

409313



P.- 52.733

L4/GFCS-L/DM; D

Int. Cl.<sup>2</sup>: C07C

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar PATENTE DE INTRODUCCION por 10 años

a nombre de EASTMAN KODAK COMPANY

entidad norteamericana

establecida en 343 State Street, Rochester, Nueva York,  
Estados Unidos de América

por: " UN METODO CONTINUO PARA LA PRODUCCION DE TEREFTALATO  
DE DIMETILO "

(Clase Internacional C07c)

18.12.72

- 1 -

409313



Esta invención se refiere a un procedimiento me-  
jorado para la preparación de tereftalato de dimetilo. Más  
particularmente, implica un procedimiento para preparar  
tereftalato de dimetilo a partir de ácido tereftálico y  
5 metanol a bajas presiones y sin necesidad de utilizar ca-  
talizador alguno.

La preparación de tereftalado de dimetilo a par-  
tir de ácido tereftálico y metanol por cualquier método  
comercialmente práctico conocido en la técnica requería  
10 una alta proporción de metanol a ácido tereftálico, por  
ejemplo, mayor que 10 a 1, y en muchos casos tan alta  
como 15 ó 20 a 1. Incluso a tan altas proporciones de me-  
tanol a ácido, se forman cantidades considerables de pro-  
ductos intermedios no deseados, y la reacción tiende a ser  
15 incompleta, dejando cantidades considerables de ácido te-  
reftálico sin reaccionar. Asimismo, se han empleado presio-  
nes excesivamente altas en los métodos comercialmente  
practicables con objeto de mantener la concentración desea-  
da de metanol para conseguir que la reacción llegue a una  
20 mayor conversión en tereftalato de dimetilo. En ciertos mé-  
todos de preparación conocidos en la técnica, se utilizan  
catalizadores ácidos o básicos que normalmente son causa  
de corrosión, de reacciones secundarias indeseables, y de  
contaminación del producto.

25 Se ha descubierto ahora un método para la produc-

409313



ción de tereftalato de dimetilo a baja presión y sin necesidad de catalizador alguno, por el cual éstos y otros problemas se eliminan sustancialmente y se puede obtener un producto de pureza mejorada.

5                   Es un objeto de esta invención proporcionar un método no catalítico y de baja presión para la producción de tereftalato de dimetilo. Otro objeto de esta invención es proporcionar un método para la producción de tereftalato de dimetilo de pureza mejorada. Todavía otro objeto de  
10                   esta invención es proporcionar un método para utilizar compuestos intermedios en la producción de tereftalato de dimetilo a partir de ácido tereftálico y metanol para aumentar el rendimiento global de tereftalato de dimetilo e incrementar sustancialmente la pureza final del  
15                   mismo. Un objeto adicional de esta invención es proporcionar un método más económico para la producción de tereftalato de dimetilo sin el empleo de aparatos complicados de alta presión y de catalizadores costosos. Otro objeto más de esta invención es proporcionar un procedi-  
20                   miento para producir tereftalato de dimetilo que eliminará la corrosión resultante del empleo de catalizadores minerales de tipo ácido o básico, así como ciertas reacciones secundarias indeseables. Otros objetos aparecerán más adelante en esta memoria.

25                   De acuerdo con una realización de esta invención,

18.12.72

409313



se proporciona un método continuo para la producción de tereftalato de dimetilo a partir de ácido tereftálico y metanol que comprende calentar una cantidad mantenida continuamente de tereftalato de dimetilo con ácido tereftálico introducido continuamente, efectúandose dicho calentamiento a una temperatura superior al punto de ebullición a la presión atmosférica de dicho tereftalato de dimetilo, con lo cual se produce continuamente hidrogeno-tereftalato de metilo, introducir continuamente metanol en contacto con dicho hidrogeno-tereftalato de metilo con lo cual éste reacciona continuamente con metanol para producir tereftalato de dimetilo, y retirar continuamente una cantidad de tereftalato de dimetilo equivalente a la cantidad de ácido tereftálico introducida.

Las reacciones implicadas de acuerdo con este procedimiento están cubiertas en general por las ecuaciones siguientes:



409313



Cuando se ha introducido inicialmente DMT procedente de otra fuente o se ha formado inicialmente por la reacción de TPA y metanol, a fin de mantener el procedimiento en marcha, después de ello, el procedimiento de esta invención proporciona una conversión muy eficiente de TPA en DMT. Esta conducción de la reacción hacia la formación de cantidades incrementadas de DMT de acuerdo con las ecuaciones arriba indicadas se puede facilitar por calentamiento a reflujo y/o recirculación de una parte del DMT formado.

De acuerdo con una realización más específica de esta invención, se proporciona un método como se ha descrito generalmente arriba que por conveniencia se denomina un método de "zona doble", en el que el TPA introducido continuamente y el DMT mantenido continuamente se calientan en una zona de reacción para formar MHT y el producto de esta zona de reacción se alimenta continuamente a otra zona de reacción en la que se introduce continuamente el metanol. Véase la Figura 4 de los dibujos, la cual se explicará con más detalle más adelante en esta memoria.

