



УКРАЇНА

(19) UA (11) 89489 (13) C2  
(51) МПК  
C07C 51/44 (2006.01)  
C07C 53/08 (2006.01)

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ  
І НАУКИ УКРАЇНИ

ДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ  
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ  
ВЛАСНОСТІ

## ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

(54) СПОСІБ СЕПАРАЦІЇ АЦЕТАЛЬДЕГІДУ ВІД МЕТИЛЙОДИДУ ТА СПОСІБ ВИРОБНИЦТВА ОЦТОВОЇ КИСЛОТИ (ВАРІАНТИ)

1

(21) а200609405  
(22) 24.02.2005  
(24) 10.02.2010  
(86) PCT/US2005/005787, 24.02.2005  
(31) 10/708,422  
(32) 02.03.2004  
(33) US  
(46) 10.02.2010, Бюл.№ 3, 2010 р.  
(72) ТРУЕБА ДЕВІД А., US, КУЛКАРНІ ШРІКАНТ Ю., US  
(73) СЕЛАНІЗ ІНТЕРНЕТШІП КОРПОРЕЙШН, US  
(56) EP, 0687662, A2, 20.12.1995  
EP, 0665210, A1, 02.08.1995  
(57) 1. Спосіб сепарації ацетальдегіду від метилйодиду шляхом дистиляції, який включає такі етапи:  
дистиляцію суміші, яка містить метилйодид та ацетальдегід в дистиляційному апараті для одержання дистиляту, який містить метилйодид та ацетальдегід, та залишку,  
визначення густини вказаного дистиляту, та коригування щонайменше одного з технологічних параметрів процесу, пов'язаного з вказаним дистиляційним апаратом, засновуючись на вказаній вимірній густині дистиляту або на відносній концентрації ацетальдегіду в дистиляті, вирахованій з визначеної густини дистиляту для оптимізації розділення метилйодиду та ацетальдегіду при дистиляції, причому вказані параметри процесу вибирають з групи, яка включає тепловий режим дистиляційного апарата, тиск у дистиляційному апараті, склад вихідної реакційної суміші у дистиляційному апараті, склад флегми у дистиляційному апараті та флегмове число дистиляційного апарата.  
2. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що додатково включає стадію екстракції, на якій вказаний дистилят одержують за допомогою води, яку додають на вказаній стадії екстракції зі швидкістю, необхідною для одержання водного екстракту, що складається з ацетальдегіду та рафінату, який містить метилйодид.  
3. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що вимірюють густину дистиляту, а тепловий режим чи флегмове число коригують, засновуючись на вка-

2

заній густині чи на концентрації, вирахованій на її основі.  
4. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що вимірюють густину дистиляту, а тепловий режим коригують, засновуючись на вказаній густині чи на концентрації, вирахованій на її основі.  
5. Спосіб за п. 2, який **відрізняється** тим, що вимірюють густину рафінату, який містить метилйодид, а швидкість подавання води до вказаного етапу екстракції коригують, засновуючись на вказаній густині вказаного рафінату, який містить метилйодид, або на концентрації ацетальдегіду у вказаному рафінаті, який містить метилйодид, вирахованій на основі густини вказаного рафінату, який містить метилйодид.  
6. Спосіб виробництва оцтової кислоти, який включає такі етапи:  
реагування метанолу з монооксидом вуглецю в реакційному середовищі, яке містить воду, метилйодид та метилацетат в присутності каталізатора карбонілювання металу VIII Групи, розділення продуктів вказаної реакції на летку продуктову фазу, яка містить оцтову кислоту, та на менш летку фазу,  
дистиляція вказаної леткої фази в дистиляційному апараті для одержання продукту очищеної оцтової кислоти та головного дистиляту, який містить метилйодид та ацетальдегід,  
конденсування щонайменше частини вказаного головного дистиляту,  
вимірювання густини вказаного конденсованого головного дистиляту безпосередньо в умовах процесу з використанням звичайного денситометра, та  
коригування щонайменше одного з контрольних параметрів процесу, пов'язаного з дистиляцією вказаної леткої фази відповідно до вказаної вимірної густини чи до концентрації, вирахованої на її основі.  
7. Спосіб за п. 6, який **відрізняється** тим, що очищений продукт оцтової кислоти містить менше ніж 400 мас. частин на млн. пропіонової кислоти.  
8. Спосіб за п. 7, який **відрізняється** тим, що очищений продукт оцтової кислоти містить менше ніж 250 мас. частин на млн. пропіонової кислоти.

(19) UA (11) 89489 (13) C2

9. Спосіб за п. 6, який **відрізняється** тим, що вказаний щонайменше один контрольний параметр процесу вибирають з групи, яка включає тепловий режим у вказаному дистиляційному апараті, склад вихідної реакційної суміші або флегми в колоні вказаного дистиляційного апарата, флегмове число у вказаному дистиляційному апараті, тиск в колоні вказаного дистиляційного апарата та комбінації вказаних параметрів.

10. Спосіб за п. 6, який **відрізняється** тим, що вказаний етап дистиляції містить щонайменше дві послідовні дистиляції, крім того, вказаний процес включає етап подавання щонайменше частини залишку з однієї із вказаних дистиляцій як потоку флегми до іншої вказаної дистиляції, при цьому пропорційна частка вказаного залишку, який подають як флегму, коригують, засновуючись на вказаній густині чи на концентрації, вирахованій на її основі.

11. Спосіб за п. 6, який **відрізняється** тим, що додатково містить етап екстракції вказаного головного дистиляту водою для одержання рафінату, який містить метилйодид.

12. Спосіб за п. 11, який **відрізняється** тим, що швидкість потоку води, пов'язаного із вказаним етапом екстракції, коригують, засновуючись на вказаній густині чи на концентрації, вирахованій на її основі.

13. Спосіб за п. 11, який **відрізняється** тим, що додатково включає змішування щонайменше частини вказаного рафінату з вихідною реакційною сумішшю чи з потоком дистиляту, що пов'язані із вказаним дистиляційним апаратом, причому фракційність вказаного рафінату, який змішують з вихідною реакційною сумішшю або з потоком дистиляту, коригують, засновуючись на вказаній густині чи на концентрації, вирахованій на її основі.

14. Спосіб виробництва оцтової кислоти, який включає такі етапи:

реагування метанолу з монооксидом вуглецю в реакційному середовищі, яке містить воду та метилйодид в присутності каталізатора карбонілювання металу VIII Групи,

здійснення сепарації вода-пар вказаного реакційного середовища для одержання парової фази, яка містить оцтову кислоту, метилйодид, ацетальдегід і воду, та рідкої фази,

дистиляція вказаної парової фази в дистиляційному апараті для одержання продукту очищеної оцтової кислоти та щонайменше головного дистиляту, який містить ацетальдегід та метилйодид, конденсація вказаного головного дистиляту, екстракція вказаного головного дистиляту водою для одержання рафінату, який містить метилйодид та водний екстракт,

вимірювання густини щонайменше одного з потоків, вибраних з групи, яка включає вказаний головний дистилят, вказаний рафінат та вказаний водний екстракт безпосередньо в умовах процесу, використовуючи звичайний денситометр, коригування щонайменше одного з контрольних параметрів процесу, пов'язаного або з дистиляцією вказаної парової фази, або з екстракцією вказаного головного дистиляту, засновуючись на вказаній густині або на концентрації, вирахованій на її основі.

15. Спосіб за п. 14, який **відрізняється** тим, що вказаний щонайменше один з контрольних параметрів процесу вибирають з групи, яка включає тепловий режим вказаного дистиляційного апарата, склад вихідної реакційної суміші або флегми в колоні вказаного дистиляційного апарата, флегмове число у вказаному дистиляційному апараті, тиск у вказаному дистиляційному апараті, швидкість подавання води до вказаного етапу екстракції та комбінації вказаних параметрів.

16. Спосіб за п. 14, який **відрізняється** тим, що додатково включає підтримання концентрації пропіонової кислоти у вказаному продукті оцтової кислоти нижче ніж 400 мас. частин на млн.

17. Спосіб за п. 16, який **відрізняється** тим, що додатково включає підтримання концентрації пропіонової кислоти у вказаному продукті оцтової кислоти нижче ніж 250 мас. частин на млн.

Цей винахід відноситься до поліпшеного способу видалення сполук, що відновлюють перманганат, та алкілйодидів, які формуються в процесі карбонілювання метанолу в присутності металічного каталізатора карбонілювання з VIII Групи. Більш конкретно, цей винахід відноситься до поліпшеного способу зменшення та/або видалення попередників (прекурсорів) сполук, що відновлюють перманганат, та алкілйодидів з проміжних потоків під час отримання оцтової кислоти в ході вказаного процесу карбонілювання.

