



19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 275 014**

51 Int. Cl.:  
**B01J 23/40** (2006.01)  
**B01J 21/18** (2006.01)  
**C07C 51/42** (2006.01)  
**C07C 63/26** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Número de solicitud europea: **02784772 .2**  
86 Fecha de presentación : **10.12.2002**  
87 Número de publicación de la solicitud: **1458477**  
87 Fecha de publicación de la solicitud: **22.09.2004**

54 Título: **Catalizador con soporte de carbono con macroporosidad para purificar ácidos aromáticos.**

30 Prioridad: **21.12.2001 US 36822**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**01.06.2007**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**01.06.2007**

73 Titular/es: **ENGELHARD CORPORATION**  
**101 Wood Avenue**  
**Iselin, New Jersey 08830-0770, US**

72 Inventor/es: **White, James, Ferguson**

74 Agente: **Carpintero López, Francisco**

ES 2 275 014 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

**DESCRIPCIÓN**

Catalizador con soporte de carbono con macroporosidad para purificar ácidos aromáticos.

**5 Campo de la invención**

La presente invención se refiere en general a materiales compuestos catalizadores que contienen soportes catalizadores extruidos y procedimientos para hacer y emplear los compuestos catalizadores. En particular, la presente invención se refiere a materiales catalizadores y a procedimientos asociados con la purificación de ácido tereftálico.

**Antecedentes de la invención**

Los procesos catalizadores son indispensables en la industria química. Con frecuencia, los procesos catalizadores emplean un catalizador que está incorporado en un soporte. El uso eficaz del catalizador a menudo corresponde a la calidad del soporte del catalizador. La mala calidad de los soportes de catalizadores, debido al menos a una de las siguientes degradación física, degradación química, propiedades no deseadas y propiedades inconsistentes, limita la eficacia de los catalizadores incorporados en ellos. Condiciones tales como temperaturas elevadas, presiones elevadas y entornos de pH elevado o bajo suponen retos para la integridad de los soportes del catalizador.

Por ejemplo, los compuestos catalizadores convencionales para la purificación de ácido tereftálico a través del procedimiento de continente medio de Amoco (catalizadores de PTA) están compuestos por soporte de paladio en malla granular de carbono de 4 x 8. Estos compuestos catalizadores están diseñados para eliminar las dos principales impurezas presentes en el ácido tereftálico bruto; a saber, el color amarillo y 4-carboxi benzaldehído (4-CBA).

El carbono es el material de soporte preferido para los catalizadores de PTA convencionales, ya que es, esencialmente, el único material disponible fácilmente que puede dar simultáneamente un catalizador eficaz para la eliminación del color, la eliminación del 4-carboxi-benzaldehído y también soportar el entorno extremadamente corrosivo del procedimiento de purificación de ácido tereftálico. Aunque durante los últimos 20 años se han usado ampliamente los catalizadores de PTA con soporte de carbono convencionales, tales compuestos catalizadores sufren varias desventajas. Estas desventajas incluyen: formas altamente irregulares que dan lugar a una posible mala distribución de los flujos de líquido o de gas en un lecho reactor catalizador que utilice tales compuestos catalizadores; formas irregulares que poseen bordes afilados y frágiles y esquinas que tienden a romperse y contaminar el producto de PTA con polvo y partículas negras no deseadas; fragilidad que también lleva a la rotura y a la aparición de polvo/partículas negras que contaminan el producto de PTA; origen natural, es decir cáscara de coco que conlleva formas no uniformes y, en consecuencia, la falta de consistencia del soporte de carbono; y, dado que generalmente derivan de cáscara de nuez, tal carbono activado es altamente microporoso, lo que conduce al requerimiento de localizar todo el metal catalizador activo en la superficie de las partículas, donde es indeseablemente susceptible a pérdidas durante el movimiento y a la abrasión que se produce durante el transporte y la manipulación.

Particularmente problemático es la mezcla impredecible e incontrolable de formas y tamaños irregulares asociada con los soportes de carbono de coco granulares de uso habitual. Los carbonos de coco granulares también son, en su mayoría, microporosos; es decir, poseen numerosos poros que tienen un diámetro de poro inferior a 50 Å. como resultado, los metales catalizadores deben localizarse cerca de los bordes exteriores de los soportes para evitar la baja actividad a causa de las resistencias de transferencia de masa. No obstante, cuando los metales catalizadores se localizan cerca de los bordes exteriores de los soportes, están sujetos a pérdidas debido al desgaste mecánico y, por tanto, el soporte del catalizador pierde su actividad. Los metales catalizadores localizados cerca de los bordes exteriores de un soporte son fácilmente accesibles a los metales de corrosión que suelen estar presentes en los alimentadores del reactor y, por tanto, están sujetos a su desactivación.

En un intento de superar las desventajas asociadas con los catalizadores con soporte de carbono convencionales se usan soportes de catalizadores que no son de carbono en procedimientos catalizadores. Los soportes que no son de carbono incluyen soportes de alúmina, soportes de sílice, soportes de alúmina-sílice, soportes de varias arcillas, soportes de titanio y circonio. Sin embargo, existen al menos una de dos desventajas asociadas con soportes de catalizadores que no son de carbono; es decir, que pueden debilitarse y perder resistencia física, que se pueden disolver en medios altamente corrosivos (tales como soluciones acuosas calientes de ácido tereftálico) y que presentan dificultades para eliminar el color indeseable del ácido tereftálico bruto.

El documento EP-A-1 127 865 describe el uso de un carbono activado granular en la preparación de una composición catalizadora para usar en la hidrogenación de trifluoroacetona halogenada para producir trifluoroacetona.

El documento EP-A-0 347 830 describe el uso de carbono activo moldeado hecho de cáscara de coco en una reacción de hidrogenación catalizadora para producir trifluoroetileno.

El documento US-A-5.877.360 describe el uso de un carbono activo extruido en la hidrogenación de clorodifluorometano.

Por tanto, se desean soportes de catalizadores y compuestos catalizadores mejores. Específicamente, soportes de catalizadores de PTA y compuestos catalizadores de PTA mejorados se desean para proporcionar procedimientos mejorados para purificar ácido tereftálico y vidas útiles mejoradas.

## 5 Resumen de la invención

La presente invención está diseñada para abordar al menos una, y preferentemente todas, las ventajas anteriores proporcionando un compuesto catalizador que contenga un soporte compuesto que está formado en formas con mesoporosidad y macroporosidad. Los compuestos catalizadores de la presente invención disfrutan de una vida útil prolongada en comparación con los compuestos catalizadores convencionales, ya que contienen un soporte compuesto por un material extruido y tratado con calor capaz de soportar entornos duros y de reacciones corrosivas, tales como los que se encuentran en la catalización del PTA. A este respecto, los compuestos catalizadores de la presente invención poseen un índice de desactivación menor que los compuestos catalizadores convencionales. Los compuestos catalizadores de la presente invención también disfrutan de una actividad igual o mejor, con alrededor del 30% a alrededor del 50% en peso de un metal menos activo en comparación con los compuestos catalizadores convencionales.

Un aspecto de la invención se refiere a un catalizador compuesto que contiene un catalizador de metal precioso y un soporte de catalizador extruido que contenga un material carbonáceo activado extruido y tratado con calor que posee una estructura de poros específicamente definida, con una primera serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $4 \times 10^{-9}$  m (40 Å) y, como mucho, de  $1 \times 10^{-8}$  m (100 Å), con una porosidad de al menos aproximadamente 0,15 cc/g, y una segunda serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $5 \times 10^{-7}$  m (5.000 Å) y, como mucho,  $2 \times 10^{-6}$  m (20.000 Å) con una porosidad de al menos aproximadamente 0,3 cc/g, donde al menos el 38% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de  $1 \times 10^{-7}$  m (1.000 Å) y mayores. Preferentemente, el material carbonáceo activado extruido puede poseer poros en los que al menos el 40% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de  $2 \times 10^{-7}$  m (200 Å) o mayores.

