



УКРАЇНА

(19) **UA**

(11) **122056**

(13) **C2**

(51) МПК

C07C 51/09 (2006.01)

C07C 41/09 (2006.01)

C07C 67/37 (2006.01)

C07C 43/04 (2006.01)

C07C 53/08 (2006.01)

C07C 69/14 (2006.01)

C07C 41/16 (2006.01)

МІНІСТЕРСТВО РОЗВИТКУ
ЕКОНОМІКИ, ТОРГІВЛІ ТА
СІЛЬСЬКОГО ГОСПОДАРСТВА
УКРАЇНИ

(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

(21) Номер заявки: **а 2016 11894**

(22) Дата подання заявки: **12.06.2015**

(24) Дата, з якої є чинними
права на винахід: **11.09.2020**

(31) Номер попередньої
заявки відповідно до
Парижської конвенції: **14173349.3**

(32) Дата подання
попередньої заявки
відповідно до
Парижської конвенції: **20.06.2014**

(33) Код держави-учасниці
Парижської конвенції,
до якої подано
попередню заявку: **EP**

(41) Публікація відомостей
про заявку: **10.03.2017, Бюл.№ 5**

(46) Публікація відомостей
про видачу патенту: **10.09.2020, Бюл.№ 17**

(86) Номер та дата
подання міжнародної
заявки, поданої
відповідно до
Договору РСТ **РСТ/EP2015/063148,
12.06.2015**

(72) Винахідник(и):

Брістоу Тімоті Кріспін (GB)

(73) Власник(и):

БП КЕМІКАЛЗ ЛІМІТЕД,

Chertsey Road, Sunbury-on-Thames,
Middlesex TW16 7BP, United Kingdom (GB)

(74) Представник:

**Петров Андрій Володимирович, реєстр.
№139**

(56) Перелік документів, взятих до уваги
експертизою:

WO 2011/027105 A1, 10.03.2011

WO 2013/124404 A1, 29.08.2013

WO 2013/124423 A1, 29.08.2013

UA 122056 C2

(54) СПОСІБ СПІЛЬНОГО ОДЕРЖАННЯ ОЦТОВОЇ КИСЛОТИ І ДИМЕТИЛОВОГО ЕФІРУ

(57) Реферат:

Винахід стосується способу спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру за допомогою дегідратації-гідролізу завантажуваної суміші метанолу і метилацетату в присутності принаймні одного каталізатора з одержанням неочищеного продукту реакції, що містить оцтову кислоту і диметиловий ефір, в якому сировина для зазначеного способу спільного одержання містить метанол і метилацетат.

Даний винахід стосується способу спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру і, зокрема, способу спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру при покращеному ступені перетворення в продукти.

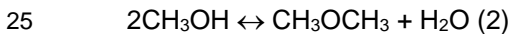
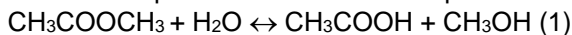
Способи спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру можна провести за допомогою каталітичною дегідратації і гідролізу сумішей метанолу і метилацетату. Такі способи спільного одержання описані, наприклад, в WO 2011/027105, WO 2013/124404 і WO 2013/124423.

В WO 2011/027105 описаний спосіб одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру шляхом взаємодії метанолу метилацетату з каталітичною композицією при температурі в діапазоні від 140 до 250°C, в якому каталітична композиція містить цеоліт, що включає 2-мірну систему каналів, яка містить принаймні один канал, який містить 10-членне кільце.

В WO 2013/124404 описаний спосіб спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру з суміші метанолу і метилацетату шляхом взаємодії суміші при температурі від 200 до 260 C з каталітичною композицією, що містить цеоліт, що включає 2-мірну систему каналів, яка містить принаймні один канал, який містить 10-членне кільце, і при молярному відношенні діоксид кремнію: оксид алюмінію, що дорівнює принаймні 22 : 1.

В WO2013/124423 описаний спосіб одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру шляхом взаємодії суміші метанолу і метилацетату з цеолітним каталізатором, в якому цеоліт включає 2-мірну систему каналів, яка містить принаймні один канал, який містить 10-членне кільце, і в якому не менше 5% його катіонообмінних центрів зайняті одним або більшою кількістю катіонів лужних металів.

Способи спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру з метилацетатної і метанольної сировини можна описати рівняннями (1) і (2):



Джерелами метилацетату, придатними для використання в таких способах спільного одержання, можуть бути, наприклад, потоки, які містять метилацетат, одержані з продуктів реакції карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності каталізатора карбонілювання з одержанням метилацетату. Процедури карбонілювання цього типу описані, наприклад, в US 7465822, WO 2008/132441 и WO 2008/132438. Однак відповідно до винаходу було встановлено, що використання таких способів може дати потоки неочищеного продукту, які є субоптимальними для безпосереднього використання в способах спільного одержання описаного вище типу і, зокрема, такі потоки неочищеного продукту, які містять значні кількості диметилового ефіру, такі як потоки неочищеного продукту, що утворилися при карбонілюванні, проведеному при низькому парціальному тиску монооксиду вуглецю.

Крім того, встановлено, що безпосереднє використання потоків неочищеної метилацетатної сировини, які мають досить великі вмісти диметилового ефіру в способах спільного одержання описаного вище типу пригнічує утворення диметилового ефіру і/або оцтової кислоти. Цей недолік може додатково підсилюватись при використанні промислових джерел метанолу, які зазвичай містять диметиловий ефір і в кількостях, які можуть перевищувати 25 мол.%.

Таким чином, зберігається необхідність в покращеному способі спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру з потоків метанолу і метилацетату, який характеризується покращеним ступенем перетворення принаймні диметилового ефіру, і, зокрема, в покращеному способі спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру з потоків метанолу і метилацетату, одержаних з продуктів карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності каталізатора карбонілювання.

Відповідно, даний винахід стосується способу спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру за допомогою дегідратації-гідролізу завантажуваної суміші метанолу і метилацетату в присутності принаймні одного каталізатора з одержанням неочищеного продукту реакції, що містить оцтову кислоту і диметиловий ефір, в якому сировина для зазначеного способу спільного одержання, що містить метанол і метилацетат, містить диметиловий ефір в повній кількості, що дорівнює 25 мол.% або менше в перерахунку на всю сировину.

У кращих варіантах здійснення даного винаходу сировина для способу спільного одержання має повний вміст диметилового ефіру, що дорівнює 15 мол.% або менше, наприклад, 10 мол.% або менше, краще 5 мол.% або менше.

В одному або більших кількостях варіантів здійснення даного винаходу метилацетатна сировина для способу спільного одержання містить метилацетат і диметиловий ефір. Краще, якщо метилацетатну сировину одержують з потоку неочищеного метилацетату, одержаного в способах карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності

каталізатора карбонілювання, наприклад, цеолітного каталізатора карбонілювання і, необов'язково водню, для одержання потоку неочищеного метилацетату, що містить метилацетат і диметиловий ефір, де потік неочищеного метилацетату обробляють для зменшення вмісту диметилового ефіру, який знаходиться в ньому, з метою одержання метилацетатної сировини для способу спільного одержання, яка містить диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від >0 до 25 мол.%, наприклад, від >0 до 15 мол.%, наприклад, від >0 до 10 мол.%, краще від >0 до 5 мол.%. 5

У кращих варіантах здійснення даного винаходу потік неочищеного метилацетату, який містить метилацетат і диметиловий ефір, обробляють для зменшення вмісту диметилового ефіру, який знаходиться в ньому, за допомогою дистиляції, краще за допомогою фракційної дистиляції. Краще, якщо в цих варіантах здійснення потік неочищеного метилацетату обробляють за допомогою фракційної дистиляції в дистиляційній колоні, в якій 10

(i) диметиловий ефір вилучають у вигляді головного потоку з колони; і

(ii) метилацетат вилучають як основний потік з колони; і цей основний потік або його частину використовують як метилацетатну сировину для способу спільного одержання. 15

Таким чином, сприятливо, що даний винахід забезпечує зручні засоби вилучення цінного диметилового ефіру, що при бажанні можна повторно використовувати як сировину, наприклад, при карбонілюванні для одержання метилацетату або в інших хімічних реакціях.

В одному або більших кількостях варіантів здійснення даного винаходу спосіб спільного одержання утворює частину об'єднаного способу, де об'єднаний спосіб включає спосіб карбонілювання диметилового ефіру газом, який містить монооксид вуглецю, в присутності цеолітного каталізатора карбонілювання, в якому ступінь перетворення диметилового ефіру становить від 1 до 95%, наприклад, від 5 до 90%, наприклад, від 5 до 60% за один цикл в перерахунку на всю сировину для карбонілювання з одержанням неочищеного продукту реакції карбонілювання, що містить метилацетат і диметиловий ефір, такого що диметиловий ефір міститься в кількості, що дорівнює від 5 до 50 мол.%; вилучення з неочищеного продукту реакції карбонілювання потоку неочищеного метилацетату, що містить метилацетат і диметиловий ефір; обробку потоку неочищеного метилацетату або його частини, краще за допомогою дистиляції, для вилучення потоку, що містить в основному диметиловий ефір, і потоку, що містить метилацетат і зменшену кількість диметилового ефіру, і в якому потік або його частину, яка містить метилацетат і зменшену кількість диметилового ефіру, краще диметилового ефіру в кількості, що дорівнює від більше 0 до 25 мол.% у перерахунку на всю сировину, що вводиться в спосіб, використовують як сировину для способу спільного одержання. Краще, якщо в цих варіантах здійснення потік, який містить метилацетат і зменшену кількість диметилового ефіру, містить диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від більше 0 до 15 мол.%, наприклад, від більше 0 до 10 мол.%, краще від більше 0 до 5 мол.% в перерахунку на всю сировину, що вводиться в спосіб. У цих варіантах здійснення потік неочищеного метилацетату може додатково містити забруднюючі речовини, такі як один або обидва ацетон і ацетальдегід, в повній кількості, що дорівнює від >0 до 1 мол.%, наприклад, від >0 до 0,25 мол.%. З продуктів дистиляції можна вилучити потік, який містить більшу частину ацетальдегіду, що міститься в потоці неочищеного метилацетату, який необхідно дистилювати, де цей потік може бути вилучений і краще вилучений з продуктів дистиляції у вигляді окремого потоку, такого як бічний потік. Краще, якщо в цих варіантах здійснення потік метанолу, який містить метанол і диметиловий ефір, дистилюють разом з потоком неочищеного метилацетату для вилучення, краще у вигляді основного потоку з продуктів дистиляції, потоку, що містить метилацетат, метанол і диметиловий ефір, де цей вилучений потік використовують як змішану сировину для способу спільного одержання. У цих варіантах здійснення потік метанолу, який містить метанол і диметиловий ефір, додатково містить метилформіат як забруднюючу речовину, наприклад, в кількості, що дорівнює від >0 до 1000 част./млн, і потік, який містить більшу частину метилформіату, вилучають з продуктів дистиляції, краще вилучають у вигляді бічного потоку. У цих варіантах здійснення сировина для способу спільного одержання додатково містить одну або більшу кількість наступних: оцтова кислота, вода і забруднюючі речовини, такі як один або більша кількість наступних: ацетальдегід, ацетон і метилформіат, в повній кількості, що дорівнює від 0 до 1 мол.%, наприклад, від 0 до 0,25 мол.%. Краще, якщо в цих варіантах здійснення потік, вилучений з продуктів дистиляції або його частину, яка містить в основному диметиловий ефір, повертають в реакцію карбонілювання для використання в ній як сировини. 50