Серед способів синтезування оцтової кислоти, які використовуються на сьогодні, одним з найбільш прийнятних для комерційного використання є карбонілювання метанолу монооксидом вуглецю в присутності каталізатора, як показано в [Патенті США №3,769,329, виданого Paulik та ін. 30 жовтня 1973р.]. Каталізатор карбонілювання містить родій, або розчинений, або, в протилежному випад-

ку, диспергований в рідкому реакційному середовищі, або такий, що знаходиться у формі інертного твердого тіла, разом з промотором каталізатора, який містить галоген, наприклад метилйодид. Родій може бути введений в реакційну систему в будь-якій з багатьох форм, а точна природа дії родієвої складової у складі активного каталітичного комплексу є невизначеною. Подібно до цього, природа дії галогенідного промотора не є вирішальною. В патентах наводиться велика кількість придатних промоторів, більшість з яких є органічними йодидами. Найбільш типовим і ефективним є проведення процесу реакції шляхом безперервного барботування газоподібного монооксиду вуглецю через рідке реакційне середовище, в якому розчинений каталізатор.

Покращання в існуючому рівні техніки карбонілювання спирту для виробництва карбонової кислоти, яка має одним атомом вуглецю більше, ніж

спирт, в присутності родієвого каталізатора, наведені в [патентах Патент США №5,001,259, опубл.19.03.1991; 5,026,908, опубл.25.06.1991; та 5,144,068, опубл.01.09.1992; та EP 0 161 874 B2, опубл.01.07.1992]. Як показано в них, оцтова кислота виробляється з метанолу в реакційному середовищі, яке містить метилацетат, метилгалогенід, особливо метилйодид та в присутності родію в каталітично ефективній концентрації. В цих патентах показано, що стабільність каталізатора та продуктивність реактора карбонілювання можуть підтримуватися на дивуюче високих рівнях, навіть при дуже малих концентраціях води в реакційному середовищі, а саме 4 вагових проценти чи менше (всупереч загальній промисловій практиці підтримання концентрацій води на рівні 14-15ваг.%), шляхом підтримання в реакційному середовищі, разом з каталітично ефективною кількістю родію та принаймні граничною концентрацією води, певної концентрації іонів йодиду, на додаток до вмісту йодиду, присутнього як метилйодид чи інший органічний йодид. Іони йодиду (йодидний іонний стабілізатор/сопромотор) присутні у вигляді простої солі, бажано, щоб це був йодид літію. В патентах показано, що концентрації метилацетату та йодидних солей є суттєвими параметрами, які впливають на швидкість карбонілювання метанолу при виробництві оцтової кислоти, особливо при малих концентраціях води в реакторі. При застосуванні відносно високих концентрацій метилацетату та йодидної солі отримано дивуючий рівень стабільності каталізатора та продуктивності реактора, навіть коли рідке реакційне середовище містить воду в концентраціях настільки низьких, що вони складають близько 0.1ваг.%, тобто є такими малими, які можна визначити як "гранична концентрація води". Окрім цього, реакційне середовище, яке використовується, підвищує стабільність родієвого каталізатора, тобто протидіє випадінню каталізатора в осад, особливо на тих етапах процесу, на яких відбувається виділення продукту. На цих етапах, при дистиляції з метою рекуперації цільової оцтової кислоти спостерігається тенденція до видалення з каталізатора монооксиду вуглецю, який в середовищі, яке підтримується в реакторі, є лігандом і має стабілізуючий вплив на родій. [Патенти США 5,001,259, 5,026,908 and 5,144,068] тут вміщено за посиланнями.

Встановлено, що хоча маловодний процес карбонілювання для отримання оцтової кислоти зменшує кількість таких побічних продуктів, як діоксид вуглецю, водень та пропіонова кислота, кількість інших забруднюючих домішок, присутніх в основному в "слідових" (дуже малих) кількостях, при цьому підвищується, а якість оцтової кислоти часом знижується, якщо робляться спроби підвищення продуктивності шляхом удосконалення каталізаторів, або модифікування умов протікання реакції.

Ці "слідові" забруднюючі домішки негативно впливають на якість оцтової кислоти, особливо коли вони рециркулюють в ході процесу реакції. Забруднюючі домішки, які зменшують "час зміни кольору після додавання перманганату" (перманганатний час) оцтової кислоти, містять карбонільні

сполуки та несатуровані карбонільні сполуки. Якщо в даному описі вживається поняття "карбоніл", то мається на увазі, що воно означає сполуки, які містять альдегідні чи кетонів функціональні групи, причому ці сполуки можуть як бути, так і не бути ненасиченими. Для подальшого розгляду питань, пов'язаних з забрудненнями в способі карбонілювання дивись *Catalysis of Organic Reaction*, 75, 369-380 (1998).

Даний винахід спрямований на зменшення та/або видалення сполук, що відновлюють перманганат (СВП), таких, як ацетальдегід, ацетон, метил етил кетон, бутіральдегід, кротоновий альдегід, 2-етил кротоновий альдегід, 2-етил бутіральдегід та подібних їм, та продуктів альдольної конденсації. Даний винахід також призводить до зменшення кількості пропіонової кислоти.

Забруднюючі карбонільні домішки, які були описані вище, такі, як ацетальдегід, можуть реагувати з йодидними промоторами каталізатора зі створенням мультикарбонілових алкілйодидів, таких як етилйодид, бутилйодид, гексилйодид та подібних їм. Бажано видаляти алкілйодиди з продукту реакції через те, що навіть невеликі кількості цих забруднюючих домішок в цільовій оцтовій кислоті призводять до отруєння каталізатора, який використовується у виробництві вінілацетату, продукту, який найбільш часто виробляється з оцтової кислоти. Даний винахід, таким чином, також спрямований на видалення алкілйодидів, зокрема, C<sub>2-12</sub> алкілйодидних сполук. Відповідно до цього, через те, що багато небажаних домішок ініціюються ацетальдегідом, першочерговим завданням є видалення чи зменшення вмісту ацетальдегіду та алкілйодиду в ході процесу.

Звичайні технологічні прийоми видалення небажаних домішок включають обробку продукту оцтової кислоти окислювачами, озоном, водою, метанолом, активованим вугіллям, амінами та подібними їм, причому ця обробка може як поєднуватися, так і не поєднуватися з дистиляцією оцтової кислоти. Найбільш типова обробка з метою очистки включає серію дистиляцій кінцевого продукту. Відомий, наприклад, з Патенту США №5,783,731, спосіб видалення небажаних карбонільних домішок з органічних потоків шляхом обробки органічних потоків аміновими сполуками, такими, як гідроксиамін, які реагують з карбонільними сполуками зі створенням оксимів, після чого проводиться дистиляція з метою сепарації очищеного органічного продукту від оксимових продуктів реакції. Однак, додаткова обробка кінцевого продукту потребує додаткової витрати коштів, а дистиляція обробленого продукту оцтової кислоти може призвести до формування додаткових небажаних домішок.

Не дивлячись на те, що таким чином можна отримати оцтову кислоту порівняно високої чистоти, цільова оцтова кислота, яка утворюється в результаті маловодного процесу карбонілювання та обробки для очищення, яку описано вище, часто залишається не досить задовільним з точки зору "часу зміни кольору після додавання перманганату" через присутність малих кількостей залишкових забруднюючих домішок. Так як визначені

"час зміни кольору після додавання перманганату" є важливим промисловим тестом, який має пройти оцтова кислота, щоб її можна було використовувати для багатьох потреб, присутність забруднюючих домішок, які знижують цей час, є небажаною. Крім того, не є економічно чи комерційно виправданим видалення дуже незначних кількостей цих домішок з оцтової кислоти шляхом дистиляції через те, що деякі домішки мають точки кипіння, близькі до тієї, яку має цільова оцтова кислота.

Таким чином, важливим стає визначення економічно придатних способів видалення небажаних домішок на інших етапах процесу карбонілювання без забруднення кінцевого продукту чи витрачання додаткових коштів, яке не є необхідним. Патент США №5,756,836, який вміщено тут за посиланням, розкриває спосіб виробництва оцтової кислоти високої чистоти шляхом регулювання концентрації ацетальдегіду в реакційному розчині на рівні, нижчому, ніж 1500 част./млн. При цьому вказується, що шляхом підтримання концентрації ацетальдегіду нижче цього порогу, можливо запобігти формуванню небажаних домішок і, таким чином, потрібно тільки провести дистиляцію необробленої оцтової кислоти, щоб отримати оцтову кислоту високої чистоти.