Otro aspecto de la invención se refiere a un procedimiento para hacer un compuesto catalizador que implica mezclar al menos un material carbonáceo y un líquido para formar una mezcla; extruir la mezcla en un material con forma; opcionalmente secar el material con forma; tratar con calor el material conformado a una temperatura de 600°C a 1.500°C para proporcionar un soporte de catalizador, en el que el soporte de catalizador posee una primera serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $4 \times 10^{-9}$  m (40 Å) y como mucho  $1 \times 10^{-8}$  m (100 Å) con una porosidad de al menos aproximadamente 0,15 cc/g, y una segunda serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $5 \times 10^{-6}$  m (5.000 Å) y como mucho  $2 \times 10^{-6}$  m (20.000 Å) con una porosidad de al menos aproximadamente 0,3 cc/g, donde al menos el 38% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de  $1 \times 10^{-7}$  m (1.000 Å) y mayores, y poner en contacto un catalizador de metal precioso con el soporte de catalizador.

Otro aspecto más de la invención se refiere a un procedimiento de purificar una composición de ácido aromático policarboxílico bruto que implica poner en contacto la composición de ácido aromático policarboxílico con el presente catalizador compuesto. Y otro aspecto más de la invención se refiere a un procedimiento de purificar una composición de amina bruta o una composición de alquínol amina bruta que implica poner en contacto la composición de amina bruta o la composición de alquínol amina bruta con el presente catalizador compuesto.

## Breve resumen de las figuras

La Figura 1 muestra un gráfico de la distribución de los diámetros de poro de varios carbonos granulares convencionales y diversas formas de realización de carbono extruidos de acuerdo con un aspecto de la presente invención.

La Figura 2 muestra un gráfico de la distribución de los diámetros de poros de carbono granular convencional y de carbono extruido de acuerdo con un aspecto de la presente invención.

En cada una de las Figuras 1 y 2, el diámetro de poro se registra en ángstrom, donde 1 ángstrom corresponde a  $1 \times 10^{-10}$  m.

## Descripción detallada de la invención

En una forma de realización, la presente invención implica la preparación de compuestos catalizadores que contienen un soporte de catalizador de carbono extruido. El soporte de catalizador extruido es particularmente adecuado para catalizadores metálicos, especialmente paladio o platino. El procedimiento de acuerdo con la presente invención de preparar el soporte de catalizador extruido puede implicar la mezcla de un material carbonáceo y aditivos opcionales. Preferentemente se añade un líquido a la mezcla para dar una masa rígida que, a continuación, se extruye, opcionalmente se seca y se trata con calor para proporcionar un material como se indica en la reivindicación 7. Tras el tratamiento con calor del material extruido, y opcionalmente secado, se lleva a cabo la impregnación con un catalizador metálico activo. En otra forma de realización, la presente invención implica el uso de catalizador compuesto en un procedimiento de catalización, tal como en la purificación de ácido tereftálico bruto.

El soporte de catalizador de carbono extruido contiene un material carbonáceo, y opcionalmente uno o más aditivos. El material carbonáceo puede derivar de cualquier fuente de carbono adecuada. El material carbonáceo usado inicialmente es un carbono activado o un carbono no activado que puede convertirse en un carbono activado en algún

## ES 2 275 014 T3

momento durante la formación del soporte de catalizador de carbono extruido. Por ejemplo, carbón vegetal (un material carbonáceo no activado) puede convertirse en carbono activado durante la etapa de tratamiento con calor (que se describe posteriormente). Los materiales carbonáceos incluyen carbón activado derivado de hulla, lignita, madera, cáscaras de nuez, turba, breas, coques y similares; y un carbono no activado derivado de polvo de residuo de carbón (por ejemplo, carbón vegetal).

El material carbonáceo combinado con cualquier aditivo opcional está normalmente en forma de polvo. En una forma de realización, el material carbonáceo posee un tamaño de partícula (tamaño medio de partícula) inferior a aproximadamente 100 micrómetros. En otra forma de realización, el material carbonáceo posee un tamaño de partícula inferior a aproximadamente 80 micrómetros. En otra forma de realización más, el material carbonáceo posee un tamaño de partícula inferior a aproximadamente 50 micrómetros. En todavía otra forma de realización más, el material carbonáceo posee un tamaño de partícula inferior a aproximadamente 25 micrómetros.

Los materiales carbonáceos están disponibles comercialmente o se pueden hacer. Por ejemplo, los materiales carbonáceos pueden derivar de hulla, coque, coque de hulla, coque de petróleo, lignita, materiales poliméricos, grafito, hueso, madera, cáscaras de nuez incluidas cáscaras de coco, residuos de resina, materiales lignocelulósicos, incluidos la pulpa y el papel, huesos de frutas, pepitas de frutas, y azúcar. La fuente de materiales carbonáceos no es crucial en la presente invención. En consecuencia, otra ventaja asociada con la presente invención es que la fuente de materiales carbonáceos no es crucial. Las patentes de EE.UU. 3.084.394, 3.109.712, 3.171.720, 3.198.714, 3.310.611, 3.387.940, 3.342.555, 3.345.440, 3.352.788, 3.446.593, 3.565.980, 3.574.548, 3.626.042, 3.628.984, 3.634.569, 3.635.676, 3.663.171, 3.859.421, 4.029.567, 4.082.694, 4.206.078, 4.263.268, 4.329.260, 4.603.119, 4.668.496, 4.954.469, 4.987.116, describen varios materiales carbonáceos.

Los materiales carbonáceos son químicamente activados o no químicamente activados. Los agentes activadores químicos incluyen uno o más de los hidróxidos de metales alcalinos, carbonatos de metal alcalino, sulfuro de metal alcalino, sulfatos de metal alcalino, carbonatos de metales alcalino térreos, cloruros de metales alcalino térreos, sulfatos de metales alcalino térreos, fosfatos de metales alcalino térreos, ácido fosfórico, ácido polifosfórico, ácido pirofosfórico, cinc, cloruro, ácido sulfúrico y similares. La activación química se realiza poniendo en contacto uno o más materiales carbonáceos con uno o más agentes activadores químicos, mezclando, opcionalmente calentando, opcionalmente lavando/enjuagando y opcionalmente secando el material activado químicamente.

En una forma de realización, el soporte de catalizador de carbono extruido contiene aproximadamente un 50% en peso o más y aproximadamente un 100% en peso o menos de al menos un material carbonáceo. En otra forma de realización, el soporte de catalizador de carbono extruido contiene aproximadamente un 60% en peso o más y aproximadamente un 99,9% en peso o menos de al menos un material carbonáceo. En otra forma de realización más, el soporte de catalizador de carbono extruido contiene aproximadamente un 70% en peso o más y aproximadamente un 99% en peso o menos de al menos un material carbonáceo. En otra forma de realización más, el soporte de catalizador de carbono extruido contiene aproximadamente un 75% en peso o más y aproximadamente un 95% en peso o menos de al menos un material carbonáceo.

