



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201233669 A1

(43)公開日：中華民國 101 (2012) 年 08 月 16 日

(21)申請案號：100146436

(22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 12 月 15 日

(51)Int. Cl. : C07C51/14 (2006.01)

C07C53/08 (2006.01)

(30)優先權：2010/12/16 美國

12/970,315

(71)申請人：瑟蘭斯國際股份有限公司 (美國) CELANESE INTERNATIONAL CORPORATION
(US)

美國

(72)發明人：依諾伯 雷蒙德 ZINOBI, RAYMOND (US) ; 萊金 麥克 LAKIN, MICHAEL
(US) ; 雷克伊 阿肖克 RAKHE, ASHOK (US) ; 雪佛 隆納德 SHAVER, RONALD
(US)

(74)代理人：陳哲宏；翁雅欣

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：8 項 圖式數：4 共 39 頁

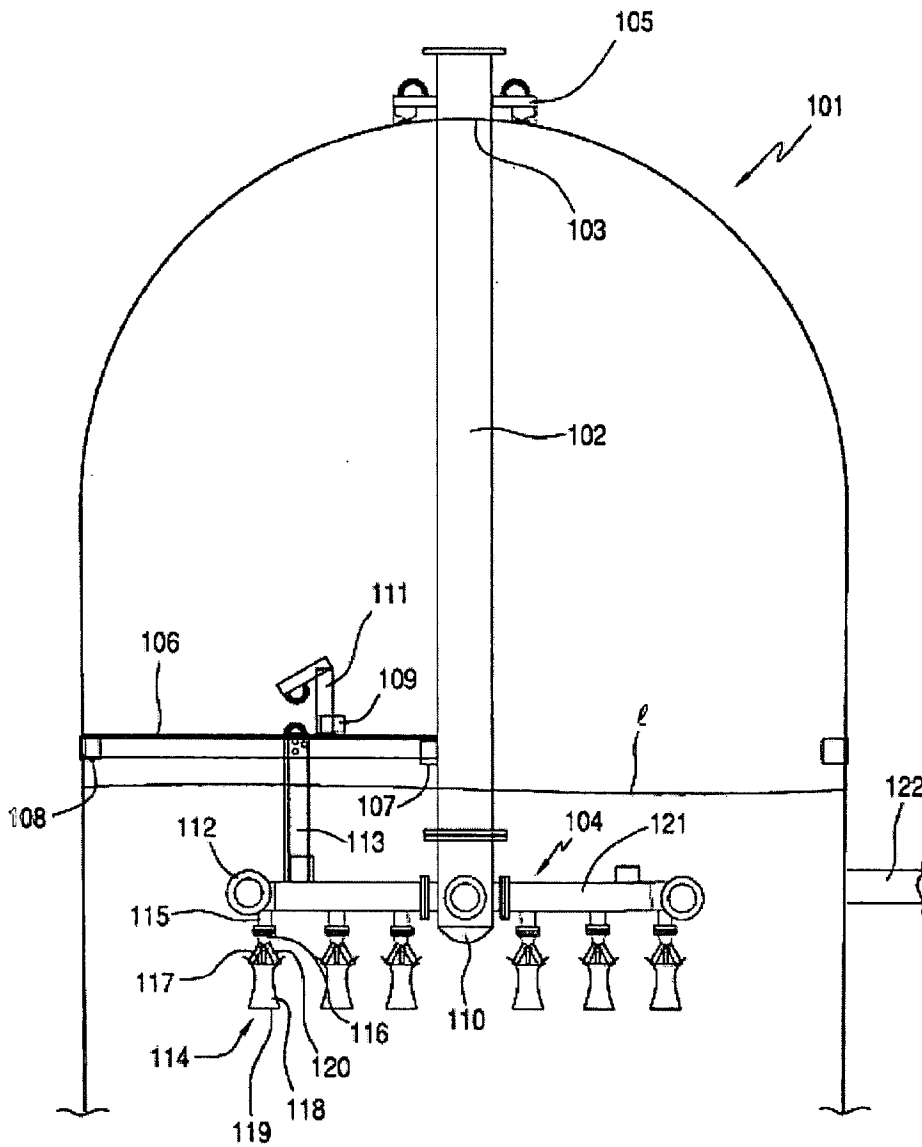
(54)名稱

用於生產醋酸之引入件為主的反應器及泵周轉的迴圈

EDUCTOR-BASED REACTOR AND PUMP AROUND LOOPS FOR PRODUCTION OF ACETIC
ACID

(57)摘要

運用引入件混合機來混合羧化反應器中的反應媒質。從反應器抽取出反應溶液之一部分，並將之引導經過泵周轉迴圈。泵周轉迴圈經由引入件混合機而饋回反應器。此外，泵周轉迴圈可以經過一個或多個蒸汽產生器及/或熱交換器。



- 101：反應器
- 102：供料管
- 103：開口
- 104：歧管
- 105：墊片
- 106：支承樑
- 107：支座
- 108：支座
- 109：支座
- 110：配送轆
- 111：升降臂
- 112：引入件導管
- 113：穩定樑
- 114：引入件混合機
- 115：桿
- 116：噴嘴
- 117：開口
- 118：散佈器
- 119：排放孔
- 121：配送導管
- 122：管道



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201233669 A1

(43)公開日：中華民國 101 (2012) 年 08 月 16 日

(21)申請案號：100146436

(22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 12 月 15 日

(51)Int. Cl. : C07C51/14 (2006.01)

C07C53/08 (2006.01)

(30)優先權：2010/12/16 美國

12/970,315

(71)申請人：瑟蘭斯國際股份有限公司 (美國) CELANESE INTERNATIONAL CORPORATION
(US)

美國

(72)發明人：依諾伯 雷蒙德 ZINOBI, RAYMOND (US) ; 萊金 麥克 LAKIN, MICHAEL
(US) ; 雷克伊 阿肖克 RAKHE, ASHOK (US) ; 雪佛 隆納德 SHAVER, RONALD
(US)

(74)代理人：陳哲宏；翁雅欣

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：8 項 圖式數：4 共 39 頁

(54)名稱

用於生產醋酸之引入件為主的反應器及泵周轉的迴圈

EDUCTOR-BASED REACTOR AND PUMP AROUND LOOPS FOR PRODUCTION OF ACETIC
ACID

(57)摘要

運用引入件混合機來混合羧化反應器中的反應媒質。從反應器抽取出反應溶液之一部分，並將之引導經過泵周轉迴圈。泵周轉迴圈經由引入件混合機而饋回反應器。此外，泵周轉迴圈可以經過一個或多個蒸汽產生器及/或熱交換器。

六、發明說明：

優先權主張

本申請案基於 2010 年 12 月 16 日所提出申請之美國專利申請案第 12/970,315 號主張優先權，此專利申請案之全部內容在此納入參考。

【發明所屬之技術領域】

發明領域

本發明關於一種用以製造醋酸的改良方法，且特別是關於醋酸生產系統的改良製程，包括運用引入件（eductor）為主的反應器和一個或多個泵周轉迴圈。

【先前技術】

發明背景

一種廣為使用且成功的商業用醋酸合成製程涉及運用一氧化碳使甲醇進行催化性羰化反應。這催化劑含有銦及/或鉍，以及一鹵素促進劑，通常是碘甲烷。這反應是藉由使一氧化碳持續地鼓泡通過一溶有觸媒的液體反應媒質來進行。該反應媒質亦包含醋酸甲酯、水、醋酸、碘甲烷和該觸媒。習知的商業用甲醇羰化製程包括美國專利第 3,769,329 號、第 5,001,259 號、第 5,026,908 號和第 5,144,068 號中所敘述者，這些專利案之全部內容及揭露在此納入參考。另一種習用甲醇羰化製程包括 Cativa™製程，其被討論於 Jones, J. H. (2002), "*The Cativa™ Process for the Manufacture of Acetic Acid*," Platinum Metals Review, 44 (3): 94-105 此件文獻中，其全部內容及揭露在此納入參考。

羰化反應器通常涉及葉輪驅動式混合系統。葉輪驅動式混合系統大致上併有至少一個設置在轉軸上的葉輪。這些系統可稱之為具有平行於轉軸之軸線的軸縱向流及/或平行於該軸上所設徑向延伸葉片的徑向流。葉輪因此而可為徑流式葉輪，其沿著徑向朝容置有該葉輪之儲槽或腔室的壁面噴射流體，或是該葉輪可替換性地另為軸流式葉輪，其包含數個徑向延伸的葉片，這些葉片傾斜呈某角度以朝軸向導

引流體。這些和其他需使用轉軸的機械式攪動混合法會消耗大量能源，且需要高成本的設備建置，包括在反應器密封系統中設置轉軸。這些反應器運用機械密封件，而這些機械密封件壽命有限且維修需求極高。

來自於羧化反應器的反應溶液含有未反應的起始材料以及反應媒質的成份，包括觸媒。美國專利第 5,672,744 號揭露一種用於製備醋酸的製程，其包含在羧化反應器內且在包含有鉑觸媒、碘甲烷、碘鹽、醋酸甲酯和水的反應流體之存在下，運用一氧化碳使甲醇羧化，同時持續地從反應器中抽取出反應流體並將之導入閃蒸區，以將之分離成為蒸發部分和未蒸發部分。

羧化反應具放熱性，且反應熱必須被調控以控制反應溫度。通常是將反應熱與反應溶液一起轉移到閃蒸塔。該閃蒸塔是在比反應器更低的溫度下運作，致使反應溶液的溫度下降。

反應熱亦可被回收。美國專利第 6,175,039 號揭露運用被泵周轉流所加熱的蒸汽鍋爐從高放熱製程中移去反應熱。亦可將來自於反應的熱轉移至其他系統。美國專利第 6,114,576 號揭露一種在固體觸媒顆粒之存在下製造羧酸的製程，其將反應的放熱高效率地應用於回收羧酸產品。這個製程運用間接熱交換將反應熱轉移至另一流，而不需要如蒸汽等其他熱交換流體。美國專利第 7,465,823 號揭露一種製程和系統，其中醋酸生產期間所產生的一部分熱被轉移至醋酸乙烯酯生產及/或純化製程和系統，以促進醋酸乙烯酯產品的製造及/或純化。

如熟習本項技術人士所知悉，仍存有誘因和需要來改良既有的醋酸生產製程。本發明對此提供了一些改良。

【發明內容】

本發明的實施方式為數種用以製備醋酸的改良方法。在一實施方式中是提供一種用以製造醋酸的製程，其包含下列步驟：使一氧化碳與至少一反應物在含有反應媒質之引入件為主的反應器中進行反應，以製造一包含醋酸的反應溶液，其中該至少一反應物選自於由甲醇、