Як зазначено вище, способи одержання метилацетату шляхом карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності каталізатора, який використовується як сировина описані, наприклад, в US 7465822, WO 2008/132438 и WO 2008/132441. 55

Процедури карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю для одержання неочищеного метилацетату можна провести у вигляді гетерогенних парофазних способів, зазвичай при температурі реакції, що дорівнює приблизно від 100°C до 350°C, наприклад, що дорівнює приблизно від 250°C до 350°C, і при повному тиску, що дорівнює приблизно від 1 до 200 бар надлишкового тиску (від 100 кПа до 20000 кПа), наприклад, приблизно від 50 до 100 бар надлишкового тиску (від 5000 кПа до 10000 кПа).

Зазвичай реакцію карбонілювання проводять в присутності відповідного каталізатора карбонілювання, наприклад, цеолітного каталізатора карбонілювання. Придатні цеолітні каталізатори включають алюмосилікатні цеоліти, які включають принаймні один канал, який утворений 8-членним кільцем. Краще, якщо канал, утворений 8-членним кільцем, пов'язаний принаймні з одним каналом, утворений 10 або 12-членним кільцем. Необмежуючі приклади алюмосилікатних цеолітів, придатних для використання в реакції карбонілювання, включають цеоліти каркасного типу MOR (наприклад, морденіт), FER (наприклад, фер'єрит), OFF (наприклад, офретит) і GME (наприклад, гмелініт).

Цеоліт можна використовувати в реакції карбонілювання в формі, підданій обміну з катіонами одного або більшої кількості металів, такими як один або більша кількість наступних: мідь, срібло, нікель, кобальт, іридій, паладій, родій і платина. Морденітні цеоліти, які містять мідь і/або залізо з включенням від 0,05 до 10 мол.% платини в перерахунку на вміст алюмінію, описані в Європейській патентній заявці EP-A-1985362. Альтернативно, його можна використовувати в основному у водневій формі.

Свіжосинтезовані цеоліти зазвичай знаходяться в порошкоподібній формі, а для надання цеолітному каталізатору механічної міцності його можна використовувати в реакції карбонілювання у вигляді композиту з будь-яким підходящим матеріалом зв'язуючого. Матеріали зв'язуючого вибирають так, щоб цеоліт був досить активним і міцним за умов проведення реакції карбонілювання. Приклади придатних матеріалів зв'язуючого включають неорганічні оксиди, такі як діоксиди кремнію, оксиди алюмінію, алюмосилікати, силікати магнію, алюмосилікати магнію, діоксиди титану і діоксиди цирконію. Кращі матеріали зв'язуючого включають оксиди алюмінію, алюмосилікати і діоксиди кремнію.

Для підтримки активності цеолітного каталізатора реакцію карбонілювання краще проводять при дуже низькому вмісті води. Таким чином, краще, якщо загрузки в спосіб, такі як диметиловий ефір і монооксид вуглецю, до використання в способі сушать зі зменшенням загальної кількості води, що подається в спосіб, до кількості, що дорівнює 0,5 мол.% або менше.

Краще, якщо реакцію карбонілювання можна провести з використанням відношення кількості молей монооксиду вуглецю до кількості молей диметилового ефіру, що знаходиться в діапазоні від 1 : 1 до 99 : 1, наприклад, від 2 : 1 до 25 : 1.

Монооксид вуглецю краще використовують в реакції карбонілювання при парціальному тиску, що знаходиться в діапазоні від 0,1 до 100 бар надлишкового тиску (від 10 кПа до 10000 кПа), наприклад, приблизно від 10 до 65 бар надлишкового тиску (від 1000 кПа до 6500 кПа).

Монооксид вуглецю, який використовується як сировина в таких реакціях карбонілювання, можна використовувати у вигляді газоподібної суміші з воднем, такої як синтез-газ. Газоподібна суміш/синтез-газ також може містити деяку кількість діоксиду вуглецю. Парціальний тиск водню краще може складати приблизно від 1 бар надлишкового тиску до 100 бар надлишкового тиску (від 100 кПа до 10000 кПа), краще приблизно від 10 до 75 бар надлишкового тиску (від 1000 кПа до 7500 кПа).

Реакцію карбонілювання можна провести при молярному відношенні монооксид вуглецю: водень, що знаходиться в діапазоні від 10 : 1 до 1 : 10, краще при молярному відношенні, що знаходиться в діапазоні від 1 : 1 до 1 : 4 або більше.

Краще, якщо повна годинна об'ємна швидкість газу для потоку газу через шар каталізатора (ГОШГ) дорівнює від приблизно 500 до приблизно 40000 год⁻¹, наприклад, від приблизно 2000 до приблизно 20000 год⁻¹.

Ступінь перетворення диметилового ефіру в метилацетат в реакції карбонілювання може знаходитися в діапазоні від 1 до 90% в перерахунку на повну кількість сировини для карбонілювання за один цикл, наприклад, в діапазоні від 5 до 60%, наприклад, в діапазоні від 30 до 60%. Проведення реакції карбонілювання при повному тиску, що дорівнює від приблизно 50 до приблизно 100 бар надлишкового тиску (від 5000 кПа до 10000 кПа), і при температурах, що дорівнюють від приблизно 250°C до приблизно 350°C при низькому парціальному тиску монооксиду вуглецю схильне приводити до зменшення ступеня перетворення диметилового ефіру в метилацетат.

У реакціях карбонілювання, які проводяться при ступенях перетворення диметилового ефіру, що дорівнюють менше 100%, неочищений продукт реакції карбонілювання містить

метилацетат і диметиловий ефір, який не прореагував, і також може містити монооксид вуглецю і, якщо вони містяться в сировині для карбонілювання, один або більшу кількість наступних: водень і діоксид вуглецю.

Неочищений метилацетат можна вилучити з неочищеного продукту реакції карбонілювання шляхом охолодження продукту реакції, який відбирається, зазвичай в пароподібній формі, із зони реакції карбонілювання, до температури, наприклад, в діапазоні від 50°C або більш низької, в одному або більшій кількості звичайних теплообмінників і охолоджений продукт реакції відокремити, наприклад, в газорідному сепараторі або газосепараторі з тангенціальним вводом, для вилучення рідкого неочищеного метилацетату, що містить метилацетат і диметиловий ефір, і газоподібного потоку, що містить більшу частину монооксиду вуглецю, який не прореагував і, якщо вони використовуються в реакції карбонілювання, водню і діоксиду вуглецю.

Неочищений метилацетат, вилучений з неочищеного продукту реакції карбонілювання, містить в основному метилацетат, але також може містити диметиловий ефір і також може містити додаткові компоненти, вибрані з групи, яка включає один або більшу кількість наступних: розчинені оксиди вуглецю, водень, метанол, вода і оцтова кислота. Внаслідок побічних реакцій, що відбуваються при реакції карбонілювання, неочищений метилацетат також може містити невеликі кількості небажаних забруднюючих речовин, наприклад, одного або обох ацетальдегіду і ацетону, наприклад, в кількостях, що дорівнюють від >0 до 1 мол. %.

Кількість диметилового ефіру, що міститься в неочищеному метилацетаті, який вилучений з продуктів реакції карбонілювання, може змінюватися і залежить від ступеня перетворення реагенту - диметилового ефіру. Зазвичай для ступенів перетворення диметилового ефіру, що дорівнюють менше 90% в перерахунку на повну кількість сировини для карбонілювання за один цикл, наприклад, для ступенів перетворення, які перебувають в діапазоні від 5 до 60%, неочищений метилацетат може містити диметиловий ефір в кількості, що дорівнює приблизно від 5 до 50 мол. %.

Неочищений метилацетат може додатково містити невеликі кількості оцтової кислоти і розчинених газів, таких як один або більшу кількість наступних: оксиди вуглецю і водень. Зазвичай неочищений метилацетат може містити приблизно від 5 до 50 мол. %, наприклад, від 5 до 25 мол. % диметилового ефіру, від 1 до 5 мол. % оцтової кислоти, від 0,5 до 3 мол. % метанолу і від 1 до 4 мол. % оксидів вуглецю і/або водню і до 1 мол. % забруднюючих речовин, таких як одного або обох ацетальдегіду і ацетону, решта являє собою метилацетат, наприклад, від 50 до 95 мол. % метилацетату.

Краще, якщо неочищений метилацетат, який містить метилацетат і диметиловий ефір, наприклад, в кількості, що дорівнює до 50 мол. % диметилового ефіру, наприклад, від 5 до 25 мол. % диметилового ефіру, обробляють для видалення з нього диметилового ефіру за методикою дистиляції.

