

Изобретение относится к очистке карбоновых кислот и/или их ангидридов, в частности к удалению примесей иодидов из уксусной кислоты и/или уксусного ангидрида, получаемых жидкофазным карбонилированием соответствующего сырья, выбранного из группы, включающей метанол, диэтиловый эфир, метилацетат или их смеси.

Уксусная кислота и уксусный ангидрид являются известными химикатами, уже много лет используемыми в промышленности. Уксусный ангидрид является второй наиболее крупной областью применения уксусной кислоты. Он широко используется при получении ацетата целлюлозы и других ее эфиров. Меньшие его количества идут для получения специальных эфиров, аспирина и пестицидов. Уксусная кислота используется в качестве консерванта, а также в качестве полупродукта при получении, например, ацетатных эфиров.

Получение уксусной кислоты путем жидкофазного карбонилирования метанола является широко известным промышленным процессом, который используется в широких промышленных масштабах. Процесс карбонилирования, который обычно катализируется родием и йодистым метилом, подробно описан, например, в патенте Великобритании №1233121. В европейском патенте № А-0087870 описан модифицированный способ, по которому уксусный ангидрид совместно или без уксусной кислоты получается путем последовательных стадий этерификации, карбонилирования и выделения из метанола и монооксида углерода. Более подробно этот способ включает:

1) взаимодействие метанола с возвратной уксусной кислотой на стадии этерификации с образованием продукта этерификации, содержащего преимущественно метилацетат, воду и, возможно, непрореагировавший метанол;

2) удаление части воды из продукта этерификации;

3) взаимодействие продукта этерификации, еще содержащего некоторое количество воды, с монооксидом углерода на стадии карбонилирования в присутствии катализатора - свободного или связанного металлического катализатора карбонилирования и промотора - свободного или связанного галогена, с образованием продукта карбонилирования, содержащего уксусную кислоту и уксусный ангидрид;

4) разделение продукта карбонилирования путем фракционной перегонки на низкокипящую фракцию, содержащую исходную реакционную смесь и летучие компоненты промотора карбонилирования, фракции уксусной кислоты и уксусного ангидрида и высококипящую фракцию, содержащую компоненты катализатора карбонилирования;

5) возврат низкокипящей фракции, содержащей исходную реакционную смесь и компоненты промотора карбонилирования, и высококипящей фракции, содержащей компоненты катализатора карбонилирования, на стадию карбонилирования;

6) возврат по меньшей мере части фракции уксусной кислоты на стадию этерификации.

Получение ангидридов карбоновых кислот путем карбонилирования описано, например, в патентах США №4792620 и 5003104.

В процессах жидкофазного карбонилирования, в частности в соответствии с патентом Великобритании №1233021, европейским патентом № А-0087870 и патентами США №5033104 и 4792620, предпочтительным промотором является йодсодержащее соединение, предпочтительно йодоорганическое соединение, например, галоидалкил или галоидарил, причем наиболее предпочтительным является йодистый метил. Помимо указанных промоторов могут использоваться также йодсодержащие сопромоторы, такие как йодистые соли четвертичных гетероциклических аминов, описанные в европейском патенте А-0391680, алкилированные йодиды имидазолия, описанные в европейском патенте А-0379463, и йодид лития, описанный в патенте США №5003104.

Продукт карбонилирования, содержащий карбоновую кислоту и/или ангидрид, исходную реакционную смесь, катализатор карбонилирования, йодсодержащий промотор, и который может также содержать компоненты йодсодержащего сопромотора, может быть разделен путем пропускания через первую дистилляционную колонну, головная фракция которой содержит исходную реакционную смесь и йодсодержащие компоненты промотора, промежуточная фракция содержит карбоновую кислоту и/или ангидрид, а нижняя фракция содержит катализатор и, возможно, компоненты сопромотора. Головная и нижняя фракции возвращаются на стадию карбонилирования, а средняя фракция, при желании, разделяется путем фракционной дистилляции во второй дистилляционной колонне на фракции карбоновой кислоты и ее ангидрида.

Недостаток вышеописанного способа карбонилирования с использованием йодсодержащих промоторов и, при желании, йодсодержащих сопромоторов состоит в том, что получаемые с его помощью карбоновые кислоты и/или их ангидриды даже после разделения и очистки могут содержать значительные количества примесей йодида. В определенных процессах, таких, например, как последующая конверсия уксусной кислоты в винилацетат, примеси йода оказывают нежелательное действие, и поэтому крайне желательно их удаление.

