

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(11) **035211**

(13) **B1**

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ

- | | |
|--|--|
| <p>(45) Дата публикации и выдачи патента
2020.05.15</p> <p>(21) Номер заявки
201890300</p> <p>(22) Дата подачи заявки
2015.12.08</p> | <p>(51) Int. Cl. C07C 67/37 (2006.01)
C07C 69/708 (2006.01)
B01J 29/85 (2006.01)
B01J 35/04 (2006.01)
C01B 37/08 (2006.01)</p> |
|--|--|

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ КАРБОНИЛЬНОГО СОЕДИНЕНИЯ АЦЕТАЛЯ

- | | |
|---|--|
| <p>(31) 201510426676.1</p> <p>(32) 2015.07.20</p> <p>(33) CN</p> <p>(43) 2018.08.31</p> <p>(86) PCT/CN2015/096647</p> <p>(87) WO 2017/012245 2017.01.26</p> <p>(71)(73) Заявитель и патентовладелец:
ДАЛЯНЬ ИНСТИТЪЮТ ОФ
КЕМИКАЛ ФИЗИКС, ЧАЙНИЗ
АКАДЕМИ ОФ САЙЭНС (CN)</p> <p>(72) Изобретатель:
Ни Юмин, Чжу Вэньлян, Лю Юн, Лю
Хончао, Лю Чжунминь, Ян Мяо, Тянь
Пэн (CN)</p> <p>(74) Представитель:
Ловцов С.В., Левчук Д.В., Вилесов
А.С., Коптева Т.В., Ясинский С.Я.
(RU)</p> | <p>(56) CN-A-104119228
CN-A-1525940
US-A1-2010105947
EP-A2-0088529
CN-A-103831124</p> |
|---|--|

(57) Изобретение обеспечивает способ получения карбонильного соединения ацеталя, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, который предусматривает стадию, на которой сырьевой материал ацеталь и сырьевой газообразный монооксид углерода проходят через реактор, загруженный катализатором, содержащим кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито, для проведения реакции карбонилирования. В способе настоящего изобретения скорость конверсии сырьевого материала ацеталя высока, и селективность карбонилирования ацеталя высока, и срок службы катализатора длинный, и никакого дополнительного растворителя не требуется в процессе реакции, и условия реакции относительно умеренные, а процесс непрерывный, что показывает потенциал для промышленного применения. Кроме того, продукт - карбонильное соединение ацеталя - можно использовать для получения этиленгликоля путем гидрирования с последующим гидролизом.

035211
B1

035211
B1

Область техники, к которой относится настоящее изобретение

Настоящее изобретение относится к способу получения карбонильного соединения ацетала, которое используют в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля.

Предшествующий уровень техники настоящего изобретения

Этиленгликоль является важным химическим сырьевым материалом и стратегическим материалом в Китае. Этиленгликоль можно использовать для получения сложного полиэфира, который можно затем перерабатывать с получением терилена, ПЕТ бутылок и тонких пленок, взрывчатых веществ, глиоксаля. Этиленгликоль можно также использовать в качестве антифриза, пластификаторов, гидравлических жидкостей, растворителей и т.д. В 2009 г. часть импорта этиленгликоля в Китае составляла более 5,80 млн т. Ожидается, что в 2015 г. спрос в Китае на этиленгликоль будет достигать 11,20 млн т, а производственные мощности этиленгликоля в Китае будут составлять приблизительно 5 миллионов тонн, и разность спроса и предложения будет составлять 6,20 млн т. Таким образом, существуют хорошие перспективы рынка для развития и применения новой технологии производства этиленгликоля в Китае. В международном масштабе этиленоксид получают главным образом путем окисления этилена, полученного крекингом нефти, а этиленгликоль получают главным образом путем гидратации этиленоксида. Учитывая, что современное состояние структуры энергоносителей в Китае изобилует углем, испытывает нехватку нефти и газа и цена сырой нефти сохраняется на высоком уровне в течение длительного времени, способ получения этиленгликоля из угля в качестве новой техники в углехимической промышленности является наиболее практичным выбором для углехимической промышленности в будущем, поскольку это может обеспечить национальную энергобезопасность и полное использование угольных запасов в Китае.

В настоящее время относительно отработанная технология в Китае представляет полный набор технологии, содержащей каталитический синтез в газовой фазе СО оксалатного сложного эфира и синтез каталитическим гидрированием этиленгликоля из оксалатного сложного эфира, разработанной Фуцзяньским институтом исследований структуры вещества Китайской академии науки.

В начале декабря 2009 г. проект получения этиленгликоля из угля GEM Chemical Company, Тунляо, Внутренняя Монголия, с годовой производительностью 200 тыс. т успешно прошел весь процесс на первой стадии проекта и дал кондиционный продукционный этиленгликоль, что являлось первым в мире промышленным демонстрационным устройством, заслуживающим внимание промышленности.

Однако из-за относительно больших промышленных установок, высоких требований к чистоте промышленных газов, использования катализаторов на основе благородных металлов в процессе окислительного сочетания и использования азотных соединений с возможным загрязнением окружающей среды использование технологического процесса было ограничено в отношении экономической эффективности, мер по охране окружающей среды, энергосберегающих характеристик и дополнительного промышленного масштабного перехода.