У кращих варіантах здійснення неочищений метилацетат, який містить метилацетат і диметиловий ефір, обробляють для зменшення вмісту диметилового ефіру, який знаходиться в ньому, за допомогою дистиляції, краще за допомогою фракційної дистиляції. Краще, якщо в цих варіантах здійснення дистиляцію неочищеного метилацетату проводять за допомогою фракційної дистиляції в дистиляційній колоні, в якій

(i) диметиловий ефір вилучають у вигляді головного потоку з колони; і

(ii) метилацетат вилучають як основний потік з колони; і цей основний потік або його частину використовують як метилацетатну сировину для способу спільного одержання.

Перевагу віддають методиці дистиляції, в якій використовують одну або більшу кількість дистиляційних колон, краще одну дистиляційну колону. У типовій конфігурації дистиляційна колона має принаймні 5, наприклад, принаймні 15 теоретичних ступенів, наприклад, принаймні 20 теоретичних ступенів. Оскільки зони дистиляції можуть мати різну ефективність, 15 теоретичних ступенів можуть бути еквівалентні принаймні 25 реальним ступеням, які мають ефективність, що становить приблизно 0,7, або принаймні 30 реальним ступеням, які мають ефективність, що становить приблизно 0,5.

Придатні дистиляційні колони включають тарілчасті або насадочні колони.

Краще, якщо дистиляційна колона працює при підвищеному тиску, такому як тиск, що дорівнює приблизно 0,5 бар надлишкового тиску (50 кПа) або більше, наприклад, приблизно від 0,5 бар надлишкового тиску до 30 бар надлишкового тиску (від 50 до 3000 кПа), наприклад, приблизно від 10 до 30 бар надлишкового тиску (від 1000 до 3000 кПа).

В одному або у всіх варіантах здійснення дистиляційна колона має приблизно 20 теоретичних ступенів і працює при тиску, що дорівнює приблизно 0,5 бар надлишкового тиску (50 кПа) або більше, наприклад, приблизно від 0,5 бар надлишкового тиску до 30 бар

надлишкового тиску (від 50 до 3000 кПа), наприклад, приблизно від 10 до 30 бар надлишкового тиску (від 100 до 2000 кПа) і краще при температурі верху, що дорівнює приблизно від 40 до 95°C.

Неочищений метилацетат, який містить диметиловий ефір, можна подавати в дистиляційну колону у вигляді пари і/або у вигляді рідини. Головний потік, який містить в основному диметиловий ефір, можна відбирати з колони у вигляді пари і/або у вигляді рідини. Зазвичай головний потік може містити не менше 60 мол.% диметилового ефіру, наприклад, від 60 до 95 мол.% диметилового ефіру. Принаймні частину потоку пари, що відводиться з верху колони, можна сконденсувати і порцію конденсованої рідини повернути в колону у вигляді флегми.

Дистиляційна колона може працювати з поверненням рідкої флегми в верх колони при відношенні кількості флегми до кількості головного потоку, що залежить від таких факторів, як бажаний склад головного потоку. При робочих тисках, що дорівнюють від 10 до 30 бар надлишкового тиску (від 1000 до 3000 кПа), і температурі верху, яка дорівнює від 40 до 90°C, придатне флегмове число знаходиться в діапазоні від 1 до 10, наприклад, від 1 до 4, наприклад, від 1,5 до 2,5. Придатне відношення кількості пари до кількості сировини може дорівнювати від 0,01 до 5.

Неочищений метилацетат, наприклад, неочищений метилацетат, одержаний при карбонілюванні диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності цеолітного каталізатора карбонілювання і необов'язково водню, може містити забруднюючі речовини, такі як одного або обох ацетальдегідів і ацетону, наприклад, в повній кількості, що дорівнює 1 мол.% або менше. Ці забруднюючі речовини можуть шкідливо впливати на деякі каталізатори і, зокрема, на тверді каталізатори - кислоти Бренстеда, такі як гетерополексислота і цеолітні каталізатори, які можна використовувати як каталізатори в способах спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру. Сприятливо, що даний винахід також стосується видалення деяких з цих забруднюючих речовин, які видаляються на додаток до видалення диметилового ефіру з потоків неочищеного метилацетату, який містить диметиловий ефір і зазначені забруднюючі речовини, і тим самим скорочення капітальних і виробничих витрат і зменшення складності, пов'язаної зі способом спільного одержання.

Забруднюючі речовини, наприклад, ацетальдегід, зазвичай можна вилучати з дистиляційної колони у вигляді компонентів потоку, який відбирають з дистиляційної колони у вигляді бічного потоку. У таких випадках бажано відбирати бічний потік з дистиляційної колони в положенні вище положення заправки неочищеної метилацетатної сировини в колону. Вилучення забруднюючих речовин, що містяться в бічному потоці, можна покращити шляхом забезпечення достатньої очищаючої здатності в дистиляційній колоні нижче положення заправки неочищеного метилацетату в колону. Таким чином, краще, якщо дистиляційна колона має принаймні 3 теоретичні ступені, наприклад, від 3 до 10 теоретичних ступенів, нижче положення заправки неочищеної метилацетатної сировини в колону.

Для оптимізації вилучення забруднюючих речовин, що містяться в бічному потоці, краще, якщо бічний потік відбирають з колони в положенні або поблизу від положення максимальної концентрації забруднюючих речовин в колоні. Як повинен розуміти спеціаліст в даній галузі техніки, положення в колоні, в якому концентрація забруднюючих речовин буде найбільшою, залежить від конкретних робочих умов, які використовуються і, зокрема, від конкретного тиску, температури і флегмового числа, які використовуються. Концентрації компонентів в колоні можна легко визначити, наприклад, шляхом аналізу складу одержаних за допомогою дистиляції сумішей на різних ступенях колони, наприклад, аналізу складу за допомогою методик газової хроматографії.

Таким чином, зазвичай для колони, що має 40 ступенів, положення заправки неочищеного метилацетату в колону може знаходитися на ступенях від 10 до 25 при відліку від верху колони і бічний потік можна відібрати на ступенях від 4 до 15 при відліку від верху за умови, що бічний потік відбирають з колони на ступені, що знаходиться вище ступеня заправки колони.

В одному або більших кількостях варіантів здійснення даного винаходу дистиляційна колона являє собою колону, що має 40 ступенів, що працює при тиску, що дорівнює від 10 до 30 бар надлишкового тиску, температури верху, яка дорівнює від 40 до 90°C, і флегмовому числі, що дорівнює від 1 до 4, положення заправки неочищеної метилацетатної сировини в колону може знаходитися на ступенях від 10 до 25 при відліку від верху колони і бічний потік відбирають на ступенях від 4 до 15 при відліку від верху.

Краще, якщо бічний потік відбирають з колони у вигляді рідини. На додаток до забруднюючих речовин, бічний потік може додатково містити деякі кількості одного або обох диметилового ефіру і метилацетату.

Потік, який містить в основному метилацетат, видаляють з дистиляційної колони як основний потік з колони. Метилацетат можна відбирати з дистиляційної колони у вигляді рідини або у вигляді пари, краще у вигляді рідини.

Дистиляція неочищеного метилацетату, який містить метилацетат і диметиловий ефір, наприклад, в кількостях, що дорівнюють до 50 мол.%, ефективна для вилучення з дистиляційної колони метилацетату, що має вміст диметилового ефіру, що дорівнює 25 мол.% або менше, наприклад, 15 мол.% або менше, наприклад, 10 мол.% або менше, краще 5 мол.% або менше.

Дистиляція неочищеного метилацетату, який містить диметиловий ефір, наприклад, в кількостях, що дорівнюють до 50 мол.%, і забруднюючі речовини, наприклад, ацетальдегід і ацетон, аж до повної кількості, що дорівнює 1 мол.%, ефективна для вилучення з дистиляційної колони метилацетату, що має вміст диметилового ефіру, що дорівнює 25 мол.% або менше, наприклад, 15 мол.% або менше, наприклад, 10 мол.% або менше, краще 5 мол.% або менше, і повний вміст забруднюючої речовини, наприклад, ацетальдегіду і ацетону, що дорівнює менше 1 мол.%, або 0,25 мол.% або менше, наприклад, 200 част./млн або менше, наприклад, 100 част./млн або менше, або 50 част./млн або менше.

Потік метилацетату або його частину, вилучений з продуктів дистиляції і який містить диметиловий ефір в кількості, що дорівнює 25 мол.% або менше, можна безпосередньо використовувати в способі спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру без необхідності додаткової очистки.

Потік диметилового ефіру або його частину, вилучений з продуктів дистиляції потоку неочищеного метилацетату, можна використовувати як сировину в способах, в яких диметиловий ефір необхідний як вихідна речовина, така як сировина для реакції карбонілювання, в якій диметиловий ефір карбонілюють монооксидом вуглецю в присутності каталізатора карбонілювання, наприклад, цеолітного каталізатора карбонілювання, і не обов'язково водню, для одержання метилацетату або для іншої мети. Очевидно, доцільно розділити вилучений потік диметилового ефіру на два або більшу кількість потоків і кожен потік направити в окремий спосіб.

У способі спільного одержання, запропонованому в даному винаході, для одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру потрібен метанол як сировина. Зазвичай наявні в продажу джерела метанолу містять невеликі кількості метилформіату, що утворився як побічний продукт в способі синтезу метанолу. Однак метилформіат в присутності води легко гідролізується з утворенням мурашиної кислоти, яка є небажаною забруднюючою речовиною в утвореній оцтової кислоти. Внаслідок близькості їх температур кипіння мурашину кислоту (температура кипіння дорівнює 100,8°C) і оцтову кислоту (температура кипіння дорівнює 118°C) складно виділити з їх сумішей за допомогою звичайних методик фракційної дистиляції. Замість них для забезпечення необхідної чистоти одержуваної оцтової кислоти використовували більш складні екстрактивні методики дистиляції. Складні методики цього типу для відокремлення мурашиної кислоти від оцтової кислоти описані, наприклад, в US 4692219 і US 5227029.