В Європейському патенті №EP 0 487 284 B1, опублікованому 12.04.1995, показано, що карбонільні небажані домішки, присутні в продукті оцтової кислоти, в основному концентруються в дистиляті з колони для перегонки легких фракцій. Таким чином, дистилят з колони для перегонки легких фракцій обробляється аміновою сполукою (такою, як гідроксиламін), яка реагує з карбонільними сполуками з утворенням похідних оксиму, які можуть бути відокремлені з дистиляту, що залишився, шляхом дистиляції, в результаті чого цільова оцтова кислота буде мати покращений "час зміни кольору після додавання перманганату".

Європейська [патентна заявка №EP 0 687 662 A2 та Патент США №5,625,095] описують спосіб виробництва оцтової кислоти високої чистоти, в якому концентрація ацетальдегіду близько 400 част./млн. чи менша підтримується в реакторі шляхом використання одиничного чи мультистадійного дистиляційного процесу видалення ацетальдегіду. Потoki, які піддаються обробці з метою видалення ацетальдегіду, включають легку фазу, яка в основному містить воду, оцтову кислоту та метилацетат; важку фазу, яка містить в основному метилйодид, метилацетат та оцтову кислоту; потік дистиляту, який в основному містить метилйодид та метилацетат; чи рециркуляційний потік, утворений об'єднанням легкої та важкої фаз. В цих посиланнях не роз'яснюється, який з цих потоків містить найбільшу концентрацію ацетальдегіду.

В [патенті EP 0 687 662 A2 та Патенті США №5,625,095] також розкрито управління умовами проведення реакції з метою контролювання утворення ацетальдегіду в реакторі. Також відзначено, що утворення побічних продуктів, таких, як кротоний альдегід, 2-етилкротональдегід та алкілйодиди, гальмується шляхом контролювання утворення ацетальдегіду, також зазначено, що підтримання запропонованих умов проведення

реакції збільшує утворення пропіонової кислоти, небажаного побічного продукту.

Більш недавно, у [патентах США №s. 6,143,930 та 6,339,171] розкрито, що можливо суттєво знизити вміст небажаних домішок в цільовій оцтовій кислоті шляхом здійснення мультистадійної очистки дистиляту з колони легких фракцій. В цих патентах розкрито спосіб очистки, в якому дистилят легких фракцій дистилюється двічі, кожного разу забираючи потік ацетальдегіду і повертаючи до реактора багатий на метилйодид залишок. Дистилят, збагачений ацетальдегідом, екстрагується водою з метою видалення більшості ацетальдегіду як відходу, із залишенням значно меншої концентрації ацетальдегіду в рафінаці, який рециркулюється до реактора. Патенти США №s. 6,143,930 та 6,339,171 наведені тут за посиланнями в усій повноті.

Хоча вищеописані способи є ефективними у видаленні карбонільних небажаних домішок з карбоніляційної системи та, значним чином, у контролюванні рівнів ацетальдегіду і проблем, пов'язаних з "часом зміни кольору після додавання перманганату" для кінцевої оцтової кислоти, подальші удосконалення все ще можуть бути зроблені. Також лишається необхідність в наявності альтернативних способів підвищення ефективності видалення ацетальдегіду. Даний винахід надає одне з таких альтернативних рішень.

В одному аспекті, даний винахід представляє спосіб відділення ацетальдегіду від метилйодиду шляхом дистиляції. Спосіб включає етапи дистиляції суміші, яка містить метилйодид та ацетальдегід в дистиляційному апараті для отримання дистиляту та залишку; вимірювання густини дистиляту; та коригування щонайменше одного з параметрів процесу, пов'язаного з вказаним дистиляційним апаратом, під впливом вимірної густини чи відносної концентрації, вирахованої на її основі, де параметри процесу вибираються з температурного режиму, тиску в колоні, складу вихідної реакційної суміші, складу флегми, та флегмового числа.

В іншому аспекті даний винахід представляє спосіб відділення ацетальдегіду від метилйодиду. Спосіб включає етапи дистиляції суміші, яка містить метилйодид та ацетальдегід в дистиляційному апараті для отримання дистиляту і залишку; екстракція дистиляту водою для отримання водного екстракту та рафінаці; вимірювання густини щонайменше одного з дистиляту, екстракту та рафінаці; та коригування щонайменше одного з параметрів процесу, пов'язаного з вказаним дистиляційним апаратом чи етапом екстракції, заснованих на вимірній густині чи на відносній концентрації, вирахованій на її основі. Параметри процесу, які підлягають коригуванню, вибираються з групи, яка включає температурний режим в колоні, тиск в колоні, склад вихідної реакційної суміші, склад флегми і флегмове число в дистиляційному апараті та норма подавання води до екстрактора.

В ще іншому варіанті, даний винахід представляє спосіб виробництва оцтової кислоти. Спосіб включає наступні етапи: реагування метанолу з

монооксидом вуглецю в реакційному середовищі, яке містить воду та метилйодид в присутності каталізатора; сепарація реакційного середовища на пароподібну фазу, яка містить оцтову кислоту, метилйодид, ацетальдегід та воду та рідку фазу; дистиляція парової фази для отримання очищеного продукту оцтової кислоти та головного дистиляту, який містить метилйодид та ацетальдегід; конденсація головного дистиляту та екстракція його водою для отримання водного екстракту та рафінату, який містить метилйодид; вимірювання густини щонайменше одного з головного дистиляту, водного екстракту та рафінату; та коригування щонайменше одного з контрольних параметрів процесу, пов'язаного з дистиляцією чи екстракцією другого дистиляту, засновуючись на вимірній густині чи на відносній концентрації ацетальдегіду чи метилйодиду, вирахованій на її основі.

Фіг.1 ілюструє наданий в Патенті США №6,339,171 спосіб з попереднього рівня техніки, який стосується видалення небажаних карбонільних домішок з проміжного потоку процесу карбонілювання при отриманні оцтової кислоти шляхом реакції карбонілювання.

Фіг.2-4 ілюструють бажані варіанти здійснення даного винаходу, в яких денсіметр встановлено на потоці, який має той самий склад, що і дистилят з другої дистиляційної колони.

Фіг.5 ілюструє взаємозв'язок між виміряною густиною потоку дистиляту 54 та відповідними концентраціями ацетальдегіду та метилйодиду в цьому потоці.

Так як винахід придатний для різноманітних модифікацій та альтернативних рішень, специфічні варіанти здійснення показані в якості прикладу і будуть в подальшому детально описані. Має бути зрозумілим, що винахід не обмежується цими окремими, описаними тут варіантами. Скоріше винахід є таким, що охоплює всі модифікації, еквіваленти та альтернативні рішення, які входять до сфери дії винаходу як це зазначено в пунктах формули, що заявляється.

Пояснюючі описи прикладів здійснень винаходу надано нижче. Задля ясності викладення, не всі характерні ознаки фактичної реалізації надані в цьому поясненні. Звичайно, є зрозумілим, що в розвиток будь-якого існуючого такого здійснення, потрібно здійснити численні відповідні конкретні рішення, щоб досягти конкретних цілей розробників, пов'язаних з обмеженнями, які накладаються системою виробництва та бізнесом, і які будуть варіюватися від одного варіанту здійснення до іншого. Крім того, зрозуміло, що таке розробницьке зусилля може бути комплексним та трудомістким, але буде, тим не менш, рутинною задачею для осіб з середнім рівнем умінь в даній галузі, які зацікавлені в даному технічному рішенні.

Спосіб очищення, представлений в даному винаході, є корисним в будь-якому процесі карбонілювання метанолу для отримання оцтової кислоти в присутності металічного каталізатора VIII Групи, такого, як родій, та йодидного промотора. Особливо корисним є спосіб отримання оцтової кислоти шляхом маловодного карбонілювання метанолу в присутності родієвого каталізатора,

наведений в Патенті США №5,001,259. В основному, родієвий компонент каталітичної системи присутній у формі комплексної сполуки родію з галогеновим компонентом, який формує щонайменше одну з ліганд такої комплексної сполуки. На додаток до взаємодії родію та галогену, монооксид вуглецю взаємодіє з родієм. Родієвий компонент каталітичної системи може подаватися шляхом введення в реакційну зону родію в металічній формі, солей родію таких, як оксиди, ацетати, йодиди і т.д. чи інших комплексних сполук родію тощо.

До складу компоненту каталітичної системи галоген-промотор входить галогенова сполука, яка містить органічний галогенід. В такій якості можуть використовуватися алкіл, арил та заміщені алкіли та арилгалогеніди. Бажано, щоб галогенідний промотор був присутній в формі алкілгалогеніду, в якій алкільний радикал відповідає алкільному радикалу харчового спирту, який карбонілюється. Таким чином, при карбонілюванні метанолу для отримання оцтової кислоти, галогенідний промотор буде містити метилгалогенід, а більш бажано - метилйодид.