醋酸甲酯、甲酸甲酯、甲醚 (dimethyl ether) 和其混合物所構成的群組中，且其中該反應媒質包含水、醋酸、醋酸甲酯、碘甲烷和觸媒，其中該引入件為主的反應器包含一個或多個引入件混合機；從該引入件為主的反應器中抽取出該反應溶液；將該反應溶液之一部分予以分離以形成一泵周轉流；以及將該泵周轉流 (pump around stream) 之一部分饋入該一個或多個引入件混合機中之至少一者，以混合該引入件為主的反應器中之反應媒質。

在本發明的一些實施方式中，該製程更包含：將該反應溶液的剩餘部分向前饋入至閃蒸塔，以製成粗製產品和觸媒再循環流，其中該泵周轉流在導入該閃蒸塔之前被分離。在較佳實施方式中，相較於朝向該閃蒸塔前進的該反應溶液之剩餘部分的流速，該泵周轉流的流速至少更高 1.2 倍。在其他實施方式中，該製程更包含：使該泵周轉流之一部分通過一個或多個蒸汽產生器，以製成排出製程流和蒸汽。在其他實施方式中，該製程更包含：將該排出製程流之一部分饋入該一個或多個引入件混合機中之至少一者，以混合該引入件為主的反應器中之反應媒質。在某些實施方式中，相較於從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液的溫度，該排出製程流具有更低的溫度。在本發明的其他實施方式中，該製程更包含下列步驟：使該泵周轉流之一部分通過一個或多個熱交換器以製成流出物，且在其他實施方式中包含下列步驟：將該流出物之一部分饋入該一個或多個引入件混合機中之至少一者，以混合該引入件為主的反應器中之反應媒質。在某些實施方式中，從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液中的 20% 至 100% 被分離而成為泵周轉流。在其他實施方式中，從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液中的至少 50% 被分離而成為泵周轉流。在本發明的一些實施方式中，該一個或多個引入件混合機各具有至少為 2:1 的排放推動比 (discharge to motive ratio)。

在另一實施方式中，本發明為一種用以製造醋酸的製程，其包含下列步驟：使一氧化碳與至少一反應物在含有反應媒質的反應器中進行反應，以製成包含醋酸的反應溶液，其中該至少一反應物是選自於

由甲醇、醋酸甲酯、甲酸甲酯、甲醚和其混合物所構成的群組中，且其中該反應媒質包含水、醋酸、醋酸甲酯、碘甲烷和觸媒；以第一流速從該反應器抽取出該反應溶液；將該反應溶液之一部分予以分離而形成泵周轉流；將朝向閃蒸塔前進的該反應溶液之剩餘部分予以分離，其中相較於朝向閃蒸塔前進的該反應溶液之剩餘部分的流速，該泵周轉流的流速至少高出 1.2 倍；使該泵周轉流之一部分通過一個或多個蒸汽產生器，以製成排出製程流和蒸汽；以及將該排出製程流之一部分饋入該反應器中。依據本發明的各種實施方式，該製程可以另包含一個或多個下列步驟：將該排出製程流之一部分饋入該一個或多個引入件混合機中之至少一者，以混合該引入件為主的反應器中之反應媒質；使該排出製程流之一部分通過一個或多個熱交換器，以製成流出物；以及將該反應溶液的剩餘部分導入該閃蒸塔，以製成粗製產品和觸媒再循環流，其中該泵周轉流在導入該閃蒸塔之前被分離。

本發明的進一步實施方式是針對一種用以製造醋酸的製程，其包含下列步驟：使一氧化碳與至少一反應物在含有反應媒質的反應器中進行反應，以製成包含醋酸的反應溶液，其中該至少一反應物是選自於由甲醇、醋酸甲酯、甲酸甲酯、甲醚和其混合物所構成的群組中，且其中該反應媒質包含水、醋酸、醋酸甲酯、碘甲烷和觸媒；以第一流速從該反應器抽取出該反應溶液；將該反應溶液之一部分予以分離而形成泵周轉流；將朝向閃蒸塔前進的該反應溶液之剩餘部分予以分離，其中相較於朝向閃蒸塔前進的該反應溶液之剩餘部分的流速，該泵周轉流的流速至少更高 1.2 倍；使該泵周轉流之一部分通過一個或多個熱交換器，以製成流出物；以及將該流出物之一部分饋入該反應器中。依據本發明的各種實施方式，該製程可以另包含一個或多個下列步驟：將該流出物之一部分饋入該一個或多個引入件混合機中之至少一者，以混合該引入件為主的反應器中之反應媒質；使該泵周轉流之一部分通過一個或多個蒸汽產生器，以製成排出製程流和蒸汽；以及將該反應溶液的剩餘部分導入該閃蒸塔中，以製成粗製產品和觸媒再循環流，其中該泵周轉流在導入該閃蒸塔之前被分離。

本發明的另一實施方式是針對一種用以製造醋酸的製程，其包含下列步驟：使一氧化碳與至少一反應物在含有反應媒質之引入件為主的反應器中進行反應，以製成包含醋酸的反應溶液，其中該至少一反應物是選自於由甲醇、醋酸甲酯、甲酸甲酯、甲醚和其混合物所構成的群組中，且其中該反應媒質包含水、醋酸、醋酸甲酯、碘甲烷和觸媒；其中該引入件為主的反應器包含一個或多個引入件混合機；以第一流速從該引入件為主的反應器抽取出該反應溶液；將該反應溶液之一部分予以分離而形成泵周轉流；任擇地使該泵周轉流之一部分通過一個或多個蒸汽產生器，以製成排出製程流和蒸汽；任擇地使該泵周轉流之一部分通過一個或多個熱交換器，以製成流出物；以及將該泵周轉流、該排出製程流和該流出物中之一或多者的一部分饋入該一個或多個引入件混合機中之至少一者，以混合該引入件為主的反應器中之反應媒質。

在本發明的一些實施方式中，該製程更包含將該反應溶液的剩餘部分向前饋入至閃蒸塔，以製成粗製產品和觸媒再循環流，其中該泵周轉流在導入該閃蒸塔之前被分離。在較佳實施方式中，相較於朝向該閃蒸塔前進的該反應溶液之剩餘部分的流速，該泵周轉流的流速至少更高 1.2 倍。在某些實施方式中，該排出製程流所具有的溫度是低於從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液的溫度。在某些實施方式中，從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液中的 20% 至 100% 被分離而成為泵周轉流。在其他實施方式中，從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液中的至少 50% 被分離而成為泵周轉流。在本發明的一些實施方式中，該一個或多個引入件混合機各具有至少為 2:1 的排放推動比。而且，在其他實施方式中，該引入件為主的反應器在混合用反應器內不含有供混合用的活動部件。

【實施方式】

本發明關於用於製造醋酸的改良製程。特別是，本發明在醋酸生產系統中運用引入件為主的反應器。一氧化碳與甲醇或其衍生物的進

料成份，搭配再循環流一起被導入於反應器的下部，以形成反應媒質。本發明的引入件為主的反應器運用一個或多個引入件混合機來混合反應媒質。引入件混合機可促進整個反應器的循環。該反應器生成反應溶液，其可經純化而回收得到醋酸。在進行純化之前，可以將反應溶液之一部分予以分離而成為泵周轉流，並經由一個或多個泵周轉迴圈使之返回反應器。在一實施方式中，可從反應器直接抽取出泵周轉流。較佳為將這些泵周轉流中之一者引導至引入件混合機，並使其排放物與反應媒質相混合。在另一實施方式中，羧化反應熱可在泵周轉迴圈中進行回收。此外，泵周轉迴圈可以對於羧化反應提供溫度控制。

本發明的羧化反應器是一種「引入件為主」的反應器，其包括一個或多個引入件混合機。引入件為主的反應器中所使用的混合機較佳為一種或多種類型的噴射式混合機（泵），其應用某一（第一）流體的動量來移動另一（第二）流體。引入件為主的反應器也可包括射出機、抽風機、注入機、虹吸器或是其他類型的文氏混合機（Venturi mixers）。不同於以機械式攪拌機為主的反應器或是攪拌槽（例如連續攪動箱槽式反應器（CSTR）），本發明的引入件為主的反應器較佳為在反應器內不含有供混合反應媒質用的活動部件，藉此改善生產流程的運作可靠性。取而代之的是，反應媒質的混合是藉由一個或多個引入件混合機的排放作用來進行。應用引入件為主的反應器也排除了在反應器上設置密封件的需求。在本發明的較佳實施方式中，供給引入件混合機的材料，或稱第一推進流體，是取自於從反應器所抽取出的反應溶液之一部分，而該反應溶液之一部分是例如經由一個或多個泵周轉流而從反應器抽取出。

第 1A 圖是本發明一實施方式之引入件為主的反應器 101 的局部剖視圖。引入件為主的反應器 101 外殼的內表面可包含任何適用的材料，例如玻璃、陶瓷、特用熱塑性塑膠（specialty thermoplastic）、熱固性塑膠、高度耐化學和耐熱性彈性體、如 HASTELLOY™ B-3™ 合金（Haynes International）等鎳-鈮合金，或是如 Zirc™ 702 合金（United Titanium Inc.）等鋁合金。如第 1A 圖所示，供料管 102 延伸經過反應器

101 頂部的開口 103，且連接至歧管 104 的遠端。供料管 102 可以藉由固定在反應器 101 外部的墊片 105 而設置於反應器 101。在一些實施方式中，供料管 102 可活動式地設置。此外，可設置一個或多個墊圈，如密封環，以提供密封式接合。有利地，因為供料管 102 較佳為在開口 103 中保持靜止不動，所以相較於運用機械式攪拌器的設計，在墊圈上具有較低的磨耗。如第 1A 圖所示，支承樑 106 可在支座 107 處與供料管 102 相接。支座 108 沿著反應器 101 內之側壁協助供料管 102 固設在一垂直設置位置。升降臂 111 經由支座 109 附加於支承樑 106。第 1A 圖另顯示，支承樑 106 搭配穩定樑 113 可使歧管 104 穩定化。在本發明的某些實施方式中，運用數個支承樑來穩定引入件為主的反應器 101 的各個構件。

歧管 104 較佳為被定位在引入件為主的反應器 101 中之液位 l 下方。如第 1A 和 1B 圖所示，歧管 104 包含配送穀 110、配送導管 121 和引入件導管 112。在一些實施方式中，配送穀 110 可以直接與供料管 102 相接，一個或多個配送導管 121 可以與配送穀 110 相接，以及一個或多個引入件導管 112 可以與配送導管 121 相接。在某些實施方式中，穩定樑 113 可以與配送導管 121 和支承樑 106 相接。如第 1B 圖所示，歧管 104 可呈環狀或圓形配置。惟，導管數目並無限制，且其他的歧管配置可以應用在本發明範圍內。在某些實施方式中，歧管 104 的構件於拆卸時可個別地按照尺寸製作，以便適配於開口 103 及/或標準尺寸（即 20 吋至 24 吋直徑）通道，此可使得構件易於移離以供維修。