Зазвичай потік неочищеного метилацетату, який містить метилацетат і диметиловий ефір, можна дистилювати разом з потоком метанолу, який містить метанол і метилформіат як забруднюючу речовину і не обов'язково який містить один або більшу кількість наступних: диметиловий ефір і вода, так щоб видалити з нього диметиловий ефір і метилформіат і одержати суміш очищеної метилацетатної і метанольної сировини, яка містить від >0 до 25 мол.% диметилового ефіру для використання в способі спільного одержання.

Більш сприятливо, що даний винахід дозволяє зменшити вміст метилформіату в потоці метанолу, що містить метилформіат, до його використання в способі спільного одержання і тим самим виключити необхідність в дорогому і складному обладнанні для очистки потоку спільно одержаного продукту реакції з відділенням від нього оцтової та мурашиної кислоти.

Метанольна сировина, завантажувана в дистиляційну колону, може мати вміст метилформіату, що дорівнює до приблизно 1000 мол.част./млн.

Зазвичай метанол, який виробляється промислово також містить деяку кількість диметилового ефіру і може містити, наприклад, до 60 мол.% диметилового ефіру.

У деяких або у всіх варіантах здійснення даного винаходу метанольна сировина, що містить метилформіат, наприклад, в кількостях, що дорівнюють 1000 мол.част./млн або менше, вводять в дистиляційну колону, метанол видаляють разом з метилацетатом у вигляді компоненту основного потоку з колони і метилформіат видаляють у вигляді компоненту бічного потоку з колони.

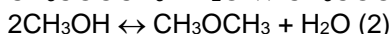
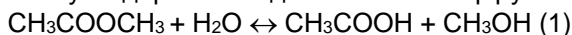
Дистиляція суміші неочищеного метилацетату, метанолу і диметилового ефіру в повній кількості, що дорівнює, наприклад, до 60 мол.% диметилового ефіру, ефективна для вилучення з продуктів дистиляції потоку, який містить метилацетат, метанол і диметиловий ефір, в

кількості, що дорівнює 25 мол.% або менше, наприклад, 15 мол.% або менше, наприклад, 10 мол.% або менше, краще 5 мол.% або менше.

Для сумішей і) неочищеного метилацетату, який містить забруднюючі речовини, такі як ацетальдегід і ацетон, в кількості, що дорівнює до 1 мол.%, та ii) метанолу, який містить метилформіат в кількості, що дорівнює, наприклад, до 1000 мол.част./млн, необов'язково диметиловий ефір, наприклад, до 60 мол.% диметилового ефіру, дистиляція ефективна для вилучення з дистиляційної колони, основного потоку, який містить метилацетат, метанол і забруднюючі речовини, наприклад, один або більшу кількість наступних: ацетальдегід, ацетон і метилформіат, в повній кількості, що дорівнює менше 1 мол.%, наприклад, 0,25 мол.% або менше, або 200 част./млн або менше, краще 100 част./млн або менше, більш краще 50 част./млн або менше. Суміш, яку необхідно дистилювати, може додатково містити воду. Воду можна видаляти з продуктів дистиляції у вигляді компоненту основного потоку.

Зазвичай, сировина для способу спільного одержання може містити метилацетат в кількості, що дорівнює від 10 до 95 мол.%, диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від 0,1 до 25 мол.%, краще від 0,1 до 5 мол.%, метанол в кількості, що дорівнює від 0 до 50 мол.%, краще від 5 до 20 мол.%, і забруднюючі речовини, такі як один або більша кількість наступних: ацетальдегід, ацетон і метилформіат в повній кількості, що дорівнює від 0 до >1 мол.%, наприклад, від 0 до 200 част./млн. Сировина для способу спільного одержання може додатково містити воду.

У способі спільного одержання, запропонованому в даному винаході, сировина, що містить метанол, метилацетат і диметиловий ефір в кількості, що дорівнює 25 мол.% або менше в перерахунку на всю сировину, що вводиться в спосіб, вводять у взаємодію в присутності принаймні одного каталізатора для одержання продукту реакції, який містить оцтову кислоту і диметиловий ефір. Гідроліз метилацетату з одержанням оцтової кислоти і дегідратацію метанолу з одержанням диметилового ефіру можна описати рівняннями (1) і (2):



На додаток до будь-якого метилацетату, що подається, наприклад, у вигляді потоку з продуктів дистиляції, дуже бажано подавати в спосіб спільного одержання один або більші кількості додаткових типів метилацетатної сировини за умови, що повну кількість диметилового ефіру, що подається в спосіб спільного одержання, дорівнює 25 мол.% або менше.

В переважному варіанті здійснення даного винаходу метилацетат для способу спільного одержання одержують (за винятком будь-яких рециклових потоків метилацетату, які вводяться в спосіб) тільки за допомогою потоку неочищеного метилацетату, вилученого з продуктів реакції карбонілювання диметилового ефіру і обробленого для зменшення вмісту диметилового ефіру, який знаходиться в ньому, так щоб одержати для способу спільного одержання метилацетатну сировину, що містить диметиловий ефір в кількості, що дорівнює 25 мол.% або менше.

Метанольна сировина для використання в способі спільного одержання може являти собою метанол, що поставляється з інших джерел, наприклад, з промислових установок по одержанню метанолу або з резервуарів-сховищ. Альтернативно і / або додатково, метанол для використання в даному винаході може являти собою утворений *in situ*, наприклад, як частину об'єднаного способу разом з одним або більшою кількістю способів карбонілювання диметилового ефіру для одержання метилацетату і способів спільного одержання для одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру з метилацетату і метанолу.

Метилацетат і метанол можна ввести у вигляді окремих загрузок в спосіб спільного одержання.

У кращому варіанті здійснення метанол подають в спосіб спільного одержання у вигляді суміші з метилацетатом, наприклад, у вигляді суміші, вилученої з продуктів дистиляції потоку неочищеного метилацетату разом з потоком метанолу, який містить метанол; основного потоку з продуктів дистиляції, який містить метанол, метилацетат і зменшену кількість диметилового ефіру.

Один або більшу кількість каталізаторів можна використовувати в способі спільного одержання для каталізу реакції дегідратації і гідролізу. Можна використовувати будь-який відповідний каталізатор або каталізатори за умови, що він / вони ефективні для каталізу гідролізу метилацетату з утворенням оцтової кислоти і також ефективні для каталізу дегідратації метанолу з утворенням диметилового ефіру. Можна використовувати один або більшу кількість каталізаторів, які ефективні для каталізу реакцій і гідролізу, і дегідратації. Альтернативно, один або більшу кількість каталізаторів, ефективних для каталізу гідролізу, можна використовувати додатково або у вигляді суміші з одним або більшою кількістю каталізаторів для реакції дегідратації. Якщо бажано використовувати два або більшу кількість

різних каталізаторів, такі каталізatori можна використовувати в формі таких шарів каталізаторів, що чергуються, або у вигляді одного або більшої кількості ретельно змішаних шарів каталізаторів.

Краще, якщо для реакції дегідратації-гідролізу використовують один або більшу кількість твердих кислотних каталізаторів, таких як один або більшу кількість твердих каталізаторів - кислот Бренстеда. "Каталізатор - кислота Бренстеда" означає кислотний каталізатор, який має здатність віддавати кислий протон для полегшення перебігу хімічної реакції. Тверді кислотні каталізatori, які застосовуються для дегідратації метанолу, включають оксиди алюмінію, такі як гамма-оксид алюмінію і фторований оксид алюмінію, кислі діоксиди цирконію, фосфат алюмінію, оксиди вольфраму на підкладці з алюмосилікату і тверді каталізatori - кислоти Бренстеда, такі як гетерополікислоти і їх солі і алюмосилікатні цеоліти.

Термін "гетерополікислота" при використанні в даному винаході і в даному описі включає вільні кислоти. Гетерополікислоти при використанні в даному винаході можна застосовувати у вигляді вільних кислот або у вигляді неповних солей. Зазвичай гетерополікислота або відповідні її солі містять від 2 до 18 зв'язаних з киснем багатовалентних атомів металів, які називаються периферійними атомами. Ці периферійні атоми симетрично оточують один або більшу кількість центральних атомів. Периферійними атомами зазвичай є один або більша кількість наступних: молібден, вольфрам, ванадій, ніобій, тантал та інші метали. Центральними атомами зазвичай є кремній або фосфор, але вони можуть включати найрізноманітніші атоми груп I-VIII Періодичної системи елементів. Вони включають, наприклад, іони міді; двовалентні іони берилію, цинку, кобальту або нікелю; трьохвалентні іони бору, алюмінію, галію, заліза, церію, миш'яку, сурми, фосфору, вісмуту, хрому або родію; чотирьохвалентні іони кремнію, германію, олова, титану, цирконію, ванадію, сірки, телуру, марганцю, нікелю, платини, торію, гафнію, церію і інші рідкоземельні іони; п'ятивалентні іони фосфору, миш'яку, ванадію, сурми; шестивалентні іони телуру; і семивалентні іони йоду. Такі гетерополікислоти також відомі, як "поліоксоаніони", "поліоксометалати" або "кластери оксидів металів". Структури деяких добре відомих аніонів названі первинними дослідниками в цій галузі і відомі, наприклад, як структури Кеггіна, Уелса-Давсона, Андерсона-Еванса-Перлова.

Гетерополікислоти зазвичай мають велику молекулярну масу, наприклад, яка знаходиться в діапазоні 700-8500, і включають димерні комплекси. Вони мають відносно високу розчинність в полярних розчинниках, таких як вода або інші кисневмісні розчинники, особливо якщо вони є вільними кислотами, і в випадку різних солей їх розчинність можна регулювати шляхом підбору відповідних протиіонів. Конкретні приклади гетерополікислот, які можна з успіхом використовувати в даному винаході, включають вільні кислоти, такі як кремневольфрамові кислоти, фосфорновольфрамові кислоти і 12-вольфрамовофосфорну кислоту ($H_3[PW_{12}O_{40}] \cdot xH_2O$); 12-молібденовофосфорну кислоту ($H_3[PMo_{12}O_{40}] \cdot xH_2O$); 12-вольфрамовокремнієву кислоту ($H_4[SiW_{12}O_{40}] \cdot xH_2O$); 12-молібденовокремнієву кислоту ($H_4[SiMo_{12}O_{40}] \cdot xH_2O$, і амонієві солі гетерополікислот, такі як амонієві солі фосфорновольфрамової кислоти або кремнійвольфрамової кислоти.

