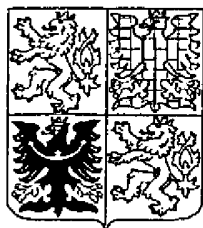


ČESKÁ
REPUBLIKA

(19)



ÚŘAD
PRŮMYSLOVÉHO
VLASTNICTVÍ

ZVEŘEJNĚNÁ PŘIHLÁŠKA
VYNÁLEZU

(12)

(21) 1806-95

(13) A3

6(51)

C 07 F 9/38

(22) 06.01.94

(32) 14.01.93

(31) 93/9300641

(33) GB

(40) 13.12.95

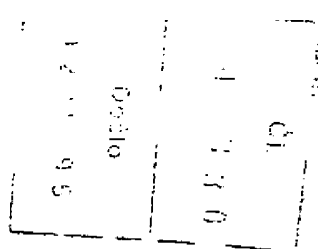
(71) ZENECA LIMITED, London, GB;

(72) Jones Raymond Vincent Heavon, Linlithgow, GB;
Standen Michael Charles Henry, Clackmannan, GB;
Rae Craham Andrew, Gilmerton, GB;
Ritchie David John, Falkirk, GB;

(54) Způsob výroby N-fosfonomethyliminodiectové
kyseliny

(57) Popisuje se způsob výroby N-fosfonomethyliminodiectové
kyseliny, který zahrnuje 1) reakci iminodiectové kyseliny s
kyselinou fosforitou a zdrojem formaldehydu ve vodném
roztoku za přítomnosti koncentrované kyseliny sírové, 2)
filtraci a izolaci produktu vysráženého ve stupni (1), kterým
je N-fosfonomethylimino-diectová kyselina, 3) odebrání
filtrátů ze stupně (2) a případné odstranění části vody z
těchto filtrátů, 4) přenesení filtrátů ze stupně (3) do dalšího
reakčního stupně, ve kterém se podrobí reakci další imino-
diectová kyselina s kyselinou fosforitou a zdrojem
formaldehydu za přítomnosti kyseliny sírové, a poté 5) opa-
kování stupňů (1), (2), (3) a (4) v řadě cyklů.

Obřad
zprávy
veřejně
veřejně



1806-95

Způsob výroby N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny

Oblast techniky

Vynález se týká chemických postupů a zejména způsobu výroby N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny.

Dosavadní stav techniky

N-fosfonomethyliminodiectová kyselina je známá sloučenina, která se používá při výrobě N-fosfonomethylglycinu a některých jeho soli, které jsou účinné jako herbicidy.

Obvyklý způsob výroby N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny je popsán v patentu Spojených Států č. 3 288 846. Příklad 4 tam popisuje způsob, při kterém se hydrochlorid aminodiectové kyseliny (sloučeniny zde označované jako iminodiectová kyselina) za přítomnosti koncentrované kyseliny chlorovodíkové a kyseliny orthofosforečné zahřeje na teplotu 100 °C a poté se podrobí reakci s 38% vodným roztokem formaldehydu a poté paraformaldehydem. Produkt je popsán jako N,N-diectová kyselina-aminomethylenfosfonová kyselina, zde je však označován jako N-fosfonomethyliminodiectová kyselina.

Známa je řada dalších způsobů výroby N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny, včetně například způsobu popsaného v patentu Velké Británie č. 2 154 589, ve kterém se sůl alkalického kovu a iminodiectové kyseliny, jako je sodná sůl, podrobí reakci se silnou minerální kyselinou, jako je kyselina sírová, čímž se vytvoří sůl silné minerální kyseliny s iminodiectovou kyselinou a sůl alkalického kovu s kyselinou (například siran sodný). Sůl silné minerální kyseliny s iminodiectovou kyselinou se poté podrobí reakci s formaldehydem a kyselinou fosforitou a dostatečným množstvím vody pro rozpuštění soli alkalického kovu, přičemž se vysráží produkt, kterým je N-fosfonomethyliminodiectová kyselina.

Podstata vynálezu

Nyní bylo s překvapením zjištěno, že filtráty z reakce iminodiectové kyseliny s kyselinou fosforitou a formaldehydem je možné mnohonásobně recyklovat bez nadměrného nárůstu obsahu vedlejšího produktu, za předpokladu, že se použije jako minerální kyselina kyselina sírová a že výchozím materiálem je kyselina iminodiectová a nikoli její sůl s alkalickým kovem.

V souladu s tím vynález popisuje způsob výroby N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny, který zahrnuje:

- 1) reakci iminodiectové kyseliny s kyselinou fosforitou a zdrojem formaldehydu ve vodném roztoku za přítomnosti koncentrované kyseliny sírové,
- 2) filtraci a izolaci produktu vysráženého ve stupni (1), kterým je N-fosfonomethyliminodiectová kyselina,
- ~~3) odebrání filtrátů ze stupně (2) a případné odstranění části vody z těchto filtrátů,~~
- 4) přenesení filtrátů ze stupně (3) do dalšího reakčního stupně, ve kterém se podrobí reakci další iminodiectová kyselina s kyselinou fosforitou a zdrojem formaldehydu za přítomnosti kyseliny sírové, a poté
- 5) opakování stupňů (1), (2), (3) a (4) v řadě cyklů.

Způsob podle vynálezu se dobře hodí pro práci kontinuálním způsobem, zejména při velkých objemech výroby. Je tudíž třeba rozumět, že výše uvedené stupně (1) až (5) mohou představovat hypotetické stupně v kontinuální reakci, při které se proud filtrátu kontinuálně recykluje do reakční nádoby (popřípadě přes stupeň při kterém se odstraňuje voda) a při kterém se do reakční nádoby kontinuálně dodávají reaktanty, a kyselina N-fosfonomethyliminodiectová, jako produkt který se sráží, se odstraňuje kontinuální nebo

semikontinuální filtrací.

Použití recyklační reakce podle vynálezu obecně má za následek snížení množství kapalného odpadu vytvářeného daným způsobem a nejúčinnější využití výchozích materiálů.

Zdrojem formaldehydu je vhodné buďto vodný roztok formaldehydu nebo paraformaldehyd, v závislosti na množství vody, které je žádoucí přidávat. Pokud se z filtrátů ve stupni (3) odstraňuje voda, může být žádoucí použít v následujících reakčních stupních (1) paraformaldehyd, pro snížení množství vody, které je nutno odstraňovat.

