

發明專利說明書 200427725

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：93103786

※ 申請日期：93.8.13.

※IPC 分類：C08G63/00

一、發明名稱：(中文/英文)

用於製備適用於生產聚酯之羧酸／二醇混合物的方法

PROCESS FOR PRODUCTION OF A CARBOXYLIC ACID/DIOL
MIXTURE SUITABLE FOR USE IN POLYESTER PRODUCTION

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

美商伊士曼化學公司

EASTMAN CHEMICAL COMPANY

代表人：(中文/英文)

伯納 J 葛雷夫二世

GRAVES, BERNARD J. JR.

住居所或營業所地址：(中文/英文)

美國田納西州金斯普特市北伊士曼路100號

100 NORTH EASTMAN ROAD, KINGSPORT, TENNESSEE 37660,
U.S.A.

國籍：(中文/英文)

美國 U.S.A.

三、發明人：(共 4 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 羅伯 林
LIN, ROBERT
2. 提摩西 亞倫 奧普修
UPSHAW, TIMOTHY ALAN
3. 杜安 亞倫 豪爾
HALL, DUANE ALAN
4. 肯尼 藍道夫 帕克
PARKER, KENNY RANDOLPH

地 址：(中文/英文)

- 1.~4.均 美國田納西州金斯普特市第511號郵政信箱
P.O. BOX 511, KINGSPORT, TENNESSEE 37662, U.S.A.

國 籍：(中文/英文)

- 1.~4.均美國 U.S.A.

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家(地區)申請專利：

【格式請依：受理國家(地區)、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 美國；2003年03月06日；10/383,126

2.

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1.

2.

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種方法，羧酸/二醇混合物係經由該方法自羧酸/溶劑漿液獲得而無實質上乾燥之羧酸固體之分離。更特定言之，本發明係關於一種方法，適用於作為聚酯製造之開始材料之對酞酸/乙二醇混合物係經由該方法自對酞酸/溶劑漿液獲得而無實質上乾燥之對酞酸固體之分離。

【先前技術】

追求製造聚對酞酸乙二酯(PET)及其他聚酯類之目的，許多專利文件係致力於敘述用於製備適用於作為開始材料之羧酸/二醇混合物之方法。就大體而論，此等發明敘述關於純化之對酞酸固體與液體乙二醇之特定之混合方案。此外，具有實質數量之文件，該等文件從事於製造於粉末形式之純化之對酞酸，該形式係適用於製造PET及其他聚酯類中之用途。

本發明之目的係敘述一種方法，適用於作為聚酯製造之開始材料之羧酸/二醇混合物係經由該方法自羧酸/溶劑漿液獲得而無實質上乾燥之羧酸固體之分離。更特定言之，本發明之目的係敘述一種方法，適用於作為聚酯製造之開始材料之對酞酸/乙二醇混合物係經由該方法自對酞酸/溶劑漿液獲得而無實質上乾燥之對酞酸固體之分離。

通常，純化之對酞酸固體係於多-步驟方法中製造，於該方法中製造粗對酞酸。對於作為於商業PET中之開始材料之

直接使用，粗對酞酸不具有足夠之品質。替代地，粗對酞酸通常係精製成純化之對酞酸固體。

對二甲苯之液相氧化作用製造粗對酞酸。為了轉化4-羧基苯甲醛成為對甲苯甲酸(其係較水溶性之衍生物)之目的、及為了轉化特性地黃色化合物成為無色之衍生物之目的，粗對酞酸係溶解於水中及氫化。由於在PET之製造中於對酞酸與乙二醇之間之縮合反應之期間，4-羧基苯甲醛及對甲苯甲酸作用充當鏈終止劑，因此於最後純化之對酞酸產物中之任何4-羧基苯甲醛及對甲苯甲酸對於聚合作用方法係特別有害的。以重量為基準，通常純化之對酞酸包含低於25百萬分點(ppm)4-羧基苯甲醛及低於150百萬分點對-甲苯甲酸。

已發展多種之其他方法，其中獲得適用於作為商業PET製造之開始材料之對酞酸而無氫化作用之使用。通常，此等方法一般涉及對二甲苯於醋酸溶劑中之催化氧化作用，接著對酞酸自醋酸溶劑之過濾及乾燥。

為了製造對於PRT製造可接受之對酞酸/二醇混合物，來自對酞酸/溶劑漿液者顯現實質上不同於來自對酞酸與水混合物者之問題。

通常，經由對二甲苯於醋酸溶劑中之催化氧化作用而製造之對酞酸(TPA)產生對酞酸/溶劑漿液，其包含殘餘之催化劑(例如鈷、錳、及溴)。於自對酞酸/溶劑漿液製造實質上乾燥之TPA固體之一種通常方法中，該對酞酸/溶劑漿液係過濾以自TPA固體分離實質數量之醋酸液體。殘餘之催化