В некоторой степени указанный недостаток может быть устранен путем пропускания продукта карбонилирования прежде всего через испаритель равновесного типа, в котором жидкая фракция, включающая катализатор карбонилирования и, возможно, йодсодержащие сопромоторы, отделяется от паровой фракции, включающей карбоновую кислоту и/или ангидрид, исходную реакционную смесь и компоненты йодсодержащего промотора. При этом жидкая фракция возвращается в реактор карбонилирования, а паровая фракция подается в первую дистилляционную колонну, модифицированную таким образом, чтобы поступающий в нее продукт разделялся только на головную фракцию, исключаящую исходную реакционную смесь и йодсодержащий промотор, и нижнюю фракцию, содержащую карбоновую кислоту и/или ангидрид. Тем не менее, полученные таким образом кислота и/или ангидрид содержат некоторое количество примесей йода, что во многих случаях является недопустимым.

Было установлено, что содержание примесей йодида может быть значительно снижено, если

загрязненную им фракцию карбоновой кислоты, в частности уксусной кислоты и/или ее ангидрида, полученных путем жидкофазного карбонилирования с использованием йодсодержащих промоторов и, при желании, йодсодержащих сопромоторов и очищенную от катализатора карбонилирования, исходной реакционной смеси и компонентов йодсодержащего промотора и, возможно йодсодержащих сопромоторов, подвергнуть испарению, в результате которого уксусная кислота и/или ее ангидрид с пониженным содержанием примесей йодида отделяется в виде паровой фракции от жидкой фракции.

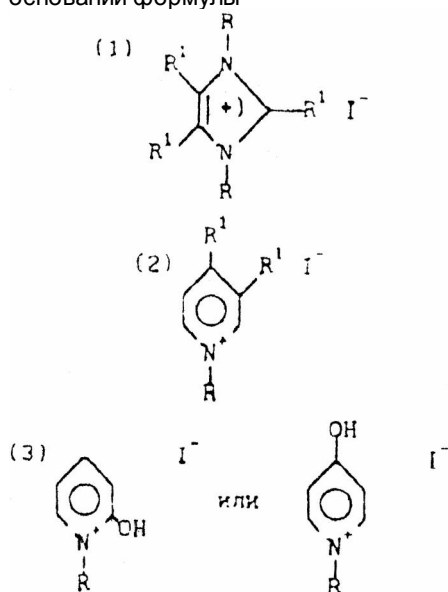
Предметом изобретения, таким образом, является способ очистки загрязненной йодидом фракции уксусной кислоты и/или ее ангидрида, полученной жидкофазным карбонилированием способного к карбонилированию исходного сырья, выбранного из группы, включающей метанол, диэтиловый эфир и/или метилацетат, с использованием катализатора карбонилирования, йодсодержащего промотора и, при желании, йодсодержащего сопромотора, путем подачи продукта жидкофазного карбонилирования в предварительный флеш-испаритель (далее называемый как испаритель равновесного типа), в котором жидкую фракцию, содержащую катализатор карбонилирования и, при необходимости йодсодержащий сопромотор, отделяют от паровой фракции, содержащей уксусную кислоту и/или уксусный ангидрид, непрореагировавшее в процессе карбонилирования сырье и компоненты йодсодержащего промотора, указанную жидкую фракцию возвращают в реактор карбонилирования, а паровую фракцию направляют в дистилляционную колонну, в которой отбирают головную фракцию, содержащую сырье для карбонилирования и промотор от кубового остатка, содержащего загрязненные йодидными примесями уксусную кислоту и/или уксусный ангидрид, причем указанный кубовый остаток направляют в конечный флеш-испаритель, где уксусную кислоту и/или уксусный ангидрид с пониженным содержанием йодидных примесей отделяют в виде паровой фракции от жидкой фракции.

Загрязненная йодидом уксусная кислота и/или ее ангидрид получают путем жидкофазного карбонилирования способного к карбонилированию исходного сырья с использованием катализатора карбонилирования, йодсодержащего промотора и, при желании, йодсодержащего сопромотора. С подробностями, связанными с карбонилированием, катализаторам, промоторами и йодсодержащими сопромоторами, можно ознакомиться в вышеупомянутых патентах Великобритании №1233121, США №4792620 и 5003104 и ЕР-А №0087870, указанных выше.