Kyselinu fosforitou je do reakce možno zavádět v pevné formě (například jako pevnou látku ve formě šupinek), jako kapalnou taveninu nebo jako vodný roztok, například jako komerčně dostupný vodný roztok typicky obsahující 70 % hmot. kyseliny fosforité.

Ve stupni (3) se výhodně odstraňuje voda a mezi vhodné metody odstraňování vody patří například destilace filtrátů ze stupně (2) nebo použití polopropustného prostředí. Destilace filtrátů může probíhat při atmosférickém tlaku při teplotě varu filtrátového média, typicky řádově 140 °C v době ukončení destilace. Bylo zjištěno, že destilace při atmosférickém tlaku je uspokojivá a umožňuje mnohonásobné opakování cyklu. Může však být žádoucí snížit možné vytváření vedlejších produktů prováděním destilačního stupně za sníženého tlaku a při odpovídajícím způsobem nižší teplotě varu filtrátového média. Možnost sníženého vytváření vedlejších produktů musí vyrovnat zvýšené náklady na práci za sníženého tlaku. Obecně je však výhodné provádět destilaci filtrátového média při teplotě od 20 °C do 140 °C, například od 60 °C do 140 °C, zejména od 60 °C do 90 °C nebo zvláště od 40 °C do 100 °C, za příslušně sníženého tlaku.

Pokud je to žádoucí, je možné pevný produkt ze stupně

(1) izolovaný filtrací, kterým je kyselina N-fosfonomethyl-iminodioctová, promívat pro odstranění filtrátového media které na něm ulpělo. Pokud je to žádoucí, je možné alespoň část takových kapalin z promývu přidávat k filtrátům, a rozumí se, že termíny "filtráty" a "filtrátové medium", jak jsou zde používány, zahrnují takové kapaliny z promývu, pokud jsou přítomny. Je však třeba vzít v úvahu, že přidání kapalin z promývu k filtrátům zvyšuje množství vody, které je třeba popřípadě odstraňovat ve stupni (3) a přidávání kapalin z promývu k proudu filtrátu tudíž nemusí být vždy žádoucí.

V průběhu destilačního stupně (pokud je přítomen) je možné odstranit alespoň část formaldehydu přítomného ve filtrátech. Pokud je to žádoucí, je možné formaldehyd v průběhu destilačního stupně izolovat a vrátit jej do reakčního stupně (1). Recyklace formaldehydu však není nutná a netvoří podstatnou součást vynálezu.

Reakční podmínky používané v průběhu reakčního stupně (1) jsou převážně běžné. Je možné použít reaktanty ve v podstatě stechiometrickém poměru, ačkoli může být žádoucí použít lehký molární nadbytek vzhledem k iminodioctové kyselině. Je tedy výhodné použít od 1 do 1,5 mol kyseliny fosforité na mol iminodioctové kyseliny, například 1,1 mol kyseliny fosforité na mol iminodioctové kyseliny. Podobně je výhodné použití od 1 do 2 mol formaldehydu na mol iminodioctové kyseliny, například 1,2 mol formaldehydu na mol iminodioctové kyseliny. Kyselina sírová není v průběhu reakce spotřebovávána jako primární reaktant, a mělo by být použito dostatečné množství kyseliny sírové pro dosažení odpovídající reakční rychlosti. Je tedy výhodné použít od 0,5 do 2 mol kyseliny sírové na mol kyseliny iminodioctové, například přibližně 1 mol kyseliny sírové na mol kyseliny iminodioctové.

Je vhodné použít dostatečné množství vody, aby se

zajistila pohyblivost reakčního media. Obecně je možno použít až 10 nebo více mol vody na mol iminodioxové kyseliny, ale množství vody nutné pro získání účinného reakčního media může odborník snadno určit.

V reakčním stupni (1) způsobu podle vynálezu je výhodné přidat zdroj formaldehydu do předsměsi kyseliny iminodioxové, kyseliny fosforité a kyseliny sírové. Pokud se jako zdroj formaldehydu použije vodný formaldehyd, přidá se s formaldehydem voda. Obvyklý komerčně dostupný vodný roztok formaldehydu obsahuje například od přibližně 36 % (hmotnost / hmotnost) do přibližně 50 % (hmotnost / hmotnost) formaldehydu společně s například přibližně 0,5 - 1,5 % (hmotnost / hmotnost) methanolu jako stabilizátoru. Pokud se takový roztok použije například v poměru 1 ml formaldehydu na mol kyseliny iminodioxové, přidá se přibližně 1,7 - 3 mol vody na mol kyseliny iminodioxové. Může to být dostatečné množství vody a potom se do předsměsi kyseliny iminodioxové, kyseliny fosforité a kyseliny sírové nemusí přidávat žádná voda. Obecně je však výhodné k této předsměsi vodu přidávat, tak, že celkové množství vody, včetně vody přidané se zdrojem formaldehydu nebo s kyselinou fosforitou, činí až 10 ml vody na mol kyseliny iminodioxové. Pokud se jako zdroj formaldehydu použije paraformaldehyd, nepřidá se s formaldehydem žádná voda nebo methanol, a k předsměsi se přidává požadované množství vody.

Reakční teplota je typicky od 50 °C do 150 °C, například od 105 °C do 125 °C, nebo zejména od 110 °C do 120 °C. Nižší reakční teploty, například reakční teploty nižší než 100 °C, mohou vykazovat jako výhodu snížení množství jakýchkoli vedlejších produktů vytvářených v průběhu reakce, to je však vyrovnáno sníženou rychlostí reakce. Může být potom výhodné upravit podmínky způsobu ve prospěch zvýšené rychlosti reakce, například zvýšením množství kyseliny sírové v reakční směsi.

Množství další kyseliny iminodioctové, kyseliny fosforité, kyseliny sírové a formaldehydu, přidávaná do dalšího reakčního stupně nebo stupňů (1) následujících recyklaci filtrátů přes stupně (4) a (5) samozřejmě závisí na množstvích reaktantů která se vracejí recyklaci, a zvolí se tak, aby se celkové množství (poměr) reaktantů udržovalo v požadovaném rozmezí. Podobně se množství vody odstraňované v průběhu stupně (3), například destilací filtrátů, zvolí obecně tak, aby se udržovala požadovaná celková vodní bilance a požadované koncentrace reaktantů ve vodném mediu.