劑通常係經由以不含催化劑之醋酸、水或其他溶劑洗滌(清洗)濕濾泥而自該對酞酸/溶劑漿液分離。TPA固體係經由乾燥而分離。

於本發明中，已發現一種新穎方法，該方法導致比目前使用之方法較少之步驟。本發明之主要利益係與對酞酸粉末之分離相關之資本及操作費用之減少。於對於經由對二甲苯於醋酸溶劑中之催化氧化作用而製造對酞酸之習用途徑中，對酞酸/溶劑漿液係過濾、洗滌、然後乾燥，以製造適用於作為PET製造之開始材料之對酞酸粉末。

於本發明之一種具體實施例中，對酞酸/溶劑漿液係過濾，以產生具有溶劑之對酞酸濾泥及TPA溶劑母液流。然後該具有溶劑之對酞酸濾泥係以水洗滌(清洗)，以回收殘餘之金屬催化劑材料及產生水-濕之對酞酸濾泥及TPA溶劑/水副產物液體。然後該水-濕之對酞酸濾泥係與二醇組合，以製造適用於作為於商業PET方法中之開始材料之對酞酸/二醇混合物。經由規避用於分離對酞酸固體之習用方法，消除了製造對酞酸粉末所必要之設備。

本發明之另一種令人驚訝並且似乎矛盾之態樣係水之添加入醋酸及乙二醇溶劑中之利益。就大體而論，於用於製造對酞酸之習用方法中，移除於氧化作用方法中產生之水係必要的。通常，醋酸作為氧化作用溶劑之使用使其中分離醋酸與水之另外之方法步驟變成必要的。當分離醋酸與水之另外之方法步驟可係經由自醋酸溶劑乾燥對酞酸而避免時，製造醋酸與水混合物似乎係矛盾的。

此外，於用於經由TPA與乙二醇之酯化作用而製造PET之方法中，水係產生如反應副產物。就大體而論，經由其中分離乙二醇與水之另外之方法步驟而移除於酯化作用方法產生之水，係必要的。當分離乙二醇與水之另外之方法步驟可係經由不連同TPA引進水而避免時，製造乙二醇與水混合物似乎係矛盾的。

然而，本發明之一種利益係以，對於習用之TPA及PET製造方法，乙二醇/水及醋酸/水分離系統通常存在之假設為基礎。於本發明中，與消除該TPA乾燥相關之節省係屬於比於乙二醇與水分離能量中之增量之增加、加上於醋酸與水分離能量中之增量之增加較大之利益。

【發明內容】

本發明係關於一種方法，羧酸/二醇混合物係經由該方法自羧酸/溶劑漿液獲得而無實質上乾燥之羧酸固體之分離。更特定言之，本發明係關於一種方法，該方法係用於適用於作為商業PET之製造之原料之對酞酸/乙二醇混合物之製造。造成之方法具有比目前使用之方法較少之步驟，及可係於較低之資本費用建造。特定言之，本發明組合以乙二醇之直接取代水。取代步驟之組合消除分離純化之對酞酸固體之需要，因而消除用於結晶、固體-液體分離、及固體處理設備之需要，此等事物係通常於商業純化之對酞酸方法中找到。

本發明之一種目的係提供自羧酸/溶劑漿液製造羧酸/二醇混合物而無實質上乾燥之羧酸固體之分離之方法。

本發明之另一種目的係提供自對酞酸/溶劑漿液製造對酞酸/二醇混合物而無實質上乾燥之對酞酸固體之分離之方法。

本發明之另一種目的係提供自對酞酸溶劑漿液製造對酞酸/乙二醇混合物而無實質上乾燥之對酞酸固體之分離之方法。

本發明之另一種目的係提供用於製造對酞酸/乙二醇混合物之方法，該方法經由自水-濕之對酞酸濾泥通過羧酸/二醇混合區之使用以移除水而不具有實質上乾燥之對酞酸固體之分離。

於本發明之第一種具體實施例中，提供用於製造羧酸/二醇混合物之方法，該方法包含於羧酸/二醇混合區中將二醇加入水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分之水，以生成該羧酸/二醇混合物。

於本發明之另一種具體實施例中，提供用於製造羧酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：

(a)於第一固體-液體分離裝置中自羧酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之羧酸濾泥、及溶劑母液體流。

(b)於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之羧酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之羧酸濾泥、及溶劑/水副產物液體。

(c)於羧酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之羧酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該羧酸/二醇混合物。

於本發明之另一種具體實施例中，提供用於製造羧酸/二

醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：

(a)於固體-液體分離區中自羧酸/溶劑漿液移除溶劑；其中於該羧酸/溶劑漿液中之實質部分之溶劑係以水取代，以生成水-濕之羧酸濾泥。

(b)於羧酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之羧酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該羧酸/二醇混合物。

於本發明之另一種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物。

於本發明之另一種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：

(a)於第一固體-液體分離裝置中自對酞酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之對酞酸濾泥。

(b)於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之對酞酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之對酞酸濾泥。