Цеоліти, для яких відомо, що вони ефективні для гідролізу метилацетату з одержанням оцтової кислоти, включають цеоліт Y, цеоліт A, цеоліт X і морденіт. При бажанні ці цеоліти можна з успіхом використовувати як каталізатор в реакції дегідратації-гідролізу, запропонованої в даному винаході.

Цеолітні каталізatori, особливо придатні для використання в способі спільного одержання для каталізу реакції дегідратації і гідролізу, включають цеоліти, які містять 2-мірну або 3-мірну систему каналів, і принаймні один канал якої містить 10-членне кільце. Конкретні необмежуючі приклади таких цеолітів включають цеоліти каркасного типу FER (прикладами яких є фер'єрит і ZSM-35), MFI (прикладом яких є ZSM-5), MFS (прикладом яких є ZSM-57), HEU (наприклад, кліноптилоліт) і NES (прикладом яких є NU-87).

Трилітерні коди, такі як 'FER' означають типи каркасної структури цеолітів, які використовуються в номенклатурі, запропонованій Міжнародною цеолітною асоціацією. Інформація про коди структур і цеоліти приведена в публікації Atlas of Zeolite Framework Types, C.H. Baerlocher, L.B. McCusker and D.H. Olson, 6th Revised Edition, Elsevier, Amsterdam, 2007 і також приведена в інтернеті на сайті Міжнародної цеолітної асоціації www.iza-online.org.

Цеолітні каталізatori можна використовувати в підданій іонному обміну формі. Підданій іонному обміну форми цеолітів можна одержати за такими методиками, як іонний обмін і просочування. Ці методики добре відомі в даній галузі техніки і зазвичай включають обмін катіонів водню або амонію в цеоліті на катіони металів. Наприклад, в даному винаході цеоліт може знаходитися в формі, підданій обміну з одним або більшою кількістю катіонів лужних металів, наприклад, натрію, літію, калію і цезію. Придатні підданій іонному обміну цеоліти

включають фер'єрит і ZSM-35, піддані обміну з одним або більшою кількістю катіонів натрію, літію, калію і цезію.

Цеоліт можна використовувати в формі композиту з будь-яким підходящим матеріалом зв'язуючого. Приклади придатних матеріалів зв'язуючого включають неорганічні оксиди, такі як діоксиди кремнію, оксиди алюмінію, алюмосилікати, силікати магнію, алюмосилікати магнію, діоксиди титану і діоксиди цирконію. Кращі матеріали зв'язуючого включають оксиди алюмінію, алюмосилікати і діоксиди кремнію. Краще, якщо матеріал зв'язуючого може міститися в композиті в кількості, що дорівнює від 10 до 90 мас.% в перерахунку на повну масу цеоліту і матеріалу зв'язуючого.

Відношення кількості молей метанолу до кількості молей метилацетату для використання в способі спільного одержання може бути будь-яким, але краще, якщо молярне відношення метанол: метилацетат знаходиться в діапазоні від 1: 0,1 до 1:20, наприклад, від 1: 0,2 до 1: 10.

Для перетворення метилацетату за допомогою гідролізу з утворенням оцтової кислоти необхідне джерело води. Вода може утворитися *in situ* в результаті дегідратації метанольної сировини. Однак при бажанні додаткову воду можна ввести в спосіб, наприклад, як компонент метанольної сировини, метилацетатної сировини або змішаної метанольної і метилацетатної сировини. Краще, якщо воду подають в спосіб в кількості, що дорівнює приблизно від 0,1 до 50 мол.%, наприклад, приблизно від 5 до 30 мол.%, наприклад, приблизно від 20 до 30 мол.% в перерахунку на повну кількість метилацетату, води і метанольної сировини, що вводиться в спосіб.

Спосіб спільного одержання можна провести у вигляді гетерогенного парофазного способу або у вигляді рідиннофазного способу. Якщо бажано провести спосіб у вигляді парофазного способу, то краще випарити рідку сировину, наприклад, в пристрої попереднього нагрівання до взаємодії з каталізатором.

Спосіб спільного одержання можна провести при температурі в діапазоні від 100 до 350°C і при тиску, вибраному з групи, яка включає атмосферний і тиски, які перевищують атмосферний.

В одному або більшій кількості варіантів здійснення спосіб спільного одержання проводять у вигляді парофазного способу при температурі, яка дорівнює приблизно від 150°C до 350°C, і при тиску від атмосферного до такого, який дорівнює 30 бар надлишкового тиску (від атмосферного до такого, який дорівнює 3000 кПа), наприклад, від 5 до 20 бар надлишкового тиску (від 500 кПа до 2000 кПа). Краще, якщо в таких випадках реакцію дегідратації-гідролізу проводять при годинній об'ємній швидкості газу-реагенту (ГОШГ), яка знаходиться в діапазоні від 500 до 40000 год⁻¹.

В одному або більших кількостях варіантів здійснення даного винаходу спосіб спільного одержання проводять у вигляді рідиннофазного способу, що проводиться при температурі, яка дорівнює від приблизно 140°C до приблизно 210 °C, і при тиску, якого досить для того, щоб утворений диметиловий ефір залишався в розчині, такі як тиски, що дорівнюють 40 бар надлишкового тиску (4000 кПа) або більш високі, наприклад, від 40 до 100 бар надлишкового тиску (від 4000 до 10000 кПа). Краще, якщо в таких випадках спосіб спільного одержання проводять при годинній об'ємній швидкості рідини (ГОШР), яка знаходиться в діапазоні від 0,2 до 20 год⁻¹.

Спосіб спільного одержання можна провести з використанням будь-якої підходящої технології і апаратури, наприклад, за допомогою реакційної дистиляції. Методики і апарати реакційної дистиляції добре відомі. Завантажувану суміш, яка містить метанол і метилацетат можна ввести в звичайну реакційну дистиляційну колону, яка працює, наприклад, при тиску в діапазоні від атмосферного до такого, що дорівнює 20 бар надлишкового тиску (від атмосферного до такого, що дорівнює 2000 кПа), і температурі реакції, яка дорівнює приблизно від 100°C до 250°C, для одержання неочищеного продукту реакції, який представляє собою суміш оцтової кислоти і диметилового ефіру, і ця суміш за своєю природою розділяється в реакційній дистиляційній колоні з вилученням потоку продукту, збагаченого диметиловим ефіром, який зазвичай вилучається як головний потік з колони, і потоку продукту, збагаченого оцтовою кислотою, який зазвичай вилучають як основний потік з колони.

Альтернативно, спосіб спільного одержання можна провести в реакторі з нерухомим шаром або в суспензійному реакторі. Диметиловий ефір має низьку температуру кипіння (-24°C) і оцтова кислота має високу температуру кипіння (118°C). Таким чином, оцтову кислоту і диметиловий ефір можна вилучити з неочищеного продукту реакції за допомогою звичайних методик очистки, наприклад, за допомогою дистиляції в одній або більшій кількості звичайних дистиляційних колон. Придатні дистиляційні колони включають тарілчасті або насадочні колони. Температури і тиски, які використовуються в колонах, можуть змінюватися. Краще, якщо дистиляційна колона може працювати при тиску, наприклад, від атмосферного до такого, що

дорівнює 20 бар надлишкового тиску (від 0 до 2000 кПа). Зазвичай потік, збагачений диметиловим ефіром, вилучають у вигляді головного потоку з дистиляційної колони і потік, збагачений оцтовою кислотою, вилучають як основний потік з колони.

У деяких або у всіх варіантах здійснення даного винаходу спосіб додатково включає вилучення одного або обох диметилового ефіру і оцтової кислоти з неочищеного продукту реакції, який містить оцтову кислоту і диметиловий ефір.

Гідроліз метилацетату і дегідратація метанолу є рівноважними реакціями і тому неочищений продукт реакції зазвичай також містить один або більшу кількість наступних: метанол, який не прореагував і метилацетат, який не прореагував, і він також може містити воду. Отже, один або обидва потоки оцтової кислоти і диметилового ефіру, вилучені з неочищеного продукту реакції, також можуть містити один або більшу кількість додаткових компонентів, вибраних з групи, яка включає метанол, метилацетат і воду. Метанол, метилацетат і воду можна видаляти з вилучених потоків оцтової кислоти і диметилового ефіру, наприклад, за допомогою звичайних методик очистки, наприклад, за допомогою фракційної дистиляції в одній або більшій кількості дистиляційних колон.

Краще, якщо один або більшу кількість потоків, які містять компоненти, вилучені з неочищеного продукту реакції, які містять оцтову кислоту і диметиловий ефір (рециклові потоки), наприклад, один або більшу кількість наступних: метанол, метилацетат і вода, повертають в спосіб спільного одержання.

Диметиловий ефір, вилучений з неочищеного продукту реакції, який містить оцтову кислоту і диметиловий ефір, можна продати або використати як паливо або використати як сировину в способах карбонілювання диметилового ефіру з одержанням метилацетату або в інших хімічних реакціях.

Оцтову кислоту, вилучену з неочищеного продукту реакції, можна продати або можна використати як сировину в різних хімічних технологіях, таких як одержання вінілацетату або етилацетату.

Спосіб спільного одержання можна провести у вигляді безперервного способу або у вигляді періодичного способу, краще провести у вигляді безперервного способу.

Нижче даний винахід ілюструється за допомогою наступних необмежуваних прикладів.

