

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012年6月21日(21.06.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/081417 A4

- (51) 国際特許分類:
C07C 51/44 (2006.01) C07C 53/08 (2006.01)
B01J 23/46 (2006.01) C07B 61/00 (2006.01)
C07C 51/12 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/077845
- (22) 国際出願日: 2011年12月1日(01.12.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2010-279798 2010年12月15日(15.12.2010) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 株式会社ダイセル (Daicel Corporation) [JP/JP]; 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田三丁目4番5号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 清水 雅彦 (SHIMIZU Masahiko) [JP/JP]; 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP). 斎藤 隆二 (SAITO Ryuji) [JP/JP]; 〒7390695 広島県大竹市東栄2-1-4 株式会社ダイセル内 Hiroshima (JP). 三浦 裕幸 (MIURA

Hiroyuki) [JP/JP]; 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家1239 株式会社ダイセル内 Hyogo (JP). 上野 貴史 (UENO Takashi) [JP/JP]; 〒6711281 兵庫県姫路市網干区新在家1239 株式会社ダイセル内 Hyogo (JP). 中島 英彦 (NAKAJIMA Hidehiko) [JP/JP]; 〒6711281 兵庫県姫路市網干区新在家1239 株式会社ダイセル内 Hyogo (JP).

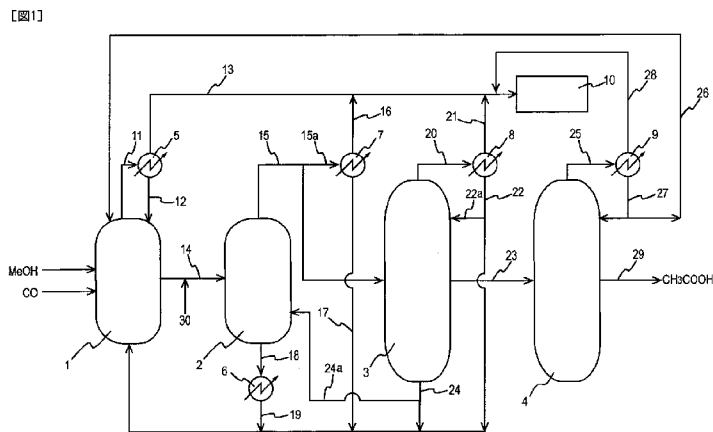
(74) 代理人: 鎌田 充生, 外 (KUWATA Mitsuo et al.); 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満6丁目3番17号みなと梅田ビル6階 鎌田充生特許事務所 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: ACETIC ACID PRODUCTION METHOD

(54) 発明の名称: 酢酸の製造方法



(57) Abstract: A method for producing acetic acid while inhibiting the generation or increase in concentration of hydrogen iodide in a flash evaporation chamber. A serial acetic acid production process comprises: a reaction step in which methanol and carbon monoxide are continuously reacted in a carbonylation reactor in the presence of a catalyst system comprising a metal catalyst, an ionic iodide and methyl iodide; a flash evaporation step in which the reaction mixture is continuously supplied to a flasher from the reactor, and flash evaporation is used to evaporate a volatile component comprising at least the generated acetic acid, methyl acetate, and methyl iodide; and an acetic acid collection step in which a fluid containing the acetic acid is separated from the volatile component, and the acetic acid is collected. In the aforementioned flash evaporation step, the aforementioned volatile component is separated from the aforementioned reaction mixture, and flash evaporation is carried out under conditions in which the content concentration of the methyl acetate in the catalyst solution comprising at least a metal catalyst and an ionic iodide is 0.6 wt% or more.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2012/081417 A4



- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロピア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))
— 補正された請求の範囲及び説明書 (条約第 19 条(1))
- 補正された請求の範囲・説明書の公開日: 2012 年 8 月 16 日

フラッシュ蒸発槽内でのヨウ化水素の濃度上昇又は生成を抑制しつつ酢酸を製造する。金属触媒、イオン性ヨウ化物及びヨウ化メチルで構成された触媒系の存在下、メタノールと一酸化炭素とをカルボニル化反応器で連続的に反応させる反応工程と、前記反応器からの反応混合物をフラッシャーに連続的に供給し、フラッシュ蒸留により、生成した酢酸、酢酸メチルおよびヨウ化メチルを少なくとも含む揮発性成分を蒸発させるフラッシュ蒸留工程と、前記揮発性成分から酢酸を含む流分を分離して、酢酸を回収する酢酸回収工程とを含む一連の酢酸製造プロセスにおいて、前記フラッシュ蒸留工程において、前記反応混合物から前記揮発性成分が分離され、金属触媒およびイオン性ヨウ化物を少なくとも含む触媒液中の酢酸メチル濃度が 0.6 重量%以上となる条件下でフラッシュ蒸留する。

補正された請求の範囲
[2012年06月08日(08.06.2012)国際事務局受理]