De acuerdo con otra realización más específica de esta invención, se proporciona un método como se ha descrito generalmente arriba, el cual es denominado por conveniencia un método de "zona única", en el que el TPA y el metanol se introducen directamente en la misma zona

409313



de reacción. Véase la Figura 1 de los dibujos, que se explicará con más detalle más adelante en esta memoria.

Será evidente, sin embargo, que esta invención no se limita a uno u otro de los denominados métodos de "zona única" o de "zona doble".

En la práctica de esta invención en general, o de acuerdo con cualquiera de las realizaciones más específicas arriba mencionadas, el método empleado se puede integrar en un procedimiento continuo a fin de incorporar una realización adicional más específica de esta invención para la purificación del DMT que se retira. Así, el tereftalato de dimetilo que se retira arrastra consigo agua y metanol junto con trazas de ácido tereftálico, hidrogeno-tereftalato de metilo, ácido p-toluico y p-toluato de metilo, y se purifica por destilación fraccionada con xileno para eliminar sustancialmente la totalidad del metanol y del agua de aquél, seguida por otra destilación fraccionada en presencia de cantidades suplementarias añadidas continuamente de p-toluato de metilo en adición a la cantidad inherentemente presente como impureza, con lo cual se impide sustancialmente la congelación del tereftalato de dimetilo en el transcurso de dicha última destilación fraccionada, y se recupera después tereftalato de dimetilo en forma sustancialmente pura.

De acuerdo con otra realización de esta inven-

409313

-3



ción se proporciona, en un procedimiento para la preparación de tereftalato de dimetilo a partir de ácido tereftálico y metanol, la mejora que comprende mantener una temperatura en una zona de reacción superior al punto de ebullición del tereftalato de dimetilo a la presión atmosférica, mantener una cantidad de tereftalato de dimetilo en dicha zona de reacción en un nivel suficiente para que el tereftalato de dimetilo reaccione con el ácido tereftálico a fin de convertirlo en hidrogeno-tereftalato de metilo, poner en contacto dicho hidrogeno-tereftalato de metilo en una zona de reacción con metanol para convertirlo en tereftalato de dimetilo, y continuar estas conversiones mientras que se mantiene dicho nivel de tereftalato de dimetilo hasta que, en primer lugar, se haya consumido la totalidad del ácido tereftálico y, en segundo lugar, prácticamente la totalidad del hidrogeno-tereftalato de metilo se haya convertido en tereftalato de dimetilo.

La mejora que acaba de describirse se puede caracterizar también por las siguientes peculiaridades adicionales:

(1) El nivel de tereftalato de dimetilo se mantiene mediante reflujo de tereftalato de dimetilo en la zona de reacción.

(2) El nivel de tereftalato de dimetilo se mantiene mediante recirculación de una porción del tereftalato

409313



to de dimetilo recogido.

(3) El nivel del tereftalato de dimetilo se mantiene mediante reflujo de tereftalato de dimetilo en la zona de reacción y mediante recirculación de una porción del tereftalato de dimetilo recogido.

(4) El nivel de tereftalato de dimetilo se mantiene introduciendo tereftalato de dimetilo en la zona de reacción en la que se hacen reaccionar metanol e hidrogeno-tereftalato de metilo.

(5) El tereftalato de dimetilo recogido se somete seguidamente a destilación fraccionada con xileno para eliminar de aquél sustancialmente la totalidad del metanol y del agua formada en la reacción y luego se somete nuevamente a destilación fraccionada en una columna de destilación que tiene una zona a la que se añade cantidad suficiente de para-tolusto de metilo para impedir la acumulación en el interior de la columna de tereftalato de dimetilo solidificado, se separan el xileno y otras impurezas, y se recupera tereftalato de dimetilo sustancialmente puro de un punto intermedio de dicha columna.

Expresada en términos más generales, esta invención en uno de sus aspectos proporciona un procedimiento para la producción de tereftalato de dimetilo que comprende hacer reaccionar tereftalato de dimetilo con ácido tereftálico a una temperatura ligeramente superior al punto

409313



de ebullición del tereftalato de dimetilo a la presión atmosférica, hacer reaccionar el hidrogeno-tereftalato de metilo formado por la reacción del tereftalato de dimetilo y el ácido tereftálico con un exceso de alcohol metílico, y recoger el tereftalato de dimetilo formado por la reacción del hidrogeno-tereftalato de metilo con el alcohol metílico.

Expresado en términos más bien generales, un aspecto más específico de esta invención considera la utilización de xileno para facilitar la purificación y proporciona un procedimiento para la separación de tereftalato de dimetilo sustancialmente puro a partir de una mezcla que contiene xileno y tereftalato de dimetilo bruto, que comprende introducir para-toluate de metilo en una columna de destilación, formar de este modo en el interior de la columna una zona compuesta esencialmente por una mezcla ternaria de para-toluate de metilo, tereftalato de dimetilo y xileno, y retirar de la columna, en un punto situado por debajo de dicha zona, tereftalato de dimetilo líquido sustancialmente puro.