Диметилловые эфиры полиоксиметилена (или полиметоксиацеталь) с молекулярной формулой $\text{CH}_3\text{O}(\text{CH}_2\text{O})_n\text{CH}_3$ с $n \geq 2$ обычно сокращают как DMM_n (или PODE_n). В способе получения диметилловых эфиров полиоксиметилена распределение продуктов не очень согласуется с высокой селективностью к метилалу и DMM₂ и низкой селективностью к DMM₃₋₄, которые можно использовать в качестве добавок для дизельного топлива. Для получения DMM₃₋₄ необходимо иметь повторяющиеся стадии разделения и реакции побочных продуктов, которые получают в процессе получения, привносят высокие энергозатраты и низкую экономическую эффективность. Таким образом, если побочные продукты - метилаль и DMM₂ - можно получать непосредственно в виде более экономически ценных продуктов, это будет повышать экономическую эффективность процесса.

В документе US 2010/0105947A был раскрыт способ получения метилметоксиацетата, в котором метилметоксиацетат получали путем карбонилирования диметоксиметана в присутствии катализатора на основе цеолитного молекулярного сита. Катализатор выбирали из FAU, ZSM-5, MOR или β-цеолита. В документе EP 0088529A2 был раскрыт способ получения метилметоксиацетата, в котором метилметоксиацетат получали путем карбонилирования диметоксиметана в присутствии твердого катализатора. Катализатор выбирают из кислотных катионообменных смол, глин, цеолитов, твердых кислот, неорганических оксидов, неорганических солей и оксидов. В документе CN 104119228 A был раскрыт способ получения метилметоксиацетата, в котором метилаль и СО использовали в качестве сырьевых материалов для получения метилметоксиацетата путем каталитического синтеза, и катализатор представляет собой молекулярное сито с каркасной структурой MWW. В документе CN 103894228 A был раскрыт способ получения метилметоксиацетата, в котором метилаль и СО использовали в качестве сырьевых материалов для получения метилметоксиацетата путем каталитического синтеза, и катализатор представляет собой твердый катализатор, загруженный сильной органической сульфоновой кислотой. Носитель катализатора представляет собой один или несколько, выбранных из активированного угля, SBA-15 и MCM-41. В документе CN 103172517A был раскрыт способ получения метилметоксиацетата, в котором метилметоксиацетат получали путем газофазного карбонилирования метилала и СО в присутствии твердого кислотного катализатора. В последние годы профессор Alexis T. Bell из Калифорнийского университета в Беркли

предложил новый путь для получения этиленгликоля, предусматривающий газофазное карбонилирование метилаля для получения метилового сложного эфира метоксиуксусной кислоты и гидролиз с гидрированием метилового сложного эфира метоксиуксусной кислоты для получения этиленгликоля. И наиболее важной стадией является газофазное карбонилирование. Однако, поскольку срок службы катализатора короткий, и концентрация метилаля в сырьевом газе низкая, и скорость конверсии метилаля и селективность к метилметоксиацетату не идеальны, он далек от индустриализации. (Angew. Chem. Int. Ed., 2009, 48, 4813-4815; J. Catal., 2010, 270, 185-195; J. Catal., 2010, 274, 150-162; WO 2010/048300 A1).

Краткое раскрытие настоящего изобретения

Целью настоящего изобретения является обеспечение способа получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля путем карбонилирования.

Таким образом, настоящее изобретение обеспечивает способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, который предусматривает стадию, на которой сырьевой материал ацеталь и сырьевой газ монооксид углерода проходят через реактор, загруженный катализатором, для проведения реакции карбонилирования; причем катализатор содержит кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито; причем химический состав кислотного микропористого кремнийалюмофосфатного молекулярного сита выражен как $(Si_xAl_yP_z)O_2$, а x находится в диапазоне от 0,01 до 0,60, а y находится в диапазоне от 0,2 до 0,60, а z находится в диапазоне от 0,2 до 0,60, и $x+y+z=1$; причем сырьевой материал ацеталь выражен как $R_1O(CH_2O)_nR_2$, а n выбрано из 1, 2, 3 или 4, а R_1 и R_2 независимо выбраны из C_1 - C_3 -алкилов.

В предпочтительном варианте осуществления кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито имеет пористый каркас из 8-членных колец.

В предпочтительном варианте осуществления кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито представляет собой одно или несколько молекулярных сит, выбранных из молекулярных сит с каркасом типа CHA, RHO, LEV, ERI, AEI или AFX. Более предпочтительно кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито представляет собой одно или несколько молекулярных сит, выбранных из SAPO-34, DNL-6, SAPO-35, SAPO-17, SAPO-18 или SAPO-56.

В предпочтительном варианте осуществления кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито содержит металл; и массовая доля металла в кислотном микропористом кремнийалюмофосфатном молекулярном сите находится в диапазоне от 0 до 10%. Более предпочтительно массовая доля элементарного металла в кислотном микропористом кремнийалюмофосфатном молекулярном сите находится в диапазоне от 0 до 2%. Еще более предпочтительно металл представляет собой один или несколько металлов, выбранных из меди, железа, галлия, серебра, никеля, кобальта, палладия или платины.

В предпочтительном варианте осуществления металл находится на ионообменных сайтах, в порах и каналах, на поверхности и/или в каркасе кислотного микропористого кремнийалюмофосфатного молекулярного сита; и металл вводят одним или несколькими способами, выбранными из синтеза на месте, пропитки или ионного обмена.

В предпочтительном варианте осуществления катализатор содержит формующее средство, и массовая доля формующего средства в катализаторе находится в диапазоне от 10 до 60%. Более предпочтительно массовая доля формующего средства в катализаторе находится в диапазоне от 10 до 30%. Предпочтительно формующее средство представляет собой одно или несколько соединений, выбранных из оксида алюминия, оксида кремния или каолина.