Приклад 1

Цей приклад ілюструє спосіб очистки неочищеної метилацетатної сировини, що містить диметиловий ефір, призначеної для використання в спільному одержанні оцтової кислоти і диметилового ефіру відповідно до даного винаходу. Дається посилання на фіг. 1 і таблицю 1. Фіг. 1 схематично ілюструє дистиляційну колону (110) для реалізації варіантів здійснення способу, запропонованого в даному винаході. Потік сировини (26), який містить в основному метилацетат і має вміст диметилового ефіру, що дорівнює 17,8 мол.%, вводять в дистиляційну колону (110). Дистиляційна колона (110) має 20 теоретичних ступенів з положенням загрузки на ступені 10 (при відліку від верху колони) і працює при тиску, що дорівнює 11,7 бар надлишкового тиску, температури верху, яка дорівнює 45°C, і температурі низу, яка дорівнює 154°C, при флегмовому числі, що дорівнює 2,2, і відношенні кількості пари до кількості сировини, що дорівнює 0,69. Потік, який скидається (30), в основному містить оксиди вуглецю і водень, відбирають з колони (110). Головний потік (28), який містить в основному диметиловий ефір, видаляють з колони (110). Потік (29), який містить в основному метилацетат і 0,5 мол.% диметилового ефіру, видаляють як основний потік з колони (110) і перекачують насосом високого тиску (111) у вигляді потоку (27) в апарат для проведення реакції дегідратації-гідролізу (112), такий як реактор з нерухомим шаром, який містить твердий кислотний каталізатор, такий як цеолітний каталізатор, і працює при підвищеному тиску і температурі, яка дорівнює від 100 до 350°C, і в ньому його вводять у взаємодію з метанольною сировиною (32) і одержують неочищений продукт реакції, який містить оцтову кислоту і диметиловий ефір.

З використанням методики і апарату типу, представленого на фіг. 1, проводили моделювання з використанням програмного забезпечення ASPEN version 7.3. Склади потоків (в кмоль/год і мол.%), які використовуються в цьому прикладі, наведені нижче в таблиці 1. У таблиці використані наступні аббревіатури:

CO - монооксид вуглецю
CO₂ - діоксид вуглецю
H₂ - водень
MeOH - метанол
AcOH - оцтова кислота
H₂O - вода
DME - диметиловий ефір

MeOAc - метилацетат.

Таблиця 1

Потік (молей потоку/мол.%)	26		28		29		30		31		32	
CO	2,0	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0	1,9	3,2	0,0	0,0	0,0	0,0
CO ₂	6,0	0,2	3,5	0,9	0,0	0,0	2,5	4,4	0,0	0,0	0,0	0,0
H ₂	7,0	0,3	0,4	0,1	0,0	0,0	6,6	11,5	0,0	0,0	0,0	0,0
MeOH	38,0	1,6	0,6	0,2	37,4	1,9	0,0	0,0	290,4	7,0	2040,0	92,6
AcOH	47,0	2,0	0,0	0,0	47,0	2,4	0,0	0,0	226,7	5,4	0,0	0,0
H ₂ O	8,0	0,3	0,9	0,2	7,0	0,4	0,0	0,0	810,6	19,4	0,0	0,0
ДМЕ	429,0	17,8	372,9	98,0	9,8	0,5	46,3	80,7	1156,2	27,7	163,0	7,4
MeOAc	1868,0	77,7	2,1	0,5	1865,9	94,9	0,0	0,0	1686,2	40,4	0,0	0,0

Приклад 2

5 Цей приклад ілюструє спосіб очистки неочищеної метилацетатної сировини, що містить диметилловий ефір, вилученого з продуктів реакції карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності каталізатора і водню, призначеного для використання в спільному одержанні оцтової кислоти і диметилового ефіру відповідно до даного винаходу. Дається посилання на фіг. 2 і таблицю 2.

10 Фіг. 2 схематично ілюструє об'єднаний апарат (210) для реалізації варіантів здійснення даного винаходу. Потік сировини (33), який містить диметилловий ефір, монооксид вуглецю і водень, загрузають в апарат для проведення реакції карбонілювання (211), такий як реактор з нерухомим шаром, що працює при тиску, що дорівнює, наприклад, від 50 до 100 бар надлишкового тиску, і при температурі, яка дорівнює, наприклад, приблизно від 250 до 350°C, і

15 в ньому вводять у взаємодію з цеолітним каталізатором карбонілювання і одержують неочищений продукт реакції карбонілювання, що відбирається з апарату для проведення реакції (211) у вигляді потоку (35). Потік (35) направляють в апарат для розділення газу і рідини (212), в якому його розділяють на газоподібний потік (36) і рідкий потік (26), який містить в основному метилацетат і має вміст диметилового ефіру, що дорівнює 25,2 мол.%. Потік сировини (26) вводять в дистиляційну колону (213). Дистиляційна колона (213) має 20

20 теоретичних ступенів з положенням загрузки на ступені 10 (при відліку від верху колони) і працює при тиску, що дорівнює 11,7 бар надлишкового тиску, температури верху, яка дорівнює 40°C, і температурі низу, яка дорівнює 154°C, при флегмовому числі, що дорівнює 0,58, і відношенні кількості пари до кількості сировини, що дорівнює 1,2. Потік, який скидається (30), в основному який містить оксиди вуглецю і водень, відбирають з колони (213). Головний потік (28), який містить в основному метилацетат і 0,5 мол.% диметилового ефіру, видаляють як основний потік з колони (213) і перекачують насосом високого тиску (214) у вигляді потоку (27) в апарат для проведення реакції дегідратації-гідролізу (215), такий як реактор з нерухомим шаром, що

30 працює при підвищеному тиску і температурі, яка дорівнює, наприклад, від 100 до 350°C, і разом з метанольною сировиною (32) в ньому вводять у взаємодію з твердим кислотним каталізатором, таким як цеолітний каталізатор і одержують неочищений продукт реакції, який містить оцтову кислоту і диметилловий ефір.

35 З використанням методики і апарату типу, представленого на фіг. 2, проводили моделювання з використанням програмного забезпечення ASPEN version 7.3. Склади потоків (в кмоль/год і мол.%), які використовуються в цьому прикладі, наведені нижче в таблиці 2. Аббревіатури, використані в таблиці 2, мають значення, використані вище в таблиці 1, з додаванням рядка CH₄ – метан.

Таблиця 2

Потік (молей потоку/мол.%)	33		35		36		26		28	
CO	7200,0	16,9	4850,0	12,1	4825,9	13,0	24,1	0,8	0,1	0,0
CO ₂	1600,0	3,8	1600,0	4,0	1479,9	4,0	120,1	4,0	8,1	3,4
CH ₄	0,0	0,0	94,0	0,2	92,9	0,2	1,1	0,0	0,0	0,0
H ₂	29000,0	68,2	28906,0	72,0	28835,6	77,6	70,4	2,4	0,2	0,1
MeOH	0,0	0,0	31,1	0,1	4,7	0,0	26,4	0,9	0,1	0,0
AcOH	0,0	0,0	31,1	0,1	0,4	0,0	30,6	1,0	0,0	0,0
H ₂ O	0,0	0,0	15,9	0,0	4,3	0,0	11,6	0,4	0,2	0,1
ДМЕ	4700,0	11,1	2303,0	5,7	1555,7	4,2	747,3	25,2	226,4	96,3
MeOAc	0,0	0,0	2318,9	5,8	382,8	1,0	1936,1	65,2	0,1	0,0

Продовження Таблиця 2,

Потік (молей потоку/мол.%)	29		30		31		32	
CO	0,0	0,0	24,0	3,3	0,0	0,0	0,0	0,0
CO ₂	0,0	0,0	112,0	15,6	0,0	0,0	0,0	0,0
CH ₄	0,0	0,0	1,1	0,2	0,0	0,0	0,0	0,0
H ₂	0,0	0,0	70,2	9,8	0,0	0,0	0,0	0,0
MeOH	26,3	1,3	0,0	0,0	289,2	6,9	2040,0	92,6
AcOH	30,6	1,5	0,0	0,0	230,6	5,5	0,0	0,0
H ₂ O	11,3	0,6	0,1	0,0	799,9	19,0	0,0	0,0
DME	10,1	0,5	510,8	71,1	1161,6	27,5	163,0	7,4
MeOAc	1936,0	96,1	0,0	0,0	1736,1	41,2	0,0	0,0

5 Приклад 3

Цей приклад ілюструє спосіб очистки неочищеної метилацетатної сировини, яка містить диметиловий ефір, вилученого з продуктів реакції карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності каталізатора і водню разом з метанольною сировиною, яка містить диметиловий ефір, призначеного для використання в спільному одержанні оцтової

10 кислоти і диметилового ефіру відповідно до даного винаходу. Дається посилання на фіг. 3 і таблицю 3.

Фіг. 3 схематично ілюструє об'єднаний апарат (310) для реалізації варіантів здійснення способу, запропонованого в даному винаході. Потік сировини (33), який містить диметиловий ефір, монооксид вуглецю і водень, загрузають в апарат для проведення реакції

15 карбонілювання (311), такий як реактор з нерухомим шаром, що працює при тиску, що дорівнює, наприклад, від 50 до 100 бар надлишкового тиску і при температурі, яка дорівнює, наприклад, приблизно від 250 до 350°C, і в ньому вводять у взаємодію з цеолітним каталізатором карбонілювання і одержують неочищений продукт реакції карбонілювання, що відбирається з апарату для проведення реакції (311) у вигляді потоку (35). Потік (35) направляють в апарат для

20 розділення газу і рідини (312), в якому його розділяють на газоподібний потік (36) і рідкий потік (26), який містить в основному метилацетат і має вміст диметилового ефіру, що дорівнює 25,2 мол.%. Дистиляційна колона (313) має 20 теоретичних ступенів з положенням загрузки на ступені 10 (при відліку від верху колони) і працює при тиску, що дорівнює 11,7 бар надлишкового тиску, температури верху, яка дорівнює 40°C, і температурі низу, яка дорівнює

25 143°C, при флегмовому числі, що дорівнює 2,6, і відношенні кількості пари до кількості сировини, що дорівнює 1,2. Потік сировини (26), який містить в основному метилацетат, вводять в дистиляційну колону (313) разом з потоком сировини (32), що містить в основному метанол і невелику кількість диметилового ефіру, на ступень загрузки 10 дистиляційної колони (313). Потік, який скидається (30), в основному який містить оксиди вуглецю і водень, відбирають з

30 колони (313). Головний потік (28), який містить в основному диметиловий ефір, видаляють з колони (313). Потік (29), який містить в основному метилацетат і метанол, і 0,5 мол.% диметилового ефіру, видаляють як основний потік з колони (313) і перекачують насосом високого тиску (314) у вигляді потоку (27) в апарат для проведення реакції дегідратації-гідролізу (315), реактор з нерухомим шаром, який працює при підвищеному тиску і температурі, яка

35 дорівнює, наприклад, від 100 до 350°C, і в ньому вводять у взаємодію з твердим кислотним каталізатором, таким як цеолітний каталізатор, і одержують неочищений продукт реакції, який містить оцтову кислоту і диметиловий ефір.

