

PROCÉDÉ DE PRÉPARATION DE LACTAMES

La présente invention concerne un procédé de préparation de lactames à partir de composés imides cycliques.

Les lactames sont des amides cycliques bien connus de l'homme du métier.

Les lactames peuvent être par exemple préparés par cyclisation d'un aminoacide comme la lysine. Ils peuvent également être préparés en faisant réagir un aminonitrile avec de l'eau en présence d'un catalyseur pour réaliser une hydrolyse cyclisante de l'aminonitrile en lactame.

Comme procédé de préparation de lactames, on peut également mentionner la transposition de Beckmann catalysée par un acide fort qui correspond à la transformation d'oxime en lactame, l'oxime étant obtenu par condensation de la cycloalcanone avec NH_2OH , l'hydroxylamine.

Les lactames sont utilisés dans divers domaines, et en particulier dans la fabrication de polyamides. Les lactames peuvent également être utilisés comme plastifiants ou encore comme solvants, par exemple pour les N-alkyl lactames comme la NMP, ou comme intermédiaires pour des synthèses de produits pharmaceutiques et agrochimiques.

Il existe donc à ce jour un besoin de fournir un procédé efficace de préparation de lactames.

La présente invention a pour but de fournir un nouveau procédé de préparation de lactames à partir d'imides cycliques en catalyse hétérogène. Les réactions de catalyses hétérogènes sont les réactions de catalyse les plus couramment utilisées et consistent à utiliser un catalyseur non soluble dans le milieu de réaction ; il peut donc aisément être récupéré. Le catalyseur est généralement supporté sur un support inerte.

Dans les documents WO2005/0501907 et Aoun et al ; vol 44, n° 13, p. 2021-2023, des réactions en catalyse homogène sont décrites.

WO2005/0501907 décrit la préparation de N-méthyl-pyrrolidone par hydrogénation de la N-méthyl-succinimide en présence d'un catalyseur soluble dans le milieu de réaction. Le catalyseur utilisé est du Ruthénium lié à un ligand organique de type phosphine, en particulier du Ru-acétylacétonate est utilisé

comme précurseur. Ce type de ligand présente des inconvénients d'ordre sanitaire et environnemental ;

La présente invention a également pour but de fournir des lactames avec des rendements satisfaisants, notamment supérieurs à 50%, et de préférence supérieurs à 75%, voire 80% ou 90%.

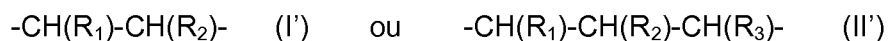
On connaît des procédés de préparation de lactame par hydrogénation d'un imide en catalyse hétérogène en présence d'un catalyseur comportant un seul métal. Le document Patton et al., J. of the Chem. Soc., Vol 1, p. 1611-1615 décrit par exemple l'utilisation de ruthénium sur charbon ou palladium sur charbon sans succès dans ce dernier cas. Le document WO 2004/058708 décrit l'utilisation de catalyseur monométallique à pression élevée (de l'ordre de 105 bar).

Ainsi, la présente invention concerne un procédé de préparation de lactame, par hydrogénation d'au moins un composé de formule (I) suivante :



dans laquelle :

- A représente un radical de formule (I') ou (II') suivante :



dans lesquelles :

- R_1 , R_2 et R_3 représentent indépendamment les uns des autres H, OH, un radical alkyle ou un radical cycloalkyle,

- R_1 et R_2 peuvent être reliés entre eux pour former avec les atomes de carbone qui les portent un cycle aliphatique comprenant de 4 à 6 atomes de carbone ;

- R_2 et R_3 peuvent être reliés entre eux pour former avec les atomes de carbone qui les portent un cycle aliphatique comprenant de 4 à 6 atomes de carbone ;

et

- R représente H ou un radical alkyle, linéaire ou ramifié, comprenant de 1 à 20, de préférence de 1 à 10, préférentiellement de 1 à 4, atomes de carbone ;

ledit procédé étant effectué à une pression inférieure à 60 bar, de préférence allant de 10 bar à 50 bar, en présence d'un catalyseur d'hydrogénation solide, comprenant au moins deux métaux choisis dans le groupe des métaux nobles et des métaux de transition, et une substance inerte à titre de support ;

3

ledit composé de formule (I) pouvant être seul ou en mélange.