В предпочтительном варианте осуществления сырьевой материал ацеталь представляет собой $CH_3OCH_2CH_3$, $C_2H_5OCH_2OC_2H_5$ или $CH_3O(CH_2O)_2CH_3$, и карбонильное соединение ацетала представляет собой одно или несколько соединений, выбранных из $CH_3-O-(CO)-CH_2-O-CH_3$, $C_2H_5-O-(CO)-CH_2-O-C_2H_5$, $CH_3-O-(CO)-CH_2-O-CH_2-O-CH_3$ или $CH_3-O-CH_2-(CO)-O-CH_2-O-CH_3$.

В предпочтительном варианте осуществления условия реакции карбонилирования являются следующими: температура реакции находится в диапазоне от 60 до 140°C, а давление реакции находится в диапазоне от 1 до 15 МПа, и массовая скорость подачи сырьевого материала ацетала находится в диапазоне от 0,1 до 10,0 ч⁻¹, а мольное отношение сырьевого газообразного монооксида углерода к сырьевому материалу ацеталу находится в диапазоне от 2:1 до 20:1, и другие растворители не добавляют. Более предпочтительно условия реакции карбонилирования являются следующими: температура реакции находится в диапазоне от 70 до 120°C, а давление реакции находится в диапазоне от 3 до 10 МПа, и массовая скорость подачи сырьевого материала ацетала находится в диапазоне от 0,5 до 3 ч⁻¹, а мольное отношение сырьевого газообразного монооксида углерода к сырьевому материалу ацеталу находится в диапазоне от 5:1 до 15:1, и другие растворители не добавляют.

В предпочтительном варианте осуществления реактор представляет собой реактор непрерывного действия, который выбирают из реактора с неподвижным слоем, корпусного реактора, реактора с подвижным слоем катализатора или реактора с псевдоожиженным слоем.

Настоящее изобретение может давать преимущества, которые, по меньшей мере, включают, помимо прочего: по сравнению с уровнем техники в способе настоящего изобретения используют катализа-

тор, содержащий кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито, с высокой скоростью конверсии ацетала и высокой селективностью к карбонилированию ацетала. Кроме того, по сравнению с уровнем техники в способе настоящего изобретения катализатор имеет больший срок службы, и никакого дополнительного растворителя не требуется в процессе реакции, и условия реакции относительно умеренные, и процесс непрерывный, что показывает потенциал для промышленного применения.

Описание фигур

Фиг. 1 представляет спектр рентгеновской порошковой дифрактометрии (XRD) для молекулярного сита SAPO-34, полученного в примере 1 настоящего изобретения.

Фиг. 2 представляет изображение со сканирующего электронного микроскопа (SEM) для молекулярного сита SAPO-34, полученного в примере 1 настоящего изобретения.

Подробное описание варианта осуществления настоящего изобретения

Настоящее изобретение относится к способу получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, который предусматривает стадию, на которой сырьевой материал ацеталь и сырьевой газообразный монооксид углерода проходят через реактор, загруженный катализатором, содержащим кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито, для проведения реакции карбонилирования.

Предпочтительно кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито имеет пористый каркас из 8-членных колец.

Предпочтительно химический состав кислотного микропористого кремнийалюмофосфатного молекулярного сита выражен как $(Si_xAl_yP_z)O_2$; x, y, z соответственно представляют мольное число Si, Al, P, а x находится в диапазоне от 0,01 до 0,60, а y находится в диапазоне от 0,2 до 0,60, а z находится в диапазоне от 0,2 до 0,60, и $x+y+z=1$.

Предпочтительно кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито представляет собой одно или несколько молекулярных сит, выбранных из молекулярных сит с типом каркаса ABW, ACO, AEI, AEN, AFN, AFT, AFX, ANA, APC, APD, ATN, ATT, ATV, AWO, AWW, BIK, BRE, CAS, CHA, DOR, DFY, LAB, EDI, ERI, ESV, GIS, GOO, ITE, JBW, KFI, LEV, LTA, MER, MON, MTF, PAU, PHI, RHO, RTE, RTH, SAS, SAT, SAV, THO, TSC, VNI, YUG или ZON.

Предпочтительно кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито представляет собой одно или несколько молекулярных сит, выбранных из молекулярных сит с каркасом типа CHA, RHO, LEV, ERI, AEI или AFX.

Предпочтительно кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито представляет собой одно или несколько молекулярных сит, выбранных из SAPO-34, DNL-6, SAPO-35, SAPO-17, SAPO-18 или SAPO-56.

Предпочтительно кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито содержит металл; и массовая доля элементарного металла в кислотном микропористом кремнийалюмофосфатном молекулярном сите находится в диапазоне от 0 до 10%.

Предпочтительно кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито содержит металл; и массовая доля элементарного металла в кислотном микропористом кремнийалюмофосфатном молекулярном сите находится в диапазоне от 0 до 2%.

Предпочтительно металл представляет собой один или несколько металлов, выбранных из меди, железа, галлия, серебра, никеля, кобальта, палладия или платины.

Предпочтительно металл находится на ионообменных сайтах, в порах и каналах, на поверхности и/или в каркасе кислотного микропористого кремнийалюмофосфатного молекулярного сита.

Предпочтительно металл вводят одним или несколькими способами, выбранными из синтеза на месте, пропитки или ионного обмена.