De acuerdo con una realización más específica, esta invención proporciona un procedimiento continuo para fabricar tereftalato de dimetilo a partir de ácido tereftálico y metanol que comprende (1) constituir en una posición inferior de una zona de reacción calentada una mez

409313



cla líquida a la temperatura del punto de ebullición com-  
puesta esencialmente por 50 a 90% en peso de tereftalato  
de dimetilo fundido, 15 a 40% en peso de hidrogeno-teref-  
talato de metilo fundido, y 2 a 10% en peso de partículas  
5 suspendidas de ácido tereftálico, teniendo sobre dicha  
mezcla líquida una mezcla de vapores que comprenden teref-  
talato de dimetilo, hidrogeno-tereftalato de metilo, agua  
y metanol a una presión de 2,1 a 21,1 kg/cm<sup>2</sup> manométricos  
y teniendo en una posición superior de la zona de reacción  
10 un medio de reflujo, (2) introducir en dicha zona de reac-  
ción una parte en peso de ácido tereftálico y de 1 a 4  
partes en peso de metanol, (3) mantener a reflujo sustan-  
cialmente la totalidad de dichos vapores de hidrogeno-te-  
refthalato de metilo, (4) mantener a reflujo una cantidad  
15 de dichos vapores de tereftalato de dimetilo suficiente  
para mantener al menos 50% en peso de tereftalato de di-  
metilo en dicha mezcla líquida y (5) dejar salir los vapo-  
res restantes de tereftalato de dimetilo y otros constitu-  
yentes en estado de vapor sustancialmente exentos de dicho  
20 hidrogeno-tereftalato de metilo de dicha zona de reacción  
y separar de los mismos el tereftalato de dimetilo.

De acuerdo con otra realización específica, esta  
invención proporciona un aparato para la fabricación conti-  
nua de tereftalato de dimetilo que comprende, en asocia-  
25 ción operativa continua, un reactor calentado, una columna



de destilación de metanol, una columna de destilación de xileno, medios de reflujo en una posición superior de dicho reactor por los cuales se condensan los vapores formados por una serie de reacciones entre ácido tereftálico, tereftalato de dimetilo, hidrogeno-tereftalato de metilo y metanol en dicho reactor, medios para introducir una suspensión de ácido tereftálico y metanol en dicho reactor, medios para introducir tereftalato de dimetilo en el mismo, medios para retirar metanol, agua y tereftalato de dimetilo del reactor y conducir esta mezcla a dicha columna de destilación de metanol, medios para introducir xileno en dicha columna, medios para retirar una fracción de metanol de aquélla, medios para retirar una mezcla de xileno y tereftalato de dimetilo de aquélla y conducir esta mezcla a dicha columna de destilación de xileno, medios para introducir en dicha columna una cantidad suplementaria de para-toluato de metilo, medios para retirar una fracción de xileno de la misma, medios para retirar de la misma una fracción que hierve a temperatura baja, y medios para recuperar de la misma tereftalato de dimetilo sustancialmente puro.

De acuerdo con otra realización específica, esta invención proporciona un aparato para la fabricación continua de tereftalato de dimetilo que comprende medios para mezclar ácido tereftálico y tereftalato de dimetilo,

409313



medios para conducir esta mezcla a un reactor sometido a presión adaptado para trabajar a una temperatura y a una presión tales que el tereftalato de dimetilo y el ácido tereftálico reaccionen para formar hidrogeno-tereftalato de metilo en su interior, medios para conducir dicho hidrogeno-tereftalato de metilo con el tereftalato de dimetilo y el ácido tereftálico que lo acompañan desde dicho reactor sometido a presión a un segundo reactor, medios para introducir suficiente cantidad de metanol en dicho segundo reactor para que tenga lugar una reacción en el mismo entre dichos hidrogeno-tereftalato de metilo y metanol para formar tereftalado de dimetilo, medios de reflujo dispuestos cerca del extremo superior de dicho segundo reactor, medios para retirar una porción de dicho tereftalato de dimetilo desde la parte superior de dicho segundo reactor como producto, y medios para recircular una porción del tereftalato de dimetilo de dicho segundo reactor a dichos medios de mezclado.

En la primera de estas etapas de destilación fraccionada, se añade orto-xileno a la corriente de DMT, y la mezcla resultante se conduce a una "columna de destilación de metanol", formando el xileno una mezcla azeotrópica con el agua resultante de la producción del DMT. En la columna de destilación de metanol, se separa el metanol por destilación, y puede recircularse. Una mezcla

18.12.72

409313



constituida principalmente por agua pero que contiene también algo de xileno y metanol, que tiene un punto de ebullición inferior, se separa como fracción secundaria.

Véase la figura 2 de los dibujos, que se explicará con

5 mayor detalle más adelante en esta memoria.