Dans le cadre de l'invention, le terme "lactame" désigne des amides cycliques pouvant être représentés par la formule (II) suivante :



R étant tel que défini ci-dessus dans la formule (I) et A' représentant un radical de formule $-\text{CH}(\text{R}_1)-\text{CH}(\text{R}_2)-\text{CH}_2-$ ou $-\text{CH}(\text{R}_1)-\text{CH}(\text{R}_2)-\text{CH}(\text{R}_3)-\text{CH}_2-$, R_1 , R_2 et R_3 étant tels que définis ci-dessus dans les formules (I') et (II').

10

Selon la présente invention, les radicaux "alkyle" représentent des radicaux hydrocarbonés saturés, en chaîne droite ou ramifiée, comprenant de 1 à 10 atomes de carbone, de préférence de 1 à 5 atomes de carbone (ils peuvent typiquement être représentés par la formule $\text{C}_n\text{H}_{2n+1}$, n représentant le nombre d'atomes de carbone). On peut notamment citer, lorsqu'ils sont linéaires, les radicaux méthyle, éthyle, propyle, butyle, pentyle, hexyle, octyle, nonyle et décyle. On peut notamment citer, lorsqu'ils sont ramifiés ou substitués par un ou plusieurs radicaux alkyles, les radicaux isopropyle, tert-butyle, 2-éthylhexyle, 2-méthylbutyle, 2-méthylpentyle, 1-méthylpentyle et 3-méthylheptyle.

15

20

Le radical "cycloalkyle" est un radical hydrocarboné mono-, bi- ou tri- cyclique saturé, non aromatique, comprenant de préférence 5 ou 6 atomes de carbone, tel que notamment le cyclopentyle ou cyclohexyle.

Le procédé selon l'invention peut être effectué pour un composé de formule (I) seul ou pour un mélange de différents composés de formule (I).

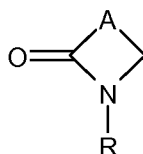
25

Ainsi, le composé soumis à l'étape d'hydrogénation peut être un mélange de composés de formule (I), avec A et/ou R pouvant être différents.

Le procédé de l'invention consiste à hydrogéner l'une des fonctions carbonyles de l'imide (I).

Ainsi, le lactame ainsi obtenu répond à la formule suivante :

30

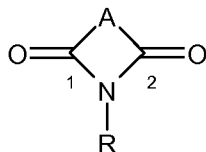


Cette étape d'hydrogénation des fonctions carbonyles n'étant pas sélective, l'une ou l'autre des fonctions carbonyles est hydrogénée.

35

4

Le composé de départ peut être représenté par la formule suivante :



5

Dans le cadre de l'invention, c'est la fonction carbonyle 1 ou la fonction carbonyle 2 qui est hydrogénée ce qui permet d'obtenir l'un des composés suivants :



10

En fonction de la nature de A, comme explicité ci-après, ces deux composés peuvent être identiques ou différents.

Ainsi, selon la nature de A, le lactame obtenu peut être un mélange de plusieurs composés, à savoir des isomères de position.

15

Plus particulièrement, lorsque A n'est pas un groupe symétrique, le produit obtenu est un mélange des isomères de position.

Comme indiqué ci-dessus, A répond à la formule (I') ou (II') telles que définies ci-dessus.

20

Dans les cas où R_1 et R_2 sont différents dans la formule (I') ou R_1 et R_3 sont différents dans la formule (II'), alors le lactame obtenu sera sous forme d'un mélange comprenant les isomères de position, c'est-à-dire un mélange des lactames obtenus par l'hydrogénation de chacune des fonctions carbonyles.

Plus particulièrement, lorsque A répond à la formule (I'), dans laquelle soit l'un des R_1 et R_2 est un radical alkyle (l'autre étant H) soit R_1 et R_2 sont des radicaux alkyles différents, alors le lactame obtenu sera sous forme d'un mélange comprenant les isomères de position, c'est-à-dire un mélange des lactames obtenus par l'hydrogénation de chacune des fonctions carbonyles.