Рідке реакційне середовище, яке використовується, може містити будь-який розчинник, сумісний з каталітичною системою, та може містити чисті спирти, чи суміші спиртової сировини та/або бажану карбонову кислоту та/або складні ефіри цих двох компонентів. Бажаним розчинником та рідким реакційним середовищем для маловодного процесу карбонілювання є продукт карбонової кислоти. Таким чином, для карбонілювання метанолу з метою отримання оцтової кислоти, бажаним розчинником є оцтова кислота.

Вода знаходиться в реакційному середовищі, але в концентраціях, значно менших за ті, які раніше вважали за доцільне застосовувати для отримання задовільних швидкостей реакції. Раніше вважалося, що в реакціях карбонілювання в присутності родієвого каталізатора, таких, як описано в даному винаході, додавання води має позитивний вплив на швидкість реакції [Патент США №3,769,329]. Через це більшість процесів промислового масштабу протікають при концентраціях води щонайменше 14ваг.%. Тому дуже неочікуваним є те, що швидкості реакції, які в основному не поступаються, або перевищують ті, які досягаються при таких високих концентраціях води, можуть бути досягнуті при концентраціях води менше, ніж 14ваг.%, тим більш з такою низькою концентрацією, як близько 0.1ваг.%.

У відповідності з процесом карбонілювання, найбільш придатним для виробництва оцтової кислоти відповідно до даного винаходу, бажані швидкості реакції досягаються навіть при низьких концентраціях води шляхом введення до реакційного середовища метилацетату та додаткових іонів йодиду, які вводяться в додаток до йодиду, присутнього в якості каталізатора-промотора, такого як метилйодид чи інший органічний йодид. Додатковий йодидний сопромотор є йодидною сіллю, бажано йодидом літію. З'ясовано, що при низьких концентраціях води, метилацетат та йодид літію поведуться як промотори швидкості тільки в тому випадку, коли присутні відносно високі

концентрації кожного з цих компонентів, а промотування є вищим, якщо обидва з цих компонентів присутні спільно [Пат. США №5,001,259]. Концентрація йодиду літію, яка використовується в реакційному середовищі в бажаній реакційній системі карбонілювання, має бути доволі високою, яку можна порівняти з тією, яку надає невеликий попередній досвід в галузі використання галідів в реакційних системах такого роду. Абсолютна концентрація іонів йодиду не є обмеженням з точки зору застосованості даного винаходу.

Реакція карбонілювання метанолу для отримання оцтової кислоти може проводитися шляхом контактування метанолу, що подається в рідкій фазі, з газоподібним монооксидом вуглецю, який барботує крізь рідке реакційне середовище з оцтовою кислотою-розчинником, яке містить каталізатор родію, промотор метилйодид, метилацетат та додатково розчинну йодидну сіль, в умовах таких температури та тиску, які підходять для отримання продукту карбонілювання. Треба зазначити, що саме концентрація іонів йодиду в каталітичній системі є важливою, а не катіон, зв'язаний з йодидом, та що при даній молярній концентрації йодиду природа катіону не є такою значущою, як вплив концентрації йодиду. Будь-яка йодидна сіль металу, чи будь-яка йодидна сіль з будь-яким органічним катіоном, чи четвертинний катіон, такий як четвертинний амін, або фосфін, або неорганічний катіон можуть використовуватися за умови, що сіль є достатньо розчинною в реакційному середовищі для забезпечення бажаного рівня йодиду. Коли йодид додається у вигляді солі металу, бажано, щоб це була йодидна сіль металу з групи IA та групи IIA періодичної таблиці як описано в "Handbook of Chemistry and Physics", опублікованій CRC Press, Cleveland, Ohio, 1975-76 (56th edition). Зокрема, придатними є йодиди лужних металів, бажано йодид літію. В маловодному способі карбонілювання найбільш придатному для здійснення даного винаходу, додатковий йодид, у додаток до органічного йодиду-промотору, присутній в каталітичному розчині в кількостях від близько 2 до 20 ваг.%, метилацетат присутній в кількостях від близько 0.5 до 30 ваг.%, а йодид літію присутній в кількостях від близько 5 до 20 ваг.%. Родієвий каталізатор присутній в кількостях від близько 200 до приблизно 2000 част./млн.

Типові температури реакції карбонілювання будуть знаходитися в межах приблизно від 150 до 250°C, причому межі температур від близько 180 до 220°C є бажаними межами. Парціальний тиск монооксиду вуглецю в реакторі може варіюватися в широких межах, але зазвичай він становить від близько 2 до 30 атмосфер, причому бажаними межами є від 3 до 10 атмосфер. Через парціальний тиск побічних продуктів та тиск парів присутніх рідин, загальний тиск в реакторі буде варіюватися від близько 15 до близько 40 атмосфер.

Типова реакція і система для регенерації оцтової кислоти, які використовуються для карбонілювання метанолу в присутності йодидного промотора і родієвого каталізатора для отримання оцтової кислоти, показані на Фіг.1, містять рідиннофазний реактор карбонілювання, випарник та

колону для легких фракцій метилйодиду і оцтової кислоти 14, в якій отримується бічний потік оцтової кислоти 17, який направляється на подальше очищення. Реактор та випарник не показані на Фіг.1. Це все є стандартним обладнанням, добре відомим зараз в галузі процесів карбонілювання. Реактор карбонілювання є типовим резервуаром з розмішувачем, або барботажною реакторною колоною, в якому реакційна рідина чи рідкий вміст підтримуються автоматично на постійному рівні. В цей реактор постійно подається свіжий метанол, монооксид вуглецю, вода у кількості, достатній для того, щоб забезпечити щонайменше граничну концентрацію води в реакційному середовищі, рециклізований каталітичний розчин з випарника, рециклізована метилйодидна та метилацетатна фаза та рециклізована водна фаза оцтової кислоти з приймача дистиляту легких фракцій метилйодиду та оцтової кислоти чи з розділювальної колони 14 (колони для розділення фракцій). Використовуються такі дистиляційні системи, які забезпечують можливість для рекуперації сирової оцтової кислоти та каталітичного розчину, що рециркулюється, метилйодиду та метилацетату до реактора. В бажаному способі, монооксид вуглецю постійно подається в реактор карбонілювання безпосередньо під перемішувачий пристрій, який використовується для перемішування вмісту. Внаслідок цього перемішування, газ, що подається, повністю диспергується в об'ємі реакційної рідини. Потік очищеного газу видаляється з реактора для запобігання утворенню газоподібних побічних продуктів та підтримання встановленого надлишкового парціального тиску монооксиду вуглецю на рівні певного загального тиску в реакторі. Температура в реакторі контролюється, а монооксид вуглецю подається зі швидкістю, достатньою для підтримання бажаного загального тиску в реакторі.

Рідкий продукт відводиться з реактора зі швидкістю, достатньою для підтримання постійного рівня в ньому, і подається до випарника. У випарнику каталітичний розчин виділяється як основний потік (головним чином це оцтова кислота, яка містить родій та йодидну сіль разом з меншими кількостями метилацетату, метилйодиду і води), в той час як паровий потік дистиляту з випарника містить переважно продукт оцтової кислоти разом з метилйодидом, метилацетатом та водою. Розчинені гази виходять з реактора та потрапляють у випарник, складаючись з частини монооксиду вуглецю разом з газоподібними побічними продуктами, такими як метан, водень та діоксид вуглецю і виходять з випарника у якості частини дистильованого потоку. Потік дистиляту спрямовується в колону для перегонки легких фракцій чи в розділювальну колону 14 як потік 26.

В Патентах США №№6,143,930 та 6,339,171 показано, що в легкій фазі присутня більш висока концентрація СВП, і зокрема, ацетальдегіду, яка приблизно в 3 рази більша, за ту, що присутня в потоці важкої фази, яка виходить з колони 14. Тому, у відповідності до даного винаходу, потік 28, який містить СВП, спрямовується до приймально-го резервуару для дистиляту 16 легких фракцій, потік 30, спрямовується у дистиляційну колону 18.