El componente de punto de ebullición más alto, constituido principalmente por DMT que contiene algo de xileno, MPT, MHT, y TPA, se puede retirar de la parte inferior de la columna de destilación de metanol y puede

10 conducirse a una segunda etapa de purificación por destilación fraccionada. Esta se puede realizar en una columna

de destilación de xileno en la que (1) se separa por destilación el xileno, (2) se separa un corte lateral MPT + DMT, menos volátil, y (3) se puede separar por la base

15 de la columna una fracción menos volátil constituida principalmente por DMT y por impurezas de punto de ebullición elevado. Este producto DMT se puede purificar ulteriormente. Una parte del DMT se puede recircular desde el reservador a la zona de reacción original. Un método mucho más  
20 eficiente para la operación de la columna de destilación de xileno se describirá más adelante en esta memoria.

Como se ha indicado arriba, una grave dificultad con la que se tropieza normalmente, consistente en la congelación del DMT en la columna de destilación de xileno,

25 puede eliminarse de modo totalmente no evidente por la



adición de una cantidad suplementaria de MPT en adición a la cantidad normalmente presente como impureza en la alimentación constituida por DMT + MHT + xileno.

5 Una comprensión más completa de la presente invención se logrará mediante referencia a los dibujos adjuntos, los cuales forman parte de la presente solicitud de patente.

10 La figura 1 es un diagrama de procesos esquemático que muestra una disposición de partes de aparato que se pueden utilizar para la realización del procedimiento. Esta figura ilustra el método de operación de "zona única". Ciertas de las diversas unidades ilustradas globalmente en la figura 1 se describirán con mayor detalle en conexión con algunas otras vistas.

15 La figura 2 es una vista diagramática que ilustra un método de operación de la columna de destilación de xileno en el que se utiliza el procedimiento inventivo aplicable a este aspecto de la invención.

20 La figura 3 es una vista diagramática que representa la dificultad ocasionada por la barrera de DMT congelado cuando la columna de destilación de xileno no se hace operar de acuerdo con el procedimiento inventivo en comparación con la operación de acuerdo con el procedimiento inventivo proporcionado por este aspecto de la presente  
25 invención.

409313



La figura 4 es un diagrama de procesos esquemático que muestra una realización del procedimiento de esta invención denominada método de "zona doble", en el cual la reacción entre el MHT y el metanol se lleva a cabo en una zona de reacción siguiente a la reacción entre TPA y DMT en otra zona de reacción para formar MHT.

Haciendo referencia en primer lugar a la figura 1, TPA y metanol se suministran al depósito de suspensión 10 por tuberías 12 y 14 respectivamente. La suspensión se conduce desde el depósito 10 por la bomba 16, pasando por las tuberías 18 y 20, al reactor 22. El reactor 22 se calienta por medio del calentador de base 24, en el cual entra un líquido de intercambio de calor por una tubería 26 y sale por una tubería 28. El calentador de base 24 está conectado al reactor 22 por una tubería 30 y una tubería de circulación de líquido 32. Una pluralidad de platos de destilación se puede localizar ventajosamente en la porción superior del reactor 22 en la posición marcada 34. La porción inferior del reactor 22 puede, o bien (1) contener cualquier material de relleno inerte convencional, o (2) estar equipada con platos de destilación, o (3) ser un tubo esencialmente hueco. La combinación de reactor 22 y calentador de base 24 constituye un método de operación de "zona única", ya que ambos podrían combinarse en una sola pieza del aparato.

409313



5 El DMT bruto formado en el reactor 22 se lleva desde el extremo superior de dicho reactor 22 por la vía de la tubería 36 a la columna de destilación de metanol 38, en la cual entra el xileno por la tubería 40 y de la que se recupera una fracción de metanol por la tubería 42 y agua por la tubería 44.

10 El DMT bruto completado por el MPT adicional que entra por la tubería 46, se conduce por la tubería 48 a la "columna de destilación de xileno" 50, de la que se retira el xileno por la tubería 52 y una fracción que contiene DMT y MPT por la tubería 54. El DMT sale por el fondo de la "columna de destilación de xileno" 50, por la tubería 56, yendo a parar al re-hervidor 58, el cual está conectado también con dicha columna 50 por la tubería 60. Este re-hervidor se puede calentar de la misma manera que el calentador de base 24, por lo que las tuberías 63 y 65 son equivalentes a las tuberías 26 y 28, respectivamente. Una porción del producto DMT procedente de la base del re-hervidor 58 se recir-  
20 cula por la tubería 64 al reactor 22. Ambas columnas 38 y 50 están equipadas con platos de destilación o con una combinación de tales platos y material de relleno inerte de acuerdo con técnicas de ingeniería bien conocidas.

25 El DMT retirado por la tubería 62 es el producto de este procedimiento continuo, y una vez que el pro-

18.12.72



409313

cedimiento ha alcanzado el equilibrio es equivalente en cantidad molar al TPA introducido por la tubería 12.

