

203892



CERTIFICADO
DE
ADICION

por "MEJORAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRINCIPAL, N^o 202.872"
por "Procedimiento para la transformación, por oxidación, de
p-xilol en derivados de ácido tereftálico", ²⁰³⁸⁹² favor de la fir
ma alemana, IMHAUSEN & Co., G.m.b.H, de Witten/Ruhr (Alemania)
Munzstrasse 92a.

- . -

La patente principal n^o 202.872, es un procedimiento
para la preparación de derivados de ácido tereftálico, en el
cual es oxidado p-xilol, con oxígeno elemental o gases conte-
niendo oxígeno, a temperatura aumentada, eventualmente bajo
5. presión, ventajosamente en presencia de catalizadores, siendo
esterificada la mezcla de ácidos formada que contiene cantida
des esenciales de ácido p-tolúilico, eventualmente, después de
separación de xilol invariado, convenientemente con metanol, y
siendo ulteriormente oxidado el éster con oxígeno, o gases con
10. teniendo oxígeno.

En la patente adicional n^o 202.915, se muestra que se
puede transponer de modo análogo, asimismo, los ésteres del
ácido m-tolúilico en los correspondientes monoésteres de
ácido isoftálico.

15. Ahora bien, en el desarrollo ulterior de estos proce
dimientos, se ha encontrado que para la obtención de puros é^g

203892



- terres metálicos iso- y tereftálico no hace falta partir de puro m-, o respectivamente, p-xilol que sólo pueden ser separados uno del otro difícilmente, sino que resulta más ventajoso, si se oxida una mezcla de p- y m-xilol con
5. oxígeno elemental o gases conteniendo oxígeno, primero hasta la fase ácido tolúilica, esterificando los ácidos tolúilicos obtenidos con metanol, convirtiendo por oxidación los ésteres metílicos de ácidos tolúilicos con oxígeno elemental
10. o gases que contienen oxígeno, en los ésteres monometílicos de ácidos benzoldicarboxílicos, transponiendo éstos con metanol excesivo en los ésteres dimetílicos, separando el puro éster de ácido tereftálico sólido, y obteniendo del filtrado mediante destilación el éster metílico de ácido iso-ftálico puro.
15. De esta manera se puede evitar la separación de los hidrocarburos isómeros de partida, la cual no resulta fácil de llevar a cabo técnicamente, llegando de modo sencillo de una mezcla de diferentes isómeros a puros derivados de ácido benzoldicarboxílico.
20. o-xilol, que acaso se encuentre mezclado a la mezcla de partida de m- y p-xilol se va transponiendo durante la oxidación sobre ácido o-tolúilico, finalmente, en una mezcla de éster monometílico de ácido ftálico, ácido ftálico, y anhídrido ftálico, que forma en la esterificación dimetilftalato,
25. que permanece juntamente con el éster metílico o- e isoftálico puede llevarse fácilmente a cabo por destilación, o cristalización de un disolvente orgánico, por ejemplo, metanol, etanol, y similares.

EJEMPLO:

30. 1.000 g de p-xilol técnico, el cual contiene aproxima

203892



- damente un 87 por ciento de p-xilol, resto m-xilol al lado de poco o-xilol, son mezclados con 2 g de las sales-Co de los ácidos grasos con 6-10 átomos C, y oxidados durante 15 horas a 125° con 1,5 litros de aire por hora, a cuyo efecto se trabaja bajo reflujo y con separación del agua formada. Por enfriamiento de la mezcla reaccional se van segregando 450 g de una mezcla de aproximadamente un 83 por ciento de ácidos tolulicos y un aproximadamente 17 por ciento de ácidos benzoldicarboxílicos, que son separados por aspiración y esterificados después de su lavado con metanol, de modo que se vierte 1200 g de metanol sobre 350 g de mezcla ácida y que se calienta, después de saturar con ácido clorhídrico o adición de 15 g de ácido sulfúrico concentrado durante 24 horas bajo reflujo. Después de la separación mecánica de éster dimetílico de ácido tereftálico, difícilmente soluble, es separado por evaporación el exceso de alcohol metílico, separando ácido sulfúrico acaso adicionado mediante gas-NH₃, o por lavado con lejía, oxidando los ésteres metílicos de ácido toluílico (300 g) con aire a 140 - 150° en presencia de cobalto sebácico. De la mezcla de oxidación, se van segregando por precipitación durante la oxidación, ésteres monometílicos de ácido dicarboxílico, cuya separación es completada por enfriamiento. Los monoésteres que se han ido segregando por cristalización son separados por aspiración, brevemente esterificados con metanol. De la mezcla de esterificación se va segregando el éster dimetílico tereftálico como prácticamente insoluble, siendo obtenido después de separación por aspiración y lavado con metanol, con punto de fusión definido (P.f. 140,5°). Del filtrado del éster de ácido tereftálico son separados metanol y catalizador de esterificación y el residuo es sometido a destilación fraccionada en el
- 5.
- 10.
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.