(c)於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物。

於本發明之另一種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：

(a)於固體-液體分離區中自對酞酸/溶劑漿液移除溶劑；其中於該對酞酸/溶劑漿液中之實質部分之溶劑係以水取代，以生成水-濕之對酞酸濾泥。

(b)於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸

濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物。

於本發明之另一種具體實施例中，提供自羧酸/溶劑漿液製造羧酸/二醇混合物而無實質上乾燥之羧酸固體之分離之方法。

於本發明之另一種具體實施例中，提供自對酞酸/溶劑漿液製造對酞酸/二醇混合物而無實質上乾燥之對酞酸固體之分離之方法。

於本發明之另一種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：

(a)於第一固體-液體分離裝置中自對酞酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之對酞酸濾泥；其中該第一固體-液體分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作。

(b)於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之對酞酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之對酞酸濾泥；其中該第二固體-液體分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作。

(c)於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物；其中該添加係於約40°C與290°C之間之溫度發生；其中該二醇係乙二醇。

於本發明之另一種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法以提及次序包含下列步驟：

(a)於第一固體-液體分離裝置中自對酞酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之對酞酸濾泥；其中該第一固體-

液體分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作。

(b)於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之對酞酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之對酞酸濾泥；其中該第二固體-液體分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作。

(c)於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物；其中該添加係於約40°C與290°C之間之溫度發生；其中該二醇係乙二醇。

對於具有於此技藝中之一般技能之其他人，於閱讀本專利說明書之後此等目的、及其他目的將變成較明顯的。

【實施方式】

於圖1中表示之本發明之第一種具體實施例中，提供用於製造羧酸/二醇混合物108之方法，該方法包含於羧酸/二醇混合區130中將二醇107加入水-濕之羧酸濾泥106中，以移除一部分之水，以生成羧酸/二醇混合物108。

羧酸/二醇混合區130、二醇107、羧酸/二醇混合物108及水-濕之羧酸濾泥106係隨後於本發明之第二種具體實施例中敘述。

於圖1中表示之本發明之第二種具體實施例中，提供用於製造羧酸/二醇混合物108之方法，該方法包含下列步驟。

步驟(1)包含於第一固體-液體分離裝置110中自羧酸/溶劑漿液101移除雜質，以生成具有溶劑之羧酸濾泥103、及溶劑母液流102。導管101包含羧酸/溶劑漿液，該漿液包含

羧酸、雜質及溶劑。該雜質包含殘餘之催化劑(通常係，但不限於，鈷、錳、或溴)。適用之溶劑包括，但不限於，脂族單羧酸類(較佳係包含2至6個碳原子者)、或苯甲酸及其混合物及此等化合物與水之混合物。較佳地，溶劑係由主要之醋酸及/或部分水組成。醋酸比水之比例可係於以質量計50:50至99:1醋酸比水之範圍內，更佳係於85:15至95:5之範圍內，及最佳係於90:10至95:5之範圍內。適用之羧酸包括，但不限於，對酞酸、異酞酸、萘二甲酸、偏苯三甲酸、及其混合物。

羧酸/溶劑漿液101係於以重量計10-40%羧酸之範圍內。較佳地，羧酸/溶劑漿液101係於以重量計25-35%羧酸之範圍內。最佳地，羧酸/溶劑漿液101係於以重量計30-35%羧酸之範圍內。然後，於導管101中之羧酸/溶劑漿液係引進入第一固體-液體分離裝置110中，其中實質部分之溶劑母液係於導管102中回收。該溶劑母液102包含實質部分之溶劑。

第一固體-液體分離裝置110包含能有效率地分離固體與液體之任何裝置。第一固體-液體分離裝置110通常可係由，但不限於，下列類型之裝置構成：離心機、旋風機、旋轉鼓過濾機、帶過濾機、壓濾機及其他。第一固體-液體分離裝置110可於約40°C至155°C之溫度範圍內操作。較佳地，第一固體-液體分離裝置110可於約80°C至150°C之溫度範圍內操作。最佳地，第一固體-液體分離裝置110可於約90°C至150°C之溫度範圍內操作。產生具有溶劑之羧酸濾泥

103，其中具有溶劑之羧酸濾泥103之水份組成係於以重量計0.5-30%水份之範圍內，較佳係於以1-20%水份之範圍內，最佳係於以1-5%水份之範圍內。視需要，殘餘之溶劑可係經由氣體取代步驟而移除，以將洗滌之溶劑污染減少至最低。

步驟(2)包含於第二固體-液體分離裝置120中自具有溶劑之羧酸濾泥103移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之羧酸濾泥106、及溶劑/水副產物液體105。

然後具有溶劑之羧酸濾泥103，係於固體-液體分離裝置120中經歷以水、或實質上水與殘餘數量之溶劑之洗滌或"清洗"，其中實質部分之最初溶劑係以水取代，以生成水-濕之羧酸濾泥106。水-濕之羧酸濾泥106，較佳地係於約0.5-30%水份之範圍內，更佳係於1-20%水份之範圍內，及最佳係於1-5%水份之範圍內。以質量為基準，水-濕之羧酸濾泥106之殘餘水份應包含低於約2%溶劑。此外，水-濕之羧酸濾泥應包含低於1%之任何金屬(例如，鈷、錳及其他)，通常於對二甲苯氧化作用中作為催化劑使用，於導管101中之漿液混合物中之此等金屬，應留在水-濕之羧酸濾泥106中。

