

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第2区分

【発行日】平成17年6月16日(2005.6.16)

【公表番号】特表2001-505199(P2001-505199A)

【公表日】平成13年4月17日(2001.4.17)

【出願番号】特願平10-523309

【国際特許分類第7版】

C 0 7 C 51/44

B 0 1 J 38/00

C 0 7 C 51/12

C 0 7 C 53/08

// C 0 7 B 61/00

【F I】

C 0 7 C 51/44

B 0 1 J 38/00 3 0 1 A

C 0 7 C 51/12

C 0 7 C 53/08

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【手続補正書】

【提出日】平成16年9月30日(2004.9.30)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】補正の内容のとおり

【補正方法】変更

【補正の内容】



手続補正書

平成16年 9月30日

特許庁長官 殿

1. 事件の表示

平成10年 特許願 第523309号

2. 補正をする者

住 所 イギリス国、イーシー2エム 7ビーエイ、ロンドン、
フィンズバリー サーカス 1番、ブリタニック ハウス
名 称 ビーピー ケミカルズ リミテッド

3. 代理人

郵便番号107-0062

住 所 東京都港区南青山3丁目4番12号 知恵の館
電話03-3404-5768

(郵送先: 東京都港区赤坂郵便局私書箱第75号)

氏 名 (6401) 弁理士 浜 田 治 雄



4. 補正対象書類名

(1) 請求の範囲

5. 補正対象項目名

(1) 請求の範囲

6. 補正の内容

(1) 別紙の通り



補正書

1. 請求の範囲を次の通り補正します。

請求の範囲

1. メタノールおよび／またはその反応性誘導体のカルボニル化による酢酸の製造方法において、

(a) メタノール供給物とプロセス循環流とをカルボニル化反応器に導入し、メタノールおよび／またはその反応性誘導体を前記カルボニル化反応器にて液体反応組成物における一酸化炭素と反応させて酢酸を生成させ、液体反応組成物はイリジウムカルボニル化触媒と沃化メチル助触媒と、ルテニウム、オスミウム、カドミウム、レニウム、亜鉛、水銀、ガリウム、インジウム、タングステン及びそれらの混合物からなる群より選択される少なくとも1種の促進剤と少なくとも有機濃度の水と酢酸メチルと酢酸生成物を含み；

(b) 液体反応組成物を前記カルボニル化反応器から抜き取ると共に、前記抜き取られた液体反応組成物を少なくとも1つのフラッシュ分離帯域に熱を加えながらまたは加えずに導入して水と酢酸生成物と酢酸メチルと沃化メチルとを含む蒸気フラクションおよびイリジウムカルボニル化触媒と少なくとも1種の促進剤とを含む液体フラクションを生ぜしめ；

(c) 工程(b)からの前記液体フラクションを前記カルボニル化反応器に循環させ；

(d) 工程(b)からの前記蒸気フラクションをライトエンド蒸留カラムに導入し；

(e) 酢酸生成物を含むプロセス流を前記ライトエンド蒸留カラムから除去し；

(f) 酢酸メチルと沃化メチルと水と酢酸とを含む蒸気プロセス流を前記ライトエンド蒸留カラムの頂部から除去し；

(g) 前記ライトエンド蒸留カラムの前記頂部からの前記蒸気プロセス流を凝縮させ；

(h) 前記凝縮ヘッド蒸気プロセス流の少なくとも1部を前記ライトエンド蒸留カラムの前記頂部から前記ライトエンド蒸留カラムまで還流物として循環させると

共に、前記凝縮蒸気プロセス流の1部を前記カルボニル化反応器まで循環させる工程からなり、前記液体反応組成物における水の濃度を(i)前記ライトエンド蒸留カラムの前記頂部からの前記凝縮蒸気プロセス流の少なくとも1部より水を回収および処分すると共に、そこからの残留成分を前記カルボニル化反応器および／またはライトエンド蒸留カラムに循環させ、および(ii)前記カルボニル化反応器への前記メタノール供給物の少なくとも1部を酢酸メチル、ジメチルエーテル、無水酢酸およびその混合物よりなる群から選択される成分で置換することよりなる群から選択される少なくとも1つのプロセス工程により定常状態に維持することを特徴とする酢酸の製造方法。

