



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 60 2004 006 844 T2** 2008.02.07

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 599 528 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **60 2004 006 844.6**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US2004/006434**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **04 716 921.4**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2004/081080**

(86) PCT-Anmeldetag: **03.03.2004**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **23.09.2004**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **30.11.2005**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **06.06.2007**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **07.02.2008**

(51) Int Cl.⁸: **C08G 63/183** (2006.01)

C08G 63/78 (2006.01)

C08G 63/81 (2006.01)

C07C 51/00 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

383126 06.03.2003 US

(73) Patentinhaber:

Eastman Chemical Co., Kingsport, Tenn., US

(74) Vertreter:

**WUESTHOFF & WUESTHOFF Patent- und
Rechtsanwälte, 81541 München**

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, HU, IE, IT, LI, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI,
SK, TR**

(72) Erfinder:

**LIN, Robert, Kingsport, TN 37664, US; UPSHAW,
Timothy Alan, Kingsport, TN 37664, US; HALL,
Duane Alan, Kingsport, TN 37664, US; PARKER,
Kenny Randolph, Afton, TN 37616, US**

(54) Bezeichnung: **VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINER CARBONSÄURE/DIOL MISCHUNG GEEIGNET ZUR
POLYESTERHERSTELLUNG**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

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**GEBIET DER ERFINDUNG**

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren, durch welches eine Carbonsäure/Diol-Mischung aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Carbonsäurefeststoffes erhalten wird. Die vorliegende Erfindung betrifft spezieller ein Verfahren, durch das eine Terephthalsäure/Diol-Mischung, die als Ausgangsmaterial für die Polyesterherstellung geeignet ist, aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittelaufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Terephthalsäurefeststoffes erhalten wird.

HINTERGRUND DER ERFINDUNG

[0002] Gemäß dem Ziel, Polyethylenterephthalat (PET) und andere Polyester herzustellen, ist ein großer Teil der Patentliteratur der Beschreibung von Verfahren für die Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung gewidmet, die als Ausgangsmaterial geeignet ist. Im Allgemeinen beschreiben diese Erfindungen spezielle Misch-Schemata mit einem gereinigten Terephthalsäurefeststoff und flüssigem Ethylenglycol. Des Weiteren gibt es eine beträchtliche Menge an Literatur, welche Herstellung von gereinigter Terephthalsäure in Pulverform gewidmet ist, die für die Verwendung bei der Herstellung von PET und anderen Polyestern geeignet ist.

[0003] Das Ziel dieser Erfindung ist es, ein Verfahren zu beschreiben, durch das die Carbonsäure/Diol-Mischung, die als Ausgangsmaterial für die Polyesterherstellung geeignet ist, aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Carbonsäurefeststoffes erhalten wird.

[0004] Spezieller ist es das Ziel dieser Erfindung, ein Verfahren zu beschreiben, durch das eine Terephthalsäure/Diol-Mischung, die als Ausgangsmaterial für die Polyesterherstellung geeignet ist, aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Terephthalsäurefeststoffes erhalten wird.

[0005] Gewöhnlich wird gereinigter Terephthalsäurefeststoff in einem mehrstufigen Verfahren hergestellt, in dem Terephthalsäure im Rohzustand hergestellt wird. Terephthalsäure im Rohzustand besitzt keine ausreichende Qualität für die direkte Verwendung als Ausgangsmaterial für kommerzielles PET. Stattdessen wird Terephthalsäure im Rohzustand gewöhnlich zu gereinigtem Terephthalsäurefeststoff aufgereinigt.

[0006] Die Flüssigphasenoxidation von p-Xylol er-

zeugt Terephthalsäure im Rohzustand. Die Terephthalsäure im Rohzustand wird in Wasser gelöst und zum Zweck des Überführens von 4-Carboxybenzaldehyd in p-Toluylsäure, die ein wasserlöslicheres Derivat darstellt, und zum Zweck des Umwandelns der charakteristisch gelben Verbindungen in farblose Derivate hydriert. Jeglicher 4-Carboxybenzaldehyd und jegliche p-Toluylsäure in dem gereinigten Terephthalsäureendprodukt sind für Polymerisationsverfahren besonders schädlich, da sie als Kettenabbruchmittel bei der Kondensationsreaktion zwischen Terephthalsäure und Ethylenglycol bei der Herstellung von PET wirken. Typische gereinigte Terephthalsäure enthält auf Gewichtsbasis weniger als 25 Teile pro Million (ppm) 4-Carboxybenzaldehyd und weniger als 150 ppm p-Toluylsäure.

[0007] Es wurde eine Anzahl anderer Verfahren entwickelt, bei denen Terephthalsäure als Ausgangsmaterial für die kommerzielle PET-Herstellung ohne die Anwendung der Hydrierung hergestellt wird. Typischerweise beinhalten diese Verfahren gewöhnlich die katalysierte Oxidation von p-Xylol in einem Essigsäurelösungsmittel, gefolgt von Filtration und dem Trocknen der Terephthalsäure von dem Essigsäurelösungsmittel.

[0008] Eine Terephthalsäure/Diol-Mischung, die für die PET-Herstellung brauchbar ist, aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung herzustellen, stellt ein grundlegend anderes Problem dar als aus einer Terephthalsäure- und Wasser-Mischung.

[0009] TPA, die mittels katalysierter Oxidation von p-Xylol in einem Essigsäurelösungsmittel hergestellt wurde, erzeugt typischerweise eine Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung, die einen Rest an Katalysator (z.B. Cobalt, Mangan und Brom) enthält. Bei einem gebräuchlichen Verfahren zur Herstellung eines im Wesentlichen trockenen TPA-Feststoffs aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung wird die Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung filtriert, um eine wesentliche Menge der Essigsäureflüssigkeit von den TPA-Feststoffen abzutrennen. Rückständiger Katalysator wird gewöhnlich durch Waschen (Spülen) des nassen Kuchens mit Katalysator-freier Essigsäure, Wasser oder anderem Lösungsmittel von der Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung abgetrennt. Der TPA-Feststoff wird durch Trocknen isoliert.