203892



vacio. El éster dimetilico de ácido isoftálico se va presentando en forma cristalina; por lavado con metanol o recristalización en etanol es liberado de vestigios de éster de ácido o-ftálico que va mezclado, resultando seguidamente con punto de fusión definido (P.f. 65-67°).

5.

En caso deseado puede obtenerse la cantidad principal del éster dimetilico de ácido iso-ftálico del filtrado del éster dimetilico de ácido tereftálico, mediante evaporación parcial del metanol y haciendo separarse por cristalización; el cristalizado resulta después de renovada recristalización, asimismo, con punto de fusión prácticamente definido.

10.

Si las porciones que durante la oxidación del xilol de partida, o respectivamente, de los ésteres metílicos de ácido toluílico hayan quedado líquidas, son sometidas nuevamente a la oxidación, entonces es transpuesta del modo descrito la mezcla de m- y p-xilol, de modo prácticamente cuantitativo, en puros ésteres de ácido tere- m e isoftálico.

15.

La invención, dentro de su esencialidad, podrá llevarse a la práctica en otras variantes de realización que difieran en detalle de las indicadas a título de ejemplo, empleando los medios, proporciones y temperaturas más convenientes: por quedar todo ésto comprendido dentro del espíritu de las reivindicaciones.

20.

208892



N O T A

Descrito el objeto de la invención, se hace constar que la presente solicitud se acoge a los derechos de prioridad de la patente alemana de fecha 4 de julio de 1951, (I 4344 IVd/12 o), y se declaran como nuevas y de propia invención, las siguientes reivindicaciones:

5.
1ª.- Mejoras en el objeto de la patente principal, nº 202.872, por "Procedimiento para la transformación, por oxidación, de p-xilol en derivados de ácido tereftálico", por oxidación de p-xilol con oxígeno elemental, o gases que contienen oxígeno, a temperatura aumentada, eventualmente bajo presión, convenientemente en presencia de catalizadores, esterificación de la mezcla ácida conteniendo esenciales cantidades de ácido toluílico que se ha formado, con metanol, y oxidación ulterior del éster con oxígeno, o gases que contienen oxígeno, según la patente 202.872 y puro éster de ácido iso-ftálico, caracterizado porque se convierte oxidando los ésteres metílicos de ácido toluílico que se van presentando en la oxidación de una mezcla de m- y p-xilol con oxígeno elemental, o gases que contienen oxígeno, con oxígeno elemental, o gases que contienen oxígeno, en los ésteres monometílicos de ácido benzoldicarboxílicos, transponiendo éstos con metanol en los ésteres dimetílicos, separando el puro éster de ácido tereftálico sólido y obteniendo del filtrado el éster dimetílico de ácido iso-ftálico puro mediante destilación.
- 10.
- 15.
- 20.
25.
2ª.- Mejoras según la reivindicación 1ª, caracterizado porque el éster metílico de ácido iso-ftálico es li

203892



berado, por recristalización, de éster de ácido o-ftálico, con el cual viene, eventualmente, mezclado.

5. 3ª.- Mejorasen el objeto de la patente principal, nº 202.872, por "Procedimiento para la transformación, por oxidación, de p-xilol en derivados de ácido tereftálico".

Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva, que consta de seis hojas, foliadas y escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, a 6 de junio de 1952.

IMHAUSEN & Co., G.m.b.H.

p.a.

10.