25

Plus particulièrement, lorsque A répond à la formule (II'), dans laquelle soit R_1 ou R_3 est un radical alkyle (les deux autres étant H), soit R_1 , R_2 et R_3 sont des radicaux alkyles, R_1 et R_3 étant différents, soit R_1 et R_2 sont des radicaux alkyles (R_3 étant H), identiques ou différents, soit R_2 et R_3 sont des radicaux alkyles (R_1 étant H), identiques ou différents, soit R_1 et R_3 sont des radicaux alkyles différents (R_2 étant H), alors le lactame obtenu sera sous forme d'un mélange comprenant les isomères de position, c'est-à-dire un mélange des lactames obtenus par l'hydrogénation de chacune des fonctions carbonyles.

30

35

Selon un mode de réalisation préféré, le procédé d'hydrogénation selon l'invention est effectué en l'absence de solvant.

Ce mode de réalisation permet de travailler en milieu plus concentré. Un tel procédé permet d'être plus compétitif sur le plan industriel.

Ainsi, selon ce mode de réalisation, le procédé est moins consommateur d'énergie et génère moins d'effluents liés à la présence de solvant par rapport aux procédés avec solvant.

Selon un mode de réalisation préféré, le procédé d'hydrogénation selon l'invention est effectué en phase liquide. Le procédé de l'invention peut donc être effectué dans des réacteurs classiques d'hydrogénation.

Comme indiqué ci-dessus, le composé imide de départ, soumis au procédé d'hydrogénation, peut être un composé unique ou un mélange de plusieurs composés de formule (I) telle que définie ci-dessus.

Selon un mode de réalisation, les composés imides du procédé de l'invention sont des composés de formule (I), dans laquelle A répond à la formule (I') ou (II') telles que définies ci-dessus, chacun des R_1 , R_2 et R_3 représentant H ou un radical alkyle, notamment (C₁-C₄)alkyle.

Selon un mode de réalisation, dans la formule (I) telle que définie ci-dessus, A est un radical de formule $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{R}')-$, R' représentant un radical (C₁-C₄)alkyle, et de préférence méthyle ou éthyle.

Comme exemples spécifiques de groupe A selon l'invention, on peut citer l'éthylène ($-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$) ou le propylène ($-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$), ou encore le 1-méthyl-propylène ($-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-$).

De manière particulièrement préférée, on choisira parmi les radicaux suivants : l'éthylène ($-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$), le propylène ($-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$), l'éthyl-éthylène ($-\text{CH}(\text{Et})-\text{CH}_2-$), le 1-méthyl-propylène ($-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-$) et leurs mélanges.

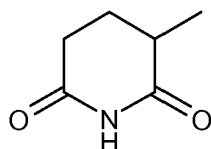
Selon un mode de réalisation préféré, A représente un radical $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-$.

Selon un mode de réalisation, dans la formule (I), R est H ou Me.

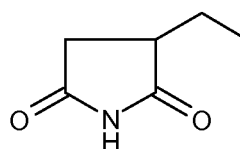
De préférence, dans la formule (I), R est H.

La présente invention concerne donc également la préparation de lactames par l'hydrogénation d'un mélange de composés de formule (I).

Selon un mode de réalisation, l'invention concerne la préparation de lactames par l'hydrogénation d'un mélange comprenant les composés suivants :

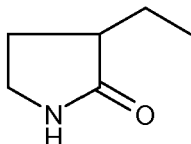


et

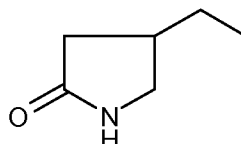


à savoir d'un mélange de MGI et de ESI, respectivement.

La présente invention concerne donc également un procédé tel que défini ci-dessus, pour préparer un mélange de lactames de formules (II-5) et (II-6) suivantes :

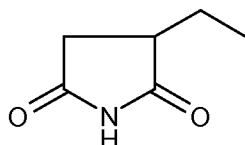


(II-5)



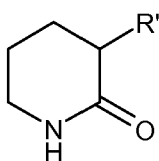
(II-6)

par hydrogénation de l'imide de formule (I-3) suivante :

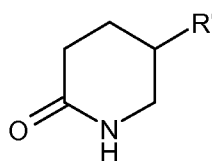


(I-3)

La présente invention concerne également un procédé tel que défini ci-dessus, pour préparer un mélange de lactames de formules (II-1) et (II-2) suivantes :

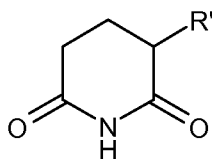


(II-1)



(II-2)

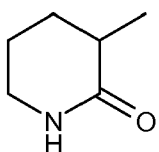
par hydrogénation de l'imide de formule (I-1) suivante :



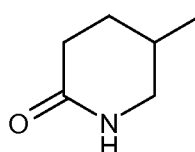
(I-1)

R' représentant un radical (C₁-C₄)alkyle, et de préférence méthyle ou éthyle.