Ačkoli způsob podle vynálezu je vhodný pro řadu opakování cyklů, dochází v průběhu recyklace nevyhnutelně k progresivnímu nárůstu obsahu vedlejších produktů. Samozřejmě je možné pokračovat v recyklaci až do vytvoření nadměrného množství vedlejších produktů. Obecně je však výhodné kompenzovat nárůst obsahu vedlejších produktů prováděním čištění proudu filtrátů, které spočívá v tom, že se v každém cyklu odstraní část proudu filtrátů. Je možné použít

například odstranění až 25 % až 40 % nebo více proudu filtrátů, obecně je však výhodné neodstraňovat více než 50 %, a typické může být odstraňování až 40 % proudu filtrátů, ačkoli je samozřejmě možné snížit hladinu vedlejších produktů (jak je zde popsáno) tak, že je možné provádět odstraňování v ještě menších množstvích nebo dokonce neprovádět odstraňování vůbec. Při kontinuální práci lze použít odpovídající odstraňovací proud.

Vynález ilustrují následující příklady, ve kterých jsou všechny části a procenta částmi a procenty hmotnostními, pokud není uvedeno jinak.

Příklady provedení vynálezu

Příklad 1

Cyklus 1

Do tříhrdlé baňky o objemu 250 ml opatřené teploměrem, chladičem, prikapávací nálevkou a míchadlem se vloží 17,3 g (0,961 mol) vody. Do reakční baňky se za míchání přidá 42,6 g (0,514 mol) kyseliny fosforité, 50,0 g (0,500 mol) kyseliny sírové (která se přidává v průběhu 10 minut, během nichž se pozoruje zvýšení teploty z 20 °C na 60 °C) a 66,5 g (0,490 mol) iminodiocetové kyseliny. Reakční směs se poté zahřeje na teplotu 120 °C a v průběhu 1 hodiny se přidá 48,2 g 36,1% formaldehydu (0,580 mol). V průběhu přidávání se teplota udržuje mezi 110 °C a 120 °C. Po ukončení přidávání se reakční směs nechá v průběhu 90 minut ochladit na teplotu 25 °C a reakční směs se zfiltruje. Filtrační koláč se promyje 57 ml vody a produkt se vysuší ve vakuové sušárně, čímž se získá 67,9 g N-fosfonomethyliminodiocetové kyseliny o čistotě 98,0 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 59,8 %. Filtráty (128,0 g) a promývací voda (66,0 g) se zanalyzují, a zjistí se, že obsahují 13,7 %, respektive 5,5 % N-fosfonomethyliminodiocetové kyseliny. To odpovídá celkovému výtěžku konverze 78,9 % N-fosfonomethyliminodiocetové kyseliny.

Destilace filtrátů

122,3 g filtrátů z cyklu 1 se umístí zpět do reakční baňky a aparatura se upraví pro destilaci. Filtráty se zahřívají na teplotu varu a odstraní se 27 g destilátu, přičemž konečná teplota obsahu nádoby činí 140 °C. Zahuštěné filtráty se poté použijí v cyklu 2.

Cyklus 2

Zahuštěné filtráty z cyklu 1 se umístí do tříhrdlé baňky o objemu 500 ml opatřené teploměrem, chladičem, příkapávací nálevkou a míchadlem. Do baňky se za míchání přidá 40,8 g (0,493 mol) kyseliny fosforité, 63,6 g (0,469 mol) kyseliny iminodioctové a 5,0 g (0,050 mol) kyseliny sírové. Přídavek kyseliny sírové vychází z předpokladu, že v promývací kapalině a filtračním koláči došlo k úbytku 10 % kyseliny sírové. Reakční směs se poté zahřeje na teplotu 120 °C a v průběhu 1 hodiny se přidá 46,1 g 36,1% formalddehydu (0,555 mol). V průběhu přidávání se teplota udržuje mezi 110 °C a 120 °C. Po ukončení přidávání se reakční směs nechá v průběhu 90 minut ochladit na teplotu 25 °C. Reakční směs se zfiltruje a filtrační koláč se promyje 57 ml vody. Produkt se vysuší ve vakuové sušárně, čímž se získá 102,2 g N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny o čistotě

95,4 %, což odpovídá kumulativnímu izolovanému výtěžku 75,3 %. Filtráty (99,3 g) a promývací voda (76,8 g) se zanalyzují, a zjistí se, že obsahují 7,5 %, respektive 3,7 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny. To odpovídá celkovému kumulativnímu výtěžku konverze 81,7 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny.

Destilace filtrátů

95,1 g filtrátů z reakce 2 se umístí zpět do reakční baňky a aparatura se upraví pro destilaci. Filtráty se zahřívají na teplotu varu a odstraní se 20,5 g destilátu, přičemž konečná teplota obsahu nádoby činí 140 °C. Zahuštěné filtráty se poté použijí v cyklu 3.

Cyklus 3

Zahuštěné filtráty z reakce 2 se umístí do tříhrdlé

baňky o objemu 250 ml opatřené teploměrem, chladičem, přikapávací nálevkou a míchadlem. Do baňky se za míchání přidá 39,1 g (0,472 mol) kyseliny fosforité, 60,9 g (0,449 mol) kyseliny iminodioxové a 4,7 g (0,0479 mol) kyseliny sírové. Reakční směs se poté zahřeje na teplotu 120 °C a v průběhu 1 hodiny se přidá 44,2 g 36,1% formaldehydu (0,533 mol). V průběhu přidávání se teplota udržuje mezi 110 °C a 120 °C. Po ukončení přidávání se reakční směs nechá v průběhu 90 minut ochladit na teplotu 25 °C. Reakční směs se zfiltruje a filtrační koláč se promyje 57 ml vody. Produkt se vysuší ve vakuové sušárně, čímž se získá 90,1 g N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny o čistotě 95,6 %, což odpovídá kumulativnímu izolovanému výtěžku 78,2 %. Filtráty (91,1 g) a promývací voda (71,8 g) se zanalyzují, a zjistí se, že obsahují 5,0 %, respektive 3,0 % N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny. To odpovídá celkovému kumulativnímu výtěžku konverze 82,3 % N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny.