Haciendo ahora referencia a la figura 2, una mezcla de DMT, MHT, TPA y otras impurezas de menor cuantía  
5 tales como MPT y ácido para-toluico (PTA), se suministra a la columna de destilación de xileno 66 que es análoga a la columna 50 de la figura 1, mediante la tubería 68. La columna 66 está equipada con platos de destilación y se calienta mediante un calentador de base en el que entra vapor de agua por la tubería 72 y del que sale condensado por la tubería 74. Cerca del punto medio de dicha  
10 columna 66 se introduce una pequeña cantidad de MPT adicional por la tubería 76 para impedir la obstrucción de la columna por congelación de parte del DMT en el transcurso del procedimiento de destilación. La serie de platos de destilación (no representados), de la columna de destilación de xileno 66 se puede dividir en cuatro zonas designadas respectivamente desde el extremo superior al extremo inferior A, B, C, D y E. Los constituyentes principales de cada zona son los indicados. La fracción de  
20 xileno que hierve a temperatura baja se retira por el extremo superior de la columna por la tubería 78 y se condensa en el condensador 80 antes de ser devuelta en la proporción que sea necesaria a la columna de destilación 66 por las tuberías de reflujo de xileno 82 y 84.  
25

409313

-3 ENE. 1972



Una porción puede recircularse por la tubería 86 para ser  
suministrada a la tubería 40 de la figura 1. Las impurezas  
que hierven a temperatura baja distintas del xileno se re-  
tiran de la zona B como se indica, por la tubería 88. De  
5 la zona C se retira DMT sustancialmente puro por la tu-  
bería 90. Las impurezas que hierven a temperatura alta,  
junto con una cierta cantidad de DMT, quedan en la zona  
del fondo, zona D, y en el calentador de base 70, llama-  
do zona E. Así pues, la figura 2 ilustra un método de fun-  
10 cionamiento de una "columna de destilación de xileno" de  
acuerdo con una realización preferida de esta invención  
por el cual se puede obtener directamente DMT de alta  
pureza, y que es útil como tal en la fabricación de poli(ter-  
eftalato de etileno). La operación de la "columna de desti-  
15 lación de xileno" como se ha ilustrado en la figura 1 re-  
queriría generalmente purificación adicional del produc-  
to DMT con el fin de utilizarlo para fines tales como la  
fabricación de poli(tereftalato de etileno).

Haciendo referencia seguidamente a la figura 3,  
20 el diagrama situado a la izquierda indica la situación en  
la que se acumula gradualmente una capa sólida de DMT en  
la porción media de la columna de destilación de xileno  
e impide la destilación efectiva del xileno y la separa-  
ción del DMT. En contraste, en el diagrama situado a la  
25 derecha de dicha figura 3 se representan esquemáticamente

409313



Los resultados de la adición de MPT suplementario a la columna de xileno de acuerdo con la presente invención. La operación mejorada proporciona una columna que contiene una zona enriquecida de MPT que, de modo no evidente, elimina la acumulación de una capa obstructora de DMT congelado o sólido.

Haciendo ahora referencia a la figura 4, que ilustra el método de la "zona doble", se introduce TPA por la tubería 92 en el depósito de suspensión 94 que está conectado por la tubería 96, la bomba 98, la tubería 100, el cambiador de calor 102, la tubería 104, el calentador 106, y la tubería 108, con un reactor 110 de TPA + DMT. El reactor 110 de TPA + DMT se mantiene a una temperatura de aproximadamente 280 a 330°C. El producto MHT se conduce desde el fondo de dicho reactor 110, por la tubería 112, al cambiador de calor 102, y seguidamente por la tubería 114 a un reactor 116 de esterificación de MHT + metanol, el cual se mantiene a una temperatura de aproximadamente 230 a 250°C. En dicho reactor 116, el MHT se esterifica por una reacción con metanol introducido cerca del fondo de aquél a través de la tubería de alimentación 118 para formar DMT adicional, y el DMT se retira por el extremo superior de dicho reactor mediante la tubería 120. El DMT así retirado se puede purificar ulteriormente como en las etapas de purificación subsiguientes re-

409313



5 presentadas en las figuras 1 ó 2. El material de colas del reactor 116, constituido por una porción no destilada que contiene DMT, TPA que no ha reaccionado y algo de MHT, se puede recircular por la vía de la tubería 122 al depósi-  
to de suspensión 94. Cerca del extremo superior del reac-  
tor 116 está localizado un deflegmador 124.

10 La operación de diversas realizaciones de esta invención utilizando el aparato arriba descrito, se deduce claramente de la descripción que antecede y de los dibujos incluidos en la misma a que se ha hecho referencia. Sin embargo, se logrará una comprensión todavía más completa mediante la consideración de los ejemplos que si-  
guen.

15 Ejemplo I

20 En un aparato tal como el que se muestra en la figura 1, se suspendieron 100 partes en peso por hora de TPA en 195 partes por hora de metanol. Se llevaron como alimentación 295 partes por hora de esta suspensión a la base del reactor. Esto equivale a una proporción molar de metanol a TPA de 10:1. La reacción se llevó a cabo a una temperatura de 300°C y a una presión de 6,7 kg/cm<sup>2</sup> manométricos. La mezcla de reacción (líquida) existente en la parte superior del nivel del líquido estaba constituida  
25 aproximadamente por 15% de MHT y 85% de DMT más impurezas.