Предпочтительно металл существует на ионообменных сайтах в ионном состоянии, или существует в порах и каналах или на поверхности молекулярного сита в виде оксида металла, или вставлен в T-узлы кристаллической решетки в каркасе молекулярного сита путем изоморфного замещения.

Предпочтительно катализатор содержит формующее средство, и массовая доля формующего средства в катализаторе находится в диапазоне от 10 до 60%.

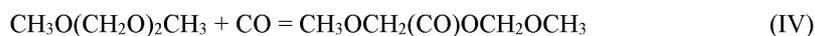
Предпочтительно массовая доля формующего средства в катализаторе находится в диапазоне от 10 до 30%.

Предпочтительно формующее средство представляет собой одно или несколько соединений, выбранных из оксида алюминия, оксида кремния или каолина.

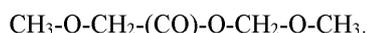
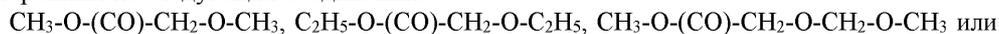
Предпочтительно сырьевой материал ацеталь выражают как $R_1O(CH_2O)_nR_2$, а n выбирают из 1, 2, 3 или 4, а R_1 и R_2 независимо выбирают из C_1 - C_3 -алкилов. Более предпочтительно сырьевой материал ацеталь предпочтительно представляет собой $CH_3OCH_2OCH_3$, $C_2H_5OCH_2OC_2H_5$ или $CH_3O(CH_2O)_2CH_3$.

Продукционное карбонильное соединение ацетала со структурным звеном -O-(CO)-CH₂-O- или -O-CH₂-(CO)-O- образуется путем вставки одной или нескольких карбонильных групп -CO- в структурное звено -O-CH₂-O- в молекулярной цепи сырьевого материала ацетала $R_1O(CH_2O)_nR_2$.

Процесс карбонилирования ацетала можно выразить следующими уравнениями химических реакций:



Предпочтительно карбонильное соединение ацетала представляет собой одно или несколько соединений, выбранных из следующих соединений:



Предпочтительно сырьевой газообразный монооксид углерода получают выделением из синтез-газа. Кроме того, в способе настоящего изобретения сырьевой газ может также быть смешанным газом с объемным содержанием монооксида углерода более 50%, который может содержать водород и один или несколько газов, выбранных из азота, гелия, аргона, диоксида углерода, метана или этана.

Предпочтительно условия реакции являются следующими: температура реакции находится в диапазоне от 60 до 140°C, а давление реакции находится в диапазоне от 1 до 15 МПа, и массовая скорость подачи сырьевого материала ацетала находится в диапазоне от 0,1 до 10,0 ч⁻¹, а мольное отношение сырьевого газообразного монооксида углерода к сырьевому материалу ацеталу находится в диапазоне от 2:1 до 20:1, и другие растворители не добавляют.

Предпочтительно условия реакции являются следующими: температура реакции находится в диапазоне от 70 до 120°C, а давление реакции находится в диапазоне от 3 до 10 МПа, и массовая скорость подачи сырьевого материала ацетала находится в диапазоне от 0,5 до 3 ч⁻¹, а мольное отношение сырьевого газообразного монооксида углерода к сырьевому материалу ацеталу находится в диапазоне от 5:1 до 15:1, и другие растворители не добавляют.

При реакции по меньшей мере одно из сырьевого ацетала или производного карбонильного соединения ацетала находится в жидкой фазе, а кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито находится в твердой фазе, а сырьевой газообразный монооксид углерода находится в газовой фазе, и, таким образом, процесс реакции представляет собой трехфазную реакцию газ-жидкость-твердое вещество.

Предпочтительно производное карбонильное соединение ацетала можно затем гидрировать для получения эфира этиленгликоля. Более предпочтительно эфир этиленгликоля представляет собой монометилловый эфир этиленгликоля; и монометилловый эфир этиленгликоля можно гидролизовать с получением этиленгликоля.

Предпочтительно реактор представляет собой реактор непрерывного действия, который выбирают из реактора с неподвижным слоем, корпусного реактора, реактора с подвижным слоем катализатора или реактора с псевдооживленным слоем.

Предпочтительно реактор представляет собой один реактор с подвижным слоем катализатора или несколько реакторов с неподвижным слоем для проведения непрерывной реакции. Реактор с неподвижным слоем может быть один или их может быть несколько. Когда используют множество реакторов с неподвижным слоем, реакторы могут быть соединены последовательно, параллельно или комбинацией последовательного и параллельного соединения.

Примеры

Способ анализа и способ расчета скорости конверсии и селективности в примерах являются следующими: составляющие газо/жидкофазных компонентов автоматически анализировали на газовом хроматографе Agilent7890, оборудованном автоматическим пробоотборником, детектором FID и капиллярной колонкой FFAP.

В некоторых примерах настоящего изобретения конверсию ацетала и селективность к карбонильному соединению ацетала рассчитывали на основе мольного числа углерода в ацетале:

$$\text{Процентная конверсия ацетала} = \left[\frac{\text{мольное число углерода ацетала в сырьевом материале}}{\text{мольное число углерода ацетала в выгружаемом материале}} \right] \div \left(\frac{\text{мольное число углерода ацетала в сырьевом материале}}{\text{мольное число углерода ацетала в сырьевом материале}} \right) \times (100\%)$$

$$\text{Селективность к карбонильному соединению ацетала} = \left(\frac{\text{мольное число углерода карбонильного соединения ацетала в выгружаемом материале за вычетом карбонильных групп}}{\text{мольное число углерода ацетала в сырьевом материале}} \right) \div \left[\left(\frac{\text{мольное число углерода ацетала в сырьевом материале}}{\text{мольное число углерода ацетала в выгружаемом материале}} \right) \right] \times (100\%)$$

Настоящее изобретение описано более подробно при помощи следующих примеров, но настоящее изобретение не ограничено этими примерами.