Destilace filtrátů

88,3 g filtrátů z cyklu 3 se umístí zpět do reakční baňky a destiluje se jako v předchozích případech, přičemž se odstraní 20,0 g destilátu.

Cyklus 4

Zahuštěné filtráty z cyklu 3 se umístí do tříhrdlé baňky o objemu 250 ml opatřené teploměrem, chladičem, přikapávací nálevkou a míchadlem. Do baňky se za míchání přidá 37,9 g (0,457 mol) kyseliny fosforité, 59,0 g (0,434 mol) kyseliny iminodioxové a 4,64 g (0,046 mol) kyseliny sírové. Reakční směs se poté zahřeje na teplotu 120 °C a v průběhu 1 hodiny se přidá 42,8 g 36,1% formaldehydu (0,515 mol). V průběhu přidávání se teplota

udržuje mezi 110 °C a 120 °C. Po ukončení přidávání se reakční směs nechá v průběhu 90 minut ochladit na teplotu 25 °C. Reakční směs se zfiltruje a filtrační koláč se promyje 57 ml vody. Produkt se vysuší ve vakuové sušárně, čímž se získá 66,2 g N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny o čistotě 91,4 %, což odpovídá kumulativnímu izolovanému výtěžku 74,2 %. Filtráty (92,8 g) a promývací voda (70,7 g) se zanalyzují, a zjistí se, že obsahují 5,4 %, respektive 4,2 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny. To odpovídá celkovému kumulativnímu výtěžku konverze 78,2 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny.

V příkladu 1 byla v každém cyklu odstraněna část filtrátů pro účely analýzy. Následující reakce byly odpovídajícím způsobem sniženy.

Kumulativní výtěžky se počítají za použití následujících rovnic:

Kumulativní izolovaný výtěžek =

$$\frac{\sum (M \text{ PIDA IZO})}{\sum (M \text{ iminodioctové kyseliny})} \times 100$$

Kumulativní výtěžek konverze =

$$\frac{(M \text{ PIDA v n-tých filtrátech}) + \sum (M \text{ PIDA IZO}) + \sum (M \text{ PIDA PROM})}{\sum (M \text{ iminodioctové kyseliny})} \times 100$$

ve kterých

M znamená počet molů,

PIDA IZO znamená izolovaná N-fosfonomethyliminodioctová kyselina,

PIDA PROM znamená N-fosfonomethyliminodioxiová kyselina v promývací kapalině,

n je počet recyklací ($n = 0 - 3$), a

Σ je suma od $n = 0$ do $n = n$.

Je třeba vzít v úvahu, že ve všech cyklech byl do dalšího stupně přenašen pouze původní filtrát, přičemž matečný loup ve filtračním koláči představuje účinné čištění (odstraňování) filtrátu, které činí přibližně 25 %.

Příklad 2

Cyklus 1

Do tříhrdlé baňky o objemu 500 ml opatřené teploměrem, chladičem, přikapávací nálevkou a míchadlem se vloží 11,2 g (0,623 mol) vody. Za míchání se přidá 42,6 g (0,514 mol) 99% kyseliny fosforité, přičemž se teplota sníží z 20 °C na 12 °C. Poté se v průběhu 10 minut přidá 49,8 g (0,498 mol) 98% kyseliny sírové, přičemž se teplota udržuje pomocí vodní lázně pod 50 °C. Poté se do reakční baňky přidá 66,5 g (0,479 mol) 95,4% kyseliny iminodioxiové. Reakční směs se poté zahřeje na teplotu 115 °C a v průběhu 2 hodin se přidá 48,2 g 37,0% formaldehydu (0,594 mol). V průběhu přidávání se teplota udržuje mezi 110 °C a 120 °C. Po ukončení přidávání se teplota reakční směsi udržuje na 115 °C po dobu další hodiny a poté se reakční směs nechá ochladit na 90 °C. V průběhu 1 hodiny se přidá druhá várka vody (92,0 g), přičemž se v průběhu přidávání teplota udržuje na přibližně 90 °C. Reakční směs se nechá přes noc samovolně ochladit. Suspence se zfiltruje, promyje se 57,0 g studené vody a výsledný produkt se suší při teplotě 60 °C ve vakuové sušárně přes noc, čímž se získá 100,2 g N-fosfonomethyliminodioxiové kyseliny o čistotě 95,7 %, což odpovídá izolovanému výtěžku

88,1 %. Filtráty (172,8 g) a promývací voda (71,7 g) obsahují 4,8 %, respektive 1,2 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny. To odpovídá celkovému výtěžku konverze 93,5 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny.

Smíchané filtráty a promývací kapaliny (236,0 g) se vloží do míchané baňky o objemu 500 ml upravené pro vakuovou destilaci. Zařízení se vyvakuje na tlak 6666 Pa a postupně se provádí zahřívání k oddestilování vody, až se teplota v baňce zvýší na 100 °C. Zbytek (71,6 g) se ochladí a analyzuje se v něm obsah N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny, který činí 9,1 % a obsah vlhkosti, který činí 14,9 %.

Cyklus 1 (shrnující tabulka)

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina iminodiectová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	42,6 g	99,0 %	42,2 g	0,514	1,07
kyselina sírová	49,8 g	98,0 %	48,8 g	0,498	1,04
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92,0 g				
voda (k promývání)	57,0 g				

Cyklus 2

Zahuštěný filtrát a kapalina z promyvu (66,8 g, což odpovídá 90 % původního množství před odstraněním vzorků, s obsahem 10 g vody a 6,08 g (0,027 mol) N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny) se vloží s dalšími 1,2 g vody (odpovídá celkově 11,2 g, 0,622 mol) do výše popsané reakční baňky, a přidá se 39,7 g (0,479 mol) 99% kyseliny fosforité. V průběhu 5 minut se přidá kyselina sírová (nahrazuje se 10 %, t.j. 5,0 g při koncentraci 98 %, 0,05 mol), a poté se přidá 66,5 g (0,479 mol) 95,4% kyseliny iminodioctové. Poté se pokračuje postupem z cyklu 1, čímž se získá 107,6 g suchého produktu o čistotě 98,9 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 97,9 %. Filtrát (179,6 g) a kapalina z promyvu (54,8 g) obsahují 2,61 %, respektive 1,66 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny. Celkový výtěžek, bez N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny recyklované s filtrátem, představuje v tomto stupni výtěžek konverze 97,4 %.