Даний винахід в широкому змісті може бути витлумачений як спосіб видалення СВП, в першу чергу альдегідів та алкілідидів, з потоку пароподібної фази оцтової кислоти. Потік пароподібної фази дистилується та екстрагується з метою видалення СВП. Приклад способу видалення альдегідів та алкілідидів з першого пароподібного потоку оцтової кислоти та зменшення рівнів пропіонової кислоти, включає наступні етапи:

а) конденсація першого потоку парової фази оцтової кислоти в першому конденсаторі і його двофазна сепарація для отримання продукту першої важкої рідкої фази, та продукту першої легкої рідкої фази;

б) дистилляція продукту легкої рідкої фази в першій дистилляційній колоні для отримання другого продуктового потоку пароподібної фази оцтової кислоти, збагаченого альдегідами і алкілідидами відповідно до вказаної першої пароподібної фази потоку оцтової кислоти;

с) конденсація другого потоку пароподібної фази в другому конденсаторі для отримання другого рідкофазного продукту ;

д) дистилляція другого рідкофазного продукту в другій дистилляційній колоні для зменшення та/або видалення алкілідидних, альдегідних забруднюючих домішок та забруднюючих домішок пропіонової кислоти з першого потоку пароподібної фази оцтової кислоти з отриманням дистилляційного потоку альдегіду та алкілідиду; та

е) вимірювання густини дистилляційного потоку, в оптимальному варіанті проводячи при цьому обрахування відносних концентрацій ацетальдегіду та метилїодиду, та контролювання ходу процесу в другій дистилляційній колоні, базуючись на виміряній густині чи на концентраціях, вирахованих на її основі.

Варіант здійснення процесу за попереднім рівнем техніки, викладений в Патенті США №6,339,171, показано на Фіг.1. Відповідно до Фіг.1, перший потік парової фази оцтової кислоти (28) містить метилїодид, метилацетат, ацетальдегід та інші карбонільні сполуки. Цей потік потім конденсується та сепарується (в резервуарі 16) для виділення важкої фракції, що містить більшу частку каталітичних компонентів, яка рециркулюється до реактора (не показано на Фіг.1) та легку фазу (30), яка містить ацетальдегід, воду та оцтову кислоту.

Кожна фаза дистилляту легких фракцій може бути потім дистильована для видалення СВП, і в першу чергу ацетальдегідного компоненту потоку, хоча більш бажаним є видалення СВП з легкої фази (30), тому що з'ясовано, що концентрація ацетальдегіду в цій фазі є дещо вищою. У варіанті здійснення, який тут було описано та проілюстровано, дистилляція проводиться у дві стадії; однак слід розуміти, що дистилляція може бути також здійснена і в одній колоні. Легка фаза (30) спрямовується до колоні 18, яка слугує для отримання другої пароподібної фази (36), збагаченої альдегідами та алкілідидами у відповідності до потоку 28. Потік 36 конденсується (резервуар 20) для отримання продукту другої важкої рідкої фази. Друга легка рідка фаза (40), яка містить ацетальдегід, метилїодид, метанол та метилацетат спря-

мовується до другої дистилляційної колоні (22), де ацетальдегід відділяється від решти компонентів. Цей винахідницький спосіб було розроблено з метою зниження та/або видалення щонайменше 50% алкілідидних забруднювачів з потоку оцтової кислоти. Також було показано, що кількість ацетальдегіду та його похідних зменшується та/або вони видаляються щонайменше на 50%, а найчастіше більше, ніж на 60%. В результаті цього стає можливим утримання концентрації пропіонової кислоти в продукті оцтової кислоти нижче за близько 400част./млн. за вагою, бажано нижче, ніж близько 250част./млн.

З верхньої частини колоні легких фракцій чи колоні для розділення фракцій 14, пари відводяться потоком 28, конденсуються та спрямовуються до резервуару 16. Пари охолоджуються до температури, при якій їх можна конденсувати та розділити здатні до конденсування метилїодид, метилацетат, ацетальдегід та інші карбонільні компоненти та воду на дві фази. Частина потоку 28 містить нездатні до конденсування газу, такі як діоксид вуглецю, водень та подібні їм та може бути видалена в потоці 29, як показано на Фіг.1. Також залишає приймач дистилляту важка фаза потоку 28, але це не показано на Фіг.1. Зазвичай ця важка фаза рециркулюється до реактора, але частина потоку, в основному невелика, приблизно 25 об. %, бажано менше, ніж близько 20 об. %, важкої фази може також спрямовуватися в процес обробки карбонілу, а залишок рециркулюється до реактора чи реакційної системи. Ця частина потоку важкої фази може оброблятися окремо, чи разом з легкою фазою (потік 30) для подальшої дистилляції та видалення шкідливих карбонільних домішок.

Легка фаза (потік 30) спрямовується до дистилляційної колоні 18. Частина потоку 30 спрямовується назад до колоні легких фракцій 14 в якості потоку флегми 34. Залишок потоку 30 входить до колоні 18 як потік 32 приблизно в середині колоні. Колоні 18 слугує для концентрації альдегідних компонентів потоку 32 в дистилляційний потік 36 шляхом відділення води та оцтової кислоти від більш легких компонентів. Потік 32 дистилується в першій дистилляційній колоні 18, яка бажано містить приблизно 40 тарілок, і температура в якій знаходиться в межах від близько 283°F (139.4°C) в донній частині до близько 191°F (88.3°C) у верхній частині колоні. На виході з донної частини колоні 18 потік 38 містить приблизно 70% води та 30% оцтової кислоти. Потік 38 обробляється, зазвичай охолоджується в теплообміннику, рециркулюється до приймача дистилляту колоні легких фракцій 16 з потоками 46, 48 та, насамкінець, до реактора чи реакційної системи. З'ясовано, що рециклізація частини потоку 38, яка ідентифікується як потік 46, назад через приймач 16 підвищує ефективність винайденного способу та дозволяє, щоб в легкій фазі, потік 32, була присутня більша кількість ацетальдегіду. Також з'ясовано, що потік 36 містить приблизно у сім разів більше альдегіду, якщо потік 38 рециркулюється через приймач 16 в такий спосіб. На виході з верхівки колоні 18 потік 36 містить СВП, зокрема ацетальдегід, метилїодид, метилацетат, метанол та алкілідиди. Потік 36 потім

спрямовується до приймача дистиляту 20 після того, як він був охолоджений з метою конденсації газів.

На виході з приймача дистиляту 20 потік 40 містить ацетальдегід, метилйодид, метилацетат та метанол. Частина потоку 40 повертається до колони 18 як потік флегми 42. Залишок потоку 40 входить до другої дистиляційної колони 22 близько до донної частини колони. Колона 22 слугує для відділення більшості ацетальдегіду від метилйодиду, метилацетату та метанолу в потоці 40. В одному варіанті здійснення колони 22 містить біля 100 тарілок і функціонує при температурах в межах від близько 224°F (106.60C) в донній частині до 175°F (79.4°C) біля верхівки. В альтернативному, бажаному варіанті здійснення, колони 22 містить структуровану насадку в місці розташування тарілок. Бажана насадка являє собою структуровану насадку з площею поверхні розділу біля 65 ft<sup>2</sup>/ft<sup>3</sup>, бажано зроблену з металічного сплаву, подібного до сплаву 2205 чи іншого подібного насадочного матеріалу, за умови що він є сумісним зі сполуками, які рафінуються в колоні. В ході експериментів спостерігалось, що рівномірність завантаження колони, яка потрібна для хорошої сепарації, була кращою за наявності структурної насадки, ніж за наявності тарілок. Як альтернатива може бути використаний керамічний насадочний матеріал. Залишок колони 22, потік 44, виходить з дна колони та рециркулюється до процесу карбонілювання. Для фахівця в даній галузі буде ясно, що процеси сепарації, які проводяться в дистиляційних колонах 18 та 22 також можуть проводитися з використанням тільки однієї дистиляційної колони.

Ацетальдегід полімеризується в присутності метилйодиду з утворенням метальдегіду та паральдегіду. Ці полімери в основному є низькомолекулярними, менш, ніж близько 200. Досліджено, що паральдегід відносно розчинний у реакційній рідині, в першу чергу в оцтовій кислоті. Метальдегід випадає в осад і є гранулярним полімером, схожим на пісок, який не розчиняється у реакційній рідині у концентрації не більше 3ваг. %.