洗滌水係經由導管104而引進入第二固體-液體分離裝置120中。該洗滌水應係，於連續之基礎，以於約0.1:1至1.5:1之範圍內(較佳係於0.1:1至0.6:1之範圍內，最佳係於0.2:1至0.4:1之範圍內)之與於103中之固體之比例包含質量進料速率。對於洗滌水之溫度或壓力不具有限制，該洗滌水包

括蒸發之水、蒸汽、或水與蒸汽之組合之使用，作為洗滌水。

第二固體-液體分離裝置120通常可係由，但不限於，下列類型之裝置構成：離心機、旋風機、旋轉鼓過濾機、帶過濾機、壓濾機、及其他。第二固體-液體分離裝置120可於約40°C至155°C之溫度範圍內操作。較佳地，第二固體-液體分離裝置120可於約80°C至150°C之溫度範圍內操作。最佳地，第二固體-液體分離裝置120可於約90°C至150°C之溫度範圍內操作。

視需要，來自第二固體-液體分離裝置之溶劑/水副產物液體105，係與經由第一固體-液體分離裝置產生之溶劑母液流102隔離。

步驟(3)包含於羧酸/二醇混合區130中將二醇107加入水-濕之羧酸濾泥106中，以自水-濕之羧酸濾泥106移除一部分之水，以生成羧酸/二醇混合物108。

最後，水-濕之羧酸濾泥106，其目前實質上不含溶劑，係於羧酸/二醇混合區130中與二醇107組合，以於裝置130中生成適用於PET製造及其他聚酯之羧酸/二醇混合物108。使用導管109以自水-濕之羧酸濾泥106移除一部分之水。除了裝置130必須於水-濕之羧酸濾泥106、與二醇107之間提供密切接觸以產生羧酸/二醇混合物108以外，對於裝置130無特殊之限制。此等裝置之實例包括，但不限於下列：攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、一個或多個PET酯化作用反應器、及其他(注意：可使用固體噴射器以

將水-濕之羧酸濾泥引進裝置130中)。對於可操作裝置130之溫度範圍，亦無任何特定之限制。然而，裝置130之溫度不超過約280°C係較佳的，該溫度係通常於PET酯化作用反應器中發現之溫度。

於導管107中之二醇係以某種方式引進，以求取代水作為主要之形成漿液之液體。此可係經由將二醇以足夠以汽化該水之溫度如飽和之液體通過導管107引進而達成。較佳地，於導管107中之二醇係如飽和或過熱之蒸氣引進。於導管107中之二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇、及其等混合物組成之群中選出。較佳地，於導管107中之二醇係乙二醇。注意，於圖1中表示之系統之內，不生成實質上乾燥之羧酸固體。不生成羧酸乾燥固體之主要經濟利益係固體處理設備(例如輸送系統、儲倉、及其他)之消除。

於圖1表示之本發明之第三種具體實施例中，提供用於製造羧酸/二醇混合物108之方法，該方法包含下列步驟。

步驟(1)包含於固體-液體分離區140中自羧酸/溶劑漿液101移除溶劑；其中於羧酸/溶劑漿液101中之實質部分之溶劑係以水取代以生成水-濕之羧酸濾泥106。

於本發明之第二種具體實施例中，於步驟(1)中第二固體-液體分離裝置120與第一固體-液體分離裝置110可係組合，以形成能執行兩種固體-液體分離之單一裝置。此係於圖1中簡略地顯示，其經由圍繞裝置110及120之虛線外形盒而顯示固體-液體取代區140。於固體-液體分離區140中自

羧酸/溶劑漿液101移除溶劑以生成水-濕之羧酸濾泥可係經由於此技藝中已知之任何方法而達成。固體-液體分離區140包含能執行於本發明之第二種具體實施例中敘述之第一固體-液體分離裝置110及第二固體-液體分離裝置120之操作之任何裝置。於固體-液體分離區140中之裝置通常可係由，但不限於，下列類型之裝置構成：離心機、旋風機、過濾機、及諸如此類或其等之組合。

步驟(2)包含於羧酸/二醇混合區130中將二醇107加入水-濕之羧酸濾泥106中，以移除一部分之水，以生成羧酸/二醇混合物108。

步驟(2)係完全相同於在本發明之第二種具體實施例中敘述之步驟(3)。

於圖2中提供之本發明之第四種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物208之方法，該方法包含於對酞酸/二醇混合區230中將二醇207加入水-濕之對酞酸濾泥206中，以移除一部分之水，以生成對酞酸/二醇混合物208。

對酞酸/二醇混合區230、二醇207、對酞酸/二醇混合物208及水-濕之對酞酸濾泥206係於其後於本發明之第五種具體實施例中敘述。

於圖2中表示之本發明之第五種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物208之方法，該方法包含下列步驟。