409313



Cinco platos de fraccionamiento en la parte superior del reactor redujeron el contenido de MHT a aproximadamente 0,1% basado en el DMT. El vapor retirado de la parte superior del reactor contenía 157 partes por hora de metanol en exceso, 22 partes por hora de agua de reacción, 182 partes por hora de DMT e impurezas. La cantidad de DMT en los vapores de salida podía controlarse por la temperatura, presión, y presión de vapor del DMT, y en este ejemplo ascendió a aproximadamente 1,5 veces la cantidad que se deseaba retirar, por lo que, para mantener el nivel de líquido en el reactor y proporcionar reflujo para el fraccionamiento, se recircularon 65 partes por hora de DMT líquido desde el re-hervidor situado en el fondo de la columna de destilación de xileno al plato de la parte superior del reactor.

Ejemplo II

Operando continuamente, se llevaron a cabo experimentos de producción de DMT en las condiciones y con los resultados que se indican en la tabla siguiente. Se utilizó un reactor tal como el representado en la figura 1, excepto que el reflujo de DMT se proporcionó por medio de un deflegmador situado por encima de los platos de destilación en la parte superior del reactor 22 en lugar de ser proporcionado por una corriente de DMT recircu-

# 409313



lado desde la columna de destilación de xileno. Se obtuvieron resultados semejantes utilizando la técnica de recirculación de DMT.

TABLA

		Experi- mento 1	Experi- mento 2	Experi- mento 3
5	Alimentación(kg/hr): TPA	68,04	9,53	10,43
	CH <sub>3</sub> OH	22,23	20,19	18,14
	Relación molar	15:1	11:1	9:1
	Temperaturas (°C) Fondo	290	293	307
10	Entre el fondo y el punto medio	300	308	322
	Punto medio	313	323	333
	Nivel del líquido	318	328	334
	Parte superior	137	255	238
	Presión en la parte superior del reactor (kg/cm <sup>2</sup> manom.):	5,27	5,48	5,20
15	Análisis (% en peso): En el fondo			
	TPA	0,0	0,1	0,1
	MHT	8,6	16,2	18,7
	DMT	91,4	83,7	81,2
	En el nivel del líquido:			
	TPA	0,0	0,1	--
	MHT	16,7	13,4	--
	DMT	83,3	86,5	--
20	En la tubería de vapores de DMT bruto:			
	MHT	0,1	0,1	0,1
	DMT	30,0	37,6	42,6
	CH <sub>3</sub> OH	64,3	55,6	49,4
	H <sub>2</sub> O	5,6	6,9	7,9
	Conversiones (%): TPA en DMT	98 +	98 +	98 +
25	Rendimientos: Mayor de 95 % basado en el TPA que ha reaccionado.			
	Mayor de 90 % basado en el CH <sub>3</sub> OH consumido			

409313

-3



Los productos de DMT bruto arriba indicados se trataron además como se ha descrito en el Ejemplo V, y el DMT refinado retirado de la columna de destilación de xileno tenía un punto de cristalización de 140,1 a 140,4<sup>o</sup> C, 5 tenía una acidez analizada como TPA de aproximadamente 0,005 %, y no contenía cantidad apreciable alguna de aldehído p-toluico u otros aldehídos. Este DMT refinado era útil como tal para la fabricación de diversos poliésteres tales como poli(tereftalato de etileno) o poli(tereftalato de 1,4-ciclohexanodimetileno). En estado fundido, este 10 DMT era prácticamente incoloro.

### Ejemplo III

Se alimentó TPA a un depósito de suspensión tal como el representado en la Figura 4, a un caudal de 18,82 15 kg/hora. El depósito de suspensión se hizo operar a la presión atmosférica y a una temperatura de 230<sup>o</sup> C. Se introdujo también como alimentación cantidad suficiente de DMT en el depósito de suspensión, de tal modo que la alimentación al reactor de TPA + DMT contenía 83 % de DMT, 20 13 % de TPA, y 4 % de MHT. El producto conducido desde dicho reactor de TPA + DMT al reactor de esterificación de MHT + metanol, tal como el de la Figura 4, contenía 71 % de DMT, 4 % de TPA y 25 % de MHT. Del reactor de es- 25 terificación se retiró para su refino posterior un produc

18.12.72

- 24 -

409313

-3



to que contenía 21,86 kg/hora de DMT, 4,07 kg/hora de agua,  
y 10,89 kg/hora de metanol. El reactor de TPA + DMT se hi-  
zo funcionar a 2,1 kg/cm<sup>2</sup> manométricos y a una temperatura  
de 300° C. El reactor de esterificación de MHT + metanol se  
5 hizo funcionar a la presión atmosférica ambiente y a una  
temperatura de 250° C. El metanol se suministró a la parte  
inferior del reactor de esterificación a un caudal de  
18,14 kg/hora, y desde el fondo de dicho reactor se recir-  
culó al depósito de suspensión una mezcla que contenía  
10 90 % de DMT, 5,5 % de TPA y 4,5 % de MHT. La proporción  
molar de metanol a TPA en este ejemplo fué de 5 a 1. La  
conversión de TPA en DMT fué sustancialmente cuantitativa.  
El rendimiento de TPA convertido en DMT fué mayor de 95 %,  
y el rendimiento de metanol convertido en DMT fué mayor de  
15 90 %.