如第 1A 和 1B 圖所示，歧管 104 更包含一個或多個引入件混合機 114。引入件混合機 114 較佳為裝設於引入件導管 112，但也可以直接設置於配送穀 110 或配送導管 121。在較佳實施方式中，引入件混合機 114 延伸進入反應媒質內，且定位在液位 l 下方。在一些實施方式中，一個或多個引入件混合機 114 包括桿 115、噴嘴 116、開口 117、散佈器 118 和排放孔 119。噴嘴 116 可藉由一個或多個肋部 120 與散佈器 118 相接，而二者間設有開口 117。在某些實施方式中，各個引

入件混合機 114 的第二流體可經由開口 117 而從反應媒質取得。如本說明書所述，引入件混合機 114 的第一流體供料可取自於經管道 122 離開而成為泵周轉流的反應溶液。較佳為本發明的引入件混合機 114 具有至少為 1:2 的推動排放比 (motive to discharge ratio)，例如至少 1:3 或是至少 1:5 的推動排放比，以使反應媒質充分混合。

在一些實施方式中，歧管 104 的各個引入件混合機 114 可垂直向下延伸（零角度）以執行混合作業。在其他實施方式中，引入件混合機 114 是呈任何適當的角度傾斜，例如呈小於 90 度（水平橫設），例如小於 60 度或少於 45 度。此外，在某些實施方式中，歧管 104 的引入件混合機 114 可包括垂直向下定位的引入件混合機 114 以及呈一角度定位的引入件混合機 114。在一些實施方式中，引入件混合機 114 的角度可以呈垂直向下和呈角度傾斜的方式交替設置。在一例示性實施方式中，每間隔一個引入件混合機 114 即以零度之角度定位，以提供直行朝下或直接軸向的流動，而位於其間的引入件混合機 114 則以 45 度之角度定位。引入件混合機 114 的角度和定位方式獲致各種不同的反應器規模和設計，包括長度、寬度、流體入口和出口的位置、主要流體噴嘴的位置、內部擋板或其他抗漩渦裝置的位置。

本發明的實施方式中可以應用任何適用的引入件混合機 114。引入件混合機 114 可由任何適用的材料製成，其包括但不限於如 HASTELLOY™ B-3™ 合金 (Haynes International) 等金屬或金屬合金、如 Zirc™ 702 合金 (United Titanium Inc.) 等鋁合金、陶瓷、如金屬強化型陶瓷等複合陶瓷材料/加工強化型陶瓷、如特用熱塑性塑膠等高分子或是高分子複合材料。引入件混合機的數目可取決於反應器的尺寸和構形。在一實施方式中，與歧管 104 相接的引入件混合機 114 之數目可在 1 個至 20 個的範圍內，例如在 4 個至 16 個或是 6 個至 12 個的範圍內。雖然可以運用額外的引入件混合機，但超過 20 個引入件混合機可能不會明顯提昇效率。各個引入件混合機 114 可以具有 10 公分至 110 公分的長度，例如具有 30 公分至 100 公分或是 50 公分至 90 公分的長度。

依據本發明的一些實施方式，可應用一個或多個泵周轉迴圈使一部分反應溶液返回反應器。較佳為將這些泵周轉迴圈中的至少一者引導至供料管 102，且利用歧管 104 及/或引入件混合機 114 來配送第一流體。此外，可應用泵周轉迴圈從羰化反應器回收熱及/或調節反應器的溫度。

本發明可應用於任何甲醇羰化製程。可供用於本發明實施方式的例示性羰化系統包括在美國專利第 7,223,886 號、第 7,005,541 號、第 6,665,078 號、第 6,339,171 號、第 5,731,252 號、第 5,144,068 號、第 5,026,908 號、第 5,001,259 號、第 4,994,608 號中，以及美國專利公開案第 2008/0287706 號、第 2008/0293966 號、第 2009/0107833 號、第 2009/0270651 中所敘述者，此等專利案之全部內容和揭露在此納入參考。羰化系統可包含羰化區和純化區。本發明任一實施方式可以與任何適當的純化區組合應用。適用的純化區敘述於前揭專利案中，且通常包括輕餾份蒸餾塔、乾燥塔、一個或多個用以移除過錳酸鹽還原性化合物（“PRCs”）的蒸餾塔、保護床、排出氣淨化器及/或重餾份蒸餾塔。

第 2 圖中顯示一個例示性的羰化區 201。羰化區 201 包含一氧化碳進料流 203、反應物進料流 204、引入件為主的反應器 205 和閃蒸塔 206。一氧化碳和至少一種反應物是分別藉由進料流 203 和 204 而饋入於引入件為主的反應器 205 的下部。反應物進料流 204 將至少一種選自於由甲醇、醋酸甲酯、甲酸甲酯、甲醚及/或其混合物所構成的群組中的反應物供應至引入件為主的反應器 205。在較佳實施方式中，反應物進料流 204 供應甲醇和醋酸甲酯。任擇地，反應物進料流 204 可與一個或多個儲存有供羰化製程用之新鮮反應物的儲槽（未顯示）相連。此外，引入件為主的反應器 205 可連接有碘甲烷儲槽（未顯示）及/或觸媒儲槽（未顯示），以視需要供應新鮮的碘甲烷和觸媒，從而維持反應條件。在其他實施方式中，供應至引入件為主的反應器 205 中之所有或部分的甲醇及/或其反應性衍生物可呈源自於系統中另一位置或者是另一系統之產品或副產品的淨化甲醇形式。

可以經由管路 208 將一個或多個來自於羰化區 201 的再循環進料流饋入反應器 205 中。如本說明書所述，再循環進料流 208 可包含反應媒質的成份，以及以及殘餘及/或被夾帶的觸媒和醋酸。雖然第 2 圖顯示一個再循環進料流 208，但可以有數個流被分別地饋入引入件為主的反應器 205。舉例而言，可以經由管路 208 將一個或多個來自於純化區的再循環進料流饋入反應器 205。在較佳實施方式中，經由管路 208 饋入的再循環進料流被引導至反應器 205 的下部。因為再循環進料流含有羰化反應中所使用的成份，所以較佳為將再循環進料與新鮮一氧化碳和反應物一起導入反應器的下部。在一個任擇的實施方式中，可將再循環進料流的一部分導入而成為引入件混合機的供料。

在本發明的某些實施方式中，反應物進料流 204 包含甲醇及/或其反應性衍生物。適用的甲醇之反應性衍生物包括醋酸甲酯、甲醚、甲酸甲酯和其混合物。在一實施方式中，由甲醇與甲醇之反應性衍生物所構成的混合物被使用作為本發明製程中的反應物。較佳為使用甲醇及/或醋酸甲酯作為反應物。至少一些甲醇及/或其反應性衍生物藉由與醋酸產品或溶劑進行反應被轉化且因而在反應媒質中呈現醋酸甲酯之形式。反應媒質中的醋酸甲酯濃度較佳為反應媒質總重量的 0.5 重量%至 70 重量%之範圍內，例如 0.5 重量%至 50 重量%或是 1 重量%至 35 重量%。

一氧化碳進料流 203 可以基本上呈純質，或是可含有少量惰性雜質，如二氧化碳、甲烷、氮、惰性氣體 (noble gases)、水以及 C₁ 至 C₄ 烷屬烴。一氧化碳中所存在的氫以及因水煤氣轉化反應而原位 (in situ) 產生的氫較佳為保持低量 (例如低於 1 巴分壓或低於 0.5 巴分壓)，因為它的存在可能導致氫化產物的形成。一氧化碳在反應中之分壓較佳為 1 巴 (bar) 至 70 巴的範圍內，例如 1 巴至 35 巴或是 1 巴至 15 巴。

在本發明的一些實施方式中，在引入件為主的反應器 205 內，使甲醇在均質性催化反應系統中與一氧化碳進行反應，該均質性催化反應系統包含一反應溶劑、甲醇及/或其反應性衍生物、一個第 VIII 族觸

媒、至少是有限濃度之水，以及任擇地包含有一碘鹽。

適用的第 VIII 族觸媒包括銨及/或銨觸媒。當使用銨觸媒時，可以任何適合的形式添加該銨觸媒，以使得銨在觸媒溶液中而呈現一種包括有 $[\text{Rh}(\text{CO})_2\text{I}_2]^-$ 陰離子的習知平衡混合物。較佳為該觸媒是一種二碘化銨二羰基陰離子 (rhodium diiodide dicarbonyl anion)，其被離子性地結合於適當樹脂，例如聚乙炔基吡啶。任擇地維持於本說明書所述製程的反應混合物中的碘鹽可以呈鹼金屬或鹼土族金屬的可溶性鹽，或是季銨或磷鹽的形式。在某些實施方式中，觸媒助促進劑是碘化銨、醋酸銨或其混合物。該鹽類助促進劑可以呈一種將會產生碘鹽的非碘鹽形式而添加。可將碘鹽觸媒安定劑直接地導入反應系統中。替代性地，碘鹽可於原位產生，因為在反應系統的操作條件下，有廣泛類型的非碘鹽前驅物會與碘甲烷進行反應，而生成對應的助促進劑碘鹽安定劑。關於銨催化作用和碘鹽生成的其他細節請參見美國專利第 5,001,259 號、第 5,026,908 號和第 5,144,068 號，這些專利案之全部內容在此納入參考。

當使用銨觸媒時，該銨觸媒可包含任何能夠溶解於反應媒質內的含銨化合物。銨觸媒可以呈溶解於反應媒質或是可轉化成為可溶解形式的任何適當形式，而被加入於反應媒質內，以供進行羰化反應。適於被添加於反應媒質的含銨化合物實例包括： IrCl_3 、 IrI_3 、 IrBr_3 、 $[\text{Ir}(\text{CO})_2\text{I}]_2$ 、 $[\text{Ir}(\text{CO})_2\text{Cl}]_2$ 、 $[\text{Ir}(\text{CO})_2\text{Br}]_2$ 、 $[\text{Ir}(\text{CO})_2\text{I}_2]^- \text{H}^+$ 、 $[\text{Ir}(\text{CO})_2\text{Br}_2]^- \text{H}^+$ 、 $[\text{Ir}(\text{CO})_2\text{I}_4]^- \text{H}^+$ 、 $[\text{Ir}(\text{CH}_3)_3(\text{CO})_2]^- \text{H}^+$ 、 $\text{Ir}_4(\text{CO})_{12}$ 、 $\text{IrCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{IrBr}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ir}_4(\text{CO})_{12}$ 、銨金屬、 Ir_2O_3 、 $\text{Ir}(\text{acac})(\text{CO})_2$ 、三(乙醯丙酮酸)銨 ($\text{Ir}(\text{acac})_3$)、醋酸銨、 $[\text{Ir}_3\text{O}(\text{OAc})_6(\text{H}_2\text{O})_3][\text{OAc}]$ 和氯銨酸 $[\text{H}_2\text{IrCl}_6]$ 。通常使用不含氯離子的銨複合物作為起始材料，例如醋酸鹽、草酸鹽和乙醯醋酸鹽。反應媒質中的銨觸媒濃度通常在 100ppm 至 6000 ppm 的範圍內。運用銨觸媒的甲醇羰化作用屬於習知，且被廣泛地敘述於美國專利第 5,942,460 號、第 5,932,764 號、第 5,883,295 號、第 5,877,348 號、第 5,877,347 號和第 5,696,284 號中，這些專利案之全部內容在此納入參考。

