



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 692 01 978 T3** 2005.03.10

(12) **Übersetzung der geänderten europäischen Patentschrift**

(97) **EP 0 498 591 B2**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **692 01 978.2**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **92 300 888.2**

(96) Europäischer Anmeldetag: **03.02.1992**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **12.08.1992**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **12.04.1995**

(97) Veröffentlichungstag

des geänderten Patents beim EPA: **13.10.2004**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **10.03.2005**

(51) Int Cl.⁷: **C07C 51/487**

C07C 51/265, C07C 51/44

(30) Unionspriorität:

9102393 05.02.1991 GB

(84) Benannte Vertragsstaaten:

BE, DE, ES, FR, GB, IT

(73) Patentinhaber:

**E.I. du Pont de Nemours and Co., Wilmington, Del.,
US**

(72) Erfinder:

**Hindmarsh, Eric, Ainthorpe, Nr Whitby, North
Yorkshire, GB; Parker, David, Middlesbrough,
Cleveland TS9 6ER, GB; Turner, John Arthur,
Middlesbrough, Cleveland TS6 0SW, GB**

(74) Vertreter:

Abitz & Partner, 81679 München

(54) Bezeichnung: **Verfahren zur Herstellung von Terephthalsäure.**

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Terephthalsäure.

[0002] Bei Verfahren zur Herstellung von Terephthalsäure durch Oxidation von p-Xylol zu Terephthalsäure können während der Reinigung des Produkts große Mengen von z.B. entmineralisiertem Wasser insbesondere als Lösungsmittel oder Waschflüssigkeit verwendet werden. Derartiges Wasser wird verunreinigt und kann bei der Entsorgung Probleme verursachen und, wenn es verworfen wird, einen Verlust von potentiell nützlichen Materialien, insbesondere Terephthalsäure und/oder ihren Vorstufen mit sich bringen.

[0003] Die Behandlung von derartigem Wasser kann teuer und die Wiedergewinnung von geringen Mengen an Verunreinigungen daraus kann undurchführbar sein.

[0004] Die vorliegende Erfindung stellt Mittel bereit, wodurch Wasser in dem Verfahren wiederverwendet und nützliche Materialien z.B. in Form einer verbesserten Ausbeute an Terephthalsäure wiedergewonnen werden können, ohne daß eine wesentliche Verringerung der Qualität des reinen Terephthalsäureproduktes auftritt.

[0005] Die Erfindung umfaßt ein Verfahren, wie es in Patentanspruch 1 beschrieben ist.

[0006] Zumindest ein Teil der bei der Ausfällung von reiner Terephthalsäure gewonnenen, wässrigen Mutterlauge kann direkt, so wie sie vorliegt, oder indirekt nach Behandlung zum Lösen des rohen Feststoffes verwendet und/oder einer fraktionierten Destillation unterworfen werden und behandeltes Wasser wird von der fraktionierten Destillation wiedergewonnen und dazu verwendet, den aus der Lösung nach der Reduktionsschritt wiedergewonnenen Niederschlag zu waschen.

[0007] Um die Temperatur und/oder den Wassergehalt des Reaktionsmediums zu regeln wird ein Gemisch aus Essigsäure und Wasser in geeigneter Weise durch Verdampfen aus dem Reaktionsmedium entfernt, Wasser wird fraktioniert aus dem Gemisch abdestilliert und Essigsäure direkt oder indirekt in das Reaktionsmedium zurückgeführt.

[0008] Es ist bei dem Verfahren erforderlich, daß einiges Material, z.B. verunreinigtes Wasser gereinigt wird, um die Zunahme von unerwünschten Verunreinigungen in Reaktionsströmen zu verhindern; durch die Erfindung ergeben sich dennoch eine Vielzahl von Vorteilen.