#### Ejemplo IV

En este ejemplo, la conversión de TPA en MHT y  
de MHT en DMT se realizó en un reactor único, siendo el  
20 reactor un tubo vertical adaptado para trabajar a una pre-  
sión ligeramente mayor que la atmosférica como se muestra  
en la Figura 1, excepto que se hizo funcionar como una se-  
rie de reactores por cargas. Se cargaron inicialmente al  
reactor aproximadamente 10 moles de metanol por mol de  
25 TPA. La temperatura se llevó a aproximadamente 300° C. La

409313

-3



presión se controló de tal manera que estuviese comprendida entre aproximadamente 3,5 y 5,3 kg/cm<sup>2</sup> manométricos. El exceso de metanol y el agua se retiraron como destilado por la parte superior de la columna. Se añadió metanol adicional hasta que no quedó en el reactor nada de TPA ó de MHT.

Otro procedimiento de tipo por cargas se puede ilustrar por la utilización de un aparato análogo al calentador de base y columna de reactor mostrados en la Figura 1, a saber, un reactor calentado y sometido a presión, equipado con una columna de destilación. El reactor tenía la forma de un cilindro vertical para permitir un mejor contacto del metanol con la fase líquida. Se introdujeron en este reactor 784 g. de DMT y 332 g. de TPA. La temperatura del reactor se elevó a 300° C después que la presión se hubo incrementado a 5,3 kg/cm<sup>2</sup> manométricos en el sistema, utilizando nitrógeno. Con la base a 300° C, se introdujo la alimentación de metanol por el fondo del reactor, dejando aproximadamente 45 cm. de contacto vertical con la mezcla de reacción caliente. El metanol húmedo se retiró como destilado por el extremo superior de la columna. Después de 45 minutos, durante los cuales se cargaron 640 g. de metanol, se interrumpió la alimentación y se enfrió y descargó el reactor. La conversión de TPA en DMT fué de 87 por ciento. En estas condiciones, no quedó nada de MHT en la mezcla de reacción final.

18.12.72

- 26 -

409313



Ejemplo V

Este ejemplo ilustra la purificación del DMT bru-  
to obtenido de acuerdo con cualquiera de los procedimien-  
tos de reacción que anteceden. Un producto de DMT bruto  
5 compuesto de 3,2 % de agua, 15,4 % de DMT, 0,3 % de acidez  
como TPA, 58,5 % de metanol, y 22,6 % de xileno adicional,  
se suministró continuamente a un caudal de aproximadamente  
67,13 kg/hora a la altura del plato núm. 24 de una columna  
10 de campanas de borboteo constituida por 54 platos. El apa-  
rato era análogo al representado en la Figura 1. Se reti-  
raron por la parte superior de la columna 41,73 kg/hora  
de destilado que contenía 0,3 % de agua, 10,3 % de xileno,  
2,6 % de material de punto de ebullición bajo y 86,8 % de  
15 metanol, y el agua y el metanol se separaron ulteriormente,  
recirculándose el metanol purificado para uso en un reac-  
tor de MHT + metanol. Por el plato núm. 34 de la columna  
se retiraron 28,58 kg/hora de reflujo, y de éste se sepa-  
raron 4,99 kg/hora de una capa inferior rica en agua que  
20 contenía 39,2 % de agua, 58,3 % de metanol y 2,6 % de xi-  
leno. La presión en la parte superior de esta columna de  
destilación de metanol fué la atmosférica, y la presión  
en el calentador de base fué aproximadamente de 0,07 a  
0,14 kg/cm<sup>2</sup> manométricos. La temperatura del líquido en  
25 el calentador de base se mantuvo al menos lo bastante

409313



alta para impedir la congelación del DMT y la obstrucción de la tubería de rebose. La temperatura fue, de acuerdo con lo anterior, superior a 141,6°C valor del punto de fusión del DMT. El principio con arreglo al cual funciona una tal columna de destilación de metanol, es que el punto de ebullición del xileno es mayor que el punto de ebullición del agua o del azeótropo xileno-agua, lo cual hace que el exceso de xileno fluya al calentador de base y proporcione la acumulación de producto necesaria para que la columna funcione con temperaturas moderadas de aproximadamente 150°C en la base. Al mismo tiempo, el punto de ebullición de la mezcla del calentador de base permanece superior al punto de fusión del DMT y por tanto impide que el DMT se separe por sedimentación en la base y haga imposible la retirada correcta del producto DMT de aquélla.