Примеры получения катализатора

Пример 1.

При комнатной температуре псевдобемит добавляли в раствор фосфорной кислоты, перемешивая в течение 2 ч с получением однородного геля. Затем золь диоксида кремния и диэтиламин (DEA) добавляли в однородный гель, перемешивая в течение 3 ч с получением гелеобразной смеси с мольным отношением 2,0 DEA:0,6 SiO₂:1,0 Al₂O₃:0,8 P₂O₅:50 H₂O. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 2 дней при 200°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-34 с химическим составом (Si_{0,16}Al_{0,48}P_{0,36})O₂. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-34 прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита типа SAPO-34. Спектр рентгеновской порошковой дифрактометрии и изображение со сканирующего электронного микроскопа для кислотного молекулярного сита типа SAPO-34 были показаны на фиг. 1 и 2. А затем кислотное молекулярное сито типа SAPO-34 формовали при помощи оксида алюминия в качестве формующего средства, и массовая доля формующего средства в катализаторе составляла 20% для получения цилиндрического катализатора А с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Пример 2.

Изопропоксид алюминия, деионизированную воду, фосфорную кислоту и тетраэтоксисилан (TEOS) смешивали и перемешивали в течение 3 ч при комнатной температуре с получением однородного геля. Затем раствор бромид цетилтриметиламмония (СТАВ) и диэтиламина (DEA) добавляли в однородный гель с получением гелеобразной смеси с мольным отношением 2,0 DEA:1,0 Al₂O₃:0,8 P₂O₅:0,4 TEOS:0,2 СТАВ:100 H₂O. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 1 дня при 200°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита DNL-6 с химическим составом (Si_{0,14}Al_{0,37}P_{0,49})O₂. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита DNL-6 прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита типа DNL-6. Кислотное молекулярное сито типа DNL-6 формовали при помощи оксида кремния в качестве формующего средства, и массовая доля формующего средства в катализаторе составляла 10%, для получения цилиндрического катализатора В с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Пример 3.

При комнатной температуре псевдобемит добавляли в раствор фосфорной кислоты, перемешивая в течение 2 ч с получением однородного геля. Затем золь диоксида кремния и диэтиламин (DEA) добавляли в однородный гель, перемешивая в течение 3 ч с получением гелеобразной смеси с мольным отношением 2,0 DEA:0,6 SiO₂:1,0 Al₂O₃:0,8 P₂O₅:50 H₂O. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 2 дней при 200°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-34 с химическим составом (Si_{0,16}Al_{0,48}P_{0,36})O₂. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-34 подвергали ионному обмену с 0,8 моль/л водным раствором нитрата аммония при 80°C 3 раза с получением молекулярного сита SAPO-34 аммонийного типа. Молекулярное сито SAPO-34 аммонийного типа подвергали ионному обмену с 0,05 моль/л водным раствором нитрата меди с получением молекулярного сита SAPO-34, модифицированного медью при помощи ионообменного способа. Молекулярное сито SAPO-34, модифицированное медью при помощи ионообменного способа, прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита SAPO-34 с массовой долей меди 0,5%. А затем кислотное молекулярное сито типа SAPO-34 с массовой долей меди 0,5% формовали при помощи оксида алюминия в качестве формующего средства, и массовая доля формующего средства в катализаторе составляла 20%, для получения цилиндрического катализатора А с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Пример 4.

Изопропоксид алюминия, деионизированную воду, фосфорную кислоту и тетраэтоксисилан (TEOS) смешивали и перемешивали в течение 3 ч при комнатной температуре с получением однородного геля. Затем раствор бромид цетилтриметиламмония (СТАВ) и диэтиламина (DEA) добавляли в однородный гель для получения гелеобразной смеси с мольным отношением 2,0 DEA:1,0 Al₂O₃:0,8 P₂O₅:0,4 TEOS:0,2 СТАВ:100 H₂O. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 1 дня при 200°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита DNL-6 с химическим составом (Si_{0,14}Al_{0,37}P_{0,49})O₂. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита DNL-6 пропитывали эквивалентным объемом при помощи водного

раствора нитрата палладия с получением молекулярного сита DNL-6, модифицированного палладием, при помощи способа пропитки эквивалентным объемом. Молекулярное сито DNL-6, модифицированное палладием при помощи способа пропитки эквивалентным объемом, прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита DNL-6 с массовой долей палладия 1%. Кислотное молекулярное сито типа DNL-6 формовали при помощи оксида кремния в качестве формирующего средства, и массовая доля формирующего средства в катализаторе составляла 10%, для получения цилиндрического катализатора D с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Пример 5.