第 VIII 族金屬觸媒成份通常組合使用有一種鹵化物助觸媒/促進劑。碘甲烷是作為該鹵化物促進劑之較佳者。較佳為反應媒質中的鹵化物促進劑濃度是在 1 重量%至 50 重量%的範圍內，較佳為 2 重量%至 30 重量%。

鹵素促進劑可以與鹽類安定劑/助促進劑化合物相組合，該鹽類安定劑/助促進劑化合物可包括第 IA 族或第 IIA 族金屬的鹽或是季銨或磷鹽。尤以碘或醋酸鹽為佳，例如碘化鋰或醋酸鋰。

其他的促進劑和助促進劑可供用作為本發明催化系統之一部分，如歐洲專利第 0849248 號中所述，這件專利案之全部內容在此納入參考。適用的促進劑是選自於鈦、鐵、鎢、鎳、鋅、鎘、銻、鎂、汞、鎳、鉑、鈳、鈦、銅、鋁、錫、銻，且更佳為選自於鈦和鐵。特定的助促進劑述於美國專利第 6,627,770 號，這件專利案之全部內容在此納入參考。

促進劑可呈一有效用量，最高可達其在反應媒質中及/或從純化和醋酸回收階段被再循環至引入件為主的反應器的任何液體製程流中的溶解度限值。使用時，該促進劑是以促進劑相對於金屬觸媒為 0.5:1 至 15:1 的摩爾比而適當地存在於反應媒質內，較佳為 2:1 至 10:1 時摩爾比，更佳為 2:1 至 7.5:1 時摩爾比。適當的促進劑濃度為 400 至 5000 ppm。

水於原位形成於反應媒質中，例如藉由甲醇反應物和醋酸產品間的酯化反應而於原位形成。在一些實施方式中，水是與反應媒質的其他成份一起或分別地導入引入件為主的反應器 205 中。可以將水由引入件為主的反應器 205 所抽取出之反應組成物的其他組份中分離出來，並以受控制的含量再循環，以維持反應媒質中所需要的水濃度。較佳為反應媒質中所維持的水濃度是在反應組成物總重量的 0.1 重量%至 16 重量%的範圍內，例如 1 重量%至 14 重量%或是 1 重量%至 10 重量%的範圍內。

依據本發明的一個較佳的羧化製程，藉由在反應媒質中保持由所欲羧酸和醇所構成之酯，較佳為由所欲羧酸和羧化作用中所使用的醇

所構成之酯，以及超過且高於以碘化氫形式存在之碘離子的額外碘離子，則即使在低的水濃度下，仍可獲得所希望的反應速率。較佳酯類的實例是醋酸甲酯。額外碘離子較佳為碘鹽，以碘化鋰為佳。經發現，如美國專利第 5,001,259 號中所述，在低的水濃度下，醋酸甲酯和碘化鋰只在各自以較高的濃度存在下才能作用為速率促進劑，而且當這兩種化合物同時存在時促進作用較高。碘離子內容物的絕對濃度對於本發明的實用性不會造成限制。

在引入件為主的反應器 205 中，反應媒質被維持在且較佳為被自動地維持在預定位準 (level)。這個預定位準在正常操作期間可維持於實質恆定。甲醇、一氧化碳和足量的水可視需要而被持續地導入引入件為主的反應器 205 中，以在反應媒質中維持至少一有限濃度的水。在一些實施方式中，一氧化碳是經由管路 203 而被持續地導入引入件為主的反應器 205 中。一氧化碳進料 203 是在足以維持所希望之反應器總壓的速率下被導入。引入件為主的反應器 205 的溫度也可以利用一個或多個泵周轉迴圈中的熱交換器進行控制，如第 2 圖所示。

醋酸通常是在約 160°C 至約 220°C 的溫度以及約 20 巴至約 50 巴之總壓下於液相反應中製成。在本發明的一些實施方式中，引入件為主的反應器 205 是在 150°C 至 250°C 的溫度下運作，例如在 155°C 至 235 °C 或是 160°C 至 220°C 的溫度下運作。本發明的某些實施方式是針對合成醋酸的方法，其中羧化反應是在升高至約 190°C 以上的溫度下進行。高溫羧化作用的例示性反應溫度為約 190°C 至約 225°C，包括約 200°C 至約 220°C。升高的反應溫度可以促使反應器觸媒濃度降低和醋酸產率增加。羧化反應的壓力較佳為 10 巴至 200 巴，更佳為 10 巴至 100 巴，且最佳為 15 巴至 50 巴。

在本發明的一些實施方式中，經由管路 207 而從引入件為主的反應器 205 排出氣體/蒸汽清除流，以至少防止氣體副產物、惰性物質的累積，並在給定的反應器總壓下維持設定的一氧化碳分壓。氣體清除流可在一個或多個回收單元中利用醋酸及/或甲醇進行淨化，以回收低沸點成份。在一些實施方式中，氣體清除流可經冷凝且饋入於一回收

單元（未顯示）中，該回收單元可使低沸點成份返回引入件為主的反應器 205。低沸點成份可包含醋酸甲酯及/或碘甲烷。可以將氣體清除流中的一氧化碳予以清除並饋入閃蒸塔 206 的基部，以增進銻安定性。

如第 2 圖所示，羰化產品（亦即反應溶液）是以一足可在反應器 205 中維持恆定位準的速率經由管路 211 由引入件為主的反應器 205 中抽取出。管路 211 的反應溶液較佳為從反應器 205 的液位 1 以下所抽取出的液體流。在一些實施方式中，當經由管路 211 由引入件為主的反應器 205 中抽取出反應溶液時，反應溶液的溫度可為約 150°C 至約 250°C。可以經由管路 211、通過 T-型連接管 212 並經由管路 213，將一些或所有的反應溶液轉送至閃蒸塔 206。在閃蒸塔 206 中，羰化產品是在閃蒸分離步驟中進行分離，以獲得包含醋酸的粗製產品流 214 和包括含觸媒溶液的觸媒再循環流 215。粗製產品流 214 被輸送至羰化系統的純化區（未顯示）以回收醋酸。在一些實施方式中，可以經由管路 208 使一個或多個來自於純化區的再循環流返回引入件為主的反應器 205。在較佳實施方式中，觸媒再循環流 215 被再循環至引入件為主的反應器 205。觸媒再循環流 215 主要含有醋酸、觸媒和鹵素促進劑，以及較低含量的醋酸甲酯、碘甲烷和水。

經由管路 211 由引入件為主的反應器 205 中抽取出之反應溶液的流速是產率和其他變因的一個函數，且可以有所變化。在一些實施方式中，可以在 T-型連接管 212 處經由管路 221 抽取一部分反應溶液，並使之通過一個或多個泵周轉迴圈 220。以反應器 205 的控制位準以及運作或非穩態運作（例如反應器起動期間）的溫度和產率為基準，經由管路 221 被抽取成為泵周轉流的反應溶液數量可以是反應溶液總量的 20%至 100%，例如 30%至 80%或是 40%至 60%。較佳為在穩態運作條件下，至少 50%的反應溶液，例如至少 54%或至少 60%的反應溶液，被抽取出而成為泵周轉流。在 T-型連接管 212 處被抽出成為泵周轉流 221 的反應溶液部分可以是反應溶液的分量部分，且可包含觸媒、被溶解/夾帶的一氧化碳和反應氣體、一種或多種反應物、水、醋酸及/或鹵素促進劑中之一或多者。雖然第 2 圖中顯示管路 221，但應

明瞭本發明可以涵蓋數個管路和數個泵周轉迴圈。舉例而言，在第 2 圖未顯示的任擇實施方式中，泵周轉迴圈可源自於位在反應器 205 液位 1 下方的噴嘴。

泵周轉迴圈 220 包含至少一個泵唧系統 222。在較佳實施方式中，泵唧系統 222 包含數個泵。較佳為也可以有數個串聯或並聯配置的泵唧系統、閥和控制器，供控制泵周轉迴圈 220 的流動之用。相較於管路 211 中的反應溶液，在 T-型連接管 212 處由反應溶液中被抽取出的泵周轉流 221 可具有實質相似的流速或是較低的流速。在一些實施方式中，泵周轉流的流速高於管路 213 中朝向閃蒸塔 206 前進的反應溶液之流速。在某些實施方式中，泵周轉流 221 的流速相較於管路 213 中的反應溶液流速至少高出 1.2 倍，例如至少高出 1.5 倍、至少高出 2 倍、至少高出 3 倍或至少高出 4 倍。舉例而言，當管路 213 中的反應溶液流速是 100 噸/小時 (tns/hr) 時，泵周轉流可以具有至少 120 噸/小時的總流速，例如至少 150 噸/小時或 200 噸/小時的總流速。在一較佳實施方式中，泵周轉流可具有至少 800 噸/小時的流速。此外，在引入件為主的反應器於生產模式中的正常穩態運作下，流 223、232 和 242 經過各個泵周轉迴圈 A、B 及/或 C 的流速也可以有所變化。在一些實施方式中，可將流速就各個迴圈 A、B 及/或 C 分成數個實質相等的部分。

饋入泵唧系統 222 之後，可以藉由迴圈 A、迴圈 B 及/或迴圈 C 使泵周轉流返回反應器 205，如第 2 圖所示。在一實施方式中，可以使所有的泵周轉流經由迴圈 A、迴圈 B 或迴圈 C 中之一者返回，且較佳為在製程中使泵周轉流再循環離開/到達反應器 205。在其他實施方式中，可以使泵周轉流的一部分經由迴圈 B 返回，而另一部分經由迴圈 A 及/或迴圈 C 返回。在其他實施方式中，可以使泵周轉流的一部分經由迴圈 A 返回，而另一部分經由迴圈 C 返回。一個或多個泵唧系統 222（例如數個可變速度之泵）和閥可供用以調控泵周轉流至迴圈 A、B 及/或 C 的流速。