Подходящее способное к карбонилированию исходное сырье включает метанол, диэтиловый эфир и/или метилацетат. Подходящие катализаторы карбонилирования включают металлы VII группы Периодической таблицы элементов, из которых предпочтительными являются благородные металлы, иридий, осмий, платина, палладий, родий с рутением. Наиболее предпочтительным из них является родий. В качестве йодсодержащих промоторов можно использовать элементарный йод, йодистый водород, неорганические соли йода, такие как йодид натрия, калия, лития или кобальта и тому подобные, а также йодиды четвертичных аммониевых или фосфониевых оснований.

Предпочтительными, в частности, являются органические йодиды, такие как йодистый алкил или йодистый арил. Наиболее предпочтительным является йодистый метил.

В качестве йодсодержащего сопромотора можно использовать йодид лития, магния, кальция, титана, хрома, железа, никеля и алюминия, причем наиболее предпочтительным является йодид лития, или йодиды четвертичных аммониевых или фосфониевых оснований, такие, как, например, йодистый N,N'-диметилимидазолий, или их предшественники. Использование подходящих сопромоторов описано в вышеуказанных европейских патентах № A-0391680, A-0479463 и в патенте США №5003104. Так, в европейском патенте № A-0391680 описано получение карбоновых кислот путем карбонилирования с использованием сопромотора, выбранного из группы, состоящей из йодидов четвертичных аммониевых оснований формулы



где R и R¹ независимо друг от друга выбраны из атома водорода или C₁-C₂₀-алкила при условии, что по меньшей мере R¹ не означает атом водорода.

В европейском патенте № A-0479463 описано получение ангидридов карбоновых кислот с использованием сопромотора, выбранного из группы, состоящей из йодистого 1,3-диалкил-4-метилимидазолия, йодистого 1,3-диалкил-4-этилимидазолия, йодистого 1,3-диалкил-4-н-

пропилимидазолия, йодистого 1,3-диалкил-1,4-изопропилимидазолия, йодистого 1,3-диалкил-4-н-бутилимидазолия, йодистого 1,3-диалкил-4-втор.-бутилимидазолия, йодистого 1,3-диалкил-4-трет.-бутилимидазолия, йодистого 1,3-диалкил-2,4,5-триметилимидазолия и их смесей, где алкилы независимо друг от друга означают C₁-C₂₀-алкил.

В патенте США №5003104, описано карбонилирование метилацетата в присутствии йодистого лития в качестве сопромотора.

Предпочтительным конечным испарителем равновесного типа является испаритель равновесного типа без фракционирования. Температура, давление и другие рабочие параметры такого испарителя, необходимые для разделения жидкости на паровые фракции и время пребывания, зависят от таких факторов, как состав, температура, давление и скорость подачи в него фракции карбоновой кислоты и/или ангидрида, загрязненных йодидом. Целесообразно, чтобы давление в конечном испарителе равновесного типа в процессе работы составляло до 10⁶Па, предпочтительно находилось бы в пределах 0 - 0,15 · 10⁶Па, а температура равнялась 100 - 200°C, предпочтительно 1290 - 160°C. Целесообразно, чтобы массовое соотношение между паровой и жидкой фракциями в процессе работы конечного испарителя равновесного типа находилось в пределах 0,5 - 100, предпочтительно 5 : 1 - 30 : 1. Указанный испаритель равновесного типа может работать в режиме "сам на себя", когда в него не подается жидкая фракция, а вся паровая фракция возвращается в него в качестве исходного материала. Целесообразно, чтобы время пребывания жидкости в конечном испарителе равновесного типа, рассчитанное как частное от деления массы жидкости в нем на массовую скорость подачи, составляло до 60мин, предпочтительно находилось бы в пределах 5 - 40мин.

Тепло к такому испарителю равновесного типа может подводиться любым способом. Предпочтительно, однако, использовать для этой цели пар, подавая его, например, с помощью внешнего термосифонного ребойлера со стороны паровой обечайки, а обрабатываемую жидкость - со стороны трубок, в которые она поступает из нижней части испарителя, и в виде парожидкостной смеси возвращается в испаритель выше уровня жидкости.