Псевдобенит, золь диоксида кремния, деионизированную воду, водный раствор фосфорной кислоты и гексаметиленмин (НМГ) последовательно добавляли в химический стакан и смешивали перемешиванием при комнатной температуре с получением гелеобразной смеси с мольным отношением $0,96 \text{ P}_2\text{O}_5:1,0 \text{ Al}_2\text{O}_3:1,0 \text{ SiO}_2:1,51 \text{ НМТ}:55,47 \text{ H}_2\text{O}$. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 1 дня при 200°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-35 с химическим составом $(\text{Si}_{0,18}\text{Al}_{0,46}\text{P}_{0,36})\text{O}_2$. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-35 пропитывали эквивалентным объемом при помощи водного раствора нитрата серебра с получением молекулярного сита SAPO-35, модифицированного серебром, при помощи способа пропитки эквивалентным объемом. Молекулярное сито SAPO-35, модифицированное серебром при помощи способа пропитки эквивалентным объемом, прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита SAPO-35 с массовой долей серебра 0,1%. Кислотное молекулярное сито типа SAPO-35 формовали при помощи каолина в качестве формирующего средства, и массовая доля формирующего средства в катализаторе составляла 15%, для получения цилиндрического катализатора E с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Пример 6.

Изопропоксид алюминия, золь диоксида кремния, деионизированную воду, водный раствор фосфорной кислоты и циклогексиламин (Cha) последовательно добавляли в химический стакан и смешивали перемешиванием при комнатной температуре с получением гелеобразной смеси с мольным отношением $0,11 \text{ SiO}_2:1 \text{ Al}_2\text{O}_3:1 \text{ P}_2\text{O}_5:1 \text{ Cha}:50 \text{ H}_2\text{O}$. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 1 дня при 200°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-17 с химическим составом $(\text{Si}_{0,14}\text{Al}_{0,51}\text{P}_{0,35})\text{O}_2$. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-17 пропитывали эквивалентным объемом при помощи водного раствора нитрата никеля с получением молекулярного сита SAPO-17, модифицированного никелем, при помощи способа пропитки эквивалентным объемом. Молекулярное сито SAPO-17, модифицированное никелем при помощи способа пропитки эквивалентным объемом, прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита SAPO-17 с массовой долей никеля 2%. Кислотное молекулярное сито типа SAPO-17 формовали при помощи оксида алюминия в качестве формирующего средства, и массовая доля формирующего средства в катализаторе составляла 30%, для получения цилиндрического катализатора F с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Пример 7.

Псевдобенит, золь диоксида кремния, деионизированную воду, водный раствор фосфорной кислоты и N,N-диизопропилэтиламин ($\text{C}_8\text{H}_{19}\text{N}$) последовательно добавляли в химический стакан и смешивали перемешиванием при комнатной температуре с получением гелеобразной смеси с мольным отношением $0,2 \text{ SiO}_2:1,0 \text{ Al}_2\text{O}_3:1,0 \text{ P}_2\text{O}_5:1,6 \text{ C}_8\text{H}_{19}\text{N}:55 \text{ H}_2\text{O}$. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 3 дней при 180°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-18 с химическим составом $(\text{Si}_{0,11}\text{Al}_{0,57}\text{P}_{0,32})\text{O}_2$. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-18 пропитывали эквивалентным объемом при помощи водного раствора нитрата галлия с получением молекулярного сита SAPO-18, модифицированного галлием, при помощи способа пропитки эквивалентным объемом. Молекулярное сито SAPO-18, модифицированное галлием при помощи способа пропитки эквивалентным объемом, прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита SAPO-18 с массовой долей галлия 0,3%. Кислотное молекулярное сито типа SAPO-18 формовали при помощи оксида алюминия в качестве формирующего средства, и массовая доля формирующего средства в катализаторе составляла 20%, для получения цилиндрического катализатора G с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Пример 8.

Псевдобемит, золь диоксида кремния, деионизированную воду, водный раствор фосфорной кислоты и N,N,N',N'-тетраметил-1,6-гексаметилендиамин (TMHD) последовательно добавляли в химический стакан и смешивали перемешиванием при комнатной температуре с получением гелеобразной смеси с мольным отношением 2,0 TMHD:0,6 SiO₂:0,8 Al₂O₃:P₂O₅:40 H₂O. Гелеобразную смесь помещали в емкость для кристаллизации с политетрафторэтиленовой футеровкой, а затем кристаллизовали в течение 3 дней при 200°C. После окончания кристаллизации и охлаждения твердый продукт разделяли центрифугированием, сушили при 120°C, а затем помещали в муфельную печь и прокаливали при 550°C в воздухе в течение 4 ч с получением образца сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-56 с химическим составом (Si_{0,10}Al_{0,42}P_{0,48})O₂. Образец сырого порошкообразного молекулярного сита SAPO-56 подвергали ионному обмену с 0,8 моль/л водным раствором нитрата аммония при 80°C 3 раза с получением молекулярного сита SAPO-56 аммонийного типа. Молекулярное сито SAPO-56 аммонийного типа подвергали ионному обмену с 0,04 моль/л водным раствором нитрата меди с получением молекулярного сита SAPO-56, модифицированного медью при помощи ионообменного способа. Молекулярное сито SAPO-56, модифицированное медью при помощи ионообменного способа, прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита SAPO-56 с массовой долей меди 0,3%. А затем кислотное молекулярное сито типа SAPO-56 с массовой долей меди 0,3% формовали при помощи оксида алюминия в качестве формующего средства, и массовая доля формующего средства в катализаторе составляла 20%, для получения цилиндрического катализатора H с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Сравнительный пример 1.