Los soportes de catalizador de carbono extruido están disponibles comercialmente. Por ejemplo, los materiales de carbono extruido están disponibles en Ceca, Norit, Westvaco y Takeda. Como alternativa, el soporte de catalizador de carbono extruido puede hacerse mediante la mezcla del material carbonáceo y cualquier aditivo opcional, la formación de la mezcla en un material moldeado, secando opcionalmente el material moldeado y el tratamiento con calor del material moldeado para proporcionar el duro el soporte de catalizador de carbono extruido. Al mezclar el material carbonáceo y cualquier aditivo opcional, es preferible añadir agua (y/u otro disolvente líquido). Se puede emplear agua corriente o agua desionizada, aunque se prefiere agua desionizada. El agua se añade para facilitar la mezcla y la posterior formación (por ejemplo, extrusión), y, por tanto, se añade en cualquier cantidad adecuada para facilitar la mezcla y la posterior formación. Dado que el agua se elimina en último término en las etapas posteriores de secado y tratamiento con calor, la cantidad de agua añadida no es crucial para la presente invención.

No obstante, en una forma de realización, la mezcla de aditivos opcionales y material carbonáceo típicamente contiene de aproximadamente 5% a aproximadamente 80% en peso de agua. En otra forma de realización, la mezcla de aditivos opcionales y material carbonáceo contiene de aproximadamente 10% a aproximadamente 70% en peso de agua. En otra forma de realización, la mezcla de aditivos opcionales y material carbonáceo contiene de aproximadamente 20% a aproximadamente 60% en peso de agua.

Los aditivos incluyen cualquier material que facilite la mezcla y la posterior formación. Los aditivos incluyen agentes de control de la reología, ayudas para la extrusión, agentes de suspensión, tensioactivos, compuestos orgánicos de bajo punto de ebullición, materiales de rosina, aditivos poliméricos, agentes dispersantes tales como lignosulfonatos de amonio y nitratos metálicos, sulfatos, carbonatos, fosfatos, hidróxidos y óxidos. Los agentes de control de la reología incluyen éteres de celulosa, alcoholes polivinílicos y óxidos de polialquileno. Ejemplos de éteres de celulosa incluyen carboximetilcelulosa sódica (CMC), hidroxietilcelulosa (HEC), metilcelulosa (MC) y derivados de las mismas. Un éter de celulosa comercialmente disponibles es Methocel. Methocel, que contiene agua y polímero de éter de hidroxipropilmetilcelulosa, posee un punto de gelatina térmico elevado, tales como los productos designados como K4M y K15M disponibles en Dow Chemical Company. Entre los óxidos de polialquileno preferidos se incluyen óxidos de polietileno. Las ayudas para la extrusión incluyen compuestos de glicol, tales como glicoles de polialquileno. En una forma de realización específica, el glicol de polietileno, tal como PEG 400 disponible en Union Carbide, se puede

## ES 2 275 014 T3

añadir como ayuda de la extrusión. En general, los compuestos de glicol se disuelven en agua y después se añaden a los ingredientes secos.

5 En una forma de realización, el soporte de catalizador de carbono extruido típicamente contiene de aproximadamente 0,01% a aproximadamente 10% en peso de al menos un aditivo. En otra forma de realización, el soporte de catalizador de carbono extruido contiene de aproximadamente 0,1% a aproximadamente 5% en peso de al menos un aditivo.

10 La mezcla de polvo carbonáceo y cualquier ingrediente opcional puede mezclarse bien en una mezcladora de alta velocidad con agua y un agente de control de la reología, tal como Methocel, hasta que se obtenga una masa bastante rígida. Esta masa se puede extruir y dar cualquier forma adecuada, incluidos cilindros, cubos, estrellas, trilóbulos, tetralóbulos, bolas, esferas, a través de medios mecánicos adecuados. En una forma de realización, la mezcla se lleva a cabo en un entorno de intensidad elevada, tal como el suministrado por una mezcladora Littleford disponible en Littleford Day, Inc., Florence, KY. La mezcla se lleva a cabo durante un tiempo suficiente como para que se obtenga  
15 como resultado una mezcla fina uniforme. En otra forma de realización, durante el mezclado se añade agua a la mezcla en una cantidad para dar un material rígido de tipo masa adecuado para la extrusión.

En un forma de realización, la mezcla de material carbonáceo y aditivos opcionales se mezcla en una mezcladora de intensidad elevada de aproximadamente 5 minutos a aproximadamente 100 minutos. En otra forma de realización, la mezcla de material carbonáceo y aditivos opcionales se mezcla en una mezcladora de intensidad elevada de aproximadamente 10 minutos a aproximadamente 60 minutos. En otra forma de realización más, la mezcla de material carbonáceo y aditivos opcionales se mezcla en una mezcladora de intensidad elevada de aproximadamente 15 minutos a aproximadamente 40 minutos.

25 Después de mezclar, el material mezclado se extruye en una forma adecuada. La forma corresponde sustancialmente a la forma de soporte de catalizador resultante. En una forma de realización preferida, el material mezclado se extruye de forma continua en un amplio abanico de diámetros y formas. Ejemplos de las máquinas de formación o extrusión incluyen máquinas de moldeo por extrusión, extrusores monohusillo, extrusores con husillo doble, coextrusores, extrusores de clavija extrusores lineales y extrusores monofilamento.

30 A continuación, el material extruido se moldea opcionalmente en cualquier forma deseada. Ejemplos de máquinas de formación incluyen máquinas de moldeo, máquinas de formación de tabletas, granuladores de compactación, marmarizers y formadores de pellas. La forma del material extruido incluye esferas, comprimidos, cilindros, estrellas, trilóbulos, tetralóbulos, bolas, gránulos, panales y cubos. Las formas, en general denominadas "particuladas", pueden tener cualquier tamaño adecuado. Sin embargo, en una forma de realización preferida, los tamaños de las formas son sustancialmente uniformes. En otra forma de realización preferida, el material mezclado se extruyen en formas cilíndricas con diámetros de aproximadamente 1,5 mm a aproximadamente 3,5 mm.

40 El material extruido tiene sus componentes (el material carbonáceo y cualquier aditivo opcional) mezclado de forma uniforme en su interior. Los aditivos opcionales y el material carbonáceo mezclados uniformemente en el posterior soporte de catalizador resultante contribuyen a las ventajosas propiedades del soporte de catalizador extruido resultante y del catalizador compuesto resultante que contiene el soporte de catalizador.

45 Después de extruir el material en una forma deseada, el material extruido se seca opcionalmente para eliminar cualquier líquido restante (y normalmente para eliminar el agua restante). El secado se lleva a cabo el al menos un desecador, al vacío (presión reducida) y/o a temperatura elevada (cocimiento) durante un periodo de tiempo suficiente para eliminar cualquier líquido restante del material formado. El secado del material extruido contribuye a las propiedades de resistencia al desgaste del soporte de catalizador de carbono extruido resultante.

50 La manera por la cual se seca el material extruido no es crucial, pero en muchos casos, las condiciones de secado dependen, principalmente, de al menos una de las dimensiones del material extruido, la forma del material extruido y el modo en el que el material extruido se sostiene. En una forma de realización, el material extruido seco contiene menos de aproximadamente 3% en peso de humedad libre. En otra forma de realización, el material extruido seco contiene menos de aproximadamente 1% en peso de humedad libre. En otra forma de realización, el material extruido  
55 seco contiene menos de aproximadamente 0,5% en peso de humedad libre.

En una forma de realización, el secado implica al menos uno de entre mantener una temperatura elevada (superior a aproximadamente 35°C) durante la noche, desecación durante la noche y al vacío durante la noche. Al emplear temperaturas elevadas, en una forma de realización el material extruido se calienta de aproximadamente 35°C a aproximadamente 150°C durante un tiempo de aproximadamente 5 segundos a aproximadamente 6 horas. En otra forma de realización, el material extruido se calienta de aproximadamente 40°C a aproximadamente 110°C durante un tiempo de aproximadamente 30 segundos a aproximadamente 30 minutos. En otra forma de realización más, el material extruido se calienta de aproximadamente 50°C a aproximadamente 90°C durante un tiempo de aproximadamente 1 minuto a aproximadamente 20 minutos. En una forma de realización preferida, el material extruido se somete a un  
65 procedimiento de secado con incrementos (procedimiento de secado de dos etapas), con la temperatura de secado inicial de aproximadamente 40°C a aproximadamente 95°C, y más preferentemente de aproximadamente 60°C a aproximadamente 85°C, y después se calienta hasta al menos aproximadamente 100°C, y más preferentemente de al menos aproximadamente 110°C, para completar el procedimiento de secado.