[0009] Das Zurückführen des weniger reinen Niederschlags in das Reaktionsmedium ermöglicht es, daß mehr Terephthalsäure wiedergewonnen wird, und da einige Verunreinigungen, z.B. 4-Carboxybenzoesäure und p-Toluylsäure zu Terephthalsäure oxidiert werden, ist die gesteigerte Ausbeute von reiner Terephthalsäure in dem Verfahren vorteilhaft.

[0010] Das Zurückführen der zweiten Mutterlauge als Rückfluß zu der fraktionierten Destillation ist auch deshalb vorteilhaft, da ihre Verunreinigungen im allgemeinen einen hohen Siedepunkt aufweisen und mit der in die Reaktion zurückgeführten Essigsäure in das Reaktionsmedium zurückgeführt werden, in dem sie zumindest in einigen Fällen auch in Terephthalsäure umgewandelt werden. Da es auf jeden Fall in hohem Maße wünschenswert ist, Rückfluß einzusetzen, kann eine erhebliche Wassermenge mit geringen Kosten behandelt werden.

[0011] Die Verwendung von derartig behandeltem Wasser zum Lösen des rohen Feststoffes und/oder zum Waschen des Niederschlags, der nach dem Reduktionsschritt aus der Lösung gewonnen werden kann, und die Verwendung der zweiten Mutterlauge zum Lösen des rohen Feststoffes ermöglicht eine erhebliche Verringerung der in dem Verfahren erforderlichen Frischwassermenge und auch des Volumens des verunreinigten Wassers, das von dem Verfahren als Spülwasser entfernt wird. Die verringerte Spülwassermenge ist an sich schon deshalb vorteilhaft, da wertvolle Verunreinigungen, z.B. Terephthalsäurevorstufenverbindungen und Katalysatorrückstände nicht verworfen werden und außerdem, da weniger zu behandelndes Abwasser anfällt.

[0012] Die Erfindung kann durch Einsatz höherer Temperaturen und Drücke beim Ausfällungsschritt auch eine Reoptimierung des ersten Ausfällungsschrittes nach dem Reduktionsschritt ermöglichen. Geeigneterweise wird der Ausfällungsschritt bei einem Druck von mehr als 1 bar, z.B. bei mindestens 3 bar und geeigneterweise bei nicht mehr als 20 bar, vorzugsweise im Bereich von 6 – 15 bar und besonders bevorzugt im Bereich von 7 – 12 bar, z.B. bei 8 bar durchgeführt.

[0013] Ausfällung bei höherem Druck und höherer Temperatur verringert die Menge der kristallisierten Verunreinigungen und das Ausmaß der Co-Kristallisierung von Verunreinigungen mit dem Terephthalsäureprodukt. Das Terephthalsäureprodukt kann so mit höherer Reinheit ausgefällt und die in der Lösung verbleibende Terephthalsäure in großem Umfang in dem erfindungsgemäßen Verfahren wiedergewonnen werden.

[0014] Die Erfindung kann auch die Reoptimierung des Oxidationsreaktionsschrittes ermöglichen, wodurch eine weniger reine, rohe Terephthalsäure, die im wesentlichen durch ihren 4-Carboxybenzaldehydgehalt gekennzeichnet ist, dem Hydrierungsreaktionsschritt unterworfen werden kann, da so aus dem 4-Carboxybenzaldehyd gebildete p-Toluylsäure weitgehend wiedergewonnen und in das Reaktionsmedium zurückgeführt wird, in dem die Oxidation zu Terephthalsäure stattfindet. Es kann daher Terephthalsäure von akzeptabler Reinheit aus einem Prozeßstrom erhalten werden, der einen höheren Gehalt an Verunreinigungen enthält.

[0015] Die vorliegende Erfindung ermöglicht es daher, das Terephthalsäureherstellungsverfahren zu optimieren, um eine größere Produktreinheit zu ermöglichen oder, je nach Wunsch, den Betrieb bei größeren Verunreinigungskonzentrationen im Prozeßstrom durchzuführen.