2. (a')メタノール供給物とプロセス循環流とをカルボニル化反応器に導入し、メタノールおよび／またはその反応性誘導体を前記カルボニル化反応器内で液体反応組成物における一酸化炭素と反応させて酢酸を生成させ、液体反応組成物はイリジウムカルボニル化触媒と沃化メチル助触媒と、ルテニウム、オスミウム、カドミウム、レニウム、亜鉛、水銀、ガリウム、インジウム、タングステン及びそれらの混合物からなる群より選択される少なくとも1種の促進剤と少なくとも有限濃度の水と酢酸メチルと酢酸生成物とを含み；

(b')液体反応組成物を前記カルボニル化反応器から抜き取ると共に、前記抜き取られた液体反応組成物を少なくとも1つのフラッシュ分離帯域に熱を加えながらまたは加えずに導入して、水と酢酸生成物と酢酸メチルと沃化メチルとを含む蒸気フラクションおよびイリジウムカルボニル化触媒と少なくとも1種の促進剤とを含む液体フラクションを生成させ；

(c')工程(b')からの前記液体フラクションを前記カルボニル化反応器に循環させ；

(d')工程(b')からの前記蒸気フラクションをライトエンド蒸留カラムに導入し；

(e')酢酸生成物を含むプロセス流を前記ライトエンド蒸留カラムから除去し；

(f')酢酸メチルと沃化メチルと水と酢酸とを含む蒸気プロセス流を前記ライトエンド蒸留カラムの頂部から除去し；

(g')前記ライトエンド蒸留カラムの前記頂部からの蒸気プロセス流を凝縮させ

て、より少量の沃化メチルと酢酸と酢酸メチルとを含む水リッチ相およびより少量の水と酢酸とを有する沃化メチルおよび酢酸メチルを含む沃化メチルリッチ相を形成させ、前記2つの相を分離し；

(h') 前記沃化メチルリッチ相を前記カルボニル化反応器に循環させると共に、前記水リッチ相の少なくとも1部を前記ライトエンド蒸留カラムに還流物として戻す

工程からなり、前記液体反応組成物における水の濃度を(i') 前記ライトエンド蒸留カラムの前記頂部からの前記水リッチ相の少なくとも1部より水を回収および処分すると共に、そこからの残留成分を前記カルボニル化反応器および／またはライトエンド蒸留カラムに循環させ、および(i i') 前記カルボニル化反応器への前記メタノール供給物の少なくとも1部を酢酸メチル、ジメチルエーテル、無水酢酸およびその混合物よりなる群から選択される成分により置換することよりなる群から選択される少なくとも1つの工程により定常状態濃度に維持する請求の範囲第1項に記載の方法。

3. 水をライトエンド蒸留カラムの頂部からのプロセス流より蒸留により回収する請求の範囲第2項に記載の方法。

4. 水を120～140℃の範囲の底部温度および105～115℃の範囲の頂部温度にて操作される蒸留カラムにて除去する請求の範囲第3項に記載の方法。

5. 水を約1.2 bargの頂部圧力および約1.3 bargの底部圧力にて操作される蒸留カラムにて除去する請求の範囲第3項に記載の方法。

6. 水を底部流として回収すると共に、残留成分を頂部流として回収して、これをライトエンド蒸留カラムのオーバーヘッドに循環させる請求の範囲第3項に記載の方法。

7. 水をライトエンド蒸留カラムの頂部からのプロセス流より、頂部への供給を含む充填ストリップングにて回収する請求の範囲第6項に記載の方法。

8. 前記水リッチ相が酢酸からなり、前記ライトエンド蒸留カラムの前記頂部からの前記水リッチ相の少なくとも1部より水を回収すると共に、処分する前に前記水リッチな相の少なくとも1部を前記ライトエンド蒸留カラムの前記頂部から、中間帯域内に固定床エステル化触媒を有すると共に(i) 触媒帯域の頂部の上方位置