## ES 2 275 014 T3

Después de secar, el material extruido se trata con calor. Sin embargo, en una forma de realización, la etapa de secado puede incorporarse en la etapa de tratamiento con calor iniciando el tratamiento con calor a una temperatura relativamente baja (temperaturas bajas en relación con las temperaturas de tratamiento con calor). El material extruido y secado se trata con calor de cualquier forma adecuada para proporcionar un soporte de catalizador duro y para proporcionar un soporte de catalizador que contenga un material carbonáceo que posea propiedades correspondientes a las del carbono activado (especialmente en formas de realización en las que no se emplea material carbonáceo).

El tratamiento con calor implica el calentamiento del material extruido a una temperatura de 600°C a 1.500°C. Preferentemente, el tratamiento con calor implica el calentamiento del material extruido a una temperatura de aproximadamente 700°C a aproximadamente 1.000°C. Más preferentemente, el tratamiento con calor implica el calentamiento del material extruido a una temperatura de aproximadamente 800°C a aproximadamente 900°C. Se observa que la temperatura puede variar dentro de un intervalo de temperaturas. Por ejemplo, la temperatura se puede incrementar de golpe o aumentar de forma constante durante la duración del tratamiento con calor.

La longitud del tiempo durante el cual el material extruido se calienta depende, principalmente de la temperatura, el contenido de la atmósfera, el tamaño del material extruido, el equipo relacionado y la identidad de los componentes (el tipo específico de material carbonáceo y de los aditivos opcionales). En una forma de realización, el tratamiento con calor implica calentar el material extruido de aproximadamente 15 minutos a aproximadamente 5 horas. En otra forma de realización, el tratamiento con calor implica calentar el material extruido de aproximadamente 30 minutos a aproximadamente 4 horas. El tiempo de calentamiento se refiere a la cantidad de tiempo que el propio material extruido se encuentra a la temperatura especificada (y, por tanto, no incluye los incrementos ni los enfriamientos).

En una forma de realización, la atmósfera a la que se lleva a cabo el tratamiento con calor contiene al menos vapor o vapor de agua. La atmósfera puede además contener al menos uno de un gas inerte, aire, oxígeno y dióxido de carbono. Los gases inertes incluyen los gases nobles y nitrógeno. Los gases nobles incluyen helio, neón, argón, criptón y xenón. En otra forma de realización, la atmósfera a la que se lleva a cabo el tratamiento con calor contiene al menos uno de vapor/vapor de agua y un gas inerte. A este respecto, en una forma de realización, la atmósfera a la que se lleva a cabo el tratamiento con calor contiene una atmósfera sustancialmente inerte, tal como de aproximadamente un 50% a aproximadamente un 100% de al menos un gas inerte y de aproximadamente 0% a menos de aproximadamente 50% de uno o más de vapor, aire, oxígeno y dióxido de carbono. En una forma de realización preferida, la atmósfera de tratamiento con calor contiene vapor y nitrógeno.

En una forma de realización preferida, la atmósfera de tratamiento con calor contiene de aproximadamente un 5% a aproximadamente un 100% de vapor y de aproximadamente un 0% a aproximadamente un 95% de al menos uno de un gas inerte, aire, oxígeno y dióxido de carbono. En otra forma de realización, la atmósfera de tratamiento con calor contiene de aproximadamente un 20% a aproximadamente un 95% de vapor y de aproximadamente un 5% a aproximadamente un 80% de al menos uno de un gas inerte, aire, oxígeno y dióxido de carbono. En otra forma de realización más, la atmósfera de tratamiento con calor contiene de aproximadamente un 30% a aproximadamente un 90% de vapor y de aproximadamente un 10% a aproximadamente un 70% de al menos uno de un gas inerte, aire, oxígeno y dióxido de carbono.

Tras el tratamiento con calor, el producto extruido opcionalmente secado se enfría de cualquier modo adecuado. En una forma de realización, el producto extruido opcionalmente secado se enfría en una atmósfera que contiene un gas inerte.

Los soportes de catalizador de carbono extruidos resultantes de la presente invención poseen un nivel de porosidad que es controlable, principalmente a través de la variación de los parámetros del tratamiento con calor y mediante la variación de las cantidades relativas de los ingredientes (el material carbonáceo y los aditivos opcionales). La porosidad también se puede controlar o se puede controlar después mediante la cantidad y el tipo de aditivo, tal como el agente de control de la reología o la ayuda de extrusión.

En una forma de realización, los soportes de catalizador de carbono extruidos de la presente invención poseen una densidad aparente de aproximadamente 400 gramos por litro a aproximadamente 1.000 gramos por litro. En otra forma de realización, los soportes de catalizador de carbono extruidos de la presente invención poseen una densidad aparente de aproximadamente 425 gramos por litro a aproximadamente 750 gramos por litro. En otra forma de realización más, los soportes de catalizador de carbono extruidos poseen una densidad aparente de aproximadamente 440 gramos por litro a aproximadamente 600 gramos por litro.

En general, el área superficial de los soportes de catalizador de carbono extruidos de la presente invención corresponden a una media ponderada del área superficial de los aditivos opcionales y el material carbonáceo. En una forma de realización, el área superficial de los soportes de catalizador de carbono extruidos es de aproximadamente 300 m<sup>2</sup>/g o más y de aproximadamente 1.600 m<sup>2</sup>/g o menos. En otra forma de realización, el área superficial de los soportes de catalizador de carbono extruidos es de aproximadamente 800 m<sup>2</sup>/g o más y de aproximadamente 1.400 m<sup>2</sup>/g o menos.

En general, los soportes de catalizador de carbono extruidos poseen una distribución única de los tamaños de poro que contribuye a las ventajas obtenidas por la presente invención. Aunque no desea quedar sujeto a ninguna teoría, se cree que el área superficial mínima y/o la distribución de los tamaños de poro en soportes de catalizador de carbono extruidos contribuyen a envejecimiento mejor (al maximizar la porosidad de los tamaños de poro de aproximadamente

## ES 2 275 014 T3

2 x 10<sup>-8</sup> m (200 Å) o mayor, tal como al menos un 40% de porosidad en los tamaños de poro de aproximadamente 2x10<sup>-8</sup> m (200 Å) o mayor o al menos un 38% de porosidad en los tamaños de poro de aproximadamente 1x10<sup>-7</sup> m (1.000 Å) o mayor); mejores proporciones HMBA/ácido toluico; mejor eliminación de CBA y/o mejor eliminación del color amarillo.

5 El catalizador de carbono extruido y tratado con calor posee una distribución del tamaño de poro en el que un primer conjunto de poros que contienen una porosidad de al menos aproximadamente 0,15 cc/g posee un diámetro de poro de al menos 4x10<sup>-9</sup> m (40 Å) y, como mucho 1x10<sup>-8</sup> m (100 Å), y un segundo conjunto de poros que contienen una porosidad de al menos aproximadamente 0,3 cc/g posee un diámetro de poro de al menos 5x10<sup>-7</sup> m (5.000 Å)  
10 y, como mucho 2x10<sup>-6</sup> m (20.000 Å) (porosimetría de intrusión de Hg, tal como el uso de un porosímetro modelo Micrometrics Autopore-II 9220 de acuerdo con el procedimiento de análisis indicado en una o más de las patentes de EE.UU. 5.186.746; 5.316.576 y 5.591.256). Preferentemente, el catalizador de carbono extruido posee una distribución del tamaño de poro en el que un primer conjunto de poros que contienen una porosidad de al menos aproximadamente 0,2 cc/g posee un diámetro de poro de al menos 4x10<sup>-9</sup> m (40 Å) y, como mucho 1x10<sup>-8</sup> m (100 Å), y un segundo  
15 conjunto de poros que contienen una porosidad de al menos aproximadamente 0,4 cc/g posee un diámetro de poro de al menos 5x10<sup>-7</sup> m (5.000 Å) y, como mucho 2x10<sup>-6</sup> m (20.000 Å).