[0016] Die einzelnen Verfahrensschritte können in herkömmlicher Weise durchgeführt werden. Das flüssige Reaktionsmedium umfaßt normalerweise einen Katalysator, z.B. ein Kobalt/Mangan/Bromid-Katalysatorsystem, das in dem Reaktionsmedium löslich ist. In geeigneter Weise wird die Oxidation in Gegenwart einer Sauerstoffquelle, z.B. von Luft bei einem Druck von 5 – 30 bar und vorzugsweise einer Sauerstoffkonzentration von 0 – 8 % in dem aus dem Reaktor ausströmenden Gas, und bei einer Temperatur von 150 – 250°C durchgeführt. Es ist in geeigneter Weise ein kontinuierliches Verfahren und wird vorzugsweise in einem Rührreaktor durchgeführt. Die Reaktion verläuft exotherm und die Reaktionswärme kann in geeigneter Weise durch Verdampfen von Wasser und Essigsäure aus dem Reaktionsmedium abgeführt werden.

[0017] Der bei der Reinigung des rohen Terephthalsäureproduktes verwendete heterogene Katalysator kann ein Edelmetallkatalysator auf einem Träger sein, z.B. Platin und/oder vorzugsweise Palladium auf einem inerten, z.B. einem Kohlenstoffträger. Die Reinigung wird in geeigneter Weise dadurch durchgeführt, daß die wässrige Lösung, die Terephthalsäure und Verunreinigungen, z.B. 4-Carboxybenzaldehyd enthält, durch ein geflutetes Bett eines heterogenen Katalysators bei einer Temperatur von 250 – 350°C in Gegenwart von Wasserstoff hindurchgeführt wird. Die Lösung umfaßt in geeigneter Weise 20 – 50 Gew.-% Terephthalsäure.

[0018] Nach der Reduktion wird die Lösung in geeigneter Weise auf eine Temperatur von 100°C – 220°C, vorzugsweise 100°C – 200°C abgekühlt, und reine Terephthalsäure in geeigneter Weise von der Lösung abgetrennt, wobei die Lösung z.B. auf 15°C – 100°C weiter abgekühlt und/oder verdampft wird, wodurch der weniger reine Niederschlag hergestellt wird. Der weniger reine Niederschlag wird in geeigneter Weise von der wässrigen Mutterlauge abgetrennt. Wenigstens ein Teil der Mutterlauge aus dieser Abtrennung, die zweite Mutterlauge, wird über die fraktionierende Destillationssäule und/oder zu der Wiederaufschlammung der rohen Terephthalsäure zurückgeführt.

[0019] Die fraktionierte Destillation kann bei einem Rückflußverhältnis von 2 – 10 und unter Verwendung von 25 – 125 theoretischen Böden durchgeführt werden. Die zu ihr zurückgeführte Mutterlauge kann z.B. innerhalb eines Bereichs von 0 – 30 % der theoretischen Böden vom Oberteil der Säule eingespeist werden.

[0020] Wenn Verdampfung zur Herstellung des weniger reinen Niederschlages eingesetzt wird, kann in geeigneter Weise eine einstufige oder mehrstufige Verdampfung mit ausreichendem Rückfluß eingesetzt werden, um das Mitreißen von Verunreinigungen mit hohem Siedepunkt durch das verdampfte Wasser zu minimieren.

[0021] Eine Ausführungsform der Erfindung wird nun im Hinblick auf die beigefügte Zeichnung, **Fig. 1**, beschrieben, die ein erfindungsgemäßes Flußdiagramm darstellt.

[0022] Reaktor B wird über Leitung 1 mit para-Xylol und Essigsäure, die einen gelösten Katalysator umfassen, der Kobalt, Mangan und Bromidionen enthält und über Leitung 27 mit Luftbeschickt. Aus diesem Reaktor wird das Produkt über Leitung 6 in die Kristallisiervorrichtung D geführt. Die Temperatur innerhalb des Reaktors wird durch Verdampfen eines Gemisches aus Essigsäure und Wasser aus dem Reaktor in ein Kondensiersystem C über Leitung 2 geregelt. Das gesamte oder ein Teil des Kondensats wird über Leitung 4 in den Reaktor zurückgeführt, wobei nicht kondensierbare Stoffe über Linie 3 abgeleitet werden. Um den Wassergehalt des Reaktionsgefäßes B zu regeln wird ein Teil des Kondensats aus der Kondensiereinrichtung über Leitung 5 entfernt und in die Destillationssäule G geführt.