引入件為主的反應器 205 可相似於前文所述且顯示在第 1A 和 1B

圖中的反應器。為求明確，在第 2 圖中，引入件為主的反應器 205 至少包含供料管 217、歧管 218 和一個或多個引入件混合機 219。可以使各個泵周轉流經由供料管 217 返回引入件為主的反應器 205 且到達引入件混合機 219。當泵周轉流 221 通過泵唧系統 222 進入迴圈 A、B 及/或 C 時，泵周轉流的壓力被增加。在一實施方式中，在進入引入件為主的反應器 205 之前，泵周轉流壓力相較於反應器 205 內的反應媒質（亦即第二流體）的正變化值可為 0.7 巴（計示壓力）至 7.0 巴（計示壓力），例如 1.5 巴（計示壓力）至 5.5 巴（計示壓力）或是 2.5 巴（計示壓力）至 4.0 巴（計示壓力）。經增壓的泵周轉流可以由各個引入件混合機 219 排入反應媒質中，以產生持續性的擾動，並且對於反應媒質提供標定且完全的混合作用。

迴圈 A 包含用以將泵周轉流直接饋入供料管 217 的管路 223。在迴圈 A 中，沒有熱交換器及/或蒸汽產生器。

迴圈 B 包含一個或多個蒸汽產生器 230 及/或一個或多個熱交換器 231。為求明確，第 2 圖顯示一個蒸汽產生器 230 和熱交換器 231。本發明的其他實施方式可以使用額外的蒸汽產生器及/或熱交換器。取決於流速，可將管路 232 內的一部分泵周轉流引導至蒸汽產生器 230 或熱交換器 231。在一實施方式中，可經由管路 233 將管路 232 內的所有泵周轉流引導至蒸汽產生器 230。在較佳實施方式中，管路 232 內的泵周轉流之流速愈高，可以在蒸汽產生器 230 中產生愈大量且愈高品質的蒸汽。蒸汽產生器 230 具有可以經由供料管 217 返回反應器 205 的排出製程流 234。任擇地，可以經由管路 235 將排出製程流 234 的一部分，例如 5%-95%，引導至熱交換器 231。迴圈 B 也可以將管路 232 內的所有泵周轉流引導至熱交換器 231，且經由管路 236 繞過蒸汽產生器 230。可以經由管路 237 將熱交換器 231 的流出物引導至反應器 205 的供料管 217。

迴圈 C 包含一個或多個蒸汽產生器 240 和一或多個熱交換器 241。為求明確，第 2 圖顯示一個蒸汽產生器 240 和熱交換器 241。惟，本發明實施方式中可以使用額外的蒸汽產生器及/或熱交換器。在一些

實施方式中，蒸汽產生器 240 的排出製程流 243 可以通過熱交換器 241，且經由管路 244 使熱交換器 241 的流出物返回反應器 205 的供料管 217。在某些實施方式中，流 244 的一部分，例如 5%-95%，是經由管路 246 被導入流 245，以控制饋送至反應器 205 的進料量。在其他實施方式中，可以經由管路 245 使排出製程流 243 的一部分，例如 5%-95%，直接返回反應器 205，而不通過引入件混合機 219 及/或熱交換器 241。

在一些實施方式中，當泵周轉流被引導至迴圈 B 及/或 C 時，較佳為其所具有的泵周轉流流速相較於管路 213 內的反應溶液流速至少更高 4 倍，例如至少更高 5 倍或至少更高 8 倍。

本發明實施方式中所使用的蒸汽產生器較佳為能夠產生大量且品質多變（亦即壓力）的蒸汽。本發明的某些實施方式致使產生大量且品質多變的蒸汽，以供應高達 100% 的穩態蒸汽需求，例如高達 80% 或高達 50% 的穩態蒸汽需求，給予羰化系統的純化區製程。此外，蒸汽可用於供應羰化製程中的其他系統，如渦輪驅動式泵，以啟動之（引發混合作用），以加熱儲槽或其他化學品單元，如酸酐生產單元及/或酯單元。在較佳實施方式中，各個泵周轉迴圈生產至少 5 噸/小時的蒸汽，例如至少 15 噸/小時或至少 25 噸/小時的蒸汽。就範圍而言，各個泵周轉迴圈可生產 5 噸/小時至 30 噸/小時，例如 5 噸/小時至 25 噸/小時或是 20 噸/小時至 25 噸/小時。就參照管路 213 中朝向閃蒸塔 206 前進之流速的相對流速而言，各個泵周轉迴圈所產生的蒸汽量可為 0.01x 至 1x 噸/小時，例如 0.02x 至 0.5x 噸/小時或是 0.03 至 0.1x 噸/小時。此外，在較佳實施方式中，所生產的蒸汽具有至少 3.5 巴（計示壓力）的壓力，例如至少 4 巴（計示壓力）或至少 6 巴（計示壓力）的壓力。蒸汽產生器由泵周轉流所生產的蒸汽量可以依據流速、羰化系統的溫度和所產生蒸汽的壓力品質而有所變化。泵周轉流中一或多者的流速愈高，可以生產出愈大量及/或愈高品質的蒸汽。因為在一些實施方式中具有較高流速的泵周轉流有利於使引入件混合機進行混合作用，所以也較佳為從泵周轉流回收熱以產生蒸汽。

在引入件為主的反應器於生產模式中的正常穩態運作期間，當泵周轉流從反應溶液中被抽取出時，其可以具有約 160°C 至約 250°C 的溫度，例如 175°C 至 235°C 或是 180°C 至 220°C 的溫度。通過蒸汽產生器中之一者以後，排出製程流可具有低於羰化反應溫度的溫度，如低於約 185°C，或是 150°C 至 185°C 的溫度。這些範圍在起動期間或是非穩態反應器條件下可以有所變化。

適用的蒸汽產生器可包括殼管式交換器 (shell and tube exchanger)、套管式交換器 (double pipe exchanger)、螺旋板交換器 (spiral plate exchanger)、板式交換器、旋管式、螺管式或插管式槽型熱交換器 (helical coil, spiral coil or bayonet tube in tank heat exchanger) 或是其他適用的習知熱交換器。蒸汽產生器的工作表面可包含任何適用的習知材料，例如 HASTELLOY™ B-3™ 合金 (Haynes International) 等鎳-鉬合金或是 Zirc™ 702 合金 (United Titanium Inc.) 等鋳合金。蒸汽產生器的蒸汽側 (亦即，水側) 可包含任何適用的金屬，包括碳鋼及較低等級之不鏽和合金鋼，以及其他金屬。

任擇地，泵周轉反應器可整合有一個或多個蒸汽產生器，以回收可利用的熱，供生產蒸汽。泵周轉反應器可藉由第二羰化反應而提高泵周轉流的溫度。溫度的上升可以增加蒸汽的產生。泵周轉流含有未經反應的甲醇和被溶解的一氧化碳以及觸媒，它們可以進一步進行反應。可以將額外的反應物及/或一氧化碳饋入泵周轉反應器中。舉例而言，在一些實施方式中，泵周轉反應器可增設於蒸汽產生器 230 (迴圈 B) 及/或 240 (迴圈 C) 之前。適用的泵周轉反應器可以是管式反應器 (pipe reactor)、長管式反應器 (tubular reactor)、流化床、CSTR、鼓泡柱型反應槽 (bubble-column type vessel) 或是第二引入件為主的反應器。依據本發明的一些實施方式，泵周轉反應器可含有如擋板或其他抗漩渦裝置等混合作用調節器、包封材、配送器及/或數個通道。

迴圈 B 及/或 C 內的熱交換器可包括 殼管式交換器、螺旋板熱交換器、旋管式交換器或是任何其他適用的習知熱交換器。以感應式冷卻水熱交換器 (sensible cooling water heat exchangers) 為佳。這些熱

交換器較佳為提供均衡的冷卻作用，以從如引入件為主的反應器 205 等系統之羰化反應中移除反應熱，並增進反應器的溫度控制。此外，在一些實施方式中，熱交換器也可以生產蒸汽，例如藉由在高壓下使冷卻水過熱再將之排入低壓的蒸汽/冷凝物儲槽中。通過熱交換器中之一者以後，流出物可具有低於羰化反應溫度的溫度，如低於約 155°C，或是 30°C 至 155°C 的溫度。

在起動期間，剛開始時較佳為將約 100% 的所抽出反應溶液經由管路 211 引導至泵周轉迴圈 221。泵周轉迴圈中之一或多者，較佳為迴圈 B 或迴圈 C，可供用於加熱反應溶液。在起動引入件為主的反應器 205 的期間，反應媒質是利用起動加熱器被加熱至約 150°C，或是在其他實施方式中被加熱至高於 150°C。在第 2 圖所顯示的本發明實施方式中，起動加熱器的功能將藉由蒸汽產生器 230(迴圈 B)或 240(迴圈 C)來達成，而下游熱交換器 231 和 241 的製程流則繞過不用。在其他實施方式中，熱交換器 231 可以作用成為起動加熱器。在一些起動實施方式中，可以將少量的一氧化碳注入泵周轉迴圈中的一個或多個位置處。在具有設計速率的穩態條件下，較佳為低於 50% 的反應溶液 211 經由管路 211 引導至一或多個泵周轉迴圈。在某些實施方式中，在 T-型連接管 212 處有低於 30% 的反應溶液 211，如低於 25% 的反應溶液 211，被抽取出而成為泵周轉流。

雖然第 2 圖顯示抽取出反應溶液 211 的一部分，但也可以抽取出數個部分而分別供給一個或多個泵周轉迴圈。除了迴圈 A、B、C 以外，羰化系統中可以包括任何數目的迴圈。在本發明的較佳實施方式中，至少有一個迴圈包含熱交換器及/或蒸汽產生器。

依據本發明的各種實施方式，雖然第 2 圖沒有顯示，但可以運用一或多個閥、調控器或泵來控制羰化系統中的流體流動。類似地，在本發明的其他實施方式中，泵周轉迴圈中可以包括由手動式和自動式隔離閥所構成之組合，以容許單獨隔離一個迴圈（例如供維修之用），而其他迴圈和引入件為主的反應器 205 仍保持運作。此外，在本發明的各種實施方式中，一個或多個額外的熱交換器可以存在於整個系統

的任何位置處。

實例

參照下列非限制性實例中所示特定實施方式，將能更加了解本發明。

實例 1

這個實例顯示在最高生產速率和最高蒸汽產生速率下運作的醋酸生產系統。如第 3 圖所示，反應溶液是以 6x 噸/小時的速率經由管路 311 從引入件為主的反應器 305 抽取出。反應溶液從反應器 305 中被抽取出時具有 210°C - 215°C 的溫度。在 T-型連接管 312 處，反應溶液被分離成為一具有 4x 噸/小時之流速的泵周轉流 321 以及一在管路 313 內的前進進料，該前進進料具有 2x 噸/小時之流速以饋入閃蒸塔 306 中。為了維持系統的質量平衡，來自於閃蒸塔 206 且位在管路 315 和純化系統內的再循環流，以及新鮮的 CO 和反應物，必須實質相似於 2x 噸/小時的前進進料。