Cyklus 2 s 90% recyklací kyselých filtrátů
(shrnující tabulka)

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
zahuštěné filtráty	66,8 g				
kyselina iminodioctová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda (viz text): do	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3

pokračování tabulky

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina fosforitá	39,7 g	99,0 %	39,3 g	0,479	1
kyselina sírová	5,0 g	98,0 %	4,9 g	0,050	0,1
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92,0 g				
voda (k promývání)	75,0 g				

Cykly 3 až 8

V cyklech 3 až 8 se následujícím způsobem opakuje postup jako v cyklu 2, s tím, že se provedou přizpůsobení obsahu vody zahuštěného filtrátu (odpovídající recyklaci 90 % v každém cyklu). Zkratka PIDA používaná v tabulce označuje N-fosfonomethyliminodiocetovou kyselinu.

cyklus č.	koncentrovaný filtrát + + kapaliny z promyvu		obsah obsah PIDA (%)	přidaná voda (g)	izolovaný produkt čistota (%)	výtěžek výtěžek (%)	výtěžek konverze (%)
	použitá hmotnost (g)	obsah vody (%)					
3	67,2	12,9	8,2	2,5	96,4	92,3	93,4
4	71,3	10,5	9,2	3,7	94,8	89,8	89,3
5	75,8	7,7	7,6	5,4	94,3	90,2	89,6
6	81,3	8,9	6,2	4,0	96,6	87,5	89,7
7	90,7	7,8	8,1	4,1	96,1	87,5	86,6
8	96,8	6,2	6,3	5,2	96,6	80,0	81,2

Příklad 3

Cyklus 1

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina iminodioctová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	42,6 g	99,0 %	42,2 g	0,514	1,07

pokračování tabulky

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přepočtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina sirová	49,8 g	98,0 %	48,8 g	0,498	1,04
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92,0 g				
voda (k promývání)	57,0 g				

Postupuje se postupem jako v cyklu 1 v příkladu 2 za použití výše uvedených množství.

~~Výsledná suspenze se zfiltruje, promyje se 57,0 g studené vody a výsledný produkt se suší při teplotě 60 °C ve vakuové sušárně přes noc, čímž se získá 102,2 g N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny o čistotě 95,6 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 89,6 %. Filtráty (172,0 g) a promývací voda (64,4 g) obsahují 1,71 %, respektive 1,17 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny. To odpovídá celkovému výtěžku konverze 93,0 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny.~~

Smíchané filtráty a promývací kapaliny (229,0 g) se vloží do míchané baňky o objemu 500 ml upravené pro vakuovou destilaci. Zařízení se vyvakuuje na tlak 6666 Pa a postupně se provádí zahřívání k oddestilování vody, až se teplota v baňce zvýší na 100 °C. Zbytek (72,6 g) se ochladí a analyzuje se v něm obsah N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny, který činí 7,1 % a obsah vlhkosti, který činí 17,6 %.

Cyklus 2 se 100% recyklací kyselých filtrátů

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
zahuštěné filtráty	70,0 g				
kyselina iminodioxiová	62,2 g	95,8 %	59,6 g	0,448	1
voda : viz text					
kyselina fosforitá	37,1 g	99,0 %	36,7 g	0,448	1
kyselina sírová	0,9 g	98,0 %	0,9 g	0,009	0,02
roztok formaldehydu	45,0 g	37,0 %	16,7 g	0,555	1,24
voda (k ředění)	84 g				
voda (k promývání)	53 g				

Postup

Zahuštěný filtrát a kapalina z promyvu (70,0 g, s obsahem 12,3 g vody a 4,97 g N-fosfonomethyliminodioxiové kyseliny) se vloží do reakční banky a přidá se 37,1 g (0,448 mol) 99% kyseliny fosforité. Přidá se kyselina sírová (nahrazují se 2 %, t.j. 0,9 g při koncentraci 98 %, 0,009 mol), a poté se přidá 62,2 g (0,448 mol) 95,4% kyseliny iminodioxiové. Reakční směs se zahřeje na teplotu 115 °C a v průběhu 2 hodin se přidá 45,0 g 37% formaldehydu (0,555 mol). Množství reaktantů jsou vypočítána tak, aby použití zahuštěných filtrátů odpovídalo 100% recyklaci před odstraněním

vzorků pro analýzu. Poté se postupuje standardním postupem z příkladu 2, za použití 84 g vody pro naředění a 53 g vody pro promytí filtračního koláče, čímž se získá 100,4 g suchého produktu o čistotě 96,8 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 95,6 %. Filtrát (167,0 g) a kapalina z promyvu (49,0 g) obsahují 2,03 %, respektive 1,5 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny. Celkový výtěžek, bez N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny recyklované se zahustěným filtrátem, představuje v tomto stupni výtěžek konverze 94,6 %.

Cykly 3 až 8

V cyklech 3 až 8 se opakuje postup jako v cyklu 2, s tím, že se provedou přizpůsobení obsahu vody v původní směsi před přidáním formaldehydu, a tato úprava činí, pokud je to možné, 1,3 mol na mol kyseliny iminodioctové.

Výsledky jsou uvedeny níže v tabulce, kde zkratka IDAA označuje kyselinu iminodioctovou a zkratka PIDA označuje kyselinu N-fosfonomethyliminodioctovou.

cyklus č.	rozsah (v molech IDAA)	použitá hmotnost (g)	obsah vody (%)	koncentrovaný filtrát + kapaliny z promyvu	obsah PIDA (%)	přidaná voda (g)	izolovaný produkt	čistota (%)	výtěžek (%)	výtěžek konverze (%)
3	0,423	68,6	14,5		6,6	žádná		92,8	89,9	90,3
4	0,388	67,6	13,7		8,0	žádná		94,1	91,0	89,7
5	0,352	71,4	19,9		6,9	žádná		93,8	88,6	87,5
6	0,324	66,5	10,7		6,2	0,5		91,8	84,0	83,0
7	0,293	68,5	11,5		6,7	žádná		95,6	82,3	80,9
8	0,260	69,7	7,1		5,3	žádná		89,2	62,0	55,8

Poznámka: skutečnost, že výtěžky konverze se zdají po třetím cyklu vždy nižší než izolované výtěžky je pravděpodobně způsobena obtížným odhadem obsahu N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny v relativně znečištěných vzorcích filtrátu.