Согласно изобретению, для очистки уксусной кислоты и/или ее ангидрида от катализатора карбонилирования, исходной реакционной смеси и йодсодержащих компонентов промотора и, возможно, сопромотора, продукт карбонилирования направляют в предварительный испаритель равновесного типа, в котором жидкая фракция, включающая катализатор карбонилирования и йодсодержащий сопромотор (при его использовании), отделяется от паровой фракции, включающей уксусную кислоту и/или ее ангидрид, исходную реакционную смесь и компоненты йодсодержащего промотора. Жидкая фракция возвращается в реактор карбонилирования, а паровая фракция направляется в дистилляционную колонну, в которой головная фракция, включающая исходную реакционную смесь и йодсодержащий промотор, отделяется от кубового остатка, включающего содержащие примеси йодида уксусную кислоту и/или ее ангидрид.

Кубовый остаток, содержащий загрязненные йодидом уксусную кислоту и/или ангидрид, направляют затем в конечный испаритель равновесного типа (флеш-испаритель), в котором уксусная кислота и/или ангидрид с пониженным содержанием примесей йодида отделяется в виде паровой фракции от жидкой фракции.

По другому варианту осуществления предлагаемого в соответствии с настоящим изобретением способа конечный испаритель равновесного типа выполнен как единое целое вместе с дистилляционной колонной. В этом случае куб дистилляционной колонны играет роль емкости испарителя, а испарение осуществляется не за счет отдельного источника тепла, а за счет ребойлера дистилляционной колонны. При таком варианте осуществления из верхней части колонны удаляется фракция, включающая исходную реакционную смесь и йодсодержащий промотор. Паровая фракция, включающая уксусную кислоту и/или ее ангидрид, отводится из нижней части дистилляционной колонны. Содержание в ней йодида ниже, чем, если бы из нижней части дистилляционной колонны отводилась жидкая фракция. Кубовая жидкая фракция удаляется отдельно из паровой фракции, отводимой из нижней части дистилляционной колонны. При таком варианте осуществления паровая фракция может быть удалена непосредственно из нижней части дистилляционной колонны выше уровня жидкости в ее кубе или оттуда же через одну или две тарелки для предотвращения уноса жидкости. Для снижения уноса жидкости можно использовать любые, применяющиеся для этой цели, известные способы.

Предпочтительно далее, чтобы в верхней части предварительного испарителя равновесного типа была смонтирована скрубберная секция с сеткой, форсунками, тарелками или другими подобными устройствами, и чтобы в испаритель через верхнюю часть этой скрубберной секции вводилась жидкость, а именно растворитель, для растворения катализатора. По другому варианту или дополнительно в верхней части предварительного испарителя равновесного типа может быть размещена насадка для обеспечения дистилляции, например, сетка. Предпочтительно в качестве промывочной жидкости в скрубберной части предварительного испарителя равновесного типа использовать жидкую фракцию, отделяемую в конечном испарителе.

При отсутствии конечного испарителя равновесного типа даже при использовании предварительного испарителя со скрубберным устройством и насадкой из плетеной сетки содержание примесей йодида в уксусной кислоте и/или уксусном ангидриде превышает допустимые для определенных областей применения значения. В частности, это имеет место в тех случаях, когда при карбонилировании используются йодсодержащие сопромоторы. Причины этого неясны, и о них можно только догадываться. Возможно, йодиды, имеющие очень высокую температуру кипения, уносятся вместе с испаряющимся дистиллятом в виде очень тонкой смеси, и/или в результате химических превращений в подключенной последовательно дистилляционной колонне образуются йодиды. Как бы то ни было, но факт остается фактом, что получаемый продукт может быть загрязнен йодидом даже после осуществления вышеописанных операций. Поэтому, если учесть вышесказанное о загрязненной йодидом кислоте и/или ангидриде, то весьма удивительно, что в продукте, подвергнутом дополнительному равновесному

испарению, существенно снижается содержание примесей йодида.

По предпочтительному варианту предметом настоящего изобретения является способ получения уксусного ангидрида с или без уксусной кислоты из метанола и монооксида углерода, состоящий из ряда последовательных стадий этерификации, карбонилирования и выделения, и включающий:

1) взаимодействие метанола с возвращаемой в цикл уксусной кислотой на стадии этерификации с образованием продукта этерификации, содержащего преимущественно метилацетат, воду и, возможно, непрореагировавший метанол;

2) удаление из продукта этерификации части воды;

3) взаимодействие продукта этерификации, содержащего еще некоторое количество воды, в качестве исходного материала с монооксидом углерода на стадии карбонилирования в присутствии свободного или связанного металлического катализатора карбонилирования, йодсодержащего промотора и, при желании, йодсодержащего сопромотора с образованием в результате продукта карбонилирования, содержащего уксусную кислоту и/или уксусный ангидрид;