La présente invention concerne également un procédé tel que défini ci-dessus, pour préparer un mélange de lactames de formules (II-3) et (II-4) suivantes :

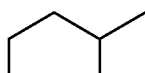


(II-3)



(II-4)

par hydrogénation de l'imide de formule (I-2) suivante :



(I-2)

5 Selon un mode de réalisation, l'imide de départ de formule (I) peut être du méthyl-glutarimide (MGI) obtenu à partir de méthyl-glutaronitrile (MGN), ou à partir d'un mélange de dinitriles issu du procédé de fabrication de l'adiponitrile par double hydrocyanation du butadiène. Ce mélange correspond de préférence à la fraction de distillation permettant de séparer les dinitriles ramifiés (méthyl-2 glutaronitrile, éthyl-
10 2 succinonitrile) de l'adiponitrile.

 Ce mélange de dinitriles a généralement la composition pondérale suivante :

 - méthyl-2 glutaronitrile : compris entre 70% et 95%, de préférence entre 80% et 85% ;

 - éthyl-2 succinonitrile : compris entre 5% et 30%, de préférence entre 8% et
15 12% ; et

 - adiponitrile : compris entre 0% et 10%, de préférence entre 1% et 5%,
le complément à 100% correspondant à différentes impuretés.

 L'imide de départ de formule (I), lorsqu'il s'agit notamment du méthyl-glutarimide (MGI), peut être obtenu à partir de méthyl-glutaronitrile (MGN), ou à
20 partir d'un mélange de dinitriles tel que décrit ci-dessus, par exemple selon un procédé de réaction du MGN ou du mélange de dinitriles avec un acide, tel que décrit dans la demande internationale WO2011/144619. Il peut également être obtenu selon un procédé d'hydrolyse en présence d'eau du MGN ou du mélange de dinitriles, ce qui correspond à la première étape du procédé décrit par exemple dans
25 la demande internationale WO2009/056477.

 Le procédé de l'invention est effectué à une pression inférieure à 60 bar, de préférence inférieure à 50 bar, et ce afin d'éviter l'hydrogénation des deux fonctions carbonyles, ce qui empêcherait l'obtention de lactames.

30 Selon un mode de réalisation, le procédé de l'invention est effectué à une pression allant de 10 bar à 50 bar, et de préférence à une pression allant de 10 à 40 bar, notamment de 20 à 40 bar, et préférentiellement égale à 20 bar.

 Selon un mode de réalisation préféré, la pression est de 20 à 25 bar.

 Le procédé de l'invention permet donc de travailler à des faibles pressions, ce
35 qui est particulièrement avantageux d'un point de vue industriel.

De préférence, le procédé de l'invention est effectué à une température supérieure à la température de fusion des imides.

Selon un mode de réalisation du procédé de l'invention, l'hydrogénation est effectuée à une température supérieure ou égale à 105°C, et de préférence inférieure à 230°C.

Il est préférable de travailler à des températures inférieures à 230°C pour éviter des réactions de polymérisation.

Selon un mode de réalisation avantageux, l'hydrogénation est effectuée à une température allant de 150°C à 220°C, et de préférence égale à 200°C.

Le procédé de l'invention est effectué en présence d'un catalyseur d'hydrogénation solide.

Le terme "catalyseur d'hydrogénation solide" désigne tout catalyseur solide bien connu de l'homme du métier pour catalyser les réactions d'hydrogénation.

Ce catalyseur peut être libre ou fixé sur un support inerte, notamment sur du charbon, de la silice ou de l'alumine.

Selon un mode de réalisation, le catalyseur d'hydrogénation utilisé dans le cadre de l'invention comprend un mélange de métaux choisis dans le groupe des métaux nobles et des métaux de transition, et éventuellement une substance inerte à titre de support.