[0023] Im Kristallisationsbereich D wird die Temperatur auf etwa 75°C – 120°C gesenkt und die Aufschlammung, die dadurch hergestellte kristalline Terephthalsäure in der Mutterlauge enthält, wird zu einer Trenn- und Trockenstufe E geführt, die in geeigneter Weise eine Zentrifuge oder ein Filter und ein Rotations- oder Fließbettrockner ist.

[0024] Von dieser Stufe wiedergewonnene Mutterlauge wird teilweise über Leitung **10** in den Reaktor B zurückgeführt, wobei sie üblicherweise zuerst mit frischem Katalysator, para-Xylol und Essigsäure, die im Strom **1** vorhanden sind, gemischt wird. Die restliche Mutterlauge wird in geeigneter Weise zu einer Verdampfungsstufe F geführt, in der Essigsäure über den Strom **11** zur Destillationssäule G und/oder über Leitungen **11** und **26** in den Reaktor B zurückgeführt wird. Spülwasser mit Nebenprodukten und anderen Materialien wird über Strom **12** abgezogen.

[0025] Aus der Trenn- und Trockenstufe E werden feste Terephthalsäurekristalle über Strom **8** in ein Wiederaufschlammungsgefäß H geführt, wo die Kristalle mit aus der Destillationssäule wiedergewonnenem Wasser über Strom **25** und anderem Wasser, wie wiedergewonnener Mutterlauge über Strom **18**, wiedergewonnenen Mutterlauge über Strom **30** und entmineralisiertem Wasser über Strom **28**, aufgeschlämmt werden.

[0026] Die in dieser Stufe hergestellte Aufschlammung wird in Bereich J auf eine Temperatur von z.B. 250°C bis 350°C erhitzt, wodurch eine Lösung gebildet wird, die über Strom **14** in den Reaktor K geführt wird, in dem sie mit Wasserstoff über einem Festbett-Palladiumkatalysator umgesetzt wird, wodurch die Verunreinigungen in der Lösung reduziert werden, und dann wird sie in der Kristallisiervorrichtung L wieder auskristallisiert, wobei reines Produkt abgetrennt und in Stufe M getrocknet wird, die wieder in geeigneter Weise eine Zentrifuge oder ein Filter ist und mit einem Rotationsverdampfer oder auf einem Fließbettrockner getrocknet.

[0027] Die Temperatur, auf die die Lösung in der Kristallisiervorrichtung abgekühlt wird und die Abkühlgeschwindigkeit wird so eingestellt, daß eine geeignete Reinheit des gewünschten Terephthalsäureproduktes erzielt wird. Das reine Terephthalsäureprodukt wird von Stufe M wiedergewonnen und die Mutterlauge von der Trennung wird in Wiedergewinnungsstufe A geführt, in der die Flüssigkeit verdampft oder vorzugsweise weiter abgekühlt wird, um das Wiedergewinnen von weiteren Feststoffen zu ermöglichen, die über Strom **22** in den Reaktor B zurückgeführt werden können. Die aus A wiedergewonnene Mutterlauge wird zumindest teilweise in die Destillationssäule G zurückgeführt und wie nachstehend beschrieben bearbeitet und kann teilweise über Strom **30** in den Wiederaufschlammungsbereich H zurückgeführt und teilweise über Strom **21** abgeleitet werden. Wenn verdampft wird, wird das verdampfte Wasser vorzugsweise in den Wiederaufschlammungsbereich H zurückgeführt.