將流 321 饋入泵唧系統 322 以後，藉由迴圈 1 和迴圈 2 使泵周轉流返回反應器 305，如第 3 圖所示。可將流 321 分成數個實質相等的部分，且可以在 2x 噸/小時之速率下引導至各個迴圈。在迴圈 1 中，先將管路 332 內的泵周轉流引導至蒸汽產生器 330，以在 0.03x 噸/小時至 0.04x 噸/小時之速率和 8.5 巴（計示壓力）下生產蒸汽。蒸汽產生器 330 具有一排出製程流，其可經由管路 334 被引導至冷卻水熱交換器 331。在管路 335 內的熱交換器 331 流出物具有 125°C - 145°C 的溫度。管路 335 內的流出物壓力高於引入件為主的反應器 305 之壓力的正差值可以為 2.5 巴（計示壓力） - 4 巴（計示壓力）。管路 335 內的流出物被直接地饋入反應器 305 中的引入件混合機 319。在迴圈 2 中，管路 342 內的泵周轉流是在 2x 噸/小時的速率下被引導至蒸汽產生器 340。蒸汽產生器 340 是在約 0.03x 噸/小時至 0.04x 噸/小時之速率和 8.5 巴（計示壓力）下生產蒸汽。20 - 50%之蒸汽產生器 340 的排出製程流 343 會經過熱交換器 341。管路 344 內的熱交換器 341 流出物具有 60°C - 80°C 的溫度。管路 344 內的流出物壓力高於反應器 305

之壓力的正差值可以為 2.5 巴（計示壓力）- 4 巴（計示壓力）。管路 344 內的流出物被直接地饋入反應器 305 中的引入件混合機 319。剩餘的 50 - 80% 排出製程流 343 直接地通入反應器 305 的液位 1 下方。

實例 2

這個實例顯示出，在實例 1 的一半產率下運作時，仍然可以生產出大量的高品質蒸汽。如第 3 圖所示，反應溶液是以 5x 噸/小時的速率從引入件為主的反應器 305 抽入管路 311 中。泵周轉流 321 是在 T-型連接管 312 處以 4x 噸/小時的流速從管路 311 內之反應溶液抽取出。管路 311 內的反應溶液剩餘部分是以 x 噸/小時的速率經由管路 313 被輸送至閃蒸塔 306。在管路 315 中且來自於純化區的再循環流，以及新鮮的 CO 和反應物，具有 x 噸/小時的流速。

流 321 是以與實例 1 中所述者相類似的方式饋入於迴圈 1 和迴圈 2。迴圈 1 是以 0.03x 噸/小時至 0.04x 噸/小時之速率在 8.5 巴（計示壓力）下，產生出與實例 1 具類似數量和品質的蒸汽。管路 335 內的流出物溫度是 125°C - 145°C。迴圈 2 也是以 0.03x 噸/小時至 0.04x 噸/小時之速率在 8.5 巴（計示壓力）下，產生出與實例 1 具類似數量和品質的蒸汽。在這個實施方式中，約 100% 的流出物 343 被引導至管路 345。極少量流甚至沒有流被引導通過交換器 341。

實例 3

這個實例顯示醋酸生產系統是在最高生產速率和較低的蒸汽產率下運作。如第 2 圖所示，反應溶液是以 4x 噸/小時的速率經由管路 211 從引入件為主的反應器 205 抽取出。泵周轉流 221 是在 T-型連接管 212 處從管路 211 內之反應溶液抽取出，且擁有 2x 噸/小時的流速。管路 211 內的反應溶液剩餘部分是以 2x 噸/小時的速率經由管路 213 被輸送至閃蒸塔 206。為了維持質量平衡，管路 215 中來自於閃蒸塔和管路 208 中來自於純化系統內的再循環流，以及新鮮的 CO 和反應物，必須實質相似於 2x 噸/小時的前進進料。

將流 221 饋入泵唧系統 222 以後，藉由迴圈 B 和藉由迴圈 C 使泵周轉流返回反應器 205。在迴圈 B 中，管路 232 內的泵周轉流是以 x 噸/小時之速率經由管路 236 繞過蒸汽產生器 230。製程流是經由管路 236 引導至冷卻水熱交換器 231。管路 237 內的熱交換器 231 流出物具有 $65 - 95^{\circ}\text{C}$ 的溫度。管路 237 內的流出物壓力高於反應器 205 之壓力的正差值可以為 2.5 巴（計示壓力） - 4 巴（計示壓力）。管路 237 內的流出物被直接地饋入反應器 205 中的引入件混合機 219。在迴圈 C 中，管路 242 內的泵周轉流是在 x 噸/小時的速率下被引導至蒸汽產生器 240。蒸汽產生器 240 是在約 $0.02x$ 噸/小時至 $0.04x$ 噸/小時之速率和 8.5 巴（計示壓力）下生產蒸汽。100% 的蒸汽產生器 240 之排出製程流 243 會通過熱交換器 241。管路 244 內的熱交換器 241 流出物具有 $65^{\circ}\text{C} - 95^{\circ}\text{C}$ 的溫度。管路 244 內的流出物壓力高於反應器 205 之壓力的正差值可以為 2.5 巴（計示壓力） - 4 巴（計示壓力）。管路 244 內的流出物被直接地饋入反應器 205 中的引入件混合機 219。

實例 4

這個實例顯示本發明一實施方式，其中泵周轉迴圈是源自於位在引入件為主的反應器上的噴嘴。如第 4 圖所示，反應溶液是以 $3x$ 噸/小時的速率經由管路 311 從引入件為主的反應器 305 抽取出。此外，反應溶液是以 $2x$ 噸/小時的速率經由一噴嘴從引入件為主的反應器 305 抽取出，該噴嘴被定位在液位 l 的下方且引導出管路 310。泵周轉流 321 是在 T-型連接管 312 處以 $2x$ 噸/小時的速率從管路 311 內之反應溶液抽取出。流經管路 310 和管路 321 的整體組合泵周轉流可以為 $4x$ 噸/小時。在 T-型連接管 312 處，管路 311 內的反應溶液剩餘部分是以 x 噸/小時的速率經由管路 313 被輸送至閃蒸塔 306，且來自於閃蒸塔 306 的觸媒再循環流 315，以及其他的再循環流 316 和新鮮的 CO 和反應物，是以 x 噸/小時的速率被再循環至引入件為主的反應器 305。

將流 321 饋入泵唧系統 322 以後，藉由迴圈 1 使泵周轉流以 $2x$ 噸/小時的流速返回反應器 305。在迴圈 1 中，管路 332 內的泵周轉流

被引導至蒸汽產生器 330，以在 0.02x 噸/小時至 0.04x 噸/小時之速率和 8.5 巴（計示壓力）下生產蒸汽。蒸汽產生器 330 具有一排出製程流，其可經由管路 334 被引導至冷卻水熱交換器 331。在管路 335 內的熱交換器 331 流出物具有 125°C - 145°C 的溫度。管路 335 內的流出物壓力高於引入件為主的反應器 305 之壓力的正差值可以為 2.5 巴（計示壓力） - 4 巴（計示壓力）。管路 335 內的流出物被直接地饋入反應器 305 中的引入件混合機 319。

將流 310 饋入泵 316 中，且藉由迴圈 2 使泵周轉流以 2x 噸/小時之流速返回反應器 305。在迴圈 2 中，管路 342 內的泵周轉流被引導至蒸汽產生器 340。蒸汽產生器 340 是在約 0.03x 噸/小時至 0.04x 噸/小時之速率和 8.5 巴（計示壓力）下生產蒸汽。20 - 50%之蒸汽產生器 340 的排出製程流 343 會經過冷卻水熱交換器 341。管路 344 內的熱交換器 341 流出物具有 65°C - 95°C 的溫度。管路 344 內的流出物壓力高於反應器 305 之壓力的正差值可以為 2.5 巴（計示壓力） - 4 巴（計示壓力）。管路 344 內的流出物被直接地饋入反應器 305 中的引入件混合機 319。剩餘的 50 - 80%排出製程流 343 則經由管路 345 直接地通入反應器 305 的液位 1 下方。

為使內容清楚明白，本說明書並未敘述用於將甲醇羰化成為醋酸之製程在實際執行時的所有特點。如泵周轉迴圈內的滯留時間和所測得的溫度、流動及/或所測得的壓力等參數，以及受控制的原料添加流速，可經最適化而達到所希望的組合。熟習本項技術人士將會明瞭，在研發這些實際實施方式中任一者時，必須作出許多與實施有關的特定決定，以達成特定目標，例如遵循與系統有關和與商業有關的諸多限制，而這些決定會隨著實施態樣的不同而有所變化。再者，應明瞭雖然這些努力可能是複雜且耗時的，但對於所屬技術中具有通常知識者而言，在受益於本案揭露內容後，即屬例行性作業。

雖然本發明已詳細描述，但在本發明精義和範圍內之各種修改對於熟悉本領域之技藝者而言係屬明顯。以上討論相關的知識和技術文獻的背景及詳細說明，其中揭露內容均在此納入參考。此外，還應該

認識到本發明各態樣和各實施方式的部分和以下各種特色和/或所附申請專利範圍，是可以全部地或部分地合併或互換。再者，所屬技術領域中具有通常知識者都明白前文的敘述內容只是舉例說明，不是為了限制本發明保護範圍。

【圖式簡單說明】

以下參照所附圖式詳細敘述本發明，其中以類似之數字來標註類似的元件。

第 1A 圖為依據本發明一實施方式的引入件為主的反應器之局部剖視圖。

第 1B 圖為依據本發明一實施方式用於引入件為主的反應器之歧管的底視圖。

第 2 圖為依據本發明一實施方式之醋酸生產的例示性示意圖，其具有引入件為主的反應器和泵周轉迴圈。

第 3 圖為依據本發明一實施方式之例示性示意圖，其顯示具有引入件為主的反應器和泵周轉迴圈的醋酸生產系統的各種生產和蒸汽產生能力。

第 4 圖為依據本發明一實施方式之醋酸生產的例示性示意圖，其具有引入件為主的反應器和泵周轉迴圈，且一泵周轉迴圈直接源自於反應器。

【主要元件符號說明】

代號	說明
101	反應器
102	供料管
103	開口
104	歧管
105	墊片

代號	說明
106	支承樑
107	支座
108	支座
109	支座
110	配送轂
111	升降臂
112	引入件導管
113	穩定樑
114	引入件混合機
115	桿
116	噴嘴
117	開口
118	散佈器
119	排放孔
121	配送導管
122	管道
201	羰化區
203	一氧化碳進料流/管路/一氧化碳進料
204	反應物進料流
205	引入件為主的反應器/反應器
206	閃蒸塔
207	管路
208	再循環進料流
211	管路/反應溶液
212	T-型連接管