[0010] In der vorliegenden Erfindung wurde ein neues Verfahren entdeckt, das mit weniger Schritten auskommt als die gegenwärtig eingesetzten Verfahren. Der vorrangige Nutzen der Erfindung ist die Verminderung von Anlagen- und Betriebskosten, die mit der Isolierung von Terephthalsäurepulver verbunden sind. Bei der konventionellen Herangehensweise an die Herstellung von Terephthalsäure über die katalysierte Oxidation von p-Xylol in einem Essigsäure-Lö-

sungsmittel wird eine Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung filtriert, gewaschen und dann getrocknet, um ein Terephthalsäurepulver herzustellen, das als Ausgangsmaterial für die PET-Herstellung geeignet ist.

[0011] In einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird die Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung filtriert, um einen Terephthalsäurekuchen mit Lösungsmittel und einen TPA-Lösungsmittel-Mutterlaugen-Strom zu erzeugen. Der Terephthalsäurekuchen mit dem Lösungsmittel wird dann mit Wasser gewaschen (gespült), um restliches Metallkatalysatormaterial zurückzugewinnen und um einen wassernassen Terephthalsäurekuchen und eine TPA-Lösungsmittel/Wasser-Nebenprodukt-Lauge zu erzeugen. Der wassernasse Terephthalsäurekuchen wird dann mit einem Diol vereinigt, um eine Terephthalsäure/Diol-Mischung zu erzeugen, die als Ausgangsmaterial in einem kommerziellen PET-Verfahren geeignet ist. Durch Umgehen herkömmlicher Verfahren zur Isolierung von Terephthalsäurefeststoff wird die Ausstattung vermieden, die notwendig ist, um Terephthalsäurepulver herzustellen.

[0012] Ein anderer überraschender und anscheinend widersprüchlicher Aspekt der Erfindung ist der Nutzen der Zugabe von Wasser zu dem Essigsäure- und Ethylenglycol-Lösungsmittel. Im Allgemeinen ist es bei herkömmlichen Verfahren zur Herstellung von Terephthalsäure notwendig, Wasser, das bei dem Oxidationsverfahren erzeugt wird, zu entfernen. Typischerweise erfordert die Verwendung von Essigsäure als Oxidationslösungsmittel einen zusätzlichen Verfahrensschritt, bei dem die Essigsäure und Wasser getrennt werden. Es ist scheinbar widersprüchlich, eine Essigsäure- und Wassermischung herzustellen, wenn dies durch Trocknen der Terephthalsäure von dem Essigsäurelösungsmittel vermieden werden kann.

[0013] Zudem wird bei Verfahren zur Herstellung von PET über die Veresterung von TPA mit Ethylenglycol Wasser als Reaktionsnebenprodukt erzeugt. Im Allgemeinen ist es notwendig, dass Wasser, das bei dem Veresterungsverfahren erzeugt wird, über einen zusätzlichen Verfahrensschritt, bei dem Ethylenglycol und Wasser getrennt werden, zu entfernen. Es ist scheinbar widersprüchlich, eine Ethylenglycol- und Wassermischung zu erzeugen, wenn dies durch das Nicht-Einführen von Wasser mit der TPA vermieden werden kann.

[0014] Jedoch beruht der eine Nutzen dieser Erfindung auf der Voraussetzung, dass Ethylenglycol/Wasser- und Essigsäure/Wasser-Trennungssysteme normalerweise für herkömmliche TPA- und PET-Herstellungsverfahren existieren. Bei dieser Erfindung sind die Einsparungen, die mit der Vermeidung des Trocknens von TPA verbunden sind, von

größerem Nutzen als die inkrementelle Zunahme der Ethylenglycol- und Wassertrennungskapazität sowie die inkrementelle Zunahme der Essigsäure- und Wassertrennungskapazität.

ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG

[0015] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren, in dem eine Carbonsäure/Diol-Mischung aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung von im Wesentlichen trockenem Carbonsäurefeststoff erhalten wird. Speziell betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren für die Herstellung einer Terephthalsäure/Ethylenglycol-Mischung, die als Ausgangsmaterial für die Herstellung von kommerziellem PET geeignet ist. Das resultierende Verfahren hat weniger Schritte als die gegenwärtig eingesetzten Verfahren und kann bei niedrigeren Investitionskosten eingerichtet werden. Die vorliegende Erfindung schließt speziell einen direkten Verdrängung von Wasser durch Ethylenglycol ein. Die Aufnahme des Verdrängungsschrittes beseitigt die Notwendigkeit, einen gereinigten Terephthalsäurefeststoff zu isolieren, und beseitigt dadurch die Notwendigkeit der Kristallisation, Feststoff/Flüssigkeits-Trennung und Feststoff-Handhabungseinrichtungen, die normalerweise bei kommerziellen Verfahren mit gereinigter Terephthalsäure vorkommen.

[0016] Es ist ein Ziel dieser Erfindung, ein Verfahren für die Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Carbonsäurefeststoffes zur Verfügung zu stellen.

[0017] Es ist ein weiteres Ziel dieser Erfindung, ein Verfahren für die Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Terephthalsäurefeststoffes zur Verfügung zu stellen.

[0018] Es ist ein weiteres Ziel dieser Erfindung, ein Verfahren für die Herstellung einer Terephthalsäure/Ethylenglycol-Mischung aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Terephthalsäurefeststoffes zur Verfügung zu stellen.

[0019] Es ist ein weiteres Ziel dieser Erfindung, ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Ethylenglycol-Mischung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Terephthalsäurefeststoffes durch das Entfernen von Wasser aus einem wassernassen Terephthalsäurekuchen mittels der Verwendung einer Carbonsäure/Diol-Mischzone zur Verfügung zu stellen.