4) подачу полученного продукта карбонилирования в предварительный испаритель равновесного типа со смонтированной в его верхней части скрубберной секцией, в котором жидкая фракция, включающая катализатор карбонилирования, и, возможно, йодсодержащий сопромотор, отделяется от паровой фракции, включающей уксусную кислоту и/или уксусный ангидрид, карбонилируемое непрореагировавшее сырье и йодсодержащий промотор;

5) возврат жидкой фракции со стадии (4) путем фракционной дистилляции в дистилляционной колонне на кубовый остаток, включающий загрязненные йодидом уксусную кислоту и/или уксусный ангидрид, и головную фракцию, включающую непрореагировавший на стадии карбонилирования исходный материал и йодсодержащий промотор;

7) возврат головной фракции со стадии (6) на стадию, карбонилирования;

8) подачу кубового остатка со стадии (6), включающей загрязненные йодидными примесями уксусную кислоту и/или уксусный ангидрид, в конечный испаритель равновесного типа, в котором уксусная кислота и/или уксусный ангидрид с пониженным содержанием примесей йодида отделяется в виде паровой фракции от жидкой фракции;

9) возврат жидкой фракции со стадии (8) в качестве промывной жидкости в скрубберную секцию предварительного испарителя равновесного типа;

10) отделение путем дистилляции уксусной кислоты от уксусного ангидрида из паровой фракции со стадии (8);

11) возврат по меньшей мере части уксусной кислоты, отделенной на стадии (10) на стадию этерификации (1);

12) извлечение уксусного ангидрида и той части уксусной кислоты, которая не возвращается на стадию этерификации, из паровой фракции со стадии (8).

По модифицированному варианту указанного способа конечный испаритель равновесного типа может быть выполнен как единое целое с фракционной дистилляционной колонной, используемой для фракционной дистилляции продукта на стадии (6). В этом случае стадии (6) - (9) модифицированы следующим образом:

6') разделение паровой фракции со стадии (4) путем фракционной дистилляции в дистилляционной колонне на головную фракцию, включающую непрореагировавший на стадии карбонилирования исходный материал и йодсодержащий промотор, кубовую паровую фракцию, включающую уксусную кислоту и/или ангидрид с пониженным содержанием примесей йодида, и кубовую жидкую фракцию;

7') возврат головной фракции со стадии (6') на стадию карбонилирования;

8') отвод кубовой паровой и кубовой жидкой фракций из куба дистилляционной колонны;

9') возврат кубовой жидкой фракции со стадии (8') в качестве промывной жидкости в скрубберную секцию предварительного испарителя равновесного типа.

Как уже отмечалось, для уменьшения уноса кубовую паровую фракцию можно удалять из куба дистилляционной колонны через одну или две тарелки, а жидкий кубовый остаток можно удалить из основания дистилляционной колонны.

Подробности о предпочтительных реагентах, условиях проведения реакции и процедурах, проводимых при осуществлении этого предпочтительного варианта осуществления, содержатся в ранее упомянутом европейском патенте А-0087870.

На фиг.1 изображена упрощенная технологическая схема соответствующей части способа получения уксусного ангидрида и уксусной кислоты из метанола и монооксида углерода, состоящего из стадий этерификации, карбонилирования и выделения, как это описано в европейском патенте А-0087870; на фиг.2 - модифицированная конструкция аппарата, изображенного на фиг.1, с испарителем, выполненным как единое целое с дистилляционной колонной.

По схеме в соответствии с фиг.1 продукт реакции карбонилирования, состоящий в основном из уксусного ангидрида, уксусной кислоты, непрореагировавшего метилацетата, родиевого катализатора карбонилирования, некоторого количества промотора - йодидного метила и, возможно, сопромотора, например, N,N'-диметилимидазолиййодида, выходящий из реактора карбонилирования 15, подается по трубопроводу 1 в предварительный испаритель равновесного типа 2, в котором имеются скрубберные тарелки 3 и ввод для рециркулируемой жидкости 4. Кроме того, в нем имеется насадка в виде плетеной сетки 14. Паровая фракция, состоящая из уксусного ангидрида, уксусной кислоты, непрореагировавшего метилацетата и промотора метилиодида, удаляется из предварительного испарителя равновесного типа по трубопроводу 5, а жидкая фракция, включающая нелетучий катализатор карбонилирования и, возможно, сопромотор, - по трубопроводу 6 и возвращается в реактор карбонилирования 15. Скрубберные тарелки 3, насадка из плетеной сетки 14 и промывная жидкость 4, таким образом, предназначены для облегчения удаления нелетучих йодидов в жидкой фракции, выводимой по трубопроводу 6.