代號	說明
213	管路
214	粗製產品流
215	觸媒再循環流
217	供料管
218	歧管
219	引入件混合機
220	泵周轉迴圈
221	泵周轉流/管路
222	泵唧系統
223	流/管路
230	蒸汽產生器
231	熱交換器
232	流/管路
233	管路
234	排出製程流
235	管路
236	管路
237	管路
240	蒸汽產生器
241	熱交換器
242	流
243	排出製程流
244	流/管路
245	流/管路
246	管路

代號	說明
A, B, C	泵周轉迴圈/迴圈
305	引入件為主的反應器/反應器
306	閃蒸塔
310	管路
311	管路
312	T-型連接管
313	管路
315	管路/觸媒再循環流
316	再循環流/泵
319	引入件混合機
321	流
322	泵唧系統
331	熱交換器
332	管路
334	管路
335	管路
340	蒸汽產生器
341	熱交換器/交換器
342	管路
343	排出製程流
344	管路

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：100146436

※申請日：100.12.15

※IPC 分類：

C07C51/14 (2006.01)
53/08 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

用於生產醋酸之引入件為主的反應器及泵周轉的迴圈

EDUCTOR-BASED REACTOR AND PUMP AROUND LOOPS FOR
PRODUCTION OF ACETIC ACID

二、中文發明摘要：

運用引入件混合機來混合羧化反應器中的反應媒質。從反應器抽取出反應溶液之一部分，並將之引導經過泵周轉迴圈。泵周轉迴圈經由引入件混合機而饋回反應器。此外，泵周轉迴圈可以經過一個或多個蒸汽產生器及/或熱交換器。

三、英文發明摘要：

Eductor mixers are used to mix the reaction medium in a carbonylation reactor. A portion of the reaction solution withdrawn from the reactor and directed through a pump around loop. The pump around loop is fed back to the reactor through the eductor mixers. In addition, a pump around loop may pass through one or more steam generators and/or heat exchangers.

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 (1A) 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

代號	說明
101	反應器

七、申請專利範圍：

1. 一種用以製造醋酸的製程，其包含下列步驟：

使一氧化碳與至少一反應物在含有反應媒質之引入件為主的反應器中進行反應，以製造包含醋酸的反應溶液，其中該至少一反應物選自於由甲醇、醋酸甲酯、甲酸甲酯、甲醚和其混合物所構成的群組中，且其中該反應媒質包含水、醋酸、醋酸甲酯、碘甲烷和觸媒；其中該引入件為主的反應器包含一個或多個引入件混合機；

以第一流速從該引入件為主的反應器抽取出該反應溶液；

將該反應溶液之一部分予以分離而形成泵周轉流；

任擇地使該泵周轉流之一部分通過一個或多個蒸汽產生器，以製成排出製程流和蒸汽；

任擇地使該泵周轉流之一部分通過一個或多個熱交換器，以製成流出物；以及

將該泵周轉流、該排出製程流和該流出物中之一或多者的一部分饋入該一個或多個引入件混合機中之至少一者，以混合該引入件為主的反應器中之反應媒質。

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之製程，其更包含下列步驟：

將該反應溶液的剩餘部分向前饋入至閃蒸塔，以製成粗製產品和一觸媒再循環流，其中該泵周轉流在導入該閃蒸塔之前被分離。

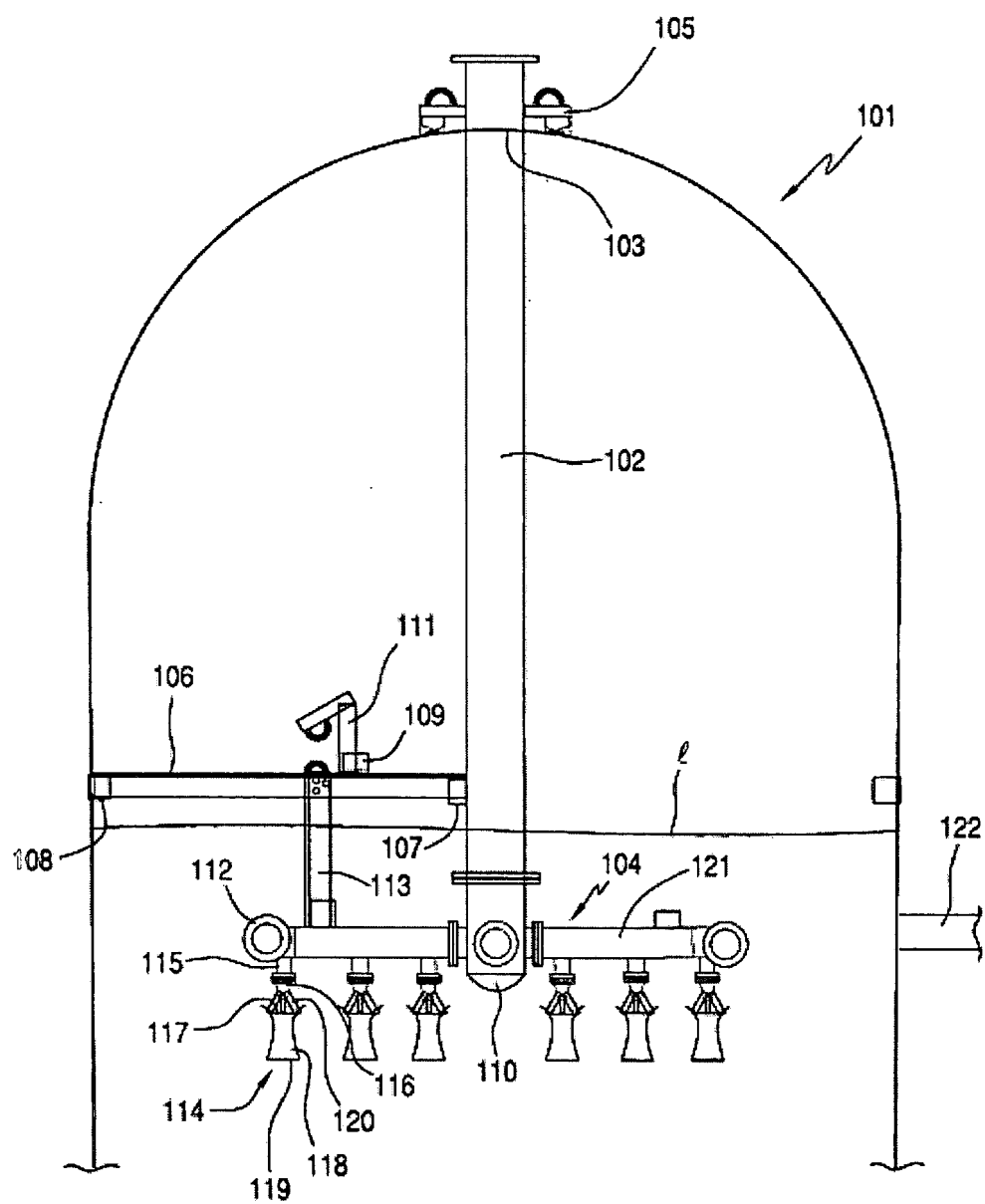
3. 如申請專利範圍第 2 項所述之製程，其中相較於朝向該閃蒸塔前進的該反應溶液之剩餘部分的流速，該泵周轉流的流速至少高出 1.2 倍。

4. 如申請專利範圍第 1 至 3 項任一項所述之製程，其中該排出製程流所具有的溫度是低於從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液的溫度。

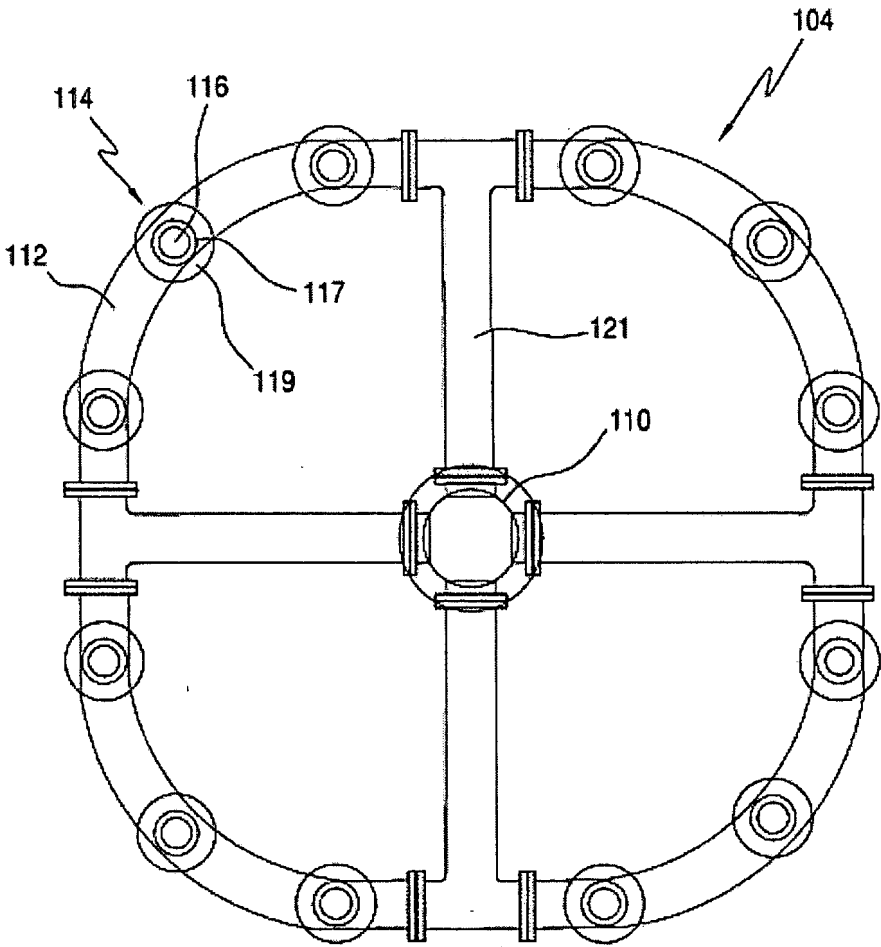
5. 如申請專利範圍第 1 至 4 項任一項所述之製程，其中從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液中的 20% 至 100% 被分離而成為泵周轉流。