[0028] Die Destillationssäule G wird in **Fig. 2** gezeigt. In der Säule wird ein Gemisch von Wasser und aus dem Reaktionsmedium verdampfter Essigsäure fraktioniert destilliert, wobei die Säule für die Behandlung von Mutterlauge modifiziert worden ist, die von einer durch Ausfällen behandelten Mutterlauge abgetrennt worden ist.

[0029] Die Säule G umfaßt drei Zonen; die obere Zone 1 umfaßt fünf theoretische Böden, die mittlere Zone 2 umfaßt 40 theoretische Böden und die untere Zone 3 umfaßt 10 theoretische Böden.

[0030] Ein Gemisch aus Essigsäure und aus dem Reaktionsschritt der Oxidierung von p-Xylol zu Terephthalsäure verdampftem Wasser, Ströme 5 und 11, wird über Leitung **31** zwischen die mittleren und unteren Zonen der Säulen geleitet. Mutterlauge aus der Ausfällung von Terephthalsäure wird in die Säule zwischen den oberen und mittleren Zonen über Strom **20** geführt. Essigsäure und schweres Material werden von dem Boden der Säule über Strom **26** zum Reaktor B geleitet. Wasser wird in dem Kondensator kondensiert und in dem vorstehend beschriebenen Verfahren über Strom **23** wiederverwendet.

[0031] Wenn ein Zustrom aus Essigsäure und Wasser zwischen den mittleren und unteren Zonen der Säule in die Säule hineingeleitet wird und ein Rückflußverhältnis von etwa 4 in den mittleren und unteren Zonen der Säule aufrechterhalten wird, ist gefunden worden, daß der Anteil an p-Toluylsäure und gewissen anderen Verunreinigungen des Wassers, das aus der Säule über Strom **24** entfernt wurde, im Vergleich mit den in der Mutterlauge, die der Säule zwischen den oberen und mittleren Zonen über Strom **20** zugeführt wird, vorhandenen Mengen, etwa 50 % beträgt, wenn das Rückflußverhältnis in der oberen Zone null ist und auf weniger als 10 % fällt, wenn das Rückflußverhältnis **1** ist.

[0032] Die Erfindung wird nur im Hinblick auf die folgenden Beispiele erläutert.

Beispiel 1 (Vergleich)

[0033] Dieses ist kein erfindungsgemäßes Beispiel. Ein Gemisch aus p-Xylol (1 Teil G/G) und Essigsäurelösungsmittel (4,5 Teile G/G) (das Wasser enthält (4 %)), Kobalt und Mangan (400 ppm G/G) und Bromid (600 ppm G/G) wurde mit einer Geschwindigkeit von 5,5 Teilen G/G pro Stunde in einen halbtechnischen, kontinuierlichen Oxidationsreaktor, der bei etwa 215°C und 20 bar gehalten wurde, geleitet und mit ausreichend Luft zum Erhalt einer Sauerstoffkonzentration von etwa 3,5 % V/V in dem Reaktorabgas, gemessen auf einer von flüchtigen Stoffen freien Basis, oxidiert, wobei 1,5 Teile G/G Kondensat pro Stunde entfernt wurden, um die Wasserkonzentration der Reaktormutterlauge zu regeln und bei einem Gehalt von etwa 10 G/G zu halten. Die den Reaktor verlassende Terephthalsäureaufschlämmung wurde in ein zweites Gefäß, das bei etwa 190°C und 17 bar gehalten wurde; eingeleitet und weiter oxidiert, während eine Sauerstoffkonzentration von etwa 3,5 % V/V, gemessen auf einer von flüchtigen Stoffen freien Basis, in dem Abgas des zweiten Oxidationsreaktors gehalten wurde. Die das zweite Gefäß verlassende Aufschlämmung wurde in aufeinanderfolgenden Schritten auf atmosphärischen Druck entspannt, periodisch gefiltert, mit Essigsäure und dann mit Wasser gewaschen und getrocknet.