步驟(1)包含於第一固體-液體分離裝置210中自對酞酸/溶劑漿液201移除雜質，以生成具有溶劑之對酞酸濾泥203及TPA溶劑母液流202。

導管201包含對酞酸/溶劑漿液，該漿液包含對酞酸、雜質及溶劑。該等雜質包含殘餘之催化劑(通常係，但不限於，鈷、錳或溴)。適用之溶劑包括，但不限於，脂族單羧酸類(較佳地包含2至6個碳原子)、或苯甲酸及其等之混合物及此等化合物與水之混合物。較佳地，該溶劑主要係由醋酸及/或部分水組成。醋酸比水之比例可係於以質量計50:50至99:1醋酸比水之範圍內，更佳係於85:15至95:5之範圍內，及最佳係於90:10至95:5之範圍內。對酞酸/溶劑漿液201係於以重量計約10-40%對酞酸之範圍內。較佳地，對酞酸/溶劑漿液201係於以重量計25-35%對酞酸之範圍內。最佳地，對酞酸/溶劑漿液201係於以重量計30-35%對酞酸之範圍內。然後，將於導管201中之對酞酸/溶劑漿液引進入第一固體-液體分離裝置210中，其中實質部分之溶劑母液係於導管202中回收。溶劑母液202包含實質部分之溶劑。

第一固體-液體分離裝置210係能有效率地分離固體與液體之任何裝置。第一固體-液體分離裝置210通常可係由，但不限於，下列類型之裝置構成：離心機、旋風機、旋轉鼓過濾機、帶過濾機、壓濾機、及其他。第一固體-液體分離裝置210可於約40°C至155°C之溫度範圍內操作。較佳地，第一固體-液體裝置210可於約80°C至150°C之溫度範圍內操作。最佳地，第一固體-液體分離裝置210可於約90°C至150°C之溫度範圍內操作。產生具有溶劑之對酞酸濾泥203，其中具有溶劑之對酞酸濾泥之水份組成係於0.5-30%

水份之範圍內，較佳係於1-10%水份之範圍內，最佳係於1-5%水份之範圍內。視需要，殘餘之溶劑可係經由氣體取代步驟而移除，以將洗滌之溶劑污染減少至最低。

步驟(2)包含於第二固體-液體分離裝置220中自具有溶劑之對酞酸濾泥203移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之對酞酸濾泥206及TPA溶劑/水副產物液體205。

然後具有溶劑之對酞酸濾泥203，係於第二固體-液體分離裝置220中經歷以水之洗滌或"清洗"，其中實質部分之最初溶劑係以水取代，以生成水-濕之對酞酸濾泥206。水-濕之對酞酸濾泥206，較佳地係於0.5-30%水份之範圍內，更佳係於約1-20%水份之範圍內，及最佳係於1-5%水份之範圍內。以質量為基準，水-濕之對酞酸濾泥206之殘餘水份，應包含低於約2%溶劑。此外，水-濕之對酞酸濾泥應包含低於1%之任何金屬(例如，鈷、錳及其他)，通常於對二甲苯氧化作用作為催化劑使用，於導管201中之漿液混合物中之此等金屬，應留在水-濕之對酞酸濾泥206中。

洗滌水係經由導管204而引進入裝置220中。該洗滌水應係，於連續之基礎，以於約0.1:1至1.5:1之範圍內(較佳係於0.1:1至0.6:1之範圍內，最佳係於0.2:1至0.4:1之範圍內)之與於203中之固體之比例包含質量進料速率。對於洗滌水之溫度或壓力不具有限制，該洗滌水包括蒸發之水、蒸汽、或水與蒸汽之組合之使用，作為洗滌水。

第二固體-液體分離裝置220通常可係由，但不限於，下列類型之裝置構成：離心機、旋風機、旋轉鼓過濾機、帶

過濾機、壓濾機、及其他。第二固體-液體分離裝置220可於約40°C至155°C之溫度範圍內操作。較佳地，第二固體-液體分離裝置220可於約80°C至150°C之溫度範圍內操作。最佳地，第二固體-液體分離裝置220可於約90°C至150°C之溫度範圍內操作。

視需要，來自第二固體-液體分離裝置之溶劑/水副產物液體205，係與經由第一固體-液體分離裝置產生之溶劑母液流202隔離。

步驟(3)包含於對酞酸/二醇混合區230中將二醇207加入水-濕之對酞酸濾泥206中，以自水-濕之對酞酸濾泥206移除一部分之水，以生成對酞酸/二醇混合物208。

最後，水-濕之對酞酸濾泥206，其目前實質上不含溶劑，係於裝置230中與二醇207組合，以生成適用於PET製造及其他聚酯之對酞酸/二醇混合物。使用導管209以自水-濕之羧酸濾泥206移除一部分之水。除了裝置230必須於水-濕之對酞酸濾泥206、與二醇207之間提供密切接觸以產生對酞酸/二醇混合物208以外，對於裝置230無特殊之限制。此等裝置之實例包括，但不限於下列：攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、一個或多個PET酯化作用反應器、及其他(注意：可使用固體噴射器以將水-濕之對酞酸濾泥引進入裝置230中)。對於可操作裝置230之溫度範圍，亦無任何特定之限制。然而，裝置230之溫度不超過約280°C係較佳的，該溫度係通常於PET酯化作用反應器中發現之溫度。