6. 如申請專利範圍第 1 至 5 項任一項所述之製程，其中從該引入件為主的反應器所抽取出之反應溶液中的至少 50% 被分離而成為泵周轉流。
7. 如申請專利範圍第 1 至 6 項任一項所述之製程，其中該一個或多個引入件混合機各具有至少為 2:1 的排放推動比 (discharge to motive ratio)。
8. 如申請專利範圍第 1 至 7 項任一項所述之製程，其中該引入件為主的反應器在反應器內不含有供混合用的活動部件。

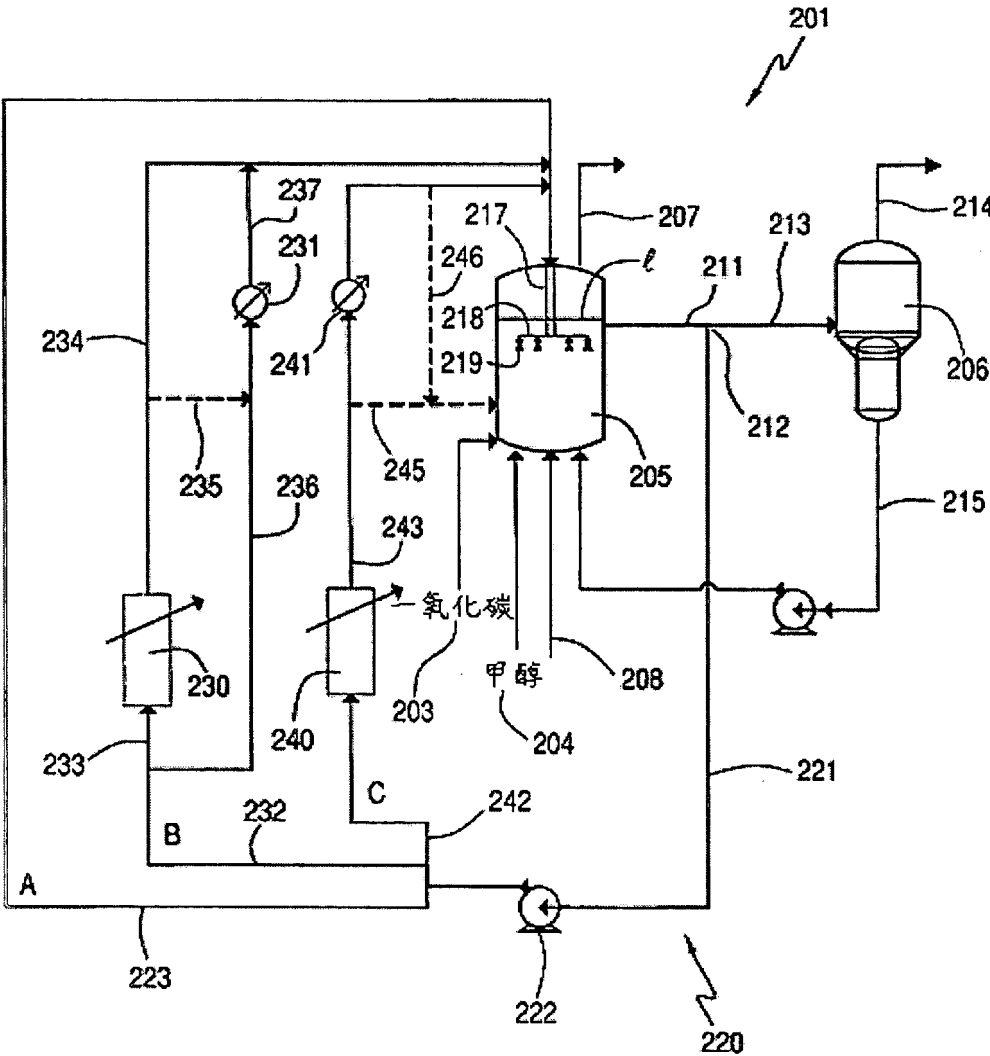
八、圖式：



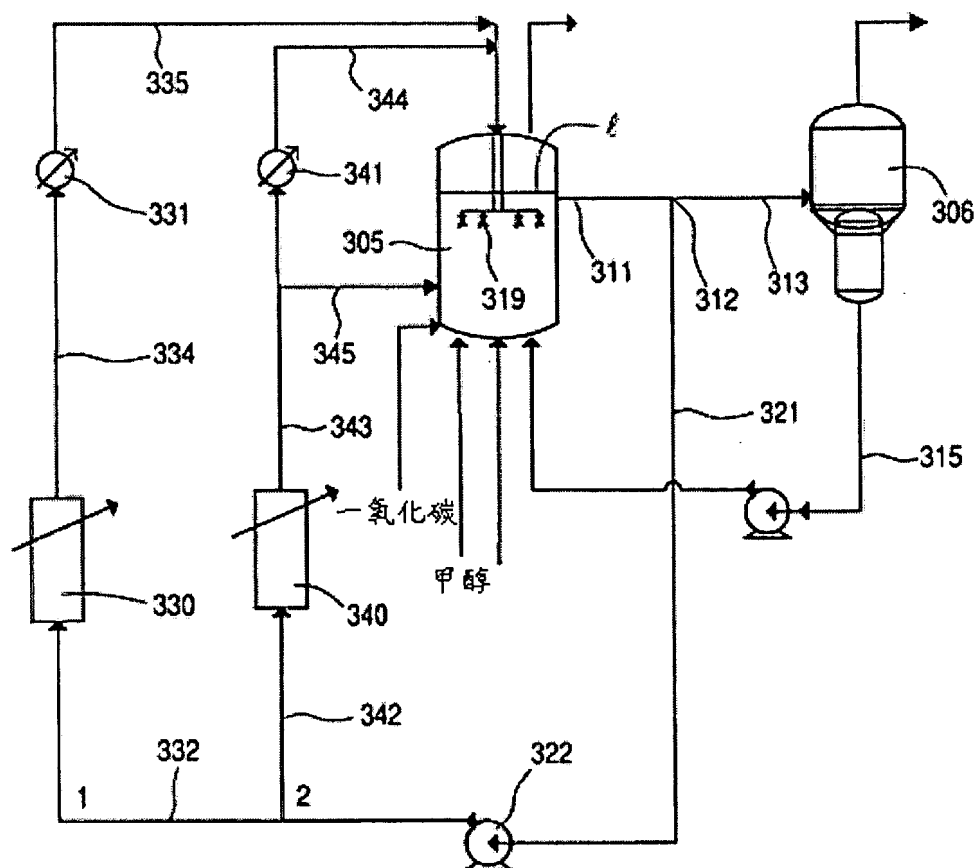
第 1A 圖



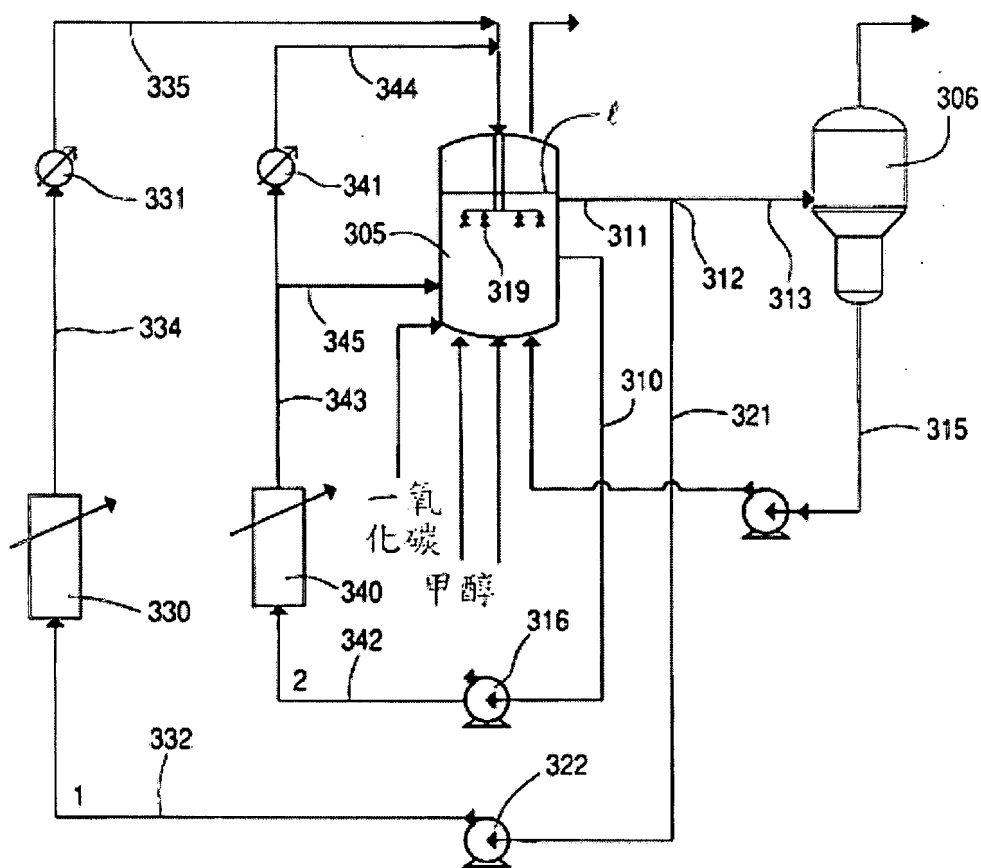
第 1B 圖



第 2 圖



第 3 圖



第 4 圖

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：100146436

※申請日：100.12.15

※IPC 分類：

C07C51/14 (2006.01)
53/08 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

用於生產醋酸之引入件為主的反應器及泵周轉的迴圈

EDUCTOR-BASED REACTOR AND PUMP AROUND LOOPS FOR
PRODUCTION OF ACETIC ACID

二、中文發明摘要：

運用引入件混合機來混合羧化反應器中的反應媒質。從反應器抽取出反應溶液之一部分，並將之引導經過泵周轉迴圈。泵周轉迴圈經由引入件混合機而饋回反應器。此外，泵周轉迴圈可以經過一個或多個蒸汽產生器及/或熱交換器。

三、英文發明摘要：

Eductor mixers are used to mix the reaction medium in a carbonylation reactor. A portion of the reaction solution withdrawn from the reactor and directed through a pump around loop. The pump around loop is fed back to the reactor through the eductor mixers. In addition, a pump around loop may pass through one or more steam generators and/or heat exchangers.

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 (1A) 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

代號	說明
101	反應器

代號	說明
102	供料管
103	開口
104	歧管
105	墊片
106	支承樑
107	支座
108	支座
109	支座
110	配送轂
111	升降臂
112	引入件導管
113	穩定樑
114	引入件混合機
115	桿
116	噴嘴
117	開口
118	散佈器
119	排放孔
121	配送導管
122	管道

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：
無。