- [請求項1] (補正後) 金属触媒、イオン性ヨウ化物及びヨウ化メチルで構成された触媒系の存在下、メタノールと一酸化炭素とをカルボニル化反応器で連続的に反応させる反応工程と、前記反応器からの反応混合物をフラッシュャーに連続的に供給し、フラッシュ蒸留により、生成した酢酸、酢酸メチルおよびヨウ化メチルを少なくとも含む揮発性成分を蒸発させるフラッシュ蒸留工程と、前記揮発性成分から酢酸を含む流分を分離して、酢酸を回収する酢酸回収工程とを含む酢酸の製造方法であって、前記金属触媒がロジウム触媒であり、前記フラッシュ蒸留工程において、前記反応混合物から前記揮発性成分が分離され、金属触媒およびイオン性ヨウ化物を少なくとも含む触媒液中の酢酸メチル濃度が0.6重量%以上および水濃度が8重量%以下の条件下でフラッシュ蒸留する酢酸の製造方法。
- [請求項2] 触媒液中の酢酸メチル濃度が1重量%以上である請求項1記載の酢酸の製造方法。
- [請求項3] 触媒液中の酢酸メチル濃度が1.5重量%以上である請求項1又は2記載の酢酸の製造方法。
- [請求項4] (補正後) 触媒液中の水濃度が0.8～8重量%である請求項1～3のいずれかに記載の製造方法。
- [請求項5] (補正後) イオン性ヨウ化物がヨウ化アルカリ金属であり、触媒液において、金属触媒濃度が重量基準で300ppm以上である請求項1～4のいずれかに記載の製造方法。
- [請求項6] 触媒液において、酢酸濃度が40重量%以上である請求項1～5のいずれかに記載の製造方法。
- [請求項7] (補正後) 触媒液において、イオン性ヨウ化物濃度が50重量%以下であり、ヨウ化メチル濃度が5重量%以下であり、酢酸濃度が45～90重量%であり、酢酸メチル濃度が0.6～3重量%であり、水濃度が0.8～8重量%である請求項1、4～6のいずれかに記載の製造方法。

- [請求項 8] (補正後) 触媒液において、イオン性ヨウ化物濃度が 4 0 重量%以下であり、ヨウ化メチル濃度が 0. 0 1 ~ 4 重量%であり、酢酸濃度が 5 0 ~ 8 5 重量%であり、酢酸メチル濃度が 0. 6 ~ 2 重量%であり、水濃度が 0. 8 ~ 4 重量%である請求項 1、4 ~ 7 のいずれか記載の製造方法。
- [請求項 9] フラッシュ蒸留工程において、絶対圧力 0. 1 ~ 0. 5 MP a でフラッシュ蒸留するとともに、触媒液の温度が 1 0 0 ~ 1 7 0 °C である請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の製造方法。
- [請求項 1 0] 酢酸メチル及び/又は酢酸メチルを生成する成分を、反応混合物及び/又はフラッシャーに添加又は混合することにより、触媒液中の酢酸メチル濃度を調整する請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の製造方法。
- [請求項 1 1] (補正後) 金属触媒、イオン性ヨウ化物及びヨウ化メチルで構成された触媒系の存在下、メタノールと一酸化炭素とをカルボニル化反応器で連続的に反応させる反応工程と、前記反応器からの反応混合物をフラッシャーに連続的に供給し、フラッシュ蒸留により、生成した酢酸、酢酸メチルおよびヨウ化メチルを少なくとも含む揮発性成分を蒸発させるフラッシュ蒸留工程と、前記揮発性成分から酢酸を含む流分を分離して、酢酸を回収する酢酸回収工程とを含む酢酸製造プロセスにおいて、フラッシャー内でのヨウ化水素の生成又は濃度上昇を抑制する方法であつて、前記金属触媒がロジウム触媒であり、前記フラッシュ蒸留工程において、前記反応混合物から前記揮発性成分が分離され、金属触媒およびイオン性ヨウ化物を少なくとも含む触媒液中の酢酸メチル濃度を 0. 6 重量%以上および水濃度を 8 重量%以下となる条件下でフラッシュ蒸留することにより、フラッシャー内でのヨウ化水素の生成又は濃度上昇を抑制する方法。
- [請求項 1 2] フラッシャーの材質が、ニッケル基合金である請求項 1 ~ 1 1 のいずれかに記載の方法。

条約第19条(1)に基づく説明書

請求の範囲第1項及び第11項において、金属触媒を請求の範囲第5項の記載に基づいて「ロジウム触媒」に特定するとともに、触媒液中の水濃度を段落[0074]の記載に基づいて「8重量%以下」に特定した。

請求の範囲第4項および第7項において、水濃度を段落[0074]の記載に基づいて「0.8～8重量%」に特定した。

請求の範囲第5項において、記載事項「金属触媒がロジウム触媒であり」を削除した。

請求の範囲第7項において、酢酸メチル濃度を段落[0072]の記載「0.6重量%以上」および「0.7～3重量%」に基づいて「0.6～3重量%」に特定し、この特定に伴い、請求の範囲第7項を請求の範囲第1, 4～6項の従属項とした。

請求の範囲第8項において、酢酸メチル濃度を段落[0072]の記載「0.6重量%以上」および「0.8～2重量%」に基づいて「0.6～2重量%」に特定するとともに、水濃度を段落[0074]の記載に基づいて「0.8～4重量%」に特定した。