Příklad 4

Cyklus 1

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přepočtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina iminodioctová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	42,6 g	99,0 %	42,2 g	0,514	1,07
kyselina sírová	49,8 g	98,0 %	48,8 g	0,498	1,04
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92,0 g				
voda (k promývání)	57,0 g				

Postupuje se postupem jako v cyklu 1 v příkladu 2 za použití výše uvedených množství.

Výsledná suspenze se zfiltruje, promyje se 57,0 g studené vody a výsledný produkt se suší při teplotě 60 °C ve vakuové sušárně přes noc, čímž se získá 103,1 g N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny o čistotě 98,0 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 91,2 %. Filtráty (178,2 g) a promývací

voda (56,3 g) obsahují 3,6 %, respektive 1,8 % N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny. To odpovídá celkovému výtěžku konverze 98,0 % N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny.

Smíchané filtráty a promývací kapaliny (224,2 g) se vloží do míchané baňky o objemu 500 ml upravené pro vakuovou destilaci. Zařízení se vyvakuje na tlak 533 - 3333 Pa a postupně se provádí zahřívání k oddestilování vody, až se teplota v baňce zvýší na 100 °C. Zbytek (70,2 g) se ochladí a analyzuje se v něm obsah N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny, který činí 11,3 % a obsah vlhkosti, který činí 15,3 %.

Cyklus 2 s 62,5% recyklací kyselých filtrátů

shrnující tabulka

materiál	skutečná koncentrace		hmotnost přepočtená na 100 %	mol	molární poměr
	hmotnost	(čistota)			
zahuštěné filtráty	45,8 g				
kyselina iminodioxová	66,5 g	95,3 %	63,7 g	0,479	1
voda (viz text): do	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	39,7 g	99,0 %	39,3 g	0,479	1
kyselina sírová	18,7 g	98,0 %	18,3 g	0,187	0,39
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92 g				
voda (k promývání)	57 g				

Postup

Zahuštěný filtrát a kapalina z promyvu (45,8 g, což odpovídá 62,5 % původního množství před odstraněním vzorků, s obsahem 7,0 g vody a 5,2 g (0,023 mol) N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny) se vloží spolu s dalšími 4,2 g vody (které je tak celkem 11,2 g, 0,622 mol) do výše popsané reakční banky a přidá se 39,7 g (0,479 mol) 99% kyseliny fosforité. V průběhu 5 minut se přidá kyselina sírová (nahrazuje se 37,5 %, t.j. 18,7 g při koncentraci 98 %, 0,187 mol), a poté se přidá 66,5 g (0,479 mol) 95,4% kyseliny iminodioctové. Poté se postupuje výše popsaným postupem, čímž se získá 106,3 g suchého produktu o čistotě 100 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 97,8 %. Filtrát (184,8 g) a kapalina z promyvu (55,6 g) obsahují 2,2 %, respektive 1,3 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny. Celkový výtěžek, bez N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny recyklované s filtrátem, představuje v tomto stupni výtěžek konverze 97,4 %.

Cykly 3 až 8

V cyklech 3 až 8 se opakuje následujícím způsobem postup jako v cyklu 2, s tím, že se provedou přizpůsobení obsahu vody zahuštěných filtrátů (odpovídající recyklaci 62,5 % v každém cyklu). Zkratka PIDA používaná v tabulce označuje N-fosfonomethyliminodioctovou kyselinu.

cyklus č.	koncentrovaný filtrát + + kapaliny z promyvu			přidána	izolovaný	výtěžek	
	použitá hmotnost (g)	obsah vody (%)	obsah PIDA (%)	voda (g)	čistota (%)	výtěžek (%)	konverze (%)
3	45,5	16,1	7,1	3,9	98,9	91,4	95,2
4	47,5	10,4	10,4	6,3	96,3	92,1	93,2
5	46,1	8,4	7,8	6,3	95,4	90,7	92,2
6	48,3	7,5	7,3	7,6	96,9	90,6	92,6
7	49,4	8,5	9,4	7,0	96,9	88,3	90,8
8	51,1	7,8	10,5	7,2	99,6	93,5	95,1

Příklad 5

Cyklus 1

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přepočtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina iminodiocetová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	42,6 g	99,0 %	42,2 g	0,514	1,07

pokračování tabulky

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina sírová	49,8 g	96,0 %	48,8 g	0,498	1,04
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92,0 g				
voda (k promývání)	57,0 g				

Postupuje se postupem jako v cyklu 1 v příkladu 2 za použití výše uvedených množství.

Výsledná suspenze se zfiltruje, promyje se 57,0 g studené vody a výsledný produkt se suší při teplotě 60 °C ve vakuové sušárně přes noc, čímž se získá 102,2 g N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny o čistotě 97,3 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 91,5 %. Filtráty (175,4 g) a promývací voda (57,9 g) obsahují 1,9 %; respektive 1,2 % N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny. To odpovídá celkovému výtěžku konverze 95,2 % N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny.

Smíchané filtráty a promývací kapaliny (227,8 g) se vloží do míchané baňky o objemu 500 ml upravené pro vakuovou destilaci. Zařízení se vyvakuuje na tlak 6666 Pa a postupně se provádí zahřívání k oddestilování vody, až se teplota v baňce zvýší na 100 °C. Zbytek (68,8 g) se ochladí a analyzuje se v něm obsah N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny, který činí 6,5 % a obsah vlhkosti, který činí 14,2 %.