[0020] Demgemäß betrifft die Erfindung, wie beansprucht, ein Verfahren zur Herstellung einer Carbon-

säure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die Zugabe eines Diols zu einem wassernassen Carbonsäurekuchen in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone umfasst, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung zu bilden, wobei die Carbonsäure aus einer Gruppe, bestehend aus Terephthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalindicarbonsäure, Trimellithsäure und deren Mischungen ausgewählt wird.

[0021] Weitere und bestimmte bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung werden in den abhängigen Ansprüchen dargelegt.

[0022] In einer ersten Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, das die Zugabe eines Diols zu einem wassernassen Carbonsäurekuchen in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone umfasst, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung zu bilden.

[0023] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen Carbonsäurekuchen mit Essigsäure und einen Lösungsmittel-Mutterlaugen-Strom zu bilden.
- (b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung von dem Carbonsäurekuchen mit Essigsäure, um einen wassernassen Carbonsäurekuchen und eine Lösungsmittel/Wasser-Nebenprodukt-Lauge zu bilden.
- (c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Carbonsäurekuchen in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung zu bilden.

[0024] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen eines Lösungsmittels aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer Feststoff-Flüssigkeits-Abtrennzone; wobei ein wesentlicher Teil des Lösungsmittels in der Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Carbonsäurekuchen zu bilden;
- (b) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Carbonsäurekuchen in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung zu bilden.

[0025] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die Zugabe eines Diols zu einem wassernassen Terephthalsäurekuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone umfasst, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden.

[0026] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen Terephthalsäurekuchen mit Essigsäure zu bilden.
- (b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels aus dem Terephthalsäurekuchen mit Essigsäure in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen wassernassen Terephthalsäurekuchen zu bilden.
- (c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäurekuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden.

[0027] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen eines Lösungsmittels aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer Feststoff-Flüssigkeits-Abtrennzone; wobei ein beträchtlicher Teil des Lösungsmittels in der Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Carbonsäurekuchen zu bilden.
- (b) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäurekuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden.

[0028] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Verfügung gestellt, um eine Carbonsäure/Diol-Mischung aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Carbonsäurefeststoffes herzustellen.

[0029] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Verfügung gestellt, um eine Terephthalsäure/Diol-Mischung aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung ohne Isolierung eines im Wesentlichen trockenen Terephthalsäurefeststoffes herzustellen.

[0030] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen Terephthalsäurekuchen mit Essigsäure zu bilden; wobei die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen etwa 40°C bis etwa 155°C betrieben wird.
- (b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um den Terephthalsäurekuchen mit Essigsäure zu bilden, um einen wassernassen Terephthalsäurekuchen zu bilden; wobei die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen etwa 40°C bis etwa 155°C betrieben wird.
- (c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäurekuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden; wobei die Zugabe bei einer Temperatur zwischen etwa 40°C und 290°C stattfindet; wobei das Diol Ethylenglycol ist.

[0031] In einer weiteren Ausführungsform dieser Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die folgenden Schritte in der genannten Reihenfolge umfasst:

- (a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen Terephthalsäurekuchen mit Essigsäure zu bilden; wobei die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen etwa 40°C bis etwa 155°C betrieben wird.
- (b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um den Terephthalsäurekuchen mit Essigsäure zu bilden, um den wassernassen Terephthalsäurekuchen zu bilden; wobei die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen etwa 40°C bis etwa 155°C betrieben wird.
- (c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäurekuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden; wobei die Zugabe bei einer Temperatur zwischen etwa 40°C und 290°C stattfindet; wobei das Diol Ethylenglycol ist.

[0032] Diese und andere Ziele werden dem Fachmann nach dem Lesen dieser Offenbarung deutlicher werden.

BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG:

[0033] In einer ersten Ausführungsform dieser Erfindung, die in [Fig. 1](#) gezeigt ist, wird ein Verfahren zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung **108** zur Verfügung gestellt, wobei das Verfahren die Zugabe eines Diols **107** zu einem wassernassen Carbonsäurekuchen **106** in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone **130** umfasst, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung **108** zu bilden.

[0034] Die Carbonsäure/Diol-Mischzone **130**, das Diol **107**, die Carbonsäure/Diol-Mischung **108** und der wassernasse Carbonsäurekuchen **106** werden nachfolgend in einer zweiten Ausführungsform dieser Erfindung beschrieben.

[0035] In der zweiten Ausführungsform dieser Erfindung, die in [Fig. 1](#) gezeigt ist, wird ein Verfahren zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung **108** zur Verfügung gestellt. Das Verfahren umfasst die folgenden Schritte:

Schritt (1) umfasst das Entfernen von Verunreinigungen aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **101** in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110**, um einen Carbonsäurekuchen mit Lösungsmittel **103** und einen Lösungsmittel-Mutterlaugen-Strom **102** zu bilden. Die Rohrleitung **101** enthält eine Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung, die eine Carbonsäure, Verunreinigungen und ein Lösungsmittel umfasst. Die Verunreinigungen umfassen rückständigen Katalysator (typischerweise, aber nicht eingeschränkt auf, Cobalt, Mangan oder Brom). Geeignete Lösungsmittel schließen aliphatische Monocarbonsäuren, die bevorzugt 2 bis 6 Kohlenstoffatome enthalten, oder Benzoessäure und deren Mischungen und Mischungen dieser Verbindungen mit Wasser ein, sind aber nicht eingeschränkt darauf. Das Lösungsmittel beinhaltet bevorzugt hauptsächlich Essigsäure und/oder etwas Wasser. Das Verhältnis von Essigsäure zu Wasser kann im Bereich von 50:50 bis 99:1 Essigsäure zu Wasser bezüglich Masse, bevorzugter im Bereich von 85:15 bis 95:5 und am bevorzugtesten im Bereich von 90:10 bis 95:5 liegen. Geeignete Carbonsäuren schließen Terephthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalindicarbonsäure, Trimellithsäure und deren Mischungen ein, sind aber nicht eingeschränkt darauf.