於導管207中之二醇係以某種方式引進，以求取代水作為

主要之形成漿液之液體。此可係經由將二醇以足夠以汽化該水之溫度如飽和之液體通過導管207引進而達成。較佳地，於導管207中之二醇係如飽和或過熱之蒸氣引進。於導管207中之二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇及其等混合物組成之群中選出。較佳地，於導管107中之二醇係乙二醇。注意，於圖1中顯示之系統之內，不生成實質上乾燥之對酞酸固體。不生成對酞酸乾燥固體之主要經濟利益係固體處理設備(例如輸送系統、儲倉、及其他)之消除。

於圖2中表示之本發明之第六種具體實施例中，提供用於製造對酞酸/二醇混合物208之方法，該方法包含下列步驟。

步驟(1)於固體-液體分離區240中自對酞酸/溶劑漿液201移除溶劑；其中於該對酞酸/溶劑漿液201中之實質部分之溶劑係以水取代以生成水-濕之對酞酸濾泥206。

於本發明之第二種具體實施例中，於步驟(1)中之第二固體-液體分離裝置220與第一固體-液體分離裝置210可係組合，以形成能執行兩種固體-液體分離之單一裝置。此係於圖2中簡略地顯示，其經由圍繞裝置210及220之虛線外形盒而顯示固體-液體取代區240。於固體-液體分離裝置240中自羧酸/溶劑漿液201移除溶劑以生成水-濕之對酞酸濾泥可係經由於此技藝中已知之任何方法而達成。固體-液體分離區240包含能執行於本發明之第二種具體實施例中敘述之第一固體-液體分離裝置210及第二固體-液體分離裝置220之操作之任何裝置。於固體-液體分離區240中之裝置通

常可係由，但不限於，下列類型之裝置構成：離心機、旋風機、過濾機及諸如此類或其等之組合。

步驟(2)包含於對酞酸/二醇混合區230中將二醇207加入水-濕之對酞酸濾泥206中，以移除一部分之水，以生成對酞酸/二醇混合物208。

步驟(2)係完全相同於在本發明之第五種具體實施例中敘述之步驟(3)。

【圖式簡單說明】

圖1：製備羧酸/二醇混合物之方法。

圖2：製備對酞酸/二醇混合物之方法。

【主要元件符號說明】

101	羧酸/溶劑漿液，導管
102	溶劑母液流，導管
103	具有溶劑之羧酸濾泥
104	導管
105	溶劑/水副產物液體
106	水-濕之羧酸濾泥
107	二醇，導管
108	羧酸/二醇混合物
109	導管
110	第一固體-液體分離裝置
120	第二固體-液體分離裝置
130	羧酸/二醇混合區
140	固體-液體分離裝置，固體-液體取代區

201	酞酸/溶劑漿液，導管
202	TPA溶劑母液流，導管
203	具有溶劑之對酞酸濾泥
204	導管
205	TPA溶劑/水副產物液體
206	水-濕之對酞酸濾泥
207	二醇，導管
208	對酞酸/二醇混合物
209	導管
210	第一固體-液體分離裝置
220	第二固體-液體分離裝置
230	對酞酸/二醇混合區
240	固體-液體分離區，固體-液體取代區

五、中文發明摘要：

本發明係關於一種方法，羧酸/二醇混合物係經由該方法自羧酸/溶劑漿液獲得而無實質上乾燥之羧酸固體之分離。更特定言之，本發明係關於一種方法，對酞酸/乙二醇混合物係經由該方法自對酞酸/溶劑漿液獲得而無實質上乾燥之對酞酸固體之分離。

六、英文發明摘要：

The present invention relates to a process by which a carboxylic acid/diol mixture is obtained from a carboxylic acid/solvent slurry without isolation of a substantially dry carboxylic acid solid. More specifically, the present invention relates to a process by which a terephthalic acid/ethylene glycol mixture is obtained from a terephthalic acid/solvent slurry without isolation of a substantially dry terephthalic acid solid.

十、申請專利範圍：

1. 一種用於製造羧酸/二醇混合物之方法，該方法包含於羧酸/二醇混合區中將二醇加入水-濕之羧酸濾泥中，以移除一部分之水，以生成該羧酸/二醇混合物。
2. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該羧酸係由對酞酸、異酞酸、萘二甲酸、偏苯三甲酸、及其混合物組成之群中選出。
3. 根據申請專利範圍第1或2項之方法，其中該二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇、及其混合物組成之群中選出。
4. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該羧酸/二醇混合區包含由攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、及一個或多個PET酯化作用反應器組成之群中選出之至少一種裝置。
5. 一種用於製造羧酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：
 - (a) 於第一固體-液體分離裝置中自羧酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之羧酸濾泥及溶劑母液流；
 - (b) 於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之羧酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之羧酸濾泥及溶劑/水副產物液體；
 - (c) 於羧酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之羧酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該羧酸/二醇混合物。
6. 根據申請專利範圍第5項之方法，其中該羧酸係由對酞