[0034] Die Leistung des Reaktors wurde mittels On-line-Gaschromatographie auf Kohlenoxide, Methylacetat, p-Xylol und andere Spurenverbindungen überwacht. Nach mehreren Stunden im Fließgleichgewicht wurde die Reaktion beendet und die getrockneten Terephthalsäureproben auf ihre Reinheit durch Messung ihres Gehalts an 4 – Carboxybenzaldehyd (4CBA) mittels HPLC und auf ihre Pulverfärbung untersucht.

[0035] Eine Reihe derartiger Experimente wurde durchgeführt, wodurch eine Reihe von Resultaten erhalten wurde, die ein Maß der experimentellen Veränderlichkeit der Hauptbetriebsparameter wie in Tabelle 1 aufgelistet, ergab.

Beispiel 2

[0036] Das Verfahren von Beispiel 1 wurde mit der Ausnahme wiederholt, daß ein zusätzliches Speisegemisch zu dem Speisegemisch des Oxidationsreaktors gegeben wurde. Dieses zusätzliche Speisegemisch simuliert das Zurückführen von Verunreinigungen, die in der durch Ausfällen von reiner Terephthalsäure aus einer Anlage für reine Terephthalsäure erhaltenen Mutterlauge vorhanden sind, d.h., ein weniger reiner Niederschlag, der durch Behandlung, z.B. durch weiteres Kühlen, der Mutterlauge erhalten wurde, die durch Ausfällen von reiner Terephthalsäure erhalten wurde und den Verunreinigungen, die in der Mutterlauge enthalten waren, die durch Ausfällen des weniger reinen Niederschlags (zweite Mutterlauge) erhalten wurde.

[0037] Die zusätzliche Speisemischung wies eine derartige Zusammensetzung auf, daß sie den schlimmsten Fall eines Rückführungsstroms darstellte (vollständige Rückführung des weniger reinen Niederschlags und der Verunreinigungen der Mutterlauge). Die zusätzliche Speisemischung wies die folgende Zusammensetzung auf (Gramm der Komponente in der zusätzlichen Speisemischung, die pro 1000 g p-Xylol in der Reaktionsspeisemischung in den Oxidationsreaktor gegeben wurden);

Terephthalsäure	6,0
p-Toluylsäure	1,6
Nebenprodukte und Zwischenprodukte	2,8
gefärbte Verbindungen oder Vorstufen	0,029
Oxidationskatalysator	0,21

[0038] Die Ergebnisse dieses Beispiels werden in Tabelle 1 gezeigt.

Beispiel 3

[0039] Das Verfahren von Beispiel 2 wurde mit der Ausnahme wiederholt, daß die zusätzliche Speisemischung die folgenden Komponenten umfaßte (Gramm der Komponente in der zusätzlichen Speisemischung, die pro 1000 g p-Xylol in dem Reaktionsgemisch zu dem Oxidationsreaktor gegeben wurden);

Terephthalsäure	8,5
p-Toluylsäure	1,8
Nebenprodukte und Zwischenprodukte	0,7
gefärbte Verbindungen oder Vorstufen	0,013
Oxidationskatalysator	0,002

[0040] Die Ergebnisse dieses Beispiels werden in Tabelle 1 gezeigt.

Tabelle 1

	<u>Beispiel 1</u> <u>(Vergleich)</u>	<u>Beispiel 2</u>	<u>Beispiel 3</u>
Abbau von			
Essigsäure (te/te Essigsäure)	0,04 ± 0,002	0,0397	0,0403
4CBA-Gehalt	0,18 ± 0,02 %	0,186 %	0,180 %
Farbe (b*)	5,6 ± 1,0	6,6	6,2

[0041] Die Ergebnisse von Beispielen 2 und 3 lagen innerhalb der Bereiche, die für Experimente beobachtet wurden, die gemäß Beispiel 1 (Vergleich) durchgeführt wurden.