Як показано в Патенті США №6,339,171, було досліджено, що під час реакції протягом нагрівання колони 22, утворюються високомолекулярні полімери типу ацетальдегіду. Слід вважати, що ці більш високомолекулярні полімери (молекулярна вага більша за близько 1000), які є в'язкими та тіксотропними, утворюються під час обробки легкої фази. Коли до системи застосовується нагрівання, вони виявляють тенденцію до стверджування та прилипання до стін колони, де процес їх видалення ускладнюється. Після того, як вони полімеризувалися, вони стають тільки слабо розчинними в органічних чи водних розчинниках та можуть бути видалені з системи тільки механічними засобами. Тому, потрібен інгібітор, бажано в колоні 22, щоб зменшити утворення цих небажаних забруднювачів, тобто метальдегіду, паральдегіду та більш високомолекулярних полімерів ацетальдегіду (ACH). Інгібітори в основному містять C<sub>1-10</sub> алканоли, бажано метанол; воду, оцтову кислоту та подібні їм сполуки, які використовуються

окремо чи в комбінації одна з одною, або з одним, або кількома іншими інгібіторами. Потік 46, який є частиною залишку колони 18 та частиною потоку від потоку 38, містить воду та оцтову кислоту і, таким чином, може слугувати інгібітором. Як показано на Фіг.1, потік 46 роз'єднується з утворенням потоків 48 та 50. Потік 50 подається в колону 22 з метою запобіганню утворення метальдегідних та паральдегідних забруднювачів та більш високомолекулярних полімерів. Після того, як залишок з другої колони 22 рециркулюється до реактора, будь-які інгібітори, які до нього вводяться, мають бути сумісними з хімією реакції. Було досліджено, що невеликі кількості води, метанолу, оцтової кислоти чи їх комбінації, не наносять шкоди хімії реакції і дійсно знижують утворення полімерів ацетальдегіду. Потік 50 також бажано використовувати в якості інгібітора, так як ця речовина не змінює водний баланс в реакторі. Хоча вода і не є найбільш бажаним інгібітором, але її додавання в колону 22 забезпечує інші важливі переваги.

Виходячи з верхівки колони 22, потік 52 містить СВП. Потік 52 спрямовується до конденсатора, а потім до приймача дистиляту 24. Після конденсації, ніякі нездатні до конденсації речовини, не виводяться з приймача 24; конденсовані матеріали залишають приймач 24 як потік 54. Потік 56, частина потоку від потоку 54, використовується в якості флегми для колони 22. Виходячи з донної частини колони 22, потік 44 містить метилйодид, метанол, метилацетат, та воду. Цей потік з'єднується з потоком 66, який буде описано нижче, і спрямовується в реактор.

Для механізму екстракції важливим є те, що потік дистиляту з колони 22 залишається холодним, в основному маючи температуру близько 13°C. Цей потік може отримуватися чи підтримуватися при температурі близько 13°C шляхом застоювання звичайних технологічних прийомів, які відомі кожному фахівцю в даній галузі, або будь-яким засобом, який широко застосовується в промисловості.

Після виходу з приймача 24, потік 58 бажано спрямовується через конденсатор/охолоджувач (зараз вже як потік 62) до екстрактора 27 для виділення і рециркулювання малих кількостей метилйодиду з водного потоку СВП. В екстракторі 27 СВП та алкілйодиди екстрагуються водою, бажано водою з внутрішнього потоку для того, щоб зберегти водний баланс усередині реакційної системи. В результаті цієї екстракції метилйодид відділяється від водної фази СВП та алкілйодиду. В бажаному варіанті здійснення використовується змішувач-відстійник з нормою подавання води близько 2.

Екстрагований водний потік 64 виходить з верхівки екстрактора. Ця водна фаза, збагачена СВП, особливо збагачена ацетальдегідом, спрямовується на видалення у якості відходу. Також з екстрактора виходить потік рафінату 66, який містить метилйодид, і який зазвичай рециркулюється до реакційної системи і, кінцево-кінцем, до реактора.

Подавачі даної заявки дослідили, що аналізування складу конденсованого дистиляту 54 з другої колони 22 та використання цього аналізу для здійснення зворотного контролю дистиляційного



процесу є ефективним. В той час, як виключно бажаним є видалення настільки великої кількості ацетальдегіду та інших СВП з процесу вироблення оцтової кислоти, наскільки це можливо, важливим також є здійснити це без шкоди для вартості процесу. Головним аспектом процесу, який тут описано, є те, що оскільки метилйодид є винятково дорогим реагентом та дуже дорогою є його утилізація через вимоги техніки безпеки, винятково бажано реалізувати такі поліпшення в проведеному процесу, які нададуть змогу видалити ацетальдегід і запобігти цим утворенню алкільйодидів та СВП, одночасно з цим зберігаючи кількість метил йодиду настільки великою, наскільки це можливо. Є очевидним, що необхідність вирішувати всі вказані проблеми одночасно не є легким завданням через те, що метилйодид та ацетальдегід мають подібні точки кипіння, що робить значно важчим завдання знайти придатний оптимальний процес сепарації. Як буде ясно фахівцю в даній галузі, дистиляційний процес для сепарації метилйодиду від ацетальдегіду є дуже чутливим навіть до відносно малих відхилень в температурі, числі флегми та подібних параметрів. Таким чином, в ході процесу бажано мати найбільш точну з можливих інформацію щодо якості сепарації метилйодид/ацетальдегід.

Винахідники з'ясували, що процес дистиляції, описаний вище, може контролюватися з більш

високою точністю шляхом визначення відносних концентрацій метилйодиду та ацетальдегіду в конденсованому дистиляті в потоці 54, 56, 58 чи 62. Дивуючим фактом є те, що це може бути здійснене просто шляхом визначення густини дистиляту. На відміну від ацетальдегіду, який має густину близько  $0,78\text{г/см}^3$  при кімнатній температурі (подібно до багатьох звичайних органічних речовин), метилйодид має густину близько  $2,3\text{г/см}^3$ , майже у три рази вищу. Ця різниця в густинах достатньо велика для того, щоб можна було вираховувати відносні концентрації метилйодиду та ацетальдегіду в суміші двох компонентів безпосередньо виходячи з густини. Густина може вимірюватися як при звичайних умовах проходження процесу, так і після охолодження зразка до кімнатної температури. Бажано визначати густину при наявних умовах процесу для зменшення непотрібних втрат часу в контрольному циклі, які б увійшли до періоду перед початком охолодження.

Густина може визначатися в будь-якому з потоків 54, 56, 58 чи 62 (всі з яких мають однаковий склад) звичайним інтерактивним денситометром, який позначено цифрою 70 на Фіг.2-4. Наприклад, заявники провели серію експериментів з метою кореляції виміряної густини потоку дистиляту 54 з визначеними концентраціями метилйодиду (MeI), ацетальдегіду (AcГ) та диметилетеру (ДМЕ). Були отримані такі дані:

Номер тесту	1	2	3	4	5	6
ДМЕ (ваг.%)	8,3	6,6	3,4	4,6	3,6	3,8
AcГ (ваг.%)	59,2	49,8	27,9	35,3	32,5	2,2
MeI (ваг.%)	32,5	43,6	68,8	60,1	63,9	93,8
Густина потоку (г/мл)	0,9793	1,0524	1,4082	1,3031	1,3166	1,6337
Густина при 20°C (г/мл)	0,9925	1,0832	1,4464	1,3334	1,3577	1,688

Фіг.5 показує взаємозв'язок між концентраціями метилйодиду та ацетальдегіду з поточними вимірними значеннями густини. Логічні лінійні тенденції були спостережені для концентрацій як метилйодиду, так і ацетальдегіду, що показує, що при типових умовах проведення процесу обидві ці концентрації можуть бути обраховані з однієї тільки визначеної густини.

Ці вимірювання густини, чи вираховування відносних концентрацій, заснованих на ній, можуть слугувати основою для контролювання процесу дистиляції в колоні 22 з метою оптимізації сепарації метилйодиду та ацетальдегіду. Це може бути виконано, наприклад, шляхом підвищення чи зниження величини теплового потоку до дистиляційної колони, зважаючи на рівень метилйодиду та ацетальдегіду. В якості альтернативи, число флегми всередині колони може бути скориговано (наприклад, шляхом варіювання розділення між потоками 58 та 56), виходячи з концентрації. Як ще один альтернативний шлях може використовуватися коригування концентрації флегми в колоні, виходячи з визначених концентрацій ацетальдегіду та метилйодиду шляхом підвищення чи зниження об'ємної швидкості потоку 50. Це може бути здійснене, наприклад, шляхом коригування розділення частини потоку 46 між потоками 48 та 50.

Тиск в колоні також може контролюватися, виходячи з вирахованих концентрацій.

Склад вихідної реакційної суміші колони також може коригуватися. З'ясовано, що за певних обставин корисним є проведення сепарації та рециркуляції частини потоку 66 до вихідної реакційної суміші 40 колони 22. Зміна об'ємної швидкості цього потоку, виходячи зі змін визначених відносних концентрацій метилйодиду та ацетальдегіду, може здійснюватися послідовно за зміною складу вихідної реакційної суміші колони.