[0036] Die Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **101** liegt im Bereich von 10-40 Gew.-% Carbonsäure. Bevorzugt liegt die Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **101** im Bereich von 25-35 Gew.-% Carbonsäure. Am bevorzugtesten liegt die Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **101** im Bereich von 30-35 Gew.-% Carbonsäure. Die Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung der Rohrleitung **101** wird dann in eine erste Feststoff-Flüssig-

keits-Trennvorrichtung **110** eingeführt, wobei ein wesentlicher Teil des Lösungsmittel-Mutterlaugen-Stroms in einer Rohrleitung **102** zurückgewonnen wird. Der Lösungsmittel-Mutterlaugen-Strom **102** umfasst einen wesentlichen Teil des Lösungsmittels.

[0037] Die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110** umfasst jede Vorrichtung, die in der Lage ist, wirksam Feststoffe und Flüssigkeiten zu trennen. Die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110** kann typischerweise die folgenden Arten von Vorrichtungen beinhalten, ist aber nicht eingeschränkt darauf: Zentrifugen, Zyklone, rotierende Trommelfilter, Bandfilter, Pressenfilter usw. Die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110** kann in einem Temperaturbereich von ungefähr 40°C bis 155°C betrieben werden. Bevorzugt kann die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110** in einem Temperaturbereich von ungefähr 80°C bis 150°C betrieben werden. Am bevorzugtesten kann die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110** in einem Temperaturbereich von ungefähr 90 bis 150°C betrieben werden. Ein Carbonsäurekuchen mit Lösungsmittel **103** wird hergestellt, wobei die Feuchtigkeitszusammensetzung des Carbonsäurekuchens mit Lösungsmittel **103** im Bereich von 0,5-30 Gew.-% Feuchtigkeit, bevorzugt im Bereich von 1-20% Feuchtigkeit, am bevorzugtesten im Bereich von 1-5% Feuchtigkeit liegt. Wahlweise kann das restliche Lösungsmittel durch einen Gasverdrängungsschritt entfernt werden, um die Lösungsmittelkontamination mit dem Waschen zu minimieren.

[0038] Schritt (2) umfasst das Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittel aus dem Carbonsäurekuchen mit Lösungsmittel **103** in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120**, um einen wassernassen Carbonsäurekuchen **106** und eine Lösungsmittel/Wasser-Nebenprodukt-Lauge **105** zu bilden.

[0039] Der Carbonsäurekuchen mit Lösungsmittel **103** wird nachfolgend einem Waschen oder einem "Spülen" mit Wasser oder im Wesentlichen mit Wasser mit restlichen Mengen an Lösungsmittel in der Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** unterzogen, wobei ein wesentlicher Teil des anfänglichen Lösungsmittels durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Carbonsäurekuchen **106** zu bilden. Der wassernasse Carbonsäurekuchen **106** liegt bevorzugt im Bereich von ungefähr 0,5-30% Feuchtigkeit, bevorzugter im Bereich von 1-20% Feuchtigkeit und am bevorzugtesten im Bereich von 1-5% Feuchtigkeit. Die verbleibende Feuchtigkeit des wassernassen Carbonsäurekuchens **106** sollte weniger als ungefähr 2% Lösungsmittel auf Massenbasis enthalten. Zusätzlich sollte der wassernasse Carbonsäurekuchen weniger als 1% jeglicher Metalle (z.B. Cobalt, Mangan usw...), die typischerweise als Katalysatoren bei der p-Xyloxyldoxidation verwendet werden, in der

Aufschlammungs-Mischung in der Rohrleitung **101**, enthalten, sollten in dem wassernassen Carbonsäurekuchen **106** bleiben [sic!].

[0040] Waschwasser wird in die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** über eine Rohrleitung **104** eingeführt. Das Waschwasser sollte auf kontinuierlicher Basis eine Massenvorschubgeschwindigkeit im Verhältnis zu den Feststoffen in **103** im Bereich von ungefähr 0,1:1 bis 1,5:1, bevorzugt im Bereich von 0,1:1 bis 0,6:1, am bevorzugtesten im Bereich von 0,2:1 bis 0,4:1 umfassen. Es gibt keine Einschränkungen bezüglich Temperatur oder Druck des Waschwassers, einschließlich der Verwendung von verdampftem Wasser, Wasserdampf oder einer Kombination von Wasser und Wasserdampf als Waschmedium.

[0041] Die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** kann typischerweise die folgenden Arten von Vorrichtungen umfassen, ist aber nicht eingeschränkt darauf: Zentrifugen, Zyklone, rotierende Trommelfilter, Bandfilter, Pressenfilter usw. Die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** kann in einem Temperaturbereich von ungefähr 40°C bis 155°C betrieben werden. Bevorzugt kann die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** in einem Temperaturbereich von ungefähr 80°C bis 150°C betrieben werden. Am bevorzugtesten kann die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** in einem Temperaturbereich von ungefähr 90°C bis 150°C betrieben werden.

[0042] Wahlweise wird die Lösungsmittel/Wasser-Nebenprodukt-Lauge aus der zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **105** von dem Lösungsmittel-Mutterlaugen-Strom, der von der ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **102** erzeugt wird, abgesondert.

[0043] Schritt (3) umfasst die Zugabe eines Diols **107** zu dem wassernassen Carbonsäurekuchen **106** in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone **130**, um einen Teil des Wassers von dem wassernassen Carbonsäurekuchen **106** zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung **108** zu bilden.