[0042] Beispiele 2 und 3 zeigen, daß die Materialien, die in einem weniger reinen Niederschlag, der aus dem durch Ausfällen der reinen Terephthalsäure erhaltenen Filtrat erhalten wurde, vorhanden sind ohne nachteilige Wirkung auf die Qualität der rohen Terephthalsäure (und daher der reinen Terephthalsäure, die daraus hergestellt wird oder die Oxidationsleistung zu dem Oxidationsschritt zurückgeführt werden können.

[0043] Außerdem wird der Gehalt an Terephthalsäure verbessert, da zumindest ein Teil der zurückgeführten Terephthalsäure- Vorstufenverbindungen zu Terephthalsäure oxidiert wird.

[0044] Die Resultate zeigen, daß durch Zurückführen von weniger reinem Niederschlag und Verunreinigungen, die in der aus dem zweiten Ausfällungsschritt erhaltenen Mutterlauge enthalten sind, Vorteile wie verbesserte Terephthalsäureausbeute, verringerter Wasserverbrauch und geringere Abwassermenge ohne irgendeinen bedeutenden Nachteil im Hinblick auf die Qualität der reinen Terephthalsäureprodukte sichergestellt werden können.

Patentansprüche

1. Verfahren, bei dem Terephthalsäure durch Oxidation von para-Xylol zu Terephthalsäure in einem flüssigen Reaktionsmedium, das Essigsäure umfasst, hergestellt wird wobei ein Gemisch aus Essigsäure und Wasser dem Reaktionsmedium durch Verdunstung entzogen wird, wobei Wasser aus dem Gemisch durch eine fraktionierte Destillation destilliert wird und die Essigsäure in das Reaktionsmedium recycelt wird und bei dem Terephthalsäure von dem flüssigen Reaktionsmedium als roher Feststoff abgetrennt wird, in einer Wasser enthaltenden Flüssigkeit, zur Herstellung einer Lösung gelöst wird, und durch ein Verfahren gereinigt wird, das das in Kontakt bringen der Lösung mit Wasserstoff und einem heterogenen Katalysator unter reduzierenden Bedingungen zur Reduktion von zumindest einigen Verunreinigungen umfasst, wobei die Lösung nach der Reduktion gekühlt wird, wodurch feste, gereinigte Terephthalsäure ausgefällt wird, und die wässrige Mutterlauge von dem Niederschlag abgetrennt wird, die wässrige Mutterlauge behandelt wird, wodurch ein weniger reiner Niederschlag, der Terephthalsäure umfasst, und eine zweite Mutterlauge hergestellt wird, der weniger reine Niederschlag direkt oder indirekt in das Reaktionsmedium zurückgeführt wird; **dadurch gekennzeichnet**, dass zumindest ein Teil der zweiten Mutterlauge indirekt nach Behandlung dazu verwendet wird, den rohen Feststoff zu lösen; die Behandlung umfasst das Passieren der zweiten Mutterlauge in eine fraktionierte Destillationskolonne um die verdunstete Essigsäure und das verdunstete Wasser in einer fraktionierten Destillation zu unterwerfen und behandeltes Wasser wiedergewonnen wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei der weniger reine Niederschlag durch weiteres Kühlen der wässrigen Mutterlauge hergestellt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 2, wobei die wässrige Mutterlauge auf eine Temperatur von 15 – 100°C abgekühlt wird.

4. Verfahren nach einem vorstehenden Anspruch, wobei die fraktionierte Destillation, wenn sie angewen-

det wird, bei einem Rückflussverhältnis von 2–10 durchgeführt wird.