酸、異酞酸、萘二甲酸、偏苯三甲酸及其混合物組成之群中選出。

7. 根據申請專利範圍第5或6項之方法，其中該二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇、及其混合物組成之群中選出。
8. 根據申請專利範圍第5項之方法，其中該二醇/羧酸混合區包含由攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、及PET(聚對酞酸乙二酯)酯化作用反應器組成之群中選出之至少一種裝置。
9. 一種用於製造羧酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：
 - (a) 於固體-液體分離區中自羧酸/溶劑漿液移除溶劑；其中於該羧酸/溶劑漿液中之實質部分之溶劑係以水取代，以生成水-濕之羧酸濾泥。
 - (b) 於羧酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之羧酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該羧酸/二醇混合物。
10. 根據申請專利範圍第9項之方法，其中該羧酸係由對酞酸、異酞酸、萘二甲酸、偏苯三甲酸及其混合物組成之群中選出。
11. 根據申請專利範圍第9或10項之方法，其中該二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇、及其混合物組成之群中選出。
12. 根據申請專利範圍第9項之方法，其中該羧酸/二醇混合區包含由攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、及PET酯

化作用反應器組成之群中選出之至少一種裝置。

13. 一種用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物。
14. 根據申請專利範圍第13項之方法，其中該二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇、及其混合物組成之群中選出。
15. 根據申請專利範圍第13項之方法，其中該二醇係乙二醇。
16. 根據申請專利範圍第13、14或15項之方法，其中該添加係於約40°C與約290°C之間之溫度發生。
17. 根據申請專利範圍第13項之方法，其中該對酞酸/二醇混合區包含由攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、及PET酯化作用反應器組成之群中選出之裝置。
18. 一種用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：
 - (a) 於第一固體-液體分離裝置中自對酞酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之對酞酸濾泥；
 - (b) 於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之對酞酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之對酞酸濾泥；及
 - (c) 於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物。
19. 根據申請專利範圍第18項之方法，其中該第一固體-液體

分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作。

20. 根據申請專利範圍第19項之方法，其中該第二固體-液體分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作。
21. 根據申請專利範圍第18或20項之方法，其中該添加係於約40°C與約290°C之間之溫度發生。
22. 根據申請專利範圍第18項之方法，其中該二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇、及其混合物組成之群中選出。
23. 根據申請專利範圍第18項之方法，其中該二醇係乙二醇。
24. 根據申請專利範圍第18項之方法，其中該對酞酸/二醇混合區包含由攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、及PET酯化作用反應器組成之群中選出之裝置。
25. 一種用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：
 - (a) 於固體-液體分離區中自對酞酸/溶劑漿液移除溶劑；其中於該對酞酸/溶劑漿液中之實質部分之溶劑係以水取代，以生成水-濕之對酞酸濾泥。
 - (b) 於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物。
26. 根據申請專利範圍第25項之方法，其中該固體-液體取代區係於約40°C至約155°C之間之溫度操作。
27. 根據申請專利範圍第25項之方法，其中該添加係於約40°C與290°C之間之溫度發生。

28. 根據申請專利範圍第25項之方法，其中該二醇係由乙二醇、二甘醇、正丁二醇、異丁二醇、正丙二醇、1,4-丁二醇、環己烷二甲醇、及其混合物組成之群中選出。
29. 根據申請專利範圍第25項之方法，其中該二醇係乙二醇。
30. 根據申請專利範圍第25項之方法，其中二醇/對酞酸混合區包含由攪拌之容器、靜止混合機、螺桿輸送機、及PET酯化作用反應器組成之群中選出之裝置。
31. 一種自羧酸/溶劑漿液製造羧酸/二醇混合物而無實質上乾燥之羧酸固體之分離之方法。
32. 一種自對酞酸/溶劑漿液製造對酞酸/二醇混合物而無實質上乾燥之對酞酸固體之分離之方法。
33. 一種用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法包含下列步驟：
- (a) 於第一固體-液體分離裝置中自對酞酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之對酞酸濾泥；其中該第一固體-液體分離裝置係於約40℃至約155℃之間之溫度操作。
- (b) 於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之對酞酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之對酞酸濾泥；其中該第二固體-液體分離裝置係於約40℃至約155℃之間之溫度操作。
- (c) 於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物；其中該添加係於約40℃與290℃之間之溫度發生；其

中該二醇係乙二醇。

34. 一種用於製造對酞酸/二醇混合物之方法，該方法以提及次序包含下列步驟：

(a) 於第一固體-液體分離裝置中自對酞酸/溶劑漿液移除雜質，以生成具有醋酸之對酞酸濾泥；其中該第一固體-液體分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作；

(b) 於第二固體-液體分離裝置中自該具有醋酸之對酞酸濾泥移除實質部分之溶劑，以生成水-濕之對酞酸濾泥；其中該第二固體-液體分離裝置係於約40°C至約155°C之間之溫度操作；及