Cyklus 2 s 95% recyklací kyselých filtrátů

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
zahuštěné filtráty	66,9 g				
kyselina iminodioxiová	66,5 g	95,3 %	63,7 g	0,479	1
voda (viz text): do	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	39,7 g	99,0 %	39,3 g	0,479	1
kyselina sírová	2,5 g	98,0 %	2,4 g	0,025	0,05
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92 g				
voda (k promývání)	57 g				

Postup

Zahuštěný filtrát a kapalina z promyvu (66,9 g, což odpovídá 95 % původního množství před odstraněním vzorků, s obsahem 9,5 g vody a 4,35 g (0,019 mol) N-fosfonomethyliminodioxiové kyseliny) se vloží spolu s dalšími 1,7 g vody (které je tak celkem 11,2 g, 0,622 mol) do výše popsané reakční baňky a přidá se 39,7 g (0,479 mol) 99% kyseliny fosforité. V průběhu 5 minut se přidá kyselina sírová (nahrazuje se 5 %, t.j. 2,5 g při koncentraci 98 %, 0,025 mol), a poté se přidá 66,5 g (0,479 mol) 95,4% kyseliny iminodioxiové. Poté se postupuje výše popsaným postupem, čímž se získá 104,5 g suchého produktu o čistotě 95,1 %, což odpovídá izolovanému

výtěžku 91,4 %. Filtrát (192,3 g) a kapalina z promyvu (51,6 g) obsahují 2,5 %, respektive 1,2 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny. Celkový výtěžek, bez N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny recyklované s filtrátem, představuje v tomto stupni výtěžek konverze 92,5 %.

Cykly 3 až 8

V cyklech 3 až 8 se opakuje následujícím způsobem postup jako v cyklu 2, s tím, že se provedou přizpůsobení obsahu vody zahuštěných filtrátů (odpovídající recyklaci 95 % v každém cyklu). Zkratka PIDA používaná v tabulce označuje N-fosfonomethyliminodiectovou kyselinu.

cyklus č.	koncentrovaný filtrát + + kapaliny z promyvu		přidaná voda (g)	izolovaný produkt		výtěžek konverze (%)	
	použitá hmotnost (g)	obsah vody (%)		obsah PIDA (%)	čistota (%)		výtěžek (%)
3	78,8	21,4	7,3	žádná	94,1	90,1	89,1
4	83,2	17,9	6,7	žádná	94,4	90,7	90,4
5	89,6	17,0	6,7	žádná	93,5	88,2	87,9
6	92,6	12,5	3,9	žádná	94,7	89,5	90,8
7	95,6	10,7	6,1	0,4	94,7	81,4	79,6
8	108,2	12,2	3,2	žádná	85,0	54,2	52,2

Příklad 6

Cyklus 1

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přepočtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina iminodiocťová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	42,6 g	99,0 %	42,2 g	0,514	1,07
kyselina sírová	49,8 g	98,0 %	48,8 g	0,498	1,04
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92,0 g				
voda (k promývání)	57,0 g				

Postupuje se postupem jako v cyklu 1 v příkladu 2 za použití výše uvedených množství.

Výsledná suspenze se zfiltruje, promyje se 57,0 g studené vody a výsledný produkt se suší při teplotě 60 °C ve vakuové sušárně přes noc, čímž se získá 98,8 g N-fosfonomethyliminodiocťové kyseliny o čistotě 95,8 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 87,5 %. Filtráty (165,7 g) a promývací voda (69,0 g) obsahují 2,5 %, respektive 1,6 % N-fosfonomethyliminodiocťové kyseliny. To odpovídá celkovému výtěžku konverze 92,35 % N-fosfonomethyliminodiocťové kyseliny.

Smíchané filtráty a promývací kapaliny (222,2 g) se vloží do smíchané baňky o objemu 500 ml upravené pro vakuovou

destilací. Zařízení se vyvakuje na tlak 5333 Pa a postupně se provádí zahřívání k oddestilování vody, až se teplota v baňce zvýší na 100 °C. Zbytek (71,1 g) se ochladí a analyzuje se, v něm obsah N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny, který činí 10,3 % a obsah vlhkosti, který činí 17,1 %.

Cyklus 2 se 75% recyklací kyselých filtrátů

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přepočtená na 100 %	mól	molární poměr
zahuštěné filtráty	56,3 g				
kyselina iminodioxová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda (viz text): do	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	39,7 g	99,0 %	39,3 g	0,479	1
kyselina sírová	12,3 g	98,0 %	11,8 g	0,120	0,25
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92 g				
voda (k promývání)	57 g				

Postup

Zahuštěný filtrát a kapalina z promyvu (56,3 g, což odpovídá 75 % původního množství před odstraněním vzorků, s obsahem 9,6 g vody a 5,8 g (0,026 mol) N-fosfonomethyliminodioxové kyseliny) se vloží spolu s dalšími 1,6 g vody (které je tak celkem 11,2 g, 0,622 mol) do výše popsané reakční

baňky a přidá se 39,7 g (0,479 mol) 99% kyseliny fosforité. V průběhu 5 minut se přidá kyselina sírová (nahrazuje se 25 %, t.j. 12,0 g při koncentraci 98 %, 0,120 mol), a poté se přidá 66,5 g (0,479 mol) 95,4% kyseliny iminodioctové. Poté se postupuje výše popsaným postupem, čímž se získá 107,7 g suchého produktu o čistotě 95,4 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 93,7 %. Filtrát (153,4 g) a kapalina z promyvu (72,8 g) obsahují 3,2 %, respektive 1,2 % N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny. Celkový výtěžek, bez N-fosfonomethyliminodioctové kyseliny recyklované s filtrátem, představuje v tomto stupni výtěžek konverze 91,7 %.

Cykly 3 až 11

V cyklech 3 až 11 se opakuje následujícím způsobem postup jako v cyklu 2, s tím, že se provedou přizpůsobení obsahu vody zahuštěných filtrátů (odpovídající recyklaci 75 % v každém cyklu). Zkratka PIDA používaná v tabulce označuje N-fosfonomethyliminodioctovou kyselinu.

cyklus č.	koncentrovaný filtrát + + kapaliny z promyvu		přidaná voda (g)	izolovaný produkt		výtěžek konverze (%)	
	použitá hmotnost (g)	obsah vody (%)		obsah PIDA (%)	čistota (%)		výtěžek (%)
3	53,0	12,3	8,5	4,7	96,6	99,4	95,8
4	49,8	12,9	3,5	4,8	96,6	91,7	93,7
5	53,0	11,1	4,9	5,4	99,8	91,7	95,8
6	58,9	12,3	6,1	4,0	93,8	83,3	87,5

cyklus č.	koncentrovaný filtrát + + kapaliny z promyvu			přidaná voda	izolovaný produkt		výtěžek konverze
	použitá hmotnost (g)	obsah vody (%)	obsah PIDA (%)	(g)	čistota (%)	výtěžek (%)	(%)
7	63,6	8,8	8,4	5,6	90,6	87,5	86,3
8	62,4	8,7	5,2	5,8	96,4	90,2	91,9
9	64,5	9,4	5,9	5,1	96,1	89,6	89,6
10	66,9	8,6	5,9	5,4	94,2	87,5	87,5
11	66,6	7,2	4,9	6,4	90,4	87,5	87,5

Příklad 7

Cyklus 1

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přepočtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina iminodioctová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3
kyselina fosforitá	55,6 g	99,0 %	55,0 g	0,671	1,40
kyselina sírová	49,8 g	98,0 %	48,8 g	0,498	1,04
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92,0 g				
voda (k promývání)	57,0 g				

Postupuje se postupem jako v cyklu 1 v příkladu 2 za použití výše uvedených množství.