Selon un mode de réalisation, le catalyseur d'hydrogénation utilisé dans le cadre de l'invention comprend un mélange de deux ou trois métaux choisis dans le groupe des métaux nobles et des métaux de transition, et éventuellement une substance inerte à titre de support.

Selon un mode de réalisation, le catalyseur d'hydrogénation comprend une substance inerte supportant les métaux tels que définis ci-dessus.

Comme indiqué précédemment, le catalyseur selon l'invention peut comprendre un support sur lequel est supporté un mélange de métaux ou peut être un mélange de plusieurs métaux, chacun des métaux pouvant être supportés indépendamment les uns des autres.

Le terme "métaux nobles" désigne un métal qui résiste à la corrosion et l'oxydation. Parmi ces métaux, on peut citer l'or, l'argent et le platine.

Le terme "métaux de transition" désigne les éléments qui ont une sous-couche d incomplète ou qui peuvent donner un cation ayant une sous-couche d incomplète. Dans le cadre de la présente invention, ce terme désigne les éléments d qui ne sont pas des métaux nobles. Les métaux de transition sont choisis parmi les éléments des colonnes 3 à 12, à l'exception du lutécium et du lawrencium.

Selon un mode de réalisation, le catalyseur d'hydrogénation tel que défini ci-dessus comprend deux métaux M1 et M2, chacun des métaux pouvant être supporté indépendamment l'un de l'autre ou le mélange M1+M2 pouvant être supporté.

5 Ainsi, selon un mode de réalisation, M1 est supporté par une substance inerte S1 et M2 est supporté par une substance inerte S2, S1 et S2 étant deux supports distincts, de nature identique ou différente. Dans ce cas, on peut également désigner le catalyseur d'hydrogénation comme un mélange de catalyseurs.

10 Ainsi, selon un autre mode de réalisation, le mélange formé par les métaux M1 et M2 est supporté par une substance inerte unique S1.

Dans le cadre de la présente invention, le catalyseur d'hydrogénation peut être un mélange de deux métaux choisis dans le groupe constitué du ruthénium, du platine, du palladium, de l'iridium et du rhodium, ledit mélange étant supporté par une substance inerte, notamment du charbon.

15 Selon un mode de réalisation, le catalyseur d'hydrogénation comprend, supporté par du charbon, du ruthénium en mélange avec un métal choisi dans le groupe constitué du platine, du palladium, de l'iridium et du rhodium.

20 Selon l'invention, le catalyseur d'hydrogénation peut être sous la forme d'un mélange comprenant du ruthénium supporté par du charbon et un autre métal tel que défini ci-dessus, supporté par du charbon.

 Selon un mode de réalisation préféré de l'invention, le catalyseur d'hydrogénation comprend un mélange de ruthénium et de palladium, ledit mélange étant supporté par du charbon.

25 Dans le cadre de la présente invention, la teneur massique de catalyseur est de préférence de 1% à 10% par rapport à la masse totale de composé(s) de formule (I). La teneur massique de catalyseur correspond à la teneur massique de l'ensemble formé par le métal et le support s'il est présent.

 De préférence, la teneur massique de catalyseur est de 5% par rapport à la masse totale de composé(s) de formule (I).

30 Selon un mode de réalisation préféré, le catalyseur est un mélange de ruthénium et de palladium supporté sur du charbon, comprenant de 2% à 7% de ruthénium et de 0,5% à 1,5% de palladium par rapport à la masse totale du catalyseur, le complément en masse correspondant au support charbon.

35 De préférence, le catalyseur est un mélange de ruthénium et de palladium supporté sur du charbon, comprenant 5% de ruthénium, 1% de palladium et 94% de charbon par rapport à la masse totale du catalyseur.

Les exemples qui suivent permettent d'illustrer davantage l'invention sans la limiter.

EXEMPLES

Exemple 1

Hydrogénation du 3-méthylglutarimide (MGI) avec mélange de catalyseur

Dans un autoclave agité en inox, on introduit 20 g de MGI, on ajoute 0,2 g de catalyseur à 1% en poids Pd/charbon (Pd/C) et 0,8 g de catalyseur 5% en poids Ru/C. L'autoclave est purgé deux fois avec 20 bar d'azote puis avec 3 fois 20 bar d'hydrogène. On place ensuite l'autoclave sous 15 bar et on chauffe à 200°C en agitant. On maintient pendant toute la durée de la réduction, une pression constante de 20 bar dans l'autoclave. Après 12 heures de réaction, l'autoclave est ramené à température ambiante et purgé avec deux fois 20 bar d'azote. Le milieu réactionnel est alors analysé par chromatographie en phase gazeuse.