З використанням методики і апарату типу, представленого на фіг. 3, проводили моделювання з використанням програмного забезпечення ASPEN version 7.3. Склади потоків (в кмоль/год і мол.%), які використовуються в цьому прикладі, наведені нижче в таблиці 3. Аббревіатури, використані в таблиці 3, мають такі ж значення, як використані вище в таблицях 1 і 2.

40

Таблиця 3

Потік (молей потоку/мол.%)	33		35		36		26		28	
CO	7200,0	16,9	4850,0	12,1	4825,9	13,0	24,1	0,8	0,2	0,0
CO ₂	1600,0	3,8	1600,0	4,0	1479,9	4,0	120,1	4,0	13,6	3,4
CH ₄	0,0	0,0	94,0	0,2	92,9	0,2	1,1	0,0	0,0	0,0
H ₂	29000,0	68,2	28906,0	72,0	28835,6	77,6	70,4	2,4	0,3	0,1
MeOH	0,0	0,0	31,1	0,1	4,7	0,0	26,4	0,9	0,4	0,1
AcOH	0,0	0,0	31,1	0,1	0,4	0,0	30,6	1,0	0,0	0,0
H ₂ O	0,0	0,0	15,9	0,0	4,3	0,0	11,6	0,4	0,0	0,0
ДМЕ	4700,0	11,1	2303,0	5,7	1555,7	4,2	747,3	25,2	391,4	96,4
MeOAc	0,0	0,0	2318,9	5,8	382,8	1,0	1936,1	65,2	0,0	0,0

Продовження Таблиця 3,

Потік (молей потоку/мол.%)	29		30		31		32	
CO	0,0	0,0	24,0	3,4	0,0	0,0	0,0	0,0
CO ₂	0,0	0,0	106,5	15,2	0,0	0,0	0,0	0,0
CH ₄	0,0	0,0	1,1	0,2	0,0	0,0	0,0	0,0
H ₂	0,0	0,0	70,1	10,0	0,0	0,0	0,0	0,0
MeOH	2065,8	50,8	0,2	0,0	271,9	6,7	2040,0	92,6
AcOH	30,6	0,8	0,0	0,0	245,9	6,1	0,0	0,0
H ₂ O	11,6	0,3	0,0	0,0	800,9	19,7	0,0	0,0
ДМЕ	20,3	0,5	498,5	71,2	1024,9	25,2	163,0	7,4
MeOAc	1936,1	47,6	0,0	0,0	1720,8	42,3	0,0	0,0

5 Приклад 4

Цей приклад ілюструє спосіб очистки неочищеної метилацетатної сировини, що містить диметиловий ефір і забруднюючі речовини ацетальдегід/ацетон, вилученого з продуктів реакції карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності каталізатора і водню разом з метанольною сировиною, що містить забруднюючі речовини диметиловий ефір і метилформіат, призначеного для використання в спільному одержанні оцтової кислоти і диметилового ефіру відповідно до даного винаходу. Дається посилання на фіг. 4 і таблицю 4.

Фіг. 4 схематично ілюструє об'єднаний апарат (410) для реалізації варіантів здійснення способу, запропонованого в даному винаході. Потік сировини (33), який містить диметиловий ефір, монооксид вуглецю і водень, загрузають в апарат для проведення реакції карбонілювання (411), такий як реактор з нерухомим шаром, який працює при тиску, що дорівнює, наприклад, від 50 до 100 бар надлишкового тиску, і при температурі, яка дорівнює, наприклад, приблизно від 250 до 350°C, і в ньому його вводять у взаємодію з цеолітним каталізатором карбонілювання і одержують неочищений продукт реакції карбонілювання, який містить забруднюючі речовини, що відбирається з апарату для проведення реакції (411) у вигляді потоку (35). Потік (35) направляють в апарат для розділення газу і рідини (412), в якому його розділяють на газоподібний потік (36) і рідкий потік (26), який містить в основному метилацетат, має вміст диметилового ефіру, що дорівнює 25,4 мол.%, і що дорівнює менше 1 мол.% повний вміст ацетальдегіду і ацетону. Дистиляційна колона (413) має 30 теоретичних ступенів з положеннями загрузки на ступенях 10 і 21 і бічний потік відбирають на ступені 6 (при відліку від верху колони), і вона працює при тиску, що дорівнює 11,7 бар надлишкового тиску, температури верху, яка дорівнює 40°C, і температурі низу, яка дорівнює 144°C, при флегмовому числі, що дорівнює 8,8, і відношенні кількості пари до кількості сировини, що дорівнює 2,4. Потік сировини (26), який містить в основному метилацетат, вводять в дистиляційну колону (413) на ступінь загрузки 21 дистиляційної колони (313). Потік сировини (32), який містить в основному метанол, невелику кількість диметилового ефіру і менше 0,1 мол.% метилформіату, вводять в колону (413) на ступені 10. Потік, який скидається (30), який в основному містить оксиди вуглецю і водень, відбирають з колони (413). Головний потік (28), який містить в основному диметиловий ефір, видаляють з колони (413). Більшу частину забруднюючих речовин

ацетальдегід/ацетон/метилформіат відбирають з колони (413) у вигляді компонентів бічного потоку (38). Потік (29), який містить в основному метилацетат і метанол, 0,1 мол.% диметилового ефіру зменшену кількість забруднюючих речовин ацетальдегіду/метилформіат/ацетон, видаляють як основний потік з колони (413) і перекачують насосом високого тиску (414) у вигляді потоку (27) в апарат для проведення реакції дегідратації-гідролізу (415), такий як реактор з нерухомим шаром, який працює при підвищеному тиску і температурі, яка дорівнює, наприклад, від 100 до 350°C, і в ньому вводять у взаємодію з твердим кислотним каталізатором, таким як цеолітний каталізатор, і одержують неочищений продукт реакції, який містить оцтову кислоту і диметиловий ефір.

З використанням методики і апарату типу, представленого на фіг. 4, проводили моделювання з використанням програмного забезпечення ASPEN version 7.3. Склади потоків (в кмоль/год і мол.%), які використовуються в цьому прикладі, наведені нижче в таблиці 4. Абревіатури, використані в таблиці 4, мають такі ж значення, як використані вище в таблицях 1 і 2, з додаванням рядків MeOFO - метилформіат; і AcH – ацетальдегід.

Таблиця 4

Потік (молей потоку/мол.%)	33		35		36		26		28	
CO	7200,0	16,9	4842,6	12,1	4818,3	13,0	24,3	0,8	0,2	0,0
CO ₂	1600,0	3,8	1607,4	4,0	1485,9	4,0	121,5	4,1	12,9	3,4
CH ₄	0,0	0,0	47,0	0,1	46,4	0,1	0,6	0,0	0,0	0,0
H ₂	29000,0	68,2	28939,4	72,1	28868,5	77,6	70,9	2,4	0,3	0,1
MeOH	0,0	0,0	29,4	0,1	5,2	0,0	24,2	0,8	0,4	0,1
AcOH	0,0	0,0	15,8	0,0	0,3	0,0	15,5	0,5	0,0	0,0
H ₂ O	0,0	0,0	7,7	0,0	2,5	0,0	5,2	0,2	0,0	0,0
ДМЕ	4700,0	11,1	2326,5	5,8	1572,9	4,2	753,6	25,4	366,6	96,3
MeOAc	0,0	0,0	2313,2	5,8	380,9	1,0	1932,3	65,2	0,001	0,0
Ацетон	0,0	0,0	7,4	0,018	1,4	0,004	6,1	0,204	0,0	0,0
MeOFO	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,044	0,011
AcH	0,0	0,0	13,6	0,034	5,2	0,014	8,4	0,282	0,418	0,110

Продовження Таблиця 4,

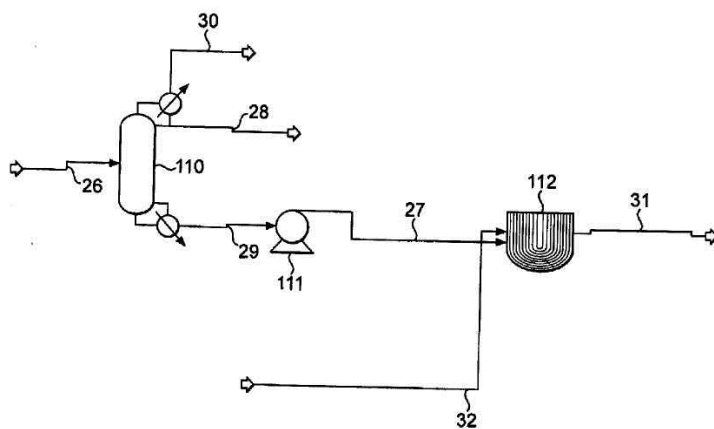
Потік (молей потоку/мол.%)	29		30		31		32		38	
CO	0,0	0,0	24,1	3,4	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
CO ₂	0,0	0,0	108,4	15,4	0,0	0,0	0,0	0,0	0,1	0,1
CH ₄	0,0	0,0	0,5	0,1	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
H ₂	0,0	0,0	70,6	10,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
MeOH	2028,0	50,9	0,2	0,0	263,7	6,6	2040,0	92,5	35,7	35,7
AcOH	15,5	0,4	0,0	0,0	241,5	6,1	0,0	0,0	0,0	0,0
H ₂ O	5,2	0,1	0,0	0,0	774,4	19,5	0,0	0,0	0,0	0,0
ДМЕ	2,0	0,1	501,5	71,1	997,1	25,0	163,0	7,4	46,6	46,6
MeOAc	1923,8	48,3	0,0	0,0	1697,9	42,6	0,0	0,0	8,5	8,5
Ацетон	6,1	0,2	0,0	0,0	6,1	0,2	0,0	0,0	0,001	0,001
MeOFO	0,009	0,0002	0,014	0,002	0,006	0,0001	2,0	0,091	1,93	1,93
AcH	0,543	0,014	0,163	0,023	0,543	0,014	0,0	0,0	7,23	7,23