(c) 於對酞酸/二醇混合區中將二醇加入該水-濕之對酞酸濾泥中，以移除一部分水，以生成該對酞酸/二醇混合物；其中該添加係於約40°C與290°C之間之溫度發生；其中該二醇係乙二醇。

十一、圖式：

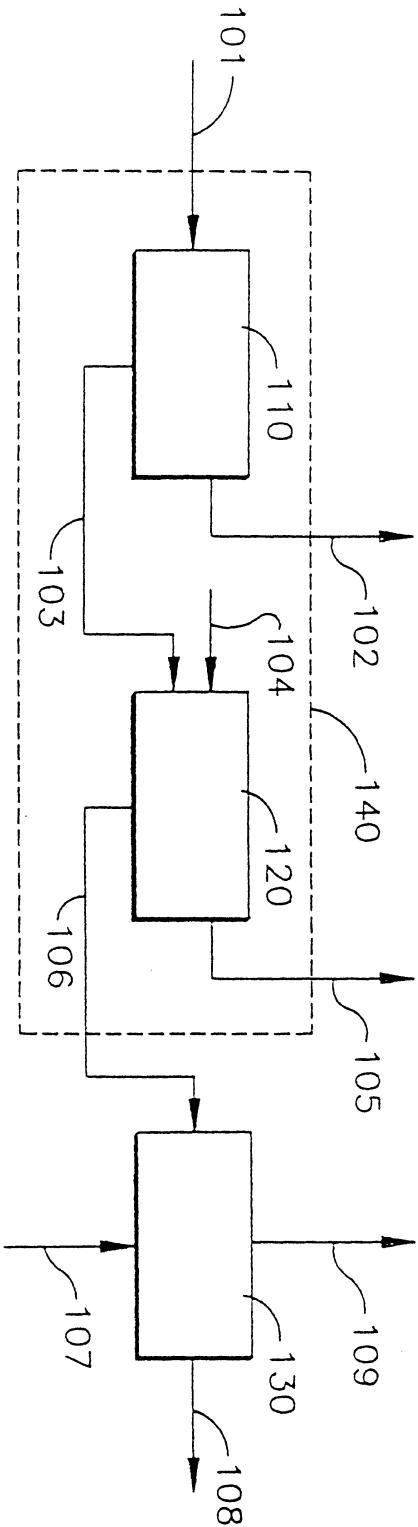


圖 1

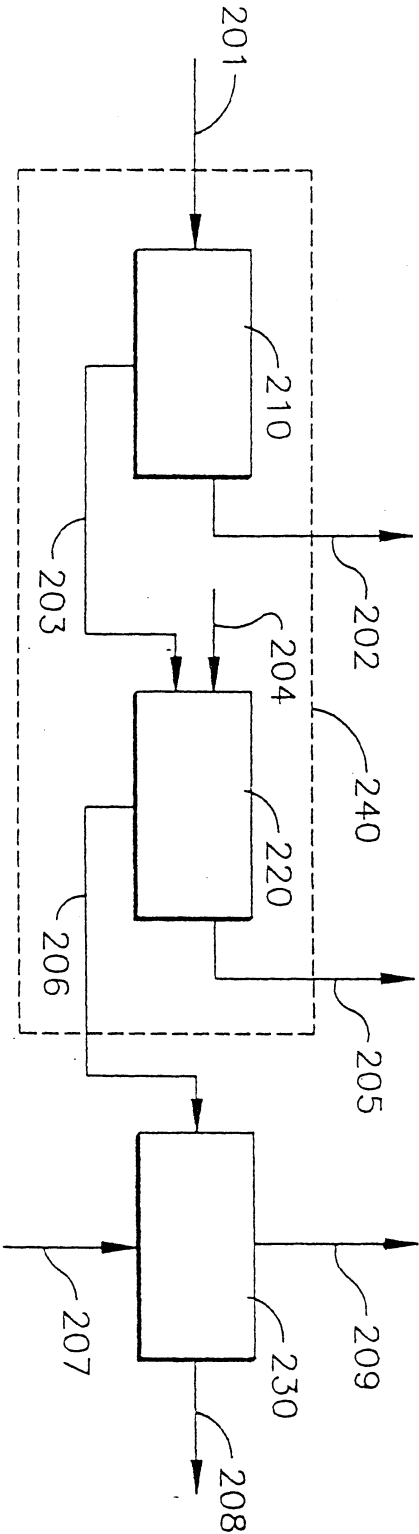


圖 2

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(1)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

101	羧酸/溶劑漿液，導管
102	溶劑母液流，導管
103	具有溶劑之羧酸濾泥
104	導管
105	溶劑/水副產物液體
106	水-濕之羧酸濾泥
107	二醇，導管
108	羧酸/二醇混合物
109	導管
110	第一固體-液體分離裝置
120	第二固體-液體分離裝置
130	羧酸/二醇混合區
140	固體-液體分離裝置，固體-液體取代區

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)