La conversion en MGI est de 58% et le rendement en mélange des deux lactames est de 50%.

Exemple 2

Hydrogénation du 3-méthylglutarimide (MGI) avec un catalyseur mixte

Dans un autoclave agité en inox, on introduit 20 g de MGI, on ajoute 1,0 g de catalyseur (5% en poids Ru+ 1% en poids Pd)/C. L'autoclave est purgé deux fois avec 20 bar d'azote puis avec 3 fois 20 bar d'hydrogène. On place ensuite l'autoclave sous 15 bar et on chauffe à 200°C en agitant. On maintient pendant toute la durée de la réduction, une pression constante de 20 bar dans l'autoclave. Après 12 heures de réaction, l'autoclave est ramené à température ambiante et purgé avec deux fois 20 bar d'azote.

Le milieu réactionnel est alors analysé par chromatographie en phase gazeuse.

La conversion du MGI est de 100% et le rendement en mélange des deux lactames est de 92%, la présence de 3-méthylpipéridine n'est pas détectée.

Exemple 3***Hydrogénation du 3-méthylglutarimide (MGI) sous 40 bar***

5 Dans un autoclave agité en inox, on introduit 20 g de MGI, on ajoute 1,0 g de catalyseur (5% en poids Ru + 1% en poids Pd)/C. L'autoclave est purgé deux fois avec 20 bar d'azote puis avec 3 fois 20 bar d'hydrogène. On place ensuite l'autoclave sous 15 bar et on chauffe à 200°C en agitant. On maintient pendant
10 toute la durée de la réduction, une pression constante de 40 bar dans l'autoclave. Après 4 heures de réaction, l'autoclave est ramené à température ambiante et purgé avec deux fois 20 bar d'azote. Le milieu réactionnel est alors analysé par chromatographie en phase gazeuse.

15 La conversion du MGI est de 98% et le rendement en mélange de lactames est de 78%.

Exemple 4***Hydrogénation du mélange 3-éthylsuccinimide (ESI) et 3-méthylglutarimide (MGI)***

20 Dans un autoclave agité en inox, on introduit 20 g d'un mélange d'imides composé de 87% de MGI et 11% d'ESI, on ajoute 1,0 g de catalyseur (5% en poids Ru+ 1% en poids Pd)/C. L'autoclave est purgé deux fois avec 20 bar d'azote puis
25 avec 3 fois 20 bar d'hydrogène. On place ensuite l'autoclave sous 15 bar et on chauffe à 200°C en agitant. On maintient pendant toute la durée de la réduction, une pression constante de 20 bar dans l'autoclave. Après 4 heures de réaction, l'autoclave est ramené à température ambiante et purgé avec deux fois 20 bar d'azote. Le milieu réactionnel est alors analysé par chromatographie en phase
30 gazeuse.

La conversion des imides est de 90% et le rendement en mélange de lactames est de 82%

Exemple 5***Hydrogénation du N-méthyl-3-méthylglutarimide (N-Me-MGI) avec un catalyseur mixte***

Dans un autoclave agité en inox, on introduit 20 g de N-méthyl- MGI, on ajoute 1,0 g de catalyseur (5% en poids Ru+ 1% en poids Pd)/C. L'autoclave est purgé deux fois avec 20 bar d'azote puis avec 3 fois 20 bar d'hydrogène. On place ensuite l'autoclave sous 15 bar et on chauffe à 200°C en agitant. On maintient pendant toute la durée de la réduction, une pression constante de 20 bar dans l'autoclave. Après 4 heures de réaction, l'autoclave est ramené à température ambiante et purgé avec deux fois 20 bar d'azote.

Le milieu réactionnel est alors analysé par chromatographie en phase gazeuse. La conversion du N-méthyl-MGI est de 40% et le rendement en mélange des deux lactames est de 29%.