Использовали Y молекулярное сито с Si/Al=2,3, которое покупали на заводе по изготовлению катализаторов Нанькайского университета. Молекулярное сито Y подвергали ионному обмену с 0,8 моль/л водным раствором нитрата аммония при 80°C 3 раза с получением молекулярного сита Y аммонийного типа. Молекулярное сито Y аммонийного типа подвергали ионному обмену с 0,05 моль/л водным раствором нитрата меди с получением молекулярного сита Y, модифицированного медью при помощи ионообменного способа. Молекулярное сито Y, модифицированное медью при помощи ионообменного способа, прокаливали при 500°C в воздухе в течение 4 ч с получением кислотного молекулярного сита Y с массовой долей меди 0,5%. А затем кислотное молекулярное сито типа Y с массовой долей меди 0,5% формовали при помощи оксида алюминия в качестве формующего средства, и массовая доля формующего средства в катализаторе составляла 20%, для получения цилиндрического катализатора I с диаметром 3 мм и длиной 3 мм.

Примеры тестирования каталитических характеристик.

Пример 9.

1,0 кг катализатора A загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 90°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 7 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 15 МПа, и среднечасовая скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 0,1 ч⁻¹. После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетата и однопроходную селективность к карбонильному соединению ацетата. Результаты показаны в таблице.

Пример 10.

1,0 кг катализатора B загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 60°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 13 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 15 МПа, и среднечасовую скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 10 ч⁻¹. После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетата и однопроходную селективность к карбонильному соединению ацетата. Результаты показаны в таблице.

Пример 11.

1,0 кг катализатора C загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 90°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 7 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 15 МПа, и среднечасовую скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 0,1 ч⁻¹.

После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетата и однопроходную селективность к карбо-

нильному соединению ацетала. Результаты показаны в таблице.

Пример 12.

1,0 кг катализатора D загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 60°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 13 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 1 МПа, и среднечасовую скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 10 ч⁻¹. После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетала и однопроходную селективность к карбонильному соединению ацетала. Результаты показаны в таблице.

Пример 13.

1,0 кг катализатора E загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 140°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 2 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 6,5 МПа, и среднечасовую скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 3,0 ч⁻¹. После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетала и однопроходную селективность к карбонильному соединению ацетала. Результаты показаны в таблице.

Пример 14.

1,0 кг катализатора F загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 140°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 2 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 6,5 МПа, и среднечасовую скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 3,0 ч⁻¹. После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетала и однопроходную селективность к карбонильному соединению ацетала. Результаты показаны в таблице.

Пример 15.

1,0 кг катализатора G загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 73°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 10 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 2,0 МПа, и среднечасовую скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 0,3 ч⁻¹. После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетала и однопроходную селективность к карбонильному соединению ацетала. Результаты показаны в таблице.

Пример 16.

1,0 кг катализатора H загружали в реакторы с неподвижным слоем из нержавеющей стали с внутренним диаметром 32 мм, активировали при 500°C в течение 4 ч в газообразном азоте под атмосферным давлением. Температуру снижали до температуры реакции (сокращенно T) 120°C, а затем подавали свежий сырьевой газ с мольным отношением 15 CO: 1 CH₃OCH₂OCH₃, и давление повышалось до давления реакции (сокращенно P) 4,7 МПа, и среднечасовую скорость подачи (сокращенно WHSV) CH₃OCH₂OCH₃ в свежем сырьевом газе регулировали на значении 0,5 ч⁻¹. После установления стабильного режима реакции продукты реакции анализировали газовым хроматографом и рассчитывали процентную конверсию ацетала и однопроходную селективность к карбонильному соединению ацетала. Результаты показаны в таблице.

Сравнительный пример 2.

Экспериментальные условия были такими же, как в примере 11, за исключением того, что катализатор C заменяли на катализатор I. Результаты показаны в таблице.

Результаты реакции карбонилирования ацетала

	Катализатор	Процентная конверсия ацетала (%)	Селективность к карбонильному соединению ацетала (%)	Срок службы катализатора за один проход (дни)
Пример 9	A	100	93,2	430
Пример 10	B	100	92,3	410
Пример 11	C	100	95,8	450
Пример 12	D	100	94,1	430
Пример 13	E	100	95,6	500
Пример 14	F	100	96,3	510
Example 15	G	100	97,8	550
Пример 16	H	100	96,1	530
Сравнительный пример 2	I	38	72,5	19

Настоящее изобретение было описано подробно выше, но настоящее изобретение не ограничено конкретными вариантами осуществления, описанными в данном тексте. Специалисты в данной области техники поймут, что другие изменения и модификации можно сделать без отклонения от объема настоящего изобретения. Объем настоящего изобретения ограничен приложенной формулой изобретения.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, который предусматривает стадию, на которой сырьевой материал ацеталь и сырьевой газообразный монооксид углерода проходят через реактор, загруженный катализатором, для проведения реакции карбонилирования; причем катализатор содержит кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито; причем химический состав кислотного микропористого кремнийалюмофосфатного молекулярного сита представляет собой $(Si_xAl_yP_z)O_2$, а x находится в диапазоне от 0,01 до 0,60, а y находится в диапазоне от 0,2 до 0,60, а z находится в диапазоне от 0,2 до 0,60, и $x+y+z=1$; причем сырьевой материал ацеталь представляет собой $R_1O(CH_2O)_nR_2$, где n выбран из 1, 2, 3 или 4, а R_1 и R_2 независимо выбраны из C_1 - C_3 -алкилов; причем условия реакции карбонилирования являются следующими: температура реакции находится в диапазоне от 60 до 140°C, а давление реакции находится в диапазоне от 1 до 15 МПа, и массовая скорость подачи сырьевого материала ацетала находится в диапазоне от 0,1 до 10,0 ч⁻¹, а мольное отношение сырьевого газообразного монооксида углерода к сырьевому материалу ацеталу находится в диапазоне от 2:1 до 20:1, при этом другие растворители не добавляются.