に水性流出液流の供給点が設けられ、(i i) 触媒帯域の底部より下にアルコール供給点が設けられ、(i i i) オーバーヘッドに蒸気取出点が設けられ、さらに(i v) 底部液体取出点が設けられた反応蒸留カラムに供給することにより精製し；前記水リッチ相の少なくとも1部を流出流供給点にて反応蒸留カラムに供給し、少なくとも1種の $C_1 \sim C_3$ アルコールをアルコール供給点にて反応蒸留カラムに供給し、酢酸およびアルコールを触媒帯域で合してアルコールの酢酸エステルを生成するよう反応させ、オーバーヘッド取出点から酢酸エステルを含む蒸気フラクションを除去すると共に、底部液体取出点から前記水リッチ相におけるよりも顕著に少ない酢酸を含有する水を含む処分用の液体流を除去する請求の範囲第2項に記載の方法。

9. 前記底部液体取出流が1重量%未満の酢酸を含む請求の範囲第8項に記載の方法。

10. 前記少なくとも1種の $C_1 \sim C_3$ アルコールがメタノールである請求の範囲第8項に記載の方法。

11. 水を、ライトエンド蒸留カラムから除去された酢酸生成物を含むプロセス流より回収および処分する請求の範囲第1項に記載の方法。

12. ライトエンド蒸留カラムから除去された酢酸生成物を含むプロセス流を乾燥蒸留カラムに導入し、減少した水濃度を有する粗製乾燥酢酸生成物流を水を含む循環プロセス流から分離し、その少なくとも1部をカルボニル化反応器まで直接的または間接的に循環させ、液体反応組成物における水の濃度を乾燥蒸留カラムから除去された水を含む前記循環プロセス流の少なくとも1部より水を回収および処分しかつその残留成分をカルボニル化反応器、ライトエンド蒸留カラムおよび／または乾燥カラムに循環させる追加工程により定常状態濃度に維持する請求の範囲第11項に記載の方法。

13. 乾燥蒸留カラムから除去された水を含む前記循環プロセス流の前記少なくとも1部からの水が酢酸を含み、前記循環プロセス流の少なくとも1部を中間帯域内に固定床エステル化触媒を有すると共に(i) 触媒帯域の頂部より上方位置に水性流出流の供給点が設けられ、(i i) 触媒帯域の底部より下にアルコール供給点が設けられ、(i i i) オーバーヘッドの蒸気取出点が設けられ、さらに(i v)

底部液体取出点が設けられた反応蒸留カラムに供給することにより精製し、乾燥蒸留カラムから除去された水を含む前記プロセス流を流出液流供給点にて反応蒸留カラムに供給し、少なくとも1種の $C_1 \sim C_3$ アルコールをアルコール供給点にて反応蒸留カラムに供給し、酢酸およびアルコールを触媒帯域で合してアルコールの酢酸エステルを生成するよう反応させ、オーバーヘッド取出点から酢酸エステルを含む蒸気フラクションを除去すると共に、底部液体取出点から循環プロセス流供給物におけるよりも顕著に少ない酢酸を含有する水を含む処分用の液体流を除去する請求の範囲第12項に記載の方法。

14. 前記底部液体取出流が1重量%未満の酢酸を含む請求の範囲第13項に記載の方法。

15. 前記少なくとも1種の $C_1 \sim C_3$ アルコールがメタノールである請求の範囲第13項に記載の方法。

16. 前記カルボニル化反応器への前記メタノール供給物の約5%モルまでを酢酸メチル、ジメチルエーテル、無水酢酸およびその混合物よりなる群から選択される成分で置換して、反応生成物における水の濃度を定常状態濃度に維持する請求の範囲第1項に記載の方法。

17. 底部液体取出点から、0.5重量%未満のカルボン酸、好ましくは0.1重量%未満のカルボン酸を含有する水を含む処分用の液体流を除去する請求の範囲第9項及び第14項に記載の方法。

18. 促進剤：イリジウムのモル比が[0.5~1.5]:1である請求の範囲第1~17項のいずれか一項に記載の方法。

19. 蒸留によって乾燥カラムからの循環流の少なくとも一部より水が回収され処分される請求の範囲第12項に記載の方法。

20. 120~140℃の範囲の底部温度と105~115℃の範囲の頂部温度にて操作される蒸留カラムにて水が回収される請求の範囲第19項に記載の方法。

21. 約1.2 bargの頂部圧と約1.3 bargの底部圧にて操作される蒸留カラムにて水が回収される請求の範囲第19項又は第20項に記載の方法。」