[0044] Schließlich wird der wassernasse Carbonsäurekuchen **106**, der nun im Wesentlichen frei von Lösungsmitteln ist, mit einem Diol **107** in einer Carbonsäuremischzone **130** vereinigt, um eine Carbonsäure/Diol-Mischung **108** zu bilden, die für die Herstellung von PET und anderen Polyestern in der Vorrichtung **130** geeignet ist. Eine Rohrleitung **109** wird verwendet, um den Teil des Wassers von dem wassernassen Carbonsäurekuchen **106** zu entfernen. Es gibt keine speziellen Einschränkungen bezüglich der Vorrichtung **130**, mit der Ausnahme, dass sie einen engen Kontakt zwischen dem wassernassen Carbonsäurekuchen **106** und dem Diol **107** ermöglichen

muss, um die Carbonsäure/Diol-Mischung **108** herzustellen. Beispiele für solche Vorrichtungen schließen die Folgenden ein, sind aber nicht eingeschränkt darauf: ein umgewälztes Gefäß, ein statischer Mischer, ein Schraubenförderer, PET-Veresterungsreaktor(en), usw. (Bemerkung: Ein Feststoffeduktor könnte verwendet werden, um den wassernassen Carbonsäurekuchen in die Vorrichtung **130** einzuführen). Noch gibt es irgendeine spezielle Einschränkung bezüglich des Temperaturbereichs, bei dem die Vorrichtung **130** betrieben werden kann. Es ist jedoch zu bevorzugen, dass die Temperatur der Vorrichtung **130** ungefähr 280°C nicht übersteigt, Temperaturen, die normalerweise in Veresterungsreaktoren vorgefunden werden.

[0045] Das Diol in einer Rohrleitung **107** wird auf derartige Weise eingeführt, dass das Wasser als die vorherrschende Aufschlammungsflüssigkeit ersetzt wird. Dies kann durch die Einführung eines Diols über die Rohrleitung **107** als gesättigte Flüssigkeit bei einer Temperatur durchgeführt werden, die ausreicht, um das Wasser zu verdampfen. Bevorzugt wird das Diol in der Rohrleitung **107** als gesättigter oder überhitzter Dampf eingeführt. Das Diol in der Rohrleitung **107** wird aus der Gruppe bestehend aus Ethylenglycol, Diethylenglycol, n-Butylenglycol, i-Butylenglycol, n-Propylenglycol, 1,4-Butandiol, Cyclohexandimethanol und deren Mischungen ausgewählt. Das Diol in der Rohrleitung **107** ist bevorzugt Ethylenglycol. Man beachte, dass in dem System, das in [Fig. 1](#) gezeigt ist, kein im Wesentlichen trockener Carbonsäurefeststoff gebildet wird. Der wirtschaftliche Hauptvorteil, wenn man keinen trockenen Carbonsäurefeststoff bildet, ist die Beseitigung von Feststoff-Handhabungs-Einrichtungen (z.B. Fördersysteme, Silos usw.).

[0046] Eine dritte Ausführungsform dieser Erfindung, die in [Fig. 1](#) gezeigt ist, ist ein Verfahren zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung **108**, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst.

[0047] Schritt (1) umfasst das Entfernen eines Lösungsmittels aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **101** in einer Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **140**, wobei ein wesentlicher Teil des Lösungsmittels in der Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **101** durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Carbonsäurekuchen **106** zu bilden.

[0048] In Schritt (1) können die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** und die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110** in der zweiten Ausführungsform dieser Erfindung kombiniert werden, um eine einzige Vorrichtung zu bilden, die in der Lage ist, beide Feststoff-Flüssigkeits-Trennungen durchzuführen. Dies ist schematisch in [Fig. 1](#) gezeigt, die eine Feststoff-Flüssigkeits-Verdrän-

gungszone **140** durch ein gestricheltes Kästchen um die Vorrichtungen **110** und **120** zeigt. Das Entfernen des Lösungsmittels aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **101** in einer Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **140**, um einen wassernassen Carbonsäurekuchen zu bilden, kann durch alle Mittel, die im Fachwissen bekannt sind, durchgeführt werden. Die Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **140** umfasst jede Vorrichtung, die in der Lage ist, die Funktionen sowohl der ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **110** als auch der zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **120** durchzuführen, die in der zweiten Ausführungsform dieser Erfindung beschrieben wird. Die Vorrichtung in der Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **140** kann typischerweise die folgenden Arten an Vorrichtungen enthalten, ist aber nicht eingeschränkt darauf: Zentrifugen, Zyklone, Filter und dergleichen oder deren Kombination.

[0049] Schritt (2) umfasst die Zugabe eines Diols **107** zu dem wassernassen Carbonsäurekuchen **106** in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone **130**, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung **108** zu bilden.

[0050] Schritt (2) ist identisch mit dem Schritt (3), der in der zweiten Ausführungsform dieser Erfindung beschrieben wird.

[0051] Eine vierte Ausführungsform dieser Erfindung wird in [Fig. 2](#) zur Verfügung gestellt, die ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** umfasst, wobei das Verfahren die Zugabe eines Diols **207** zu einem wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone **230** umfasst, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** zu bilden.

[0052] Die Terephthalsäure/Diol-Mischzone **230**, das Diol **207**, die Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** und der wassernasse Terephthalsäurekuchen **206** werden nachfolgend in einer fünften Ausführungsform dieser Erfindung beschrieben.

[0053] In der fünften Ausführungsform dieser Erfindung, die in [Fig. 2](#) gezeigt ist, wird ein Verfahren für die Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** zur Verfügung gestellt. Das Verfahren umfasst die folgenden Schritte.

[0054] Schritt (1) umfasst das Entfernen von Verunreinigungen aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **201** in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210**, um einen Terephthalsäurekuchen mit Lösungsmittel **203** und einen TPA-Lösungsmittel-Mutterlaugen-Strom **202** zu bilden.