Exemple 6***Hydrogénation du N-octyl-3-méthylglutarimide (N-Oc-MGI) avec un catalyseur mixte***

Dans un autoclave agité en inox, on introduit 20 g de N-octyl-MGI, on ajoute 1,0 g de catalyseur (5% en poids Ru+ 1% en poids Pd)/C. L'autoclave est purgé deux fois avec 20 bar d'azote puis avec 3 fois 20 bar d'hydrogène. On place ensuite l'autoclave sous 15 bar et on chauffe à 200°C en agitant. On maintient pendant toute la durée de la réduction, une pression constante de 20 bar dans l'autoclave. Après 4 heures de réaction, l'autoclave est ramené à température ambiante et purgé avec deux fois 20 bar d'azote.

Le milieu réactionnel est alors analysé par chromatographie en phase gazeuse. La conversion du MGI est de 32% et le rendement en mélange des deux lactames est de 25%.

REVENDEICATIONS

5 1. Procédé de préparation de lactame par hydrogénation d'au moins un composé de formule (I) suivante :



10 dans laquelle :

- A représente un radical de formule (I') ou (II') suivante :



 dans lesquelles :

- R₁, R₂ et R₃ représentent indépendamment les uns des autres H, OH, un radical alkyle ou un radical cycloalkyle,

- R₁ et R₂ peuvent être reliés entre eux pour former avec les atomes de carbone qui les portent un cycle aliphatique comprenant de 4 à 6 atomes de carbone ;

- R₂ et R₃ peuvent être reliés entre eux pour former avec les atomes de carbone qui les portent un cycle aliphatique comprenant de 4 à 6 atomes de carbone ; et

- R représente H ou un radical alkyle, linéaire ou ramifié, comprenant de 1 à 20 atomes de carbone;

ledit procédé étant effectué à une pression inférieure à 60 bar,

en présence d'un catalyseur d'hydrogénation solide comprenant au moins deux métaux choisis dans le groupe des métaux nobles et des métaux de transition, et une substance inerte à titre de support.,

ledit composé de formule (I) pouvant être seul ou en mélange.

2. Procédé selon la revendication 1, dans lequel l'hydrogénation est effectuée en l'absence de solvant.

3. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 ou 2, dans lequel l'hydrogénation est effectuée en phase liquide.

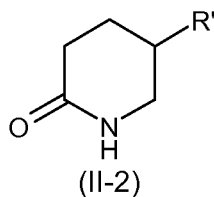
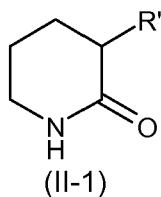
4. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, dans lequel R₁, R₂ et R₃ représentent H ou un radical (C₁-C₄)alkyle.

5. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, dans lequel A est un radical de formule $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{R}')$, R' représentant un radical (C_1 - C_4)alkyle, et de préférence méthyle ou éthyle.

6. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel R est H.

7. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, dans lequel l'hydrogénation est effectuée à une température supérieure ou égale à 105°C , et de préférence inférieure à 230°C , et préférentiellement égale à 200°C .

8. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 7, de préparation d'un mélange de lactames de formules (II-1) et (II-2) suivantes :



par hydrogénation de l'imide de formule (I-1) suivante :



R' représentant un radical (C_1 - C_4)alkyle, et de préférence méthyle ou éthyle.

9. Procédé suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que la pression est comprise entre 10 bar et 50 bar.

10. Procédé suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que R représente un radical alkyle, linéaire ou ramifié, comprenant de 1 à 10, préférentiellement de 1 à 4, atomes de carbone.

11. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 10, dans lequel le catalyseur d'hydrogénation est un mélange d'au moins deux métaux choisis dans le groupe constitué du ruthénium, du platine, du palladium, de l'iridium et du

rhodium, ledit mélange étant supporté par une substance inerte, notamment du charbon.

5 **12.** Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 11 dans lequel le catalyseur d'hydrogénation comprend, supporté par du charbon, du ruthénium en mélange avec au moins un métal choisi dans le groupe constitué du platine, du palladium, de l'iridium et du rhodium.

10 **13.** Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 12, dans lequel le catalyseur d'hydrogénation comprend un mélange de ruthénium et de palladium, ledit mélange étant supporté par du charbon.

15 **14.** Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 13, dans lequel la teneur massique de catalyseur est de 1% à 10%, et de préférence égale à 5%, par rapport à la masse totale de composé(s) de formule (I).