En relación con la Figura 2, la estructura de poro de un carbono de coco granular convencional típico (Pica G202X) se compara con un carbono extruido (Takeda S2X) de acuerdo con una forma de realización de la presente invención.  
20 La distribución del volumen del poro del carbono extruido de acuerdo con la presente invención pesa mucho más en los poros grandes, mientras que el carbono de coco granular convencional pesa en poros relativamente pequeños.

Por esta razón, el carbono de coco granular convencional se denomina microporoso, mientras que el carbono extruido de acuerdo con la presente invención se puede llamar mesoporoso o macroporoso.

25 En relación con la Figura 1, la estructura del poro de cuatro carbonos de coco granular convencionales típicos se comparan con cinco formas de realización diferentes de los carbonos extruidos de acuerdo con la presente invención. En el gráfico, los carbonos de coco granular convencionales incluyen Granular TA-485E disponible en Pica, Granular G202X disponible en Pica, Granular 206CAT disponible en Barneby-Waterlink y Granular NCA disponible en Pica.  
30 Los carbonos extruidos incluyen Extruded AC40/3 disponible en Ceca, Extruded RX3 Extra disponible en Noria, Extruded S2X disponible en Takeda. La distribución del volumen del poro de los carbonos extruidos de acuerdo con la presente invención pesa mucho más en los poros más grandes, mientras que el carbono de coco granular convencional pesa en poros relativamente pequeños. Por ejemplo, como se puede observar en el gráfico, al menos aproximadamente un 40% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de 2x10<sup>-8</sup> m (200 Å) y mayores, tal  
35 como 1x10<sup>-7</sup> m (1.000 Å) y mayores.

En la Tabla 1 siguiente, se indica la cantidad (% en peso) de paladio en un catalizador compuesto y los correspondientes índices de eliminación de 4-CBA. El índice de eliminación de 4-CBA es la proporción del índice de eliminación de 4-CBA de primer orden para el catalizador compuesto sujeto dividido por el índice de eliminación de 4-CBA de primer orden para un catalizador compuesto estándar convencional (catalizador compuesto que contiene un soporte Pica G202X). Los compuestos catalizadores de acuerdo con la presente invención (que contienen el compuesto con base Takeda C2X o Ceca AC40/3) exhiben mejores índices de eliminación de 4-CBA en comparación con un catalizador compuesto estándar (catalizador compuesto que contiene un soporte Pica G202X).

TABLA 1

<u>Soporte de catalizador</u>	<u>%Pd</u>	<u>Índice de eliminación de 4-CBA</u>
50 Takeda C2X	0,5	1,25
Takeda C2X	0,35	1,11
Takeda C2X	0,25	0,95
55 Ceca AC40/3	0,5	1,2
Ceca AC40/3	0,35	1,15
Pica G202X	0,5	1,0

60 En una forma de realización, el catalizador de carbono extruido posee una distribución de tamaño de poro en el que al menos aproximadamente un 40% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de aproximadamente 2x10<sup>-8</sup> m (200 Å) y mayores (porosimetría de intrusión de Hg). En otra forma de realización, el catalizador de carbono extruido posee una distribución de tamaño de poro en el que al menos aproximadamente un 38% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de aproximadamente 1x10<sup>-7</sup> m (1.000 Å) y mayores. En otra forma de realización más, el catalizador de carbono extruido posee una distribución de tamaño  
65 de poro en el que al menos aproximadamente un 34% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de aproximadamente 5x10<sup>-7</sup> m (5000 Å) y mayores.

## ES 2 275 014 T3

En una forma de realización, el catalizador de carbono extruido posee una proporción HMBA/ácido toluico al final de un ciclo de al menos aproximadamente 2,5. La proporción HMBA/ácido toluico al final de un ciclo es la proporción entre ácido 4-hidroximetil benzoico y ácido toluico presente al final de una reacción de purificación problema (en el alimentador, la proporción HMBA/ácido toluico es de aproximadamente 0,44). En otra forma de realización, el catalizador de carbono extruido posee una proporción HMBA/ácido toluico al final de un ciclo de al menos aproximadamente 2,75. En otra forma de realización más, el catalizador de carbono extruido posee una proporción HMBA/ácido toluico al final de un ciclo de al menos aproximadamente 3. En todavía otra forma de realización más, el catalizador de carbono extruido posee una proporción HMBA/ácido toluico al final de un ciclo de al menos aproximadamente 3,25.

Generalmente, los catalizadores de carbono extruidos de la presente invención poseen una vida más prolongada en comparación con un catalizador de carbono granular convencional. En otras palabras, los catalizadores de carbono extruidos de la presente invención generalmente poseen un índice de desactivación menor que los catalizadores de carbono granulares convencionales. Por ejemplo, en una forma de realización, el catalizador de carbono extruido de la presente invención que contiene 0,5% en peso del catalizador metálico posee una vida aproximadamente 1,5 veces o más, más prolongada que un catalizador de carbono granular convencional que contiene 0,5% en peso del mismo catalizador metálico. En otra forma de realización, el catalizador de carbono extruido de la presente invención que contiene 0,5% en peso del catalizador metálico posee una vida aproximadamente 2 veces o más, más prolongada que un catalizador de carbono granular convencional que contiene 0,5% en peso del mismo catalizador metálico.

En otra forma de realización, el catalizador de carbono extruido de la presente invención posee un índice de desactivación que es aproximadamente un 25% o más inferior al índice de desactivación de un catalizador de carbono granular convencional cargado de forma similar (misma cantidad del mismo catalizador metálico). En otra forma de realización más, el catalizador de carbono extruido de la presente invención posee un índice de desactivación que es aproximadamente un 50% o más inferior al índice de desactivación de un catalizador de carbono granular convencional cargado de forma similar.

Dado que los catalizadores de carbono extruidos de la presente invención poseen un índice de desactivación menor que los catalizadores de carbono granulares convencionales cargados de forma similar, las actividades de los catalizadores de carbono extruidos de la presente invención son superiores tras varios niveles de envejecimiento en comparación con los catalizadores de carbono granulares convencionales. En una forma de realización, el catalizador de carbono extruido de la presente invención posee una actividad que es al menos aproximadamente 1,5 veces superior a la del catalizador de carbono granular convencional cargado de forma similar tras 6 meses, 12 meses o 18 meses, o 18 meses de envejecimiento.

Los catalizadores de carbono extruidos de la presente invención con carga metálica baja, generalmente pueden funcionar igual o incluso mejor que un catalizador de carbono granular convencional con carga metálica elevada. Por ejemplo, en una forma de realización, el catalizador de carbono extruido de la presente invención que contiene 0,25% en peso de catalizador metálico posee una actividad igual o superior a la del catalizador de carbono granular convencional que contiene 0,5% en peso del mismo catalizador metálico. En otra forma de realización, el catalizador de carbono extruido de la presente invención que contiene 0,35% en peso de catalizador metálico posee una actividad igual o superior a la del catalizador de carbono granular convencional que contiene 0,5% en peso del mismo catalizador metálico.