Удаляемая из предварительного испарителя равновесного типа 2 паровая фракция по трубопроводу 5 подается в дистилляционную колонну 7, из верхней части которой по трубопроводу 8 отводится фракция, содержащая, главным образом, непрореагировавший метилацетат и промотор - йодистый метил, которые возвращаются на стадию карбонилирования. Из куба 9 колонны по трубопроводу 10 отводится кубовая жидкая фракция, состоящая в основном из загрязненных йодидом уксусного ангидрида и уксусной кислоты.

Из дистилляционной колонны 7 кубовая фракция по трубопроводу 10 подается в конечный испаритель равновесного типа 11, который обогревается с помощью внешнего термосифонного ребойлера 16 паром, подаваемым со стороны обечайки. Из испарителя 11 по трубопроводу 12 отводится паровая фракция уксусного ангидрида и уксусной кислоты с существенно более низким содержанием йодида. Жидкая фаза отводится из испарителя по трубопроводу 13 и возвращается в качестве промывной жидкости на тарелки 3 предварительного испарителя равновесного типа 2, в который она поступает по входному трубопроводу 4.

Паровая фаза, отводимая из испарителя 11, разделяется путем дистилляции в дистилляционной колонне (на чертеже не показана) на уксусный ангидрид и уксусную кислоту. Уксусная кислота возвращается, как это описано в европейском патенте А-0087870, в процесс. Часть ее, используемая для получения метилацетата, подается в реактор этерификации.

На фиг.2 показан модифицированный вариант установки в соответствии с фиг.1, в которой конечный испаритель равновесного типа выполнен как единое целое вместе с дистилляционной колонной. Все остальные элементы установки такие же, как и на фиг.1.

При работе установки продукт, образующийся на стадии карбонилирования и состоящий в основном из уксусного ангидрида, уксусной кислоты, непрореагировавшего метилацетата, родиевого катализатора карбонилирования некоторого количества промотора йодистого метила и, возможно, сопромотора, например, йодистого N,N'-диметилимидазолия, после реактора карбонилирования 15 подается по трубопроводу 1 в предварительный испаритель равновесного типа 2 со скрубберными тарелками 3 и вводом 4 для рециркулируемой жидкости. Кроме того, в нем имеется насадка из плетеной сетки 14. Паровая фракция, состоящая из уксусного ангидрида, уксусной кислоты, непрореагировавшего метилацетата и промотора - йодистого метила, отводится из предварительного испарителя равновесного типа по трубопроводу 5, а жидкая фракция, включающая нелетучий катализатор карбонилирования и, возможно, сопромотор и по трубопроводу 6 и возвращается в реактор карбонилирования 15. Скрубберные тарелки 3, насадка из плетеной сетки 14 и промывная жидкость 4 предназначены для облегчения удаления нелетучих йодидов в паровой фракции, отводимой по трубопроводу 6.

Паровая фракция из испарителя равновесного типа 2 подается по трубопроводу 5 в дистилляционную колонну 7, из верхней части которой по трубопроводу 8 отводится фракция, содержащая в основном непрореагировавший метилацетат и промотор - йодистый метил, которые возвращаются на стадию карбонилирования.

В изображенной на фиг.2 схеме конечный испаритель равновесного типа 2 выполнен как единое целое с дистилляционной колонной. Таким образом, куб 17 дистилляционной колонны 7 играет роль емкости конечного испарителя равновесного типа. Испарение в этом случае осуществляется с помощью внешнего термосифонного ребойлера 16 за счет пара, подаваемого со стороны обечайки, который обеспечивает также кипение содержимого дистилляционной колонны.

Из куба 17 дистилляционной колонны по трубопроводу 12 отводится паровая фракция уксусного ангидрида и уксусной кислоты, имеющая значительно более низкое содержание йодида, чем если бы из куба дистилляционной колонны отбиралась жидкая фракция. Жидкая фракция отводится из куба 17 по трубопроводу 13 и в качестве промывной жидкости возвращается на тарелки 3 предварительного испарителя равновесного типа, в который она вводится через входной патрубок 4. Паровая фракция может также отводиться из куба дистилляционной колонны через одну или две тарелки.

