       |                       |
| 32  | 198                  | 02                   | 250                  | 120                   | 60                   | 320                   | 10                    |                       |                       |
| 33  | 99                   | 01                   | 250                  | 60                    | 53                   | 320                   | 120                   | 312                   | 24                    |
| 34  | 99                   | 01                   | 250                  | 60                    | 41                   | 330                   | 120                   | 314                   | 32                    |
| 35  | 99                   | 01                   | 265                  | 120                   | 69                   | 316                   | 0                     |                       |                       |
| 36  | 99                   | 01                   | 260                  | 120                   | 59                   | 317                   | 0f                    |                       |                       |
| Автоклав А1 после передачи продукта реакции                       |                      |                      |                      |                       |                      |                       |                       |                       |                       |
| Прим  | T <sub>21</sub> (°C) | P (бар)              | M <sub>1</sub> (г)   | T <sub>4</sub> (°C)   | Z <sub>2</sub> (мин) | ME <sub>1</sub> (ппм) | MA <sub>1</sub> (ппм) |                       |                       |
| 20  | 307                  | 90                   | 55                   | 245                   | 13                   | 20                    | <300                  |                       |                       |
| 21  | 285                  | 85                   | 70                   | RT                    | г                    | 20                    | <300                  |                       |                       |
| 22  | 275                  | 85                   | 80                   | 250                   | 14                   | 20                    | <300                  |                       |                       |
| 23  | 270                  | 50                   | 40                   | 250                   | 4                    | <20                   | <300                  |                       |                       |
| 24  | 326                  | 175                  | 220                  | 280                   | 14                   | <20                   | <300                  |                       |                       |
| 25  | 304                  | 70                   | 105                  | 280                   | 6                    | 55                    | 490                   |                       |                       |
| 26  | 307                  | 80                   | 105                  | 280                   | 13                   | 20                    | <300                  |                       |                       |
| 27  | 294                  | 80                   | 30                   | 280                   | 12                   | 25                    | <300                  |                       |                       |
| 28  | 314                  | 80                   | 12                   | 280                   | 18                   | <20                   | 380                   |                       |                       |
| 29  | 274                  | 60                   | 35                   | 250                   | 8                    | <20                   | 370                   |                       |                       |
| 30  | 275                  | 65                   | 15                   | 250                   | 4                    | <20                   | <300                  |                       |                       |
| 31  | 306                  | 50                   | 15                   | 280                   | 8                    | 100                   | 800                   |                       |                       |
| 32  | 302                  | 65                   | 10                   | 280                   | 10                   | 50                    | 630                   |                       |                       |
| 33  | 292                  | 80                   | 49                   | 300                   | 10                   | <20                   | <300                  |                       |                       |
| 34  | 295                  | 80                   | 08                   | 300                   | 6                    | <20                   | <300                  |                       |                       |
| 35  | 311                  | 220                  | 38                   | 300                   | 6                    | <50                   | 800                   |                       |                       |
| 36  | -                    | 235                  | 32                   | 300                   | 6                    | <50                   | 820                   |                       |                       |
| Автоклав А2   |                      |                      |                      |                       |                      |                       |                       |                       |                       |
| Прим  | T <sub>3</sub> (°C)  | p <sub>3</sub> (бар) | T <sub>31</sub> (°C) | P <sub>31</sub> (бар) | M <sub>2</sub> (г)   | T <sub>5</sub> (°C)   | Z <sub>3</sub> (мин)  | ME <sub>2</sub> (ппм) | MA <sub>2</sub> (ппм) |
| 20  | 277                  | 52                   | 284                  | 79                    | 35                   | 250                   | 12                    | 75                    | <300                  |
| 21  | 280                  | 51                   | 282                  | 76                    | 27                   | RT                    | г                     | 75                    | 600                   |
| 22  | 281                  | 52                   | 282                  | 76                    | 11                   | 250                   | 8                     | 55                    | 650                   |
| 23  | 280                  | 0                    | 280                  | 40                    | 60                   | 250                   | 12                    | 60                    | 1100                  |
| 24  | 320                  | 6                    | 320                  | 15                    | 30                   | 280                   | 15                    | 40                    | 1600                  |
| 25  | 300                  | 40                   | 309                  | 68                    | 155                  | 280                   | 8                     | 95                    | 360                   |
| 26  | 302                  | 50                   | 306                  | 74                    | 80                   | 280                   | 11                    | 70                    | 540                   |
| 27  | 282                  | 40                   | 285                  | 72                    | 45                   | 280                   | 4                     | 20                    | 780                   |
| 28  | 302                  | 50                   | 304                  | 72                    | 38                   | 280                   | 12                    | 65                    | 650                   |
| 29  | 280                  | 17                   | 280                  | 60                    | 55                   | 250                   | 10                    | 20                    | 1400                  |
| 30  | 300                  | 20                   | 300                  | 62                    | 45                   | 280                   | 9                     | 25                    | 770                   |
| 31  | 298                  | 20                   | 300                  | 48                    | 65                   | 280                   | 12                    | 110                   | 1000                  |
| 32  | 300                  | 30                   | 305                  | 62                    | 160                  | 280                   | 11                    | 45                    | 790                   |
| 33  | 312                  | 52                   | 312                  | 78                    | 29                   | 280                   | 15                    | <20                   | <300                  |
| 34  | 314                  | 51                   | 314                  | 76                    | 62                   | 280                   | 15                    | 20                    | 300                   |
| 35  | 316                  | 53                   | 316                  | 57                    | 28                   | 280                   | 15                    | <20                   | 400                   |
| 36  | 280                  | 55                   | 280                  | -                     | 32                   | 275                   | 3                     | 40                    | 750                   |

RT - при комнатной температуре  
г - быстрый, быстро



---

ДП «Український інститут промислової власності» (Укрпатент)  
вул. Сим'ї Хохлових, 15, м. Київ, 04119, Україна  
(044) 456 – 20 – 90

---

ТОВ "Міжнародний науковий комтет"  
вул. Артема, 77, м. Київ, 04050, Україна  
(044) 216 – 32 – 71