En una forma de realización, la presente invención implica formar un catalizador compuesto mediante la impregnación del soporte de catalizador de carbono extruido con una solución de al menos un metal catalíticamente activo. La impregnación se efectúa mediante el tratamiento del soporte de catalizador de carbono extruido con una solución acuosa u orgánica del metal deseado o una combinación de metales en una cantidad suficiente como para depositar al menos un metal catalíticamente activo sobre o cerca de la superficie del soporte, proporcionando de este modo un catalizador compuesto.

Normalmente, los metales catalíticamente activos incluyen metales preciosos. Entre los ejemplos de metales catalíticamente activos y mezcla de metales se incluyen platino, platino y renio, platino y rutenio, platino y tungsteno, platino y níquel, platino y estaño, platino y hierro, platino y cobre, platino y rodio, platino y plomo, platino y germanio, platino y oro, platino y telurio, paladio y oro, paladio e indio, paladio y azufre, paladio y telurio, paladio, paladio y renio, paladio y rodio, paladio y tungsteno, paladio y níquel, paladio y estaño, paladio y cobre, paladio y rutenio, paladio y plomo, paladio y germanio, cobalto, rodio, rutenio, osmio, iridio, varias combinaciones de los mismos, etc. Debe entenderse que la lista mencionada anteriormente de metales catalíticamente activos sólo es representativa y, por tanto, no limita el tipo de metales que pueden impregnarse sobre la superficie del soporte de catalizador.

El catalizador puede impregnarse sobre/dentro del soporte de catalizador de carbono extruido de cualquier forma adecuada. Por ejemplo, se pueden emplear técnicas de inmersión, técnicas de rociado y técnicas incipientes de humidificación. En una forma de realización, la cantidad de catalizador en el catalizador compuesto es de aproximadamente 0,01% a aproximadamente 30% en peso. En otra forma de realización, la cantidad de catalizador en el catalizador compuesto es de aproximadamente 0,1% a aproximadamente 10% en peso. En otra forma de realización más, la cantidad de catalizador en el catalizador compuesto es de aproximadamente 0,2% a aproximadamente 5% en peso. En una forma de realización, la cantidad de soporte de catalizador de carbono extruido en el catalizador compuesto es de aproximadamente 70% a aproximadamente 99,9% en peso. En otra forma de realización, la cantidad de soporte de catalizador de carbono extruido en el catalizador compuesto es de aproximadamente 90% a aproximadamente 99,9%

## ES 2 275 014 T3

en peso. En otra forma de realización, la cantidad de soporte de catalizador de carbono extruido en el catalizador compuesto es de aproximadamente 90% a aproximadamente 99,9% en peso. En otra forma de realización más, la cantidad de soporte de catalizador de carbono extruido en el catalizador compuesto es de aproximadamente 95% a aproximadamente 99,8% en peso.

5 Los soportes de catalizador de carbono extruidos y los compuestos catalizadores de la presente invención son adecuados para usar en procedimientos catalíticos. Los procedimientos catalíticos en los que se pueden emplear los soportes de catalizador de carbono extruidos y los compuestos catalizadores de la presente invención incluyen hidrogenación, reorganización, purificación, deshidratación, deshidrogenación, oxidación, reducción, polimerización, deshidrociclización, reformación, hidrocrqueo e isomerización. Las reacciones/procedimientos catalíticos específicos son demasiado numerosos para enumerarlos, pero los siguientes son ejemplos específicos.

15 El catalizador compuesto extruido de la presente invención es adecuado para usar en la purificación de ácidos aromáticos policarboxílicos relativamente impuros o brutos, en particular ácido tereftálico bruto, ácido isoftálico, ácido ftálico y ácido naftaleno dicarboxílico. El catalizador compuesto extruido de la presente invención también es adecuado para usar en la purificación de aminas y alquilaminas, y particularmente aminas aromáticas, alquilaminas aromáticas, aminas alifáticas y alquilaminas alifáticas.

20 En una forma de realización, el ácido aromático policarboxílico impuro es un producto bruto de la oxidación catalítica de un compuesto aromático. Ejemplos de compuestos aromáticos adecuados incluyen 1,2-dimetilnaftaleno; 2,6-dialquilnaftaleno; 2-acil-6-alquilnaftaleno; 2,6-dimetilnaftaleno; 2,6-dietilnaftaleno; 2,6-diisopropilnaftaleno; 2-acetil-6-metilnaftaleno; 2-metil-6-etilnaftaleno; para-dialquilxileno; meta-dialquilxileno; y orto-dialquilxileno; donde los grupos alquilo contienen de 1 a aproximadamente 6 átomos de carbono. En una forma de realización preferida, el ácido bruto purificado de acuerdo con la presente invención es al menos uno de ácido tereftálico formado mediante la oxidación de para-xileno, ácido isoftálico formado mediante la oxidación de meta-xileno y ácido 2,6-naftaleno dicarboxílico formado mediante la oxidación de 2,6-dialquilnaftaleno (preferentemente 2,6-dimetilnaftaleno). En otra forma de realización, el ácido aromático policarboxílico bruto, tal como ácido 2,6-naftaleno dicarboxílico, se prepara mediante esterificación, para formar el éster correspondiente, en este caso dimetil naftaleno dicarboxilato, y, a continuación, hidrolización para formar el ácido aromático policarboxílico que, después, se purifica de acuerdo con la presente invención.

30 Los procedimientos para purificar catalíticamente los ácidos aromáticos policarboxílicos brutos, incluido el ácido tereftálico, se conocen. Por ejemplo, las patentes de EE.UU. 3.607.921, 3.887.613, 3.919.306, 4.260.817, 4.281.179, 4.317.923, 4.394.299, 4.415.479, 4.447.646, 4.605.763, 4.629.715, 4.791.226, 4.803.295; 4.808.751; 4.892.972; 4.937.378; 5.180.849; 5.362.908; 5.420.344; 5.616.792; 5.723.659; 5.756.833 describen varios procedimientos de purificar catalíticamente ácidos aromáticos policarboxílicos brutos y, en particular, ácido tereftálico. Los procedimientos para purificar catalíticamente aminas y alquilaminas brutas, y en particular aminas aromáticas y alquilaminas aromáticas, se conocen. A este respecto, el catalizador compuesto de acuerdo con la presente invención puede utilizarse en tales procedimientos.

40 En una forma de realización, el catalizador compuesto se pone en contacto con una solución acuosa o ácido tereftálico relativamente impuro o bruto que incluya grandes cantidades de impurezas tales como 4-carboxi benzaldehído y coloración indeseable. Normalmente, tales impurezas están presentes en cantidades de hasta aproximadamente 10.000 partes por millón de partes de ácido tereftálico, en peso (aunque en algunos casos se encuentran cantidades superiores). Estas impurezas afectan de forma adversa a las posteriores reacciones de polimerización del ácido tereftálico para producir tereftalato de polietileno, así como coloración indeseable de los polímeros de polietilentereftalato resultantes.

50 En esta forma de realización, el catalizador compuesto se pone en contacto con una solución acuosa de ácido tereftálico relativamente impuro o bruto a una temperatura y presión elevadas en un lecho de catalizador fijo. El ácido tereftálico bruto que se va a purificar se disuelve en agua o en un disolvente polar similar. El agua es un disolvente preferido; sin embargo, otros disolventes polares adecuados incluyen los ácidos alquil carboxílicos de menor peso molecular, solos o mezclados con agua.

55 En una forma de realización, la temperatura durante la purificación catalítica es de aproximadamente 100°C a aproximadamente 350°C. En otra forma de realización, la temperatura durante la purificación catalítica es de aproximadamente 225°C a aproximadamente 340°C.