2. Способ получения карбонильного соединения ацетала по п.1, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, где условия реакции карбонилирования являются следующими: температура реакции находится в диапазоне от 70 до 120°C, а давление реакции находится в диапазоне от 3 до 10 МПа, и массовая скорость подачи сырьевого материала ацетала находится в диапазоне от 0,5 до 3 ч⁻¹, а мольное отношение сырьевого газообразного монооксида углерода к сырьевому материалу ацеталу находится в диапазоне от 5:1 до 15:1, при этом другие растворители не добавляются.

3. Способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито имеет пористый каркас из 8-членных колец.

4. Способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито представляет собой одно или несколько молекулярных сит, выбранных из молекулярных сит с каркасом типа CHA, RHO, LEV, ERI, AEI или AFX.

5. Способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито представляет собой одно или несколько молекулярных сит, выбранных из SAPO-34, DNL-6, SAPO-35, SAPO-17, SAPO-18 или SAPO-56.

6. Способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором кислотное микропористое кремнийалюмофосфатное молекулярное сито содержит металл и массовая доля элементарного металла в кислотном микропористом кремнийалюмофосфатном молекулярном сите находится в диапазоне $0 < x \leq 10\%$.

7. Способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.6, в котором массовая доля элементарного металла в кислотном микропористом кремнийалюмофосфатном молекулярном сите находится в диапазоне $0 < x \leq 2\%$.

8. Способ получения карбонильного соединения ацетала, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.6, в котором металл представляет собой один или несколько металлов, выбранных из меди, железа, галлия, серебра, никеля, кобальта, палладия или платины.

9. Способ получения карбонильного соединения ацеталя, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.6, в котором металл находится на ионообменных сайтах, в порах и каналах, на поверхности и/или в каркасе кислотного микропористого кремнийалюмофосфатного молекулярного сита и металл вводят одним или несколькими способами, выбранными из синтеза на месте, пропитки или ионного обмена.

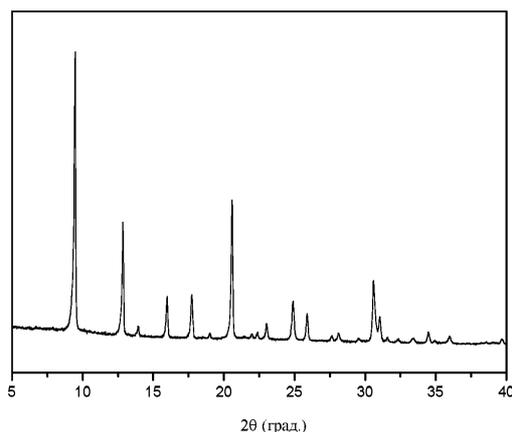
10. Способ получения карбонильного соединения ацеталя, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором катализатор содержит формующее средство и массовая доля формующего средства в катализаторе находится в диапазоне от 10 до 60%.

11. Способ получения карбонильного соединения ацеталя, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором катализатор содержит формующее средство и массовая доля формующего средства в катализаторе находится в диапазоне от 10 до 30%.

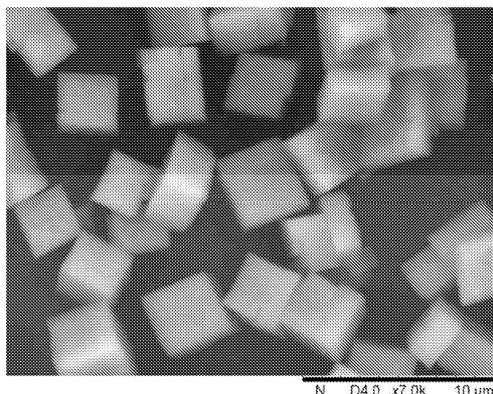
12. Способ получения карбонильного соединения ацеталя, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.10, в котором формующее средство представляет собой одно или несколько соединений, выбранных из оксида алюминия, оксида кремния или каолина.

13. Способ получения карбонильного соединения ацеталя, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором сырьевой материал ацеталь представляет собой $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{OCH}_3$, $\text{C}_2\text{H}_5\text{OCH}_2\text{OC}_2\text{H}_5$ или $\text{CH}_3\text{O}(\text{CH}_2\text{O})_2\text{CH}_3$, а карбонильное соединение ацеталя представляет собой одно или несколько соединений, выбранных из $\text{CH}_3\text{-O-(CO)-CH}_2\text{-O-CH}_3$, $\text{C}_2\text{H}_5\text{-O-(CO)-CH}_2\text{-O-C}_2\text{H}_5$, $\text{CH}_3\text{-O-(CO)-CH}_2\text{-O-CH}_2\text{-O-CH}_3$ или $\text{CH}_3\text{-O-CH}_2\text{-(CO)-O-CH}_2\text{-O-CH}_3$.

14. Способ получения карбонильного соединения ацеталя, используемого в качестве промежуточного соединения для получения этиленгликоля, по п.1, в котором реактор представляет собой реактор непрерывного действия, который выбирают из реактора с неподвижным слоем, корпусного реактора, реактора с подвижным слоем катализатора или реактора с псевдоожиженным слоем.



Фиг. 1



Фиг. 2



Евразийская патентная организация, ЕАПВ

Россия, 109012, Москва, Малый Черкасский пер., 2