Схеми контролю, які дозволяють модифікувати більш, ніж один з параметрів процесу, зв'язаного з дистиляційною колоною, засновуючись на визначених змінах у складі дистиляту, також знаходяться у сфері даного винаходу. Наприклад, може бути призначено контролювати одночасно як склад вихідної реакційної суміші, так і склад флегми для коригування ступеню нагріву, враховуючи зміни складів вихідної реакційної суміші, чи коригувати флегмове число на протидію змінам складу флегми. Багато інших подібних варіантів можливі.

На додачу до вимірювання густини одного чи більше потоків для контролювання дистиляційної колони, описаного вище, також бажано залучити визначення густини до моніторингу чи контролю за процесом в екстракторі 27. Зрозуміло, що призна-

ченням екстрактора 27 є полегшення проведення фазового розділення між важкою фазою метиліодиду та менш густою, водною фазою, яка містить ацетальдегід. Тому, значна зміна у визначеній густині як екстрагованого водного потоку 64, так і потоку рафінату 66, збагаченого метиліодидом, буде показувати погіршення фазового розділення в екстракторі, що в свою чергу буде показувати, що метиліодид був видалений в екстрагованому потоці. Як було пояснено тут та в інших місцях, бажано зберегти метиліодид та знову використати його в ході процесу для максимального виробничого ефекту; на додачу, присутність метиліодиду у водному екстракті може мати несприятливий вплив на процес видалення водних відходів, якому звичайно піддається екстракт. Аналогічно, хоча визначення густини потоку 66 дозволяє контролювати залишкову концентрацію ацетальдегіду в цьому потоці, дозволяючи провести коригуючі дії (наприклад, підвищити подачу води до екстрактора 27) у відповідь на неприйнятно високу концентрацію ацетальдегіду. В подальшому удосконаленні даного винаходу, для вибіркового визначення гус-

тини будь-якого з багатьох потоків всередині процесу може використовуватися один єдиний денсітомер.

Так як патент було розкрито з описаннями багатьох варіантів втілення, очевидні модифікації та альтернативні варіанти здійснення можуть бути здійснені фахівцями в даній галузі. Зокрема, хоча в даному патенті було в загальному описано використання легких фракцій з колони 14, будь-який потік способу карбонілювання, який має високу концентрацію СВР і алкілідидів, може тлумачитися у відповідності до даного винаходу. Аналогічно, спосіб було описано у відповідності до системи видалення ацетальдегіду однієї певної конфігурації, незначні варіанти розкритої конфігурації, наприклад, заміна дистиляційних колон 18 та 22 єдиною колоною, також передбачені даним винаходом. Таким чином, передбачається, що винахід включає всі подібні модифікації та альтернативні варіанти здійснення, що виходить з усвідомлення того, що вони впливають з об'єму представлених пунктів формули або її еквівалентів.

Фіг.1 (РІВЕНЬ ТЕХНІКИ)