[0055] Eine Rohrleitung **201** enthält eine Tereph-

thalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung, die Terephthalsäure, Verunreinigungen und ein Lösungsmittel umfasst. Die Verunreinigungen umfassen rückständigen Katalysator (typischerweise, aber nicht eingeschränkt auf, Cobalt, Mangan oder Brom). Geeignete Lösungsmittel schließen aliphatische Monocarbonsäuren, die bevorzugt 2 bis 6 Kohlenstoffatome enthalten, oder Benzoesäure und deren Mischungen und Mischungen dieser Verbindungen mit Wasser ein, sind aber nicht eingeschränkt darauf. Bevorzugt beinhaltet das Lösungsmittel im Wesentlichen Essigsäure und/oder etwas Wasser. Das Verhältnis von Essigsäure zu Wasser kann im Bereich von 50:50 bis 99:1 Essigsäure zu Wasser bezüglich Masse, bevorzugter im Bereich von 85:15 bis 95:5 und am bevorzugtesten im Bereich von 90:10 bis 95:5 liegen. Die Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **201** liegt im Bereich von ungefähr 10-40 Gew.-% Terephthalsäure. Bevorzugt liegt die Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **201** im Bereich von 25-35 Gew.-% Terephthalsäure. Am bevorzugtesten liegt die Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **201** im Bereich von 30-35 Gew.-% Terephthalsäure. Die Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in der Rohrleitung **201** wird dann in eine erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** eingeführt, wobei ein wesentlicher Teil der Lösungsmittel-Mutterlauge in einer Rohrleitung **202** zurückgewonnen wird. Die Lösungsmittel-Mutterlauge **202** umfasst einen wesentlichen Teil des Lösungsmittels.

[0056] Die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** ist jede Vorrichtung, die in der Lage ist, wirksam Feststoffe und Flüssigkeiten zu trennen. Die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** kann typischerweise die folgenden Arten von Vorrichtungen beinhalten, ist aber nicht eingeschränkt darauf: Zentrifugen, Zyklone, rotierende Trommelfilter, Bandfilter, Pressenfilter usw. Die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** kann in einem Temperaturbereich von ungefähr 40°C bis 155°C betrieben werden. Bevorzugt kann die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** in einem Temperaturbereich von etwa 80°C bis 150°C betrieben werden. Am bevorzugtesten kann die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** in einem Temperaturbereich von ungefähr 90°C bis 150°C betrieben werden. Ein Terephthalsäurekuchen mit Lösungsmittel **203** wird hergestellt, wobei die Feuchtigkeitszusammensetzung des Terephthalsäurekuchens mit Lösungsmittel im Bereich von 0,5-30% Feuchtigkeit, bevorzugt im Bereich von 1-10% Feuchtigkeit, am bevorzugtesten im Bereich von 1-5% Feuchtigkeit liegt. Wahlweise kann das Lösungsmittel durch einen Gasverdrängungsschritt entfernt werden, um die Lösungsmittelkontamination mit der Wäsche zu reduzieren.

[0057] Schritt (2) umfasst das Entfernen eines we-

sentlichen Teils eines Lösungsmittels aus dem Terephthalsäurekuchen mit Lösungsmittel **203** in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220**, um einen wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** und eine TPA-Lösungsmittel/Wasser-Nebenprodukt-Lauge **205** zu bilden.

[0058] Der Terephthalsäurekuchen mit Lösungsmittel **203** wird dann einem Waschen oder einem "Spülen" mit Wasser in der zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220** unterworfen, wobei ein wesentlicher Teil des anfänglichen Lösungsmittels durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** zu bilden. Der wassernasse Terephthalsäurekuchen **206** liegt bevorzugt im Bereich von 0,5-30% Feuchtigkeit, bevorzugter im Bereich von ungefähr 1-20% Feuchtigkeit und am bevorzugtesten im Bereich von 1-5% Feuchtigkeit. Die Restfeuchte des wassernassen Terephthalsäurekuchens **206** sollte weniger als ungefähr 2% Lösungsmittel auf Massenbasis enthalten. Zusätzlich sollte der wassernasse Terephthalsäurekuchen weniger als 1% an jeglichen Metallen (z.B. Cobalt, Mangan usw...), die typischerweise als Katalysatoren in der p-Xyloxydation verwendet werden, in der Aufschlammungs-Mischung in der Rohrleitung **210** enthalten, sollten in dem wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** zurückbleiben [sic!].

[0059] Das Waschwasser wird über eine Rohrleitung **204** in die Vorrichtung **220** eingeführt. Das Waschwasser sollte auf kontinuierlicher Basis eine Massenvorschubgeschwindigkeit im Verhältnis zu den Feststoffen in **203** im Bereich von etwa 0,1:1 bis 1,5:1, bevorzugt im Bereich von 0,1:1 bis 0,6:1, am bevorzugtesten im Bereich von 0,2:1 bis 0,4:1 umfassen. Es bestehen keine Einschränkungen bezüglich der Temperatur oder dem Druck des Waschwassers, das die Verwendung von verdampftem Wasser, Wasserdampf oder einer Kombination von Wasser und Wasserdampf als Waschmedium einschließt.

[0060] Die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220** kann typischerweise die folgenden Arten von Vorrichtungen enthalten, ist aber nicht eingeschränkt darauf: Zentrifugen, Zyklone, rotierende Trommelfilter, Bandfilter, Pressenfilter usw. Die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220** kann innerhalb eines Temperaturbereichs von etwa 40°C bis 155°C betrieben werden. Bevorzugt kann die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220** innerhalb eines Temperaturbereichs von etwa 80°C bis 150°C betrieben werden. Am bevorzugtesten kann die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220** innerhalb eines Temperaturbereichs von etwa 90°C bis 150°C betrieben werden.

[0061] Wahlweise wird die Lösungsmittel/Wasser-Nebenprodukt-Lauge von der zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **205** von dem Lö-

sungsmittel-Mutterlaugen-Strom-Produkt abgesondert, der von der ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **202** erzeugt wird.

[0062] Schritt (3) umfasst die Zugabe eines Diols **207** zu dem wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone **230**, um einen Teil des Wassers aus dem wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** zu bilden.