60 La presión depende principalmente de la temperatura a la cual se lleva a cabo el procedimiento de purificación. Considerando que las temperaturas a las que se pueden disolver cantidades prácticas del ácido tereftálico impuro son sustancialmente superiores al punto de ebullición normal del disolvente polar, las presiones están necesariamente considerablemente por encima de la presión atmosférica para mantener la solución acuosa en fase líquida. Si el reactor está hidráulicamente lleno, la presión del reactor se puede controlar mediante el índice de bombeo del alimentador. En una forma de realización, la presión durante la hidrogenación es de aproximadamente  $1,034 \times 10^6$  Pa (150 libras por pulgada cuadrada, psig) a aproximadamente  $11,03 \times 10^6$  Pa (1600 psig). En otra forma de realización, la presión durante la hidrogenación es de aproximadamente  $6,200 \times 10^6$  Pa (900 psig) a aproximadamente  $8,274 \times 10^6$  Pa (1200 psig).

## ES 2 275 014 T3

En el modo de funcionamiento donde el control del procedimiento se efectúa mediante el ajuste de la presión parcial de hidrógeno, la presión parcial de hidrógeno en el reactor es, preferentemente, de aproximadamente  $6,895 \times 10^4$  Pa (10 psig) a aproximadamente  $5,576 \times 10^6$  Pa (800 psig), de aproximadamente  $5,875 \times 10^6$  Pa (100 psig) a aproximadamente  $4,137 \times 10^6$  Pa (600 psig) o superior, en función de la potencia del régimen de presión del reactor, el grado de contaminación del ácido tereftálico impuro, la actividad y la edad del catalizador concreto empleado, y consideraciones de procesamiento similares. Al purificar ácido tereftálico impuro o bruto, en una forma de realización, la atmósfera del reactor contiene de aproximadamente 10% a aproximadamente 40% en peso de hidrógeno y de aproximadamente 60% a aproximadamente 90% en peso de vapor de agua. En otra forma de realización, al purificar ácido tereftálico impuro o bruto, en una forma de realización, la atmósfera del reactor contiene de aproximadamente 15% a aproximadamente 35% en peso de hidrógeno y de aproximadamente 65% a aproximadamente 85% en peso de vapor de agua.

En el modo de funcionamiento donde el control del procedimiento se efectúa mediante el ajuste directo de la concentración en la solución alimentadora, esta última suele ser inferior a la saturada en relación con el hidrógeno y el propio reactor está hidráulicamente lleno. Por tanto, un ajuste de la velocidad de flujo de hidrógeno al reactor tendrá como resultado el control deseado de la concentración de hidrógeno en la solución. En general, se suministra al reactor de purificación una cantidad de hidrógeno que es suficiente para efectuar la hidrogenación deseada en las condiciones de la reacción empleadas.

En una forma de realización, los índices de actividad para la eliminación de 4-carboxi benzaldehído con un 0,5% en peso de compuestos catalizadores de Pd (hechos de Pd sobre los soportes de catalizador de carbono extraídos) de la presente invención son de aproximadamente  $1 \text{ h}^{-1}$  a aproximadamente  $2,6 \text{ h}^{-1}$ . En otra forma de realización, los índices de actividad para la eliminación de 4-carboxi benzaldehído con un 0,5% en peso de compuestos catalizadores de Pd (hechos de Pd sobre los soportes de catalizador de carbono extraídos) de la presente invención son de aproximadamente  $1,1 \text{ h}^{-1}$  a aproximadamente  $2,2 \text{ h}^{-1}$ .

Las eficiencias en la eliminación del color para los compuestos catalizadores se miden a través de adsorción ultravioleta a 340 nm. En una forma de realización, los compuestos catalizadores de la presente invención eliminan al menos aproximadamente un 75% del color del ácido tereftálico bruto. En otra forma de realización, los compuestos catalizadores de la presente invención eliminan al menos aproximadamente un 80% del color del ácido tereftálico bruto. En otra forma más de realización, los compuestos catalizadores de la presente invención eliminan al menos aproximadamente un 90% del color del ácido tereftálico bruto.

Aunque la invención se ha explicado en relación con ciertas formas de realización, debe entenderse que para los expertos en la técnica se harán evidentes varias modificaciones de las mismas tras la lectura de la memoria descriptiva. Por tanto, debe entenderse que la invención descrita en la presente memoria descriptiva pretende cubrir tales modificaciones según entran en el alcance de las reivindicaciones adjuntas.

## REIVINDICACIONES

1. Un catalizador compuesto que comprende:

5 un material carbonáceo activado extruido, tratado con calor, que comprende una primera serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $4 \times 10^{-9}$  m (40 Å) y, como mucho, de  $1 \times 10^{-8}$  m (100 Å), con una porosidad de al menos aproximadamente 0,15 cc/g, y una segunda serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $5 \times 10^{-7}$  m (5.000 Å) y, como mucho,  $2 \times 10^{-6}$  m (20.000 Å) con una porosidad de al menos aproximadamente 0,3 cc/g, donde al menos el 38% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de  $1 \times 10^{-7}$  m (1.000 Å) y mayores, donde el material carbonáceo activado extruido, tratado con calor, se ha calentado hasta una temperatura de 600°C a 1.500°C; y

15 un catalizador de metal precioso.

2. El catalizador compuesto según la reivindicación 1, en el que al menos el 40% de la porosidad de Hg total se produce en una tercera serie de poros que poseen un diámetro de  $2 \times 10^{-8}$  m (200 Å) y mayores en el material carbonáceo activado extruido.

20 3. El catalizador compuesto según la reivindicación 1, en el que el catalizador compuesto comprende un 70% en peso o más y un 99,9% en peso o menos del material carbonáceo activado extruido y un 0,01% en peso o más y un 30% en peso o menos del catalizador de metal precioso.

25 4. El catalizador compuesto según la reivindicación 1, en el que el catalizador compuesto es al menos uno de un catalizador compuesto de hidrogenación, un catalizador compuesto de reorganización, un catalizador compuesto de purificación, un catalizador compuesto de deshidratación, un catalizador compuesto de deshidrogenación, un catalizador compuesto de oxidación, un catalizador compuesto de reducción, un catalizador compuesto de polimerización, un catalizador compuesto de deshidrociclización, un catalizador compuesto de reformación, un catalizador compuesto de hidrocrackeo y un catalizador compuesto de isomerización.

30 5. El catalizador compuesto según la reivindicación 1, en el que el catalizador de metal precioso comprende al menos uno seleccionado del grupo de platino, platino y renio, platino y rutenio, platino y tungsteno, platino y níquel, platino y estaño, platino y hierro, platino y cobre, platino y rodio, platino y plomo, platino y germanio, paladio, paladio y renio, paladio y oro, paladio e indio, paladio y azufre, paladio y telurio, paladio y rodio, paladio y tungsteno, paladio y níquel, paladio y estaño, paladio y cobre, paladio y rutenio, paladio y plomo, paladio y germanio, cobalto, rodio, rutenio, osmio e iridio.

35 6. El catalizador compuesto según la reivindicación 5, en el que el material carbonáceo activado extruido comprende una primera serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $4 \times 10^{-9}$  m (40 Å) y, como mucho, de  $1 \times 10^{-8}$  m (100 Å), con una porosidad de al menos 0,2 cc/g, y una segunda serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $5 \times 10^{-7}$  m (5.000 Å) y, como mucho,  $2 \times 10^{-6}$  m (20.000 Å) con una porosidad de al menos 0,4 cc/g.