Výsledná suspenze se zfiltruje, promyje se 57,0 g studené vody a výsledný produkt se suší při teplotě 60 °C ve vakuové sušárně přes noc, čímž se získá 104,0 g N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny o čistotě 99,0 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 94,7 %. Filtráty (191,9 g) a promývací voda (57,7 g) obsahují 2,0 %, respektive 1,24 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny. To odpovídá celkovému výtěžku konverze 99,0 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny.

Smíchané filtráty a promývací kapaliny (243,0 g) se vloží do míchané baňky o objemu 500 ml upravené pro vakuovou destilaci. Zařízení se vyvakuje na tlak 6666 Pa a postupně se provádí zahřívání k oddestilování vody, až se teplota v baňce zvýší na 100 °C. Zbytek (87,3 g) se ochladí a analyzuje se v něm obsah N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny, který činí 7,0 % a obsah vlhkosti, který činí 16,8 %.

Cyklus 2 s 90% recyklací kyselých filtrátů

shrnující tabulka

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
zahuštěné filtráty	80,7 g				
kyselina iminodiectová	66,5 g	95,8 %	63,7 g	0,479	1
voda (viz text): do	11,2 g	100 %	11,2 g	0,622	1,3

pokračování shrnující tabulky

materiál	skutečná hmotnost	koncentrace (čistota)	hmotnost přečtená na 100 %	mol	molární poměr
kyselina fosforitá	39,7 g	99,0 %	39,3 g	0,479	1
kyselina sírová	4,8 g	98,0 %	4,7 g	0,048	0,1
roztok formaldehydu	48,2 g	37,0 %	17,8 g	0,594	1,24
voda (k ředění)	92 g				
voda (k promývání)	57 g				

Postup

Zahuštěný filtrát a kapalina z promyvu (80,7 g, což odpovídá 90 % původního množství před odstraněním vzorků, s obsahem 13,6 g vody a 5,65 g (0,025 mol) N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny) se vloží do výše popsané reakční baňky a přidá se 39,7 g (0,479 mol) 99% kyseliny fosforitě. V průběhu 5 minut se přidá kyselina sírová (nahrazuje se 10 %, t.j. 4,8 g při koncentraci 98 %, 0,048 mol), a poté se přidá 66,5 g (0,479 mol) 95,4% kyseliny iminodiectové. Poté se postupuje výše popsaným postupem, čímž se získá 116,1 g suchého produktu o čistotě 92,8 %, což odpovídá izolovanému výtěžku 97,9 %. Filtrát (142,6 g) a kapalina z promyvu (66,0 g) obsahují 1,3 %, respektive 1,2 % N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny. Celkový výtěžek, bez N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny recyklované s filtrátem, představuje v tomto stupni výtěžek konverze 95,8 %.

Cykly 3 až 6

V cyklech 3 až 6 se opakuje následujícím způsobem postup jako v cyklu 2, s tím, že se provedou přizpůsobení obsahu vody zahuštěných filtrátů (odpovídající recyklaci 90 % v každém cyklu). Zkratka PIDA používaná v tabulce označuje N-fosfonometnyliminodiocetovou kyselinu.

cyklus i.č.	koncentrovaný filtrát + + kapaliny z promyvu		obsah PIDA (%)	přidána voda (g)	izolovaný produkt		výtěžek konverze (%)
	použitá hmotnost (g)	obsah vody (%)			čistota (%)	výtěžek (%)	
3	72,8	16,8	4,3	žádná	93,2	93,7	93,7
4	71,9	16,2	3,0	žádná	95,0	95,8	95,8
5	68,4	13,0	2,9	2,3	90,1	89,6	89,6
6	68,4	12,0	2,7	3,0	93,5	87,5	89,6

P A T E N T O V É N Á R O K Y

1. Způsob výroby N-fosfonomethyliminodiectové kyseliny, v y z n a č u j í c í s e t í m , že se

- 1) kyselina iminodiectová podrobí reakci s kyselinou fosforitou a zdrojem formaldehydu ve vodném roztoku za přítomnosti koncentrované kyseliny sírové,
- 2) provede se filtrace a izoluje se produkt vysrážený ve stupni (1), kterým je N-fosfonomethyliminodiectová kyselina,
- 3) filtráty ze stupně (2) se odeberou a popřípadě se z nich odstraní část vody,
- 4) filtráty ze stupně (3) se přenesou do dalšího reakčního stupně, ve kterém se podrobí reakci další iminodiectová kyselina s kyselinou fosforitou a zdrojem formaldehydu za přítomnosti kyseliny sírové, a poté

5) se v řadě cyklů opakují stupně (1), (2), (3) a (4).

2. Způsob podle nároku 1, v y z n a č u j í c í s e t í m , že se ve stupni (3) odstraňuje voda.

3. Způsob podle nároku 1 nebo 2, v y z n a č u j í c í s e t í m , že se použije od 1 do 1,5 mol kyseliny fosforité na mol kyseliny iminodiectové.

4. Způsob podle nároků 1 až 3; v y z n a č u j í c í s e t í m , že se použije od 1 do 2 mol formaldehydu na mol kyseliny iminodiectové.

5. Způsob podle nároků 1 až 4, v y z n a č u j í c í s e t í m , že se použije od 0,5 do 2 mol kyseliny sírové na mol kyseliny iminodiectové.

6. Způsob podle nároků 1 až 5, v y z n a č u j í c í s e t í m , že reakční teplota ve stupni (1) je od 50 °C do 150 °C.