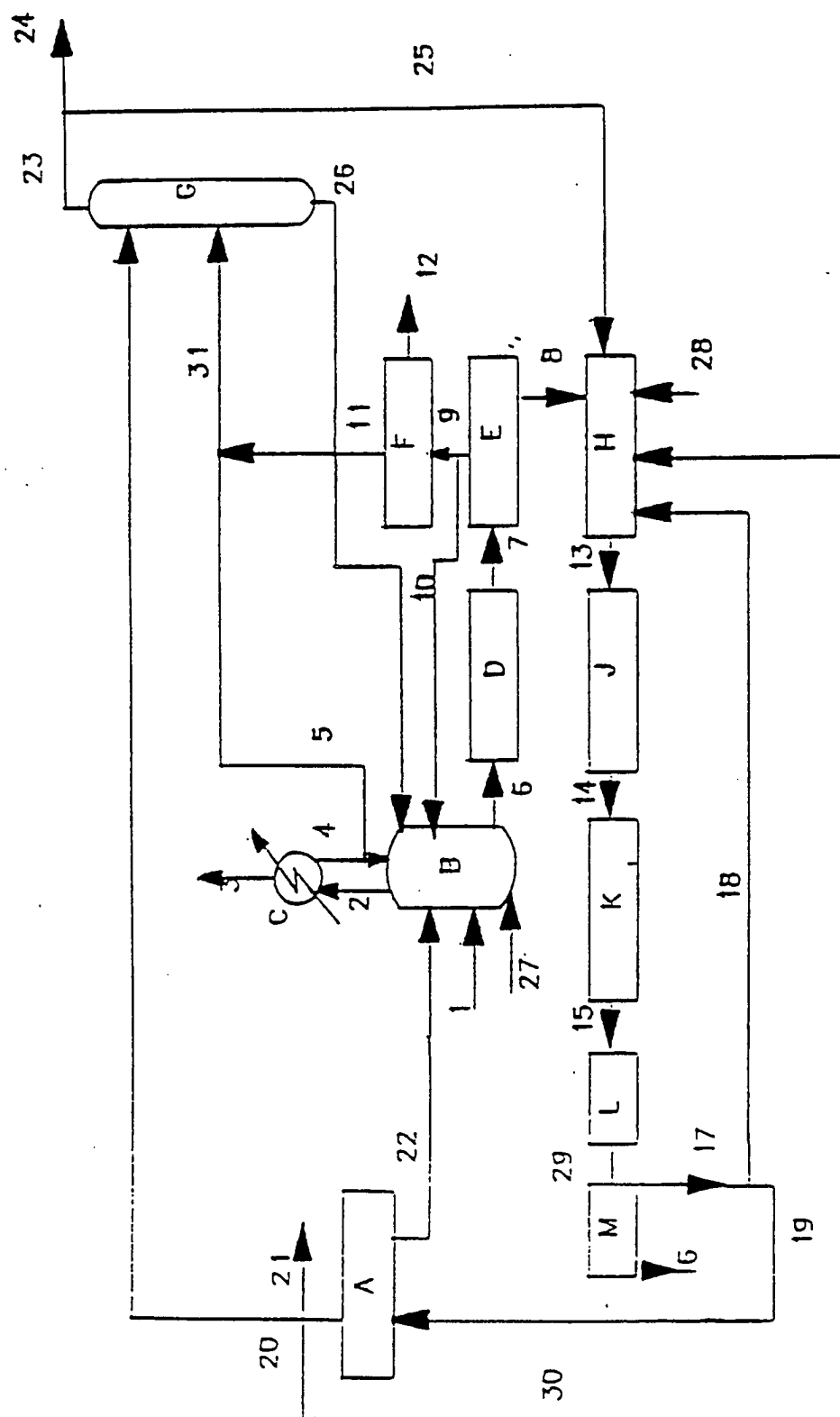
5. Verfahren nach Anspruch 4, wobei 25 – 125 theoretische Böden eingesetzt werden.

6. Verfahren nach Anspruch 4 oder 5, wobei die zur fraktionierten Destillation zurückgeführte Mutterlauge in 0 – 30 % der theoretischen Böden vom Oberteil der Säule eingespeist wird.

7. Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der Ausfällungsschritt zur Herstellung von reiner Terephthalsäure bei einem Druck von mindestens 3 bar durchgeführt wird.

Es folgen 2 Blatt Zeichnungen

FIGUR 1/2



FIGUR 2/2