Отводимая из куба 17 по трубопроводу 12 паровая фракция разделяется путем дистилляции в дистилляционной колонне (на чертеже не показана) на уксусный ангидрид и уксусную кислоту, и уксусная кислота возвращается в процесс таким образом, как это описано в европейском патенте А-0087870. Часть отделенной уксусной кислоты используется для получения метилацетата в реакторе на стадии этерификации.

Примеры 1 и 2. В этих примерах использовалась технологическая схема, аналогичная схеме, изображенной на фиг.1.

Жидкая композиция, представляющая собой продукт катализируемой родием реакции карбонилирования смеси метанола, метилацетата и воды в присутствии промотора йодистого метила и сопромотора йодистого N,N'-диметилимидазолия, осуществляемой в реакторе с мешалкой, работающем в непрерывном режиме, пропусклась через предварительный испаритель равновесного типа. Отводимая из него жидкая фаза, состоящая из нелетучего родиевого катализатора карбонилирования и йодистого N,N'-диметилимидазолия, возвращалась в реактор карбонилирования. Отводимая из предварительного испарителя равновесного типа паровая фракция подавалась в дистилляционную колонну. Отводимая из верхней части дистилляционной колонны фракция, включающая метилацетат и промотор - йодистый метил, возвращалась в реактор карбонилирования. Жидкая фракция, отводимая из куба дистилляционной колонны, охлаждалась и собиралась в емкости, после чего подавалась в обогреваемый паром испаритель, работающий при давлении 1бар и температуре около 149°С. Состав исходного материала, паровой и жидкой фракций для примеров 1 и 2 приведен в табл.1 и 2.

Из приведенных в табл.1 и 2 данных видно, что содержание примесей йодида в паровой фракции значительно ниже, чем в исходном материале, и это, несмотря на то, что последний уже был подвергнут предварительной обработке путем испарения.

Примеры 3 и 4. В этих примерах использовалась технологическая схема, аналогичная схеме, изображенной на фиг.2.

Жидкая композиция, представляющая собой продукт катализируемой родием реакции

карбонилирования смеси метанола, метилацетата и воды в присутствии промотора - йодистого метила и сопромотора - N,N'-диметилимидазолия, осуществляемой в реакторе с мешалкой, работающем в непрерывном режиме, пропусклась через предварительный испаритель равновесного типа. Отводимая из него жидкая фракция, состоящая из нелетучего родиевого катализатора карбонилирования и йодистого N,N'-диметилимидазолия, возвращалась в реактор карбонилирования. Отводимая из предварительного испарителя равновесного типа паровая фракция подавалась в дистилляционную колонну Oldrshaw диаметром 3 дюйма, работающую при атмосферном давлении. Отводимая из верхней части дистилляционной колонны паровая фракция, включающая метилацетат и промотор - йодистый метил, возвращалась в реактор карбонилирования. Паровая фракция, включающая уксусную кислоту и уксусный ангидрид с низким содержанием примеси йодида, отводилась со второй снизу тарелки дистилляционной колонны. Кубовая жидкая фракция отводилась из куба дистилляционной колонны и возвращалась в предварительный испаритель равновесного типа. В примере 3 дистилляционной колонны работала с возвратом флегмы в верхнюю часть колонны при соотношении между флегмой и отбираемой головной фракцией 1,94 - 1,0. В примере 4 флегмовое число не фиксировалось.

Результаты, полученные в обоих опытах, приведены в табл.3 и 4. Низкое содержание йодида в паровых фракциях и высокое его содержание в кубовых фракциях свидетельствует о том, что содержание йодида в паровых фракциях ниже, чем в том случае, если бы потоки смеси кислоты и ангидрида отбирались из куба дистилляционной колонны в виде жидкой фракции.

Т а б л и ц а 1 (к примеру 1)

Поток	Исходный материал	Паровая фракция	Жидкая фракция
Расход (л/ч)	9,3	8,3	1,0
Состав (мас. %)			
Уксусная кислота (%)	71,0	69,1	58,1
Уксусный ангидрид (%)	27,8	29,4	37,8
Йодид (м.д.)	37	6,6	307

Т а б л и ц а 2 (к примеру 2)

Поток	Исходный материал	Паровая фракция	Жидкая фракция
Расход (л/ч)	9,4	8,4	1,0
Состав (мас. %)			
Уксусная кислота (%)	67,6	66,6	56,8
Уксусный ангидрид (%)	27,4	29,4	39,3
Йодид (м.д.)	44,8	5,4	360