[0063] Schließlich wird der wassernasse Terephthalsäurekuchen **206**, der nun im Wesentlichen frei von Lösungsmittel ist, mit einem Diol **207** vereinigt, um eine Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden, die für die Herstellung von PET und anderen Polyestern in der Vorrichtung **230** geeignet ist. Die Rohrleitung **209** wird verwendet, um den Teil des Wassers aus dem wassernassen Carbonsäurekuchen **206** zu entfernen. Es bestehen keine speziellen Einschränkungen bezüglich der Vorrichtung **230**, mit der Ausnahme, dass sie für einen engen Kontakt zwischen dem wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** und dem Diol **207** sorgen muss, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** herzustellen. Beispiele für solche Vorrichtungen schließen die Folgenden ein, sind aber nicht eingeschränkt darauf: ein umgewälztes Gefäß, statischer Mixer, Schraubenförderer, PET-Veresterungsreaktor(en) usw... (Bemerkung: Ein Feststoffeduktor könnte verwendet werden, um den wassernassen Terephthalsäurekuchen in die Vorrichtung **230** einzuführen). Noch besteht irgendeine spezielle Einschränkung bezüglich des Temperaturbereichs, bei dem die Vorrichtung **230** betrieben werden kann. Es ist jedoch zu bevorzugen, dass die Temperatur der Vorrichtung **230** etwa 280°C nicht überschreitet, Temperaturen, die normalerweise in PET-Veresterungsreaktoren vorgefunden werden.

[0064] Das Diol in der Rohrleitung **207** wird auf solche Weise eingeführt, dass es das Wasser als die vorherrschende Aufschlammungsflüssigkeit ersetzt. Dies kann durch die Einführung eines Diols über die Rohrleitung **207** als gesättigte Flüssigkeit bei einer Temperatur, die ausreichend ist, um das Wasser zu verdampfen, durchgeführt werden. Bevorzugt wird das Diol in der Rohrleitung **207** als gesättigter oder überhitzter Dampf eingeführt. Das Diol in der Rohrleitung **207** wird aus der Gruppe bestehend aus Ethylenglycol, Diethylenglycol, n-Butylenglycol, i-Butylenglycol, n-Propylenglycol, 1,4-Butandiol, Cyclohexandimethanol und deren Mischungen ausgewählt. Das Diol in der Rohrleitung **207** ist bevorzugt Ethylenglycol. Man beachte, dass in dem System, das in [Fig. 1](#) gezeigt wird, kein im Wesentlichen trockener Terephthalsäurefeststoff gebildet wird. Der wirtschaftliche Hauptvorteil, wenn man keinen trockenen Terephthalsäurefeststoff bildet, ist der Wegfall der Feststoff-Handhabungs-Einrichtungen (z.B. Fördersysteme, Silos usw.).

[0065] In einer sechsten Ausführungsform dieser Erfindung, die in [Fig. 2](#) gezeigt ist, wird ein Verfahren zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** zur Verfügung gestellt. Das Verfahren umfasst die folgenden Schritte:

Schritt (1) Entfernen eines Lösungsmittels aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **201** in einer Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **240**, wobei ein wesentlicher Teil des Lösungsmittels in der Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **201** durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** zu bilden.

[0066] In Schritt (1) können die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220** und die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** in der zweiten Ausführungsform dieser Erfindung kombiniert werden, um eine einzige Vorrichtung zu bilden, die in der Lage ist, beide Feststoff-Flüssigkeits-Trennungen durchzuführen. Dies wird schematisch in [Fig. 2](#) gezeigt, die eine Feststoff-Flüssigkeits-Verdrängungszone **240** durch ein gestricheltes Kästchen um die Vorrichtungen **210** und **220** zeigt. Die Entfernung des Lösungsmittels aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung **201** in einer Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **240**, um einen wassernassen Terephthalsäurekuchen zu bilden, kann durch jegliche in der Technik bekannte Mittel durchgeführt werden. Die Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **240** umfasst jegliche Vorrichtung, die in der Lage ist, sowohl Funktionen der ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **210** als auch der zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung **220**, die in der zweiten Ausführungsform dieser Erfindung beschrieben wird, zu erfüllen. Die Vorrichtung in der Feststoff-Flüssigkeits-Trennzone **240** kann typischerweise die folgenden Arten von Vorrichtungen enthalten, ist aber nicht eingeschränkt darauf: Zentrifugen, Zyklone, Filter und dergleichen oder deren Kombination.

[0067] Schritt (2) umfasst die Zugabe eines Diols **207** zu dem wassernassen Terephthalsäurekuchen **206** in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone **230**, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung **208** zu bilden.

[0068] Schritt (2) ist identisch mit Schritt (3), der in der fünften Ausführungsform dieser Erfindung beschrieben wird.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die Zugabe eines Diols zu einem wassernassen Carbonsäure-Kuchen in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone umfasst, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung zu bilden, wobei die Carbonsäure ausgewählt ist aus einer Gruppe beste-

hend aus Terephthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalindicarbonsäure, Trimellithsäure und deren Mischungen.

2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem das Diol ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Ethylenglycol, Diethylenglycol, n-Butylenglycol, i-Butylenglycol, n-Propylenglycol, 1,4-Butandiol, Cyclohexandimethanol und deren Mischungen.

3. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem die Carbonsäure/Diol-Mischzone mindestens eine Einrichtung umfasst, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus einem umgewälzten Gefäß, einem statischen Mischer, einem Schraubenförderer und einem PET-Veresterungsreaktor.

4. Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen Carbonsäure-Kuchen mit Essigsäure und einen Lösungsmittel-Mutterlaugen-Strom zu bilden;
- (b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung aus einem solchen Carbonsäure-Kuchen mit Essigsäure, um einen wassernassen Carbonsäure-Kuchen und eine Lösungsmittel/Wasser-Nebenprodukt-Flüssigkeit zu bilden;
- (c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Carbonsäure-Kuchen in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung zu bilden.

5. Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Carbonsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen eines Lösungsmittels aus einer Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer Feststoff-Flüssigkeits-Abtrennzone; wobei ein wesentlicher Teil des Lösungsmittels in der Carbonsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Carbonsäure-Kuchen zu bilden;
- (b) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Carbonsäure-Kuchen in einer Carbonsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Carbonsäure/Diol-Mischung zu bilden.

6. Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die Zugabe eines Diols zu einem wassernassen Terephthalsäure-Kuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone umfasst, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden.

7. Verfahren nach Anspruch 6, bei dem das Diol Ethylenglycol ist.

8. Verfahren nach Anspruch 6 oder 7, bei dem die Zugabe bei einer Temperatur zwischen 40°C und 290°C stattfindet.

9. Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen Terephthalsäure-Kuchen mit Essigsäure zu bilden;
- (b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels aus dem Terephthalsäure-Kuchen mit Essigsäure in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen wassernassen Terephthalsäure-Kuchen zu bilden; und
- (c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäure-Kuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden.

10. Verfahren nach Anspruch 9, bei dem die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen 40°C bis 155°C betrieben wird.

11. Verfahren nach Anspruch 10, bei dem die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen 40°C bis 155°C betrieben wird.

12. Verfahren nach Anspruch 9 oder 11, bei dem die Zugabe bei einer Temperatur zwischen 40°C und 290°C stattfindet.

13. Verfahren nach Anspruch 9, bei dem das Diol Ethylenglycol ist.

14. Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Entfernen eines Lösungsmittels aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung in einer Feststoff-Flüssigkeits-Abtrennzone; wobei ein beträchtlicher Teil des Lösungsmittels in der Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlammung durch Wasser ersetzt wird, um einen wassernassen Carbonsäure-Kuchen zu bilden;
- (b) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäure-Kuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden.

15. Verfahren nach Anspruch 14, bei dem die Feststoff-Flüssigkeits-Verdrängungszone bei einer Temperatur zwischen 40°C bis 155°C betrieben wird.

Ethylenglycol ist.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

16. Verfahren nach Anspruch 14, bei dem die Zugabe bei einer Temperatur zwischen 40°C und 290°C stattfindet.

17. Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

(a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlämmung, um einen Terephthalsäure-Kuchen mit Essigsäure zu bilden; wobei die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen 40°C bis 155°C betrieben wird;

(b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels aus einem derartigen Terephthalsäure-Kuchen mit Essigsäure in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen wassernassen Terephthalsäure-Kuchen zu bilden; wobei die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen 40°C bis 155°C betrieben wird;

(c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäure-Kuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden; wobei die Zugabe bei einer Temperatur zwischen 40°C und 290°C stattfindet und das Diol Ethylenglycol ist.

18. Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Terephthalsäure/Diol-Mischung, wobei das Verfahren die folgenden Schritte in der angeführten Reihenfolge umfasst:

(a) Entfernen von Verunreinigungen aus einer Terephthalsäure/Lösungsmittel-Aufschlämmung in einer ersten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen Terephthalsäure-Kuchen mit Essigsäure zu bilden; wobei die erste Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen 40°C bis 155°C betrieben wird;

(b) Entfernen eines wesentlichen Teils eines Lösungsmittels aus einem derartigen Terephthalsäure-Kuchen mit Essigsäure in einer zweiten Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung, um einen wassernassen Terephthalsäure-Kuchen zu bilden; wobei die zweite Feststoff-Flüssigkeits-Trennvorrichtung bei einer Temperatur zwischen 40°C bis 155°C betrieben wird;

(c) Zugabe eines Diols zu dem wassernassen Terephthalsäure-Kuchen in einer Terephthalsäure/Diol-Mischzone, um einen Teil des Wassers zu entfernen, um die Terephthalsäure/Diol-Mischung zu bilden; wobei die Zugabe bei einer Temperatur zwischen 40°C und 290°C stattfindet; wobei das Diol

Fig. 1

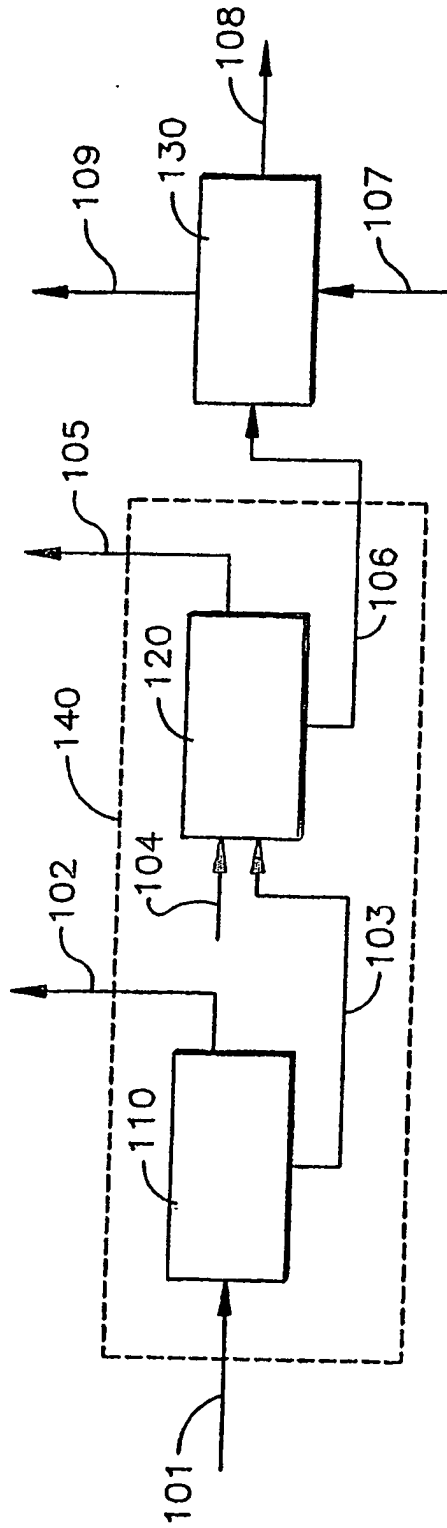


Fig. 2