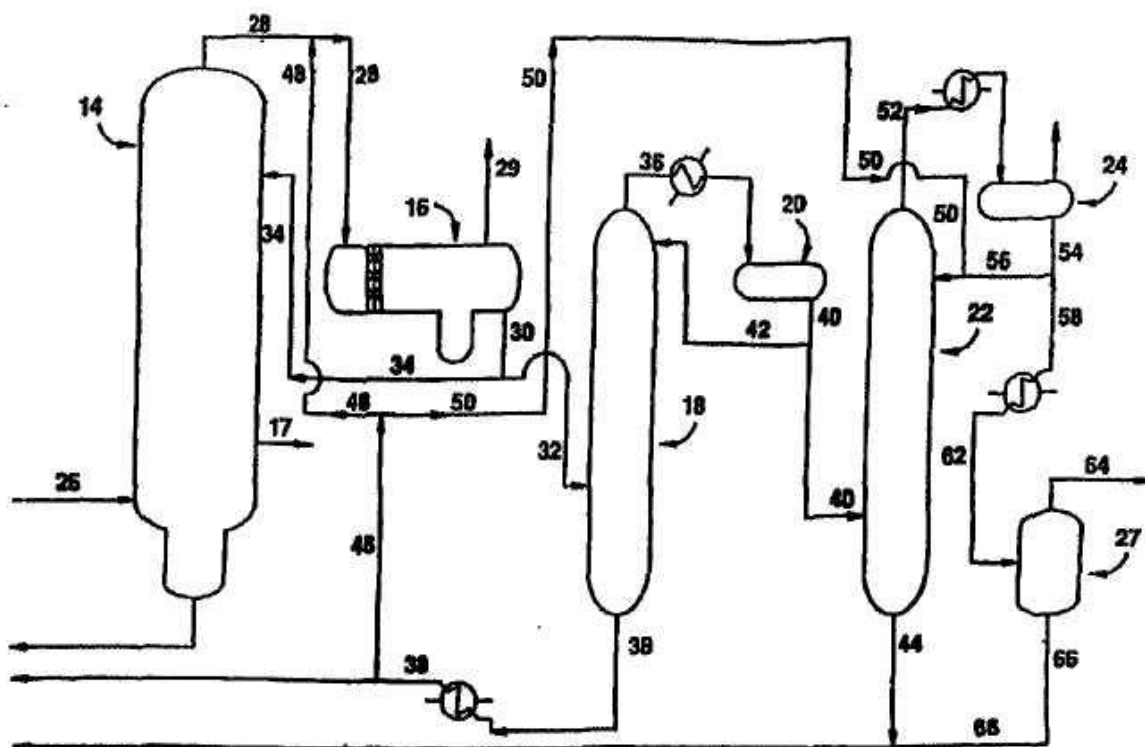


Fig. 2

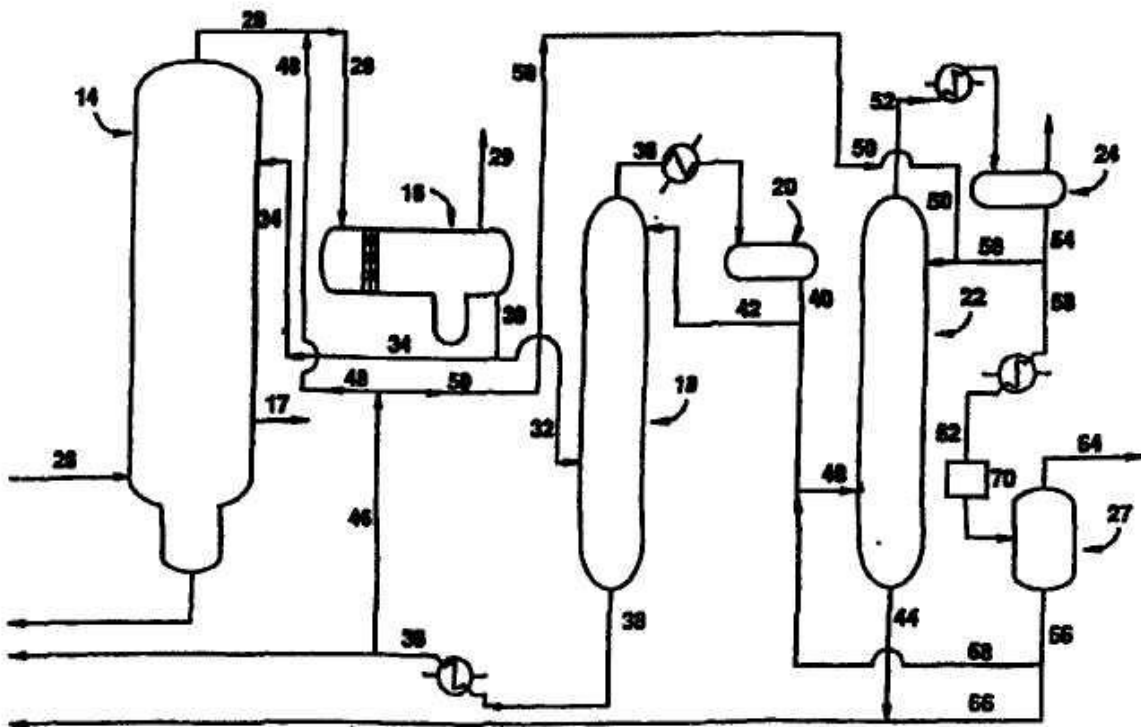
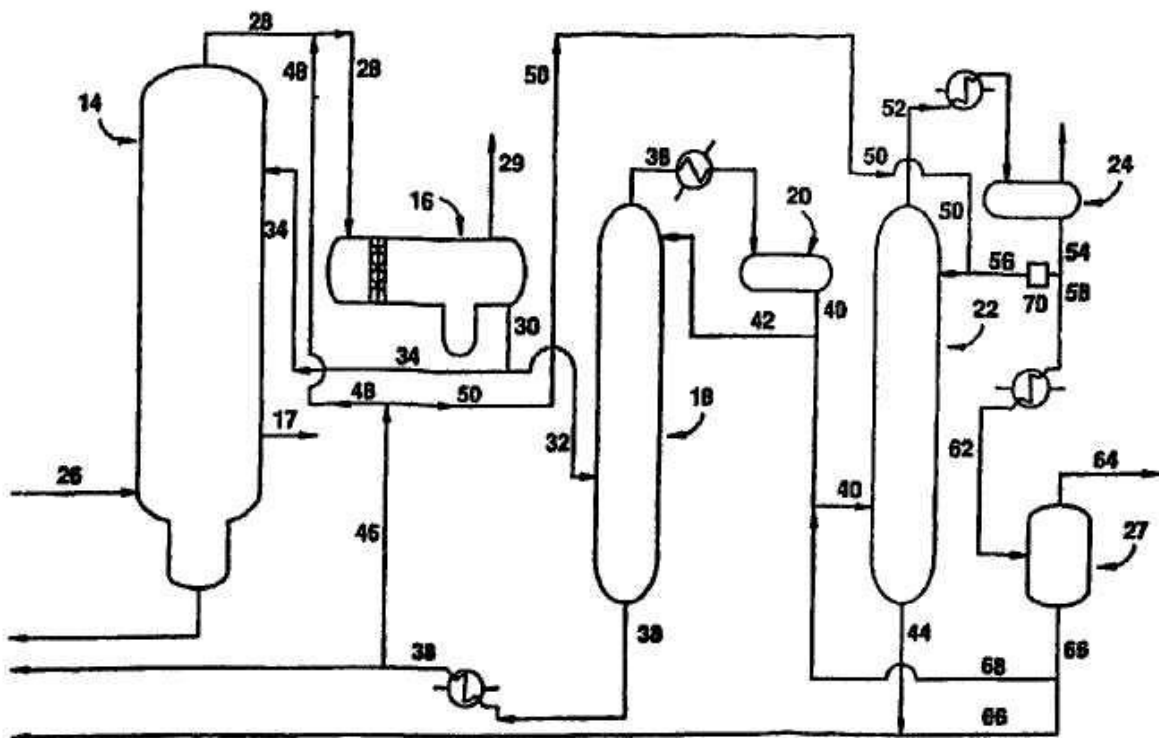
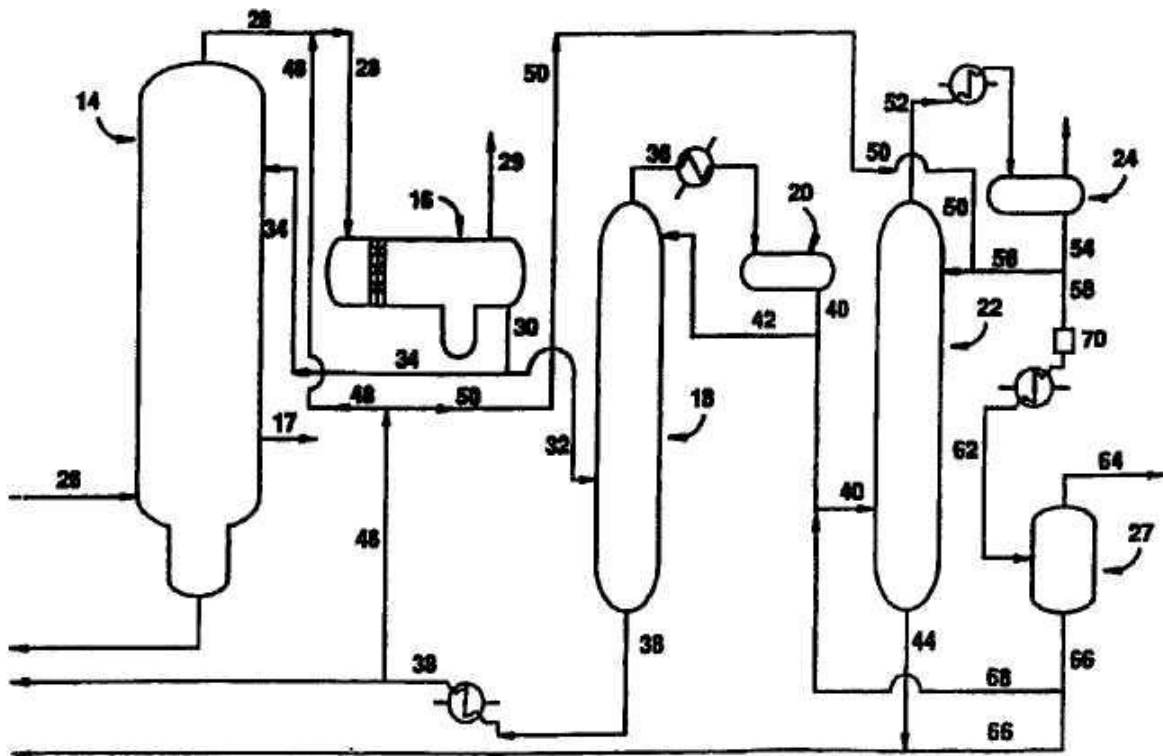


Fig. 3

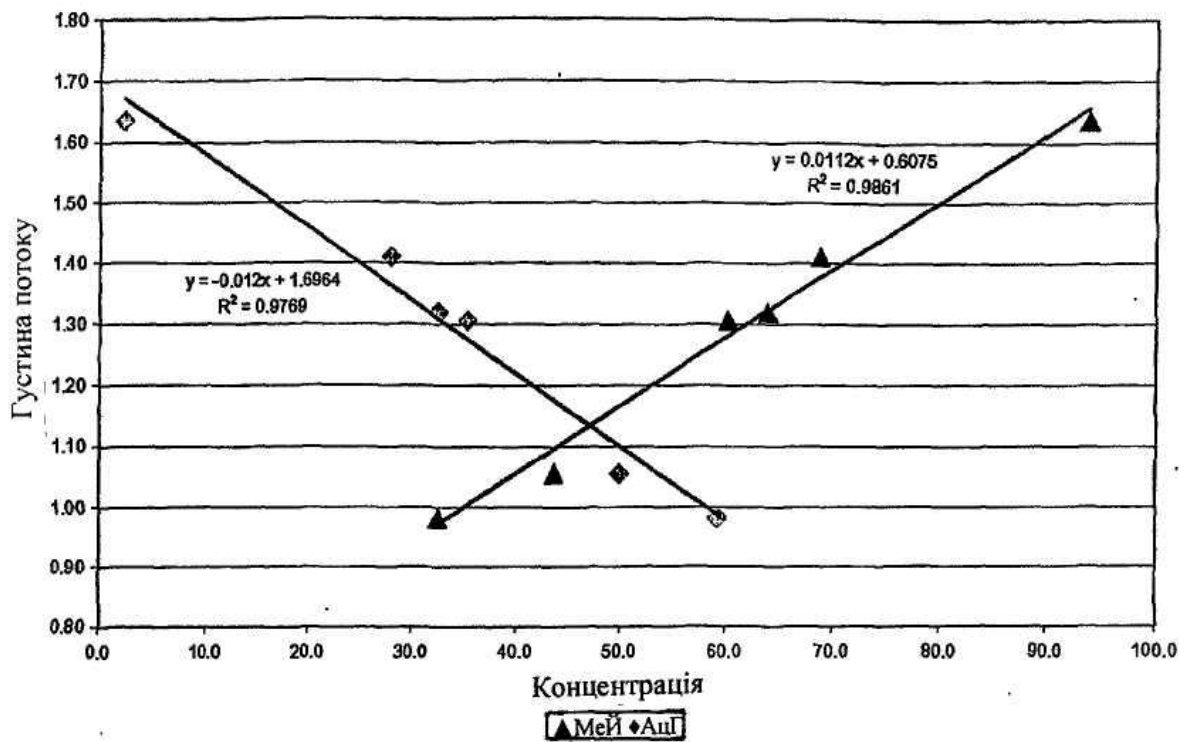


Фіг.4



Фіг.5

АцГ та МеЙ відносно поточної густини потоку



---

В описі до патенту на винахід графічні зображення та текст подаються в редакції заявника

---

Комп'ютерна верстка В. Мацело

Підписне

Тираж 28 прим.

---

Міністерство освіти і науки України

Державний департамент інтелектуальної власності, вул. Урицького, 45, м. Київ, МСП, 03680, Україна

---

ДП "Український інститут промислової власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601