ФОРМУЛА ВИНАХОДУ

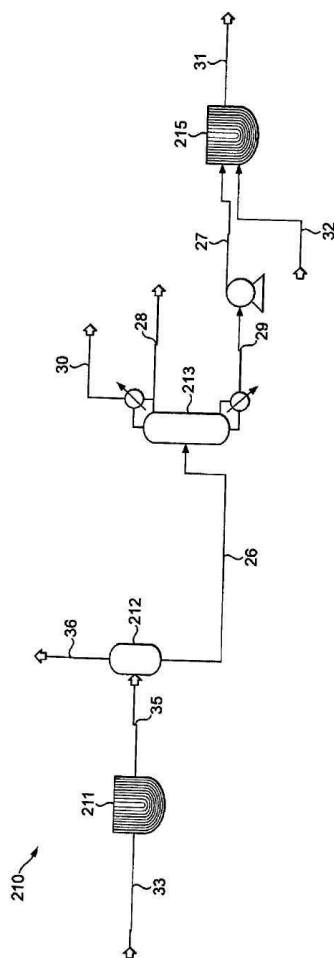
1. Спосіб спільного одержання оцтової кислоти і диметилового ефіру за допомогою дегідратації-гідролізу завантажуваної суміші метанолу і метилацетату в присутності принаймні одного каталізатора, що являє собою твердий кислотний каталізатор, з одержанням неочищеного

продукту реакції, що містить оцтову кислоту і диметиловий ефір, в якому сировина для зазначеного способу спільного одержання містить метанол, метилацетат і диметиловий ефір, де диметиловий ефір присутній в сировині в загальній кількості, що дорівнює від >0 до 25 мол. % в перерахунку на всю сировину.

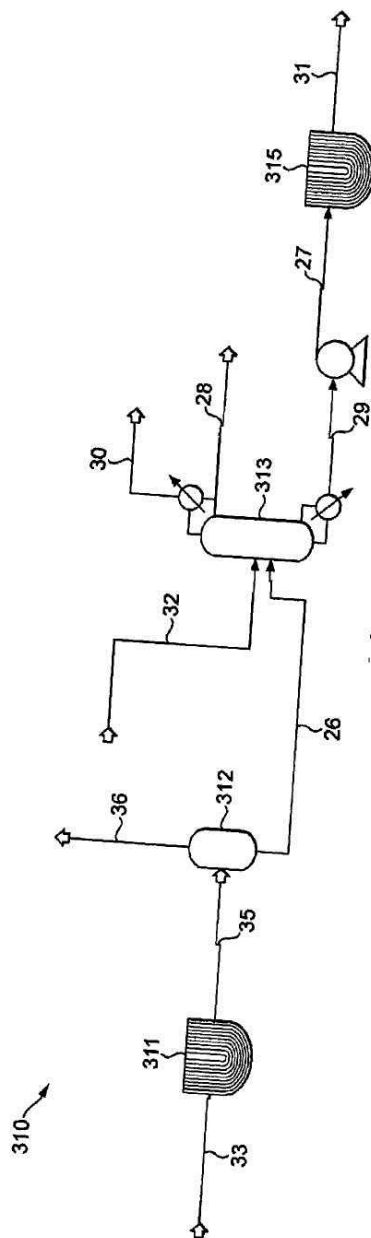
- 5 2. Спосіб за п. 1, в якому сировина для способу спільного одержання містить метилацетат в кількості, що дорівнює від 10 до 95 мол. %, диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від 0,1 до 25 мол. %, метанол в кількості, що дорівнює від 5 до 20 мол. %, і забруднюючі речовини в повній кількості, що дорівнює від 0 до менше 1 мол. %.
- 10 3. Спосіб за п. 2, в якому забруднюючі речовини вибрані з групи, яка включає один або більшу кількість з наступних: ацетальдегід, ацетон і метилформіат.
4. Спосіб за п. 2 або п. 3, в якому сировина містить диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від 0,1 до 5 мол. %.
5. Спосіб за п. 2 або п. 3, в якому сировина додатково містить воду.
- 15 6. Спосіб за п. 1, в якому метилацетатна сировина містить диметиловий ефір і одержана з потоку неочищеного метилацетату, одержаного в способах карбонілювання диметилового ефіру монооксидом вуглецю в присутності каталізатора карбонілювання для одержання потоку неочищеного метилацетату, що містить диметиловий ефір, де потік неочищеного метилацетату обробляють для зменшення вмісту диметилового ефіру, який знаходиться в ньому, з метою одержання метилацетатної сировини для способу спільного одержання, яка містить
- 20 диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від >0 до 25 мол. %.
7. Спосіб за п. 6, в якому оброблений неочищений метилацетат містить диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від >0 до 5 мол. %.
8. Спосіб за п. 6, в якому неочищений метилацетат містить диметиловий ефір в кількості, що дорівнює від 5 до 50 мол. %.
- 25 9. Спосіб за п. 8, в якому неочищений метилацетат додатково містить забруднюючі речовини в повній кількості, що дорівнює до 1 мол. %.
10. Спосіб за п. 6, в якому неочищений метилацетат обробляють для зменшення вмісту диметилового ефіру, який знаходиться в ньому, за допомогою дистиляції.
11. Спосіб за п. 10, в якому дистиляцію проводять при тиску, який дорівнює від 10 до 30 бар надлишкового тиску (від 1000 до 3000 кПа), і температурі верху, яка дорівнює від 40 до 90 °C.
- 30 12. Спосіб за п. 1, в якому твердий кислотний каталізатор являє собою цеолітний каталізатор.
13. Спосіб за п. 1, в якому спосіб спільного одержання проводять при температурі в діапазоні від 100 до 350 °C і при тиску, вибраному з групи, яка включає атмосферний і тиски, які перевищують атмосферний.
- 35 14. Спосіб за п. 1, який додатково включає вилучення диметилового ефіру з неочищеного продукту реакції, що містить оцтову кислоту і диметиловий ефір.
15. Спосіб за п. 14, в якому вилучений диметиловий ефір або його частину використовують як сировину для реакції карбонілювання, в якій диметиловий ефір карбонілюють монооксидом вуглецю в присутності каталізатора карбонілювання і одержують неочищений метилацетат.
- 40 16. Спосіб за п. 1, в якому оцтову кислоту вилучають з неочищеного продукту реакції, що містить оцтову кислоту і диметиловий ефір.
17. Спосіб за п. 1, де спосіб спільного одержання утворює частину об'єднаного способу, де об'єднаний спосіб включає карбонілювання диметилового ефіру газом, який містить монооксид вуглецю, в присутності цеолітного каталізатора карбонілювання, в якому ступінь перетворення
- 45 диметилового ефіру становить від 5 до 90 мол. % за один цикл в перерахунку на всю сировину для карбонілювання, з одержанням неочищеного продукту реакції карбонілювання, що містить метилацетат і диметиловий ефір, вилучення з неочищеного продукту реакції карбонілювання потоку неочищеного метилацетату, що містить метилацетат і диметиловий ефір, обробку потоку неочищеного метилацетату або його частини для вилучення потоку, що містить в основному
- 50 диметиловий ефір, і потоку, що містить метилацетат і зменшену кількість диметилового ефіру, і в якому потік або його частину, яка містить метилацетат і зменшену кількість диметилового ефіру, яка становить кількість, що дорівнює від >0 до 25 мол. % в перерахунку на всю сировину, що вводиться в спосіб, використовують як сировину для способу спільного одержання.
18. Спосіб за п. 1, де спосіб спільного одержання проводять у вигляді безперервного способу.
- 55 19. Спосіб за п. 18, в якому потік, що містить в основному диметиловий ефір або його частину, використовують як сировину для реакції карбонілювання.



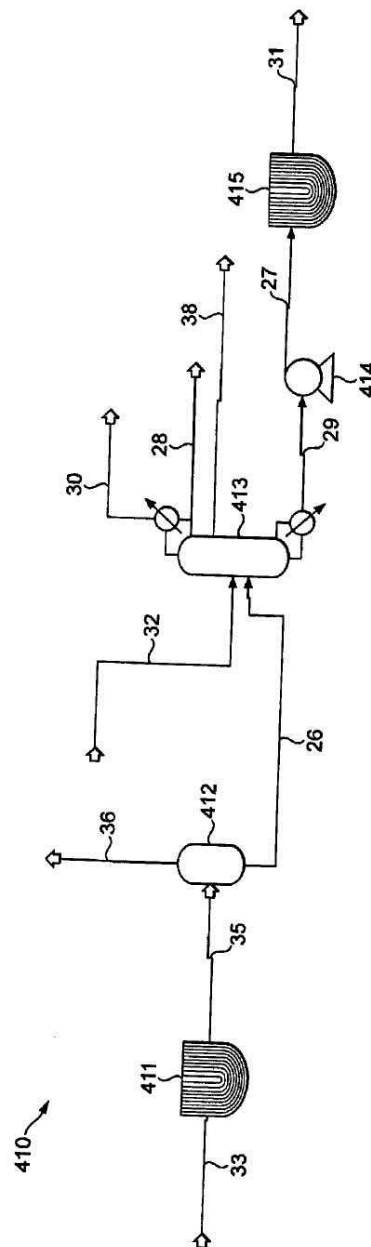
ФІГ. 1



ФІГ. 2



Фиг. 3



ФІГ. 4

Комп'ютерна верстка І. Скворцова

Міністерство розвитку економіки, торгівлі та сільського господарства України,
вул. М. Грушевського, 12/2, м. Київ, 01008, Україна

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