7. Un procedimiento para preparar un catalizador compuesto, que comprende:

45 mezclar al menos un material carbonáceo y un líquido para formar una mezcla;

extruir la mezcla en un material formado;

50 opcionalmente secar el material formado;

55 tratar con calor el material formado a una temperatura de 600°C a 1.500°C para proporcionar un soporte de catalizador, en el que el soporte de catalizador comprende un material carbonáceo activado extruido que comprende una primera serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $4 \times 10^{-9}$  m (40 Å) y, como mucho, de  $1 \times 10^{-8}$  m (100 Å), con una porosidad de al menos 0,15 cc/g, y una segunda serie de poros que poseen un diámetro de poro de al menos  $5 \times 10^{-7}$  m (5.000 Å) y, como mucho,  $2 \times 10^{-6}$  m (20.000 Å) con una porosidad de al menos 0,3 cc/g, donde al menos el 38% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de  $1 \times 10^{-7}$  m (1.000 Å) y mayores; y

60 poner en contacto un catalizador de metal precioso con el soporte de catalizador.

8. El procedimiento según la reivindicación 7, en el que el material formado está en la forma de una o más seleccionadas del grupo compuesto por esferas, comprimidos, cilindros, estrellas, trilóbulos, tetralóbulos, bolas, gránulos, panales y cubos.

65 9. El procedimiento según la reivindicación 7, en el que el material formado comprende menos del 3% en peso de humedad libre.

## ES 2 275 014 T3

10. El procedimiento según la reivindicación 7, en el que la mezcla se lleva a cabo durante un tiempo de 5 minutos o más y 100 minutos o menos y el material formado se trata con calor a una temperatura de 700°C a 1.000°C.

5 11. Un procedimiento para purificar una composición de ácido aromático policarboxílico bruto, que comprende poner en contacto la composición de ácido aromático policarboxílico bruto con un catalizador compuesto de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6.

10 12. El procedimiento según la reivindicación 11, en el que la composición de ácido aromático policarboxílico bruto comprende ácido tereftálico, ácido isoftálico y ácido 2,6-naftaleno dicarboxílico.

13. El procedimiento según la reivindicación 11, en el que la composición de ácido aromático policarboxílico bruto comprende ácido tereftálico y al menos uno de los componentes de coloración indeseables y 4-carboxi benzaldehído.

15 14. El procedimiento según la reivindicación 11, en el que la composición de ácido aromático policarboxílico bruto se pone en contacto con el catalizador compuesto a una temperatura de 100°C a 350°C a una presión de  $1,034 \times 10^6$  Pa (150 psig) a  $11,03 \times 10^6$  Pa (1.600 psig).

20 15. El procedimiento según la reivindicación 11, que comprende poner en contacto la composición de ácido aromático policarboxílico bruto con un catalizador compuesto según la reivindicación 2, en el que al menos un 34% de la porosidad de Hg total se produce en poros que poseen un diámetro de  $5 \times 10^{-7}$  m (5.000 Å) y mayores en el material carbonáceo activado extruido.

25 16. Un procedimiento para purificar una composición de amina bruta o una composición de alquinoxilamina bruta, que comprende:

poner en contacto la composición de amina bruta o la composición de alquinoxilamina bruta con un catalizador compuesto de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6.

30

35

40

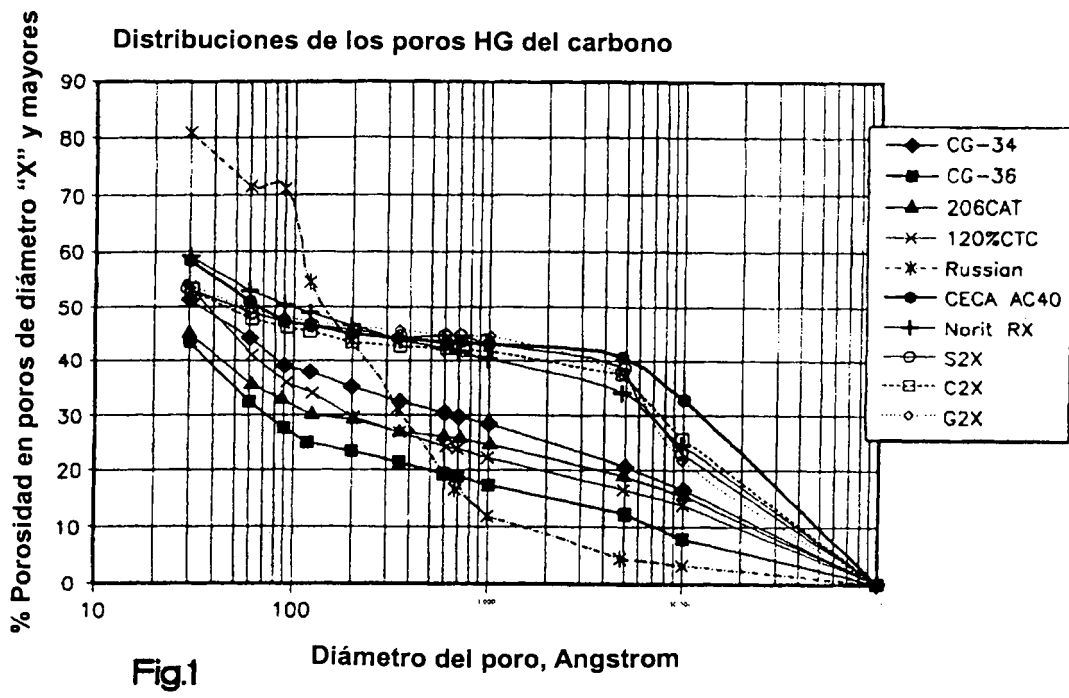
45

50

55

60

65



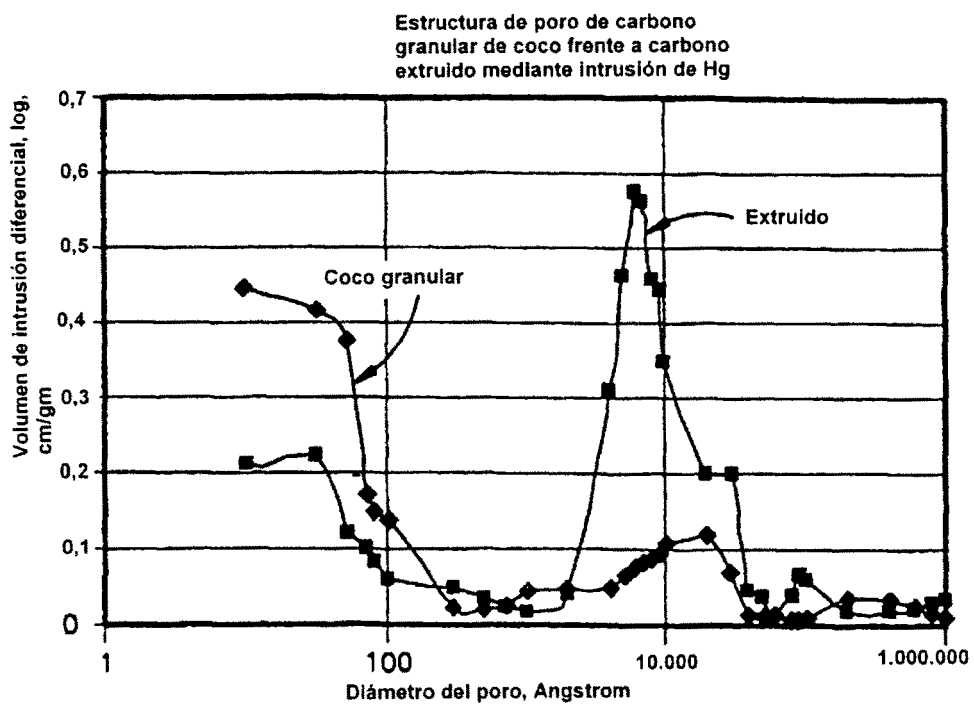


Fig.2