Т а б л и ц а 3 (к примеру 3)

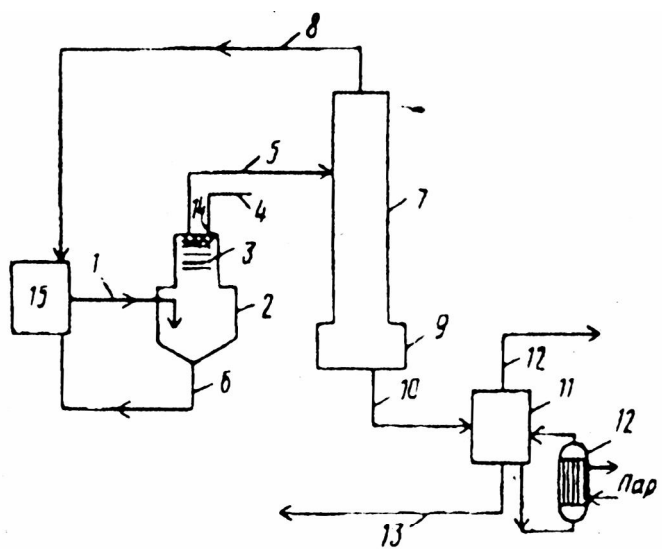
Средняя температура в кубе колонны 132,1°C;
средняя температура в верхней части колонны 72,4°C

Поток	Паровая фракция	Жидкая фракция
Расход (г/ч)	1876,6	325
Состав (мас. %)		
Уксусная кислота (%)	56,6	29,8
Уксусный ангидрид (%)	43,0	67,8
Иодид (м.д.)	1,3	100

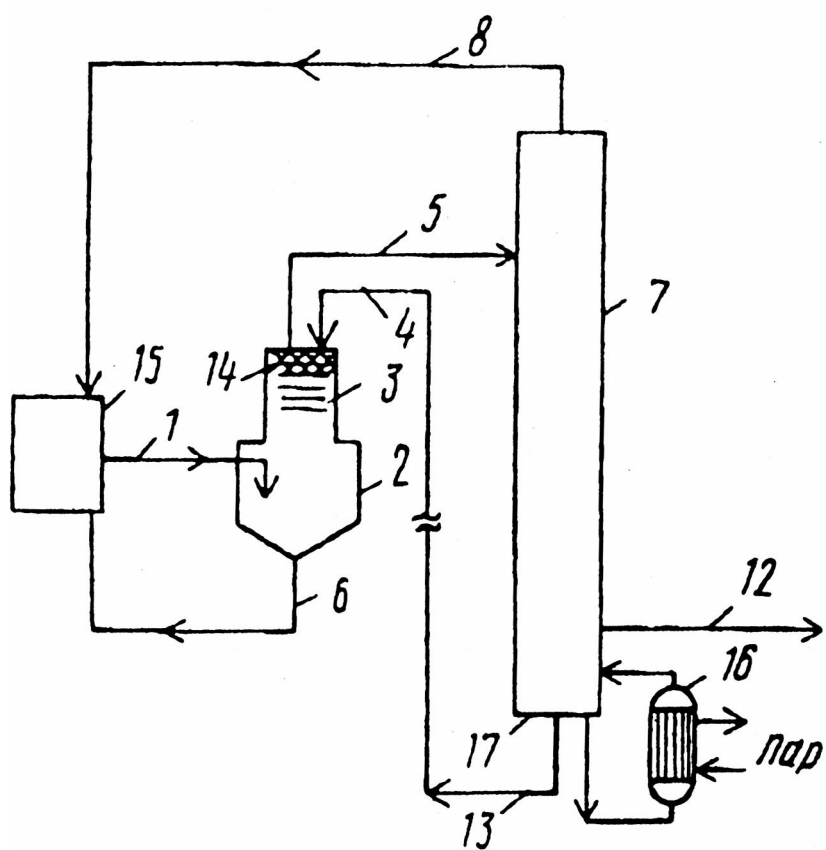
Т а б л и ц а 4 (к примеру 4)

Средняя температура в кубе колонны 131,9°C;
температура в верхней части колонны 71,3°C

Поток	Паровая фракция	Жидкая фракция
Расход (г/ч)	1366,8	196,9
Состав (мас. %)		
Уксусная кислота (%)	58,5	30,2
Уксусный ангидрид (%)	41,2	67,2
Иодид (м.д.)	4,0	230



Фиг. 1



Фиг. 2