Desde el fondo de la columna de destilación de metanol, una solución bruta de DMT + xileno se condujo a un caudal de 19,96 kg/hora a una columna de destilación de xileno tal como la representada en la figura 2, y se destiló fraccionadamente en ella. Por la parte superior de la columna de destilación de xileno se retiraron 21,77 kg/hora de xileno. Se mantuvo una proporción de reflujo de 3:1 en la parte superior de la columna de xileno. Se introdujo cantidad suficiente de MPT suplementario (18,14 kilogramos) en la columna de xileno aproximadamente por su

18.12.72

- 28 -

409313

-3 

punto medio al comienzo de la destilación como se indica en la figura 2, a fin de impedir la obstrucción y de permitir que aproximadamente 1,22 kg/hora de un material constituido aproximadamente por 5% de PTA, 20% de DMT y 75% de MPT se retirase como fracción secundaria de la columna de xileno sin obstrucción. La columna de xileno se hizo operar de tal manera que la temperatura cerca de la parte superior de la misma fuese aproximadamente de 40°C, en tanto que la presión absoluta en el mismo punto fue aproximadamente de 15 mm de Hg. La temperatura ligeramente por encima del punto medio de la columna fue aproximadamente de 140°C. La temperatura en la base fue aproximadamente 190°C, y la presión en la base aproximadamente 120 mm. Se mantuvo un reflujo de aproximadamente 50,35 kg/hora de DMT, de cuya cantidad se retiraron aproximadamente 16,78 kg/hora de DMT purificado como producto. El flujo de vapores de DMT que volvían hacia atrás a la columna de xileno se mantuvo aproximadamente en 2,27 kg/hora. Cuando la columna de xileno se hizo trabajar sin la adición de MPT suplementario, al cabo de aproximadamente una hora poco más o menos se encontró una masa congelada o solidificada de DMT en la porción media de la columna, como se ha indicado en la figura 3, lo que obligó a interrumpir la operación durante un período de tiempo suficientemente largo para volver a abrir la columna y ponerla nue-

18.12.72

- 29 -

409313

-3



vamente en marcha.

Ejemplo VI

En este ejemplo se llevaron a cabo una serie de operaciones por cargas para la conversión de TPA en DMT en dos reactores separados. Las sustancias reaccionantes iniciales, en una proporción de 7,71 kg de TPA a 22,23 kg de metanol, lo que representaba una proporción molar de 15 moles de metanol a uno de TPA, se introdujeron en un reactor semejante al reactor de TPA + DMT que se muestra en la figura 4. La temperatura en el reactor de TPA + DMT se mantuvo aproximadamente a 300°C, y se dejó que la presión alcanzase el equilibrio a la presión de vapor del TPA reaccionante y del DMT y MHT formados. Esta presión ascendió a menos de aproximadamente 3,5 kg/cm<sup>2</sup> manométricos. Al cabo de aproximadamente 30 minutos, se descargó el reactor, alcanzando la cantidad de conversión de TPA en MHT un promedio de aproximadamente 60%. Los productos descargados se introdujeron en un recipiente calentado separado unido a una columna de destilación, que por lo demás era similar al reactor de MHT + metanol de la figura 4. El contenido de este reactor se calentó a aproximadamente 240°C. El metanol y el agua formada en la reacción se retiraron de la parte superior de la columna. Se continuó el aporte de metanol hasta que se hubo esterificado la totalidad del MHT originalmente presente. La mezcla

409313

-3



de reacción, esencialmente exenta de MHT y metanol, se se-  
paró en dos partes por destilación. El destilado era pro-  
ducto DMT bruto dispuesto para su purificación ulterior.  
El material a destilar, que contenía TPA sin reaccionar  
5 y algo de DMT, se completó con DMT adicional y la mezcla  
resultante se cargó al primer reactor. De este modo, una  
serie continua de operaciones por cargas dió como resul-  
tado la producción de aproximadamente 22,68 kg/hora de  
destilado de DMT. Como un ejemplo adicional de operación  
10 por cargas, utilizando un recipiente de reacción equipado  
con un agitador, se cargaron 166 g de TPA y 588 g de DMT,  
lo que daba una proporción molar de 3:1 de DMT a TPA. La  
temperatura se elevó a 300°C y se mantuvo en dicho valor  
durante 30 minutos. La presión desarrollada en el interior  
15 del recipiente fue de 2,1 kg/cm<sup>2</sup> manom. El análisis del  
producto arrojó una composición de 30% de MHT, 60% de DMT  
y 10% de TPA, lo cual representaba una conversión de 55%  
basada en el TPA cargado. Este producto se trató ulterior-  
mente como se ha descrito arriba.

20 Un tal producto se puede obtener también utili-  
zando un matraz de vidrio calentado y agitado que funcio-  
ne a la presión atmosférica como reactor y una columna  
de destilación de vidrio de 20 platos teóricos para sepa-  
rar el metanol y el agua del DMT arrastrado. Por ejemplo,  
25 se añadió a tal reactor una carga de la composición si-

18.12.72

- 31 -

409313



guiente:

35% de DMT

45% de MHT

20% de TPA

5

La mezcla de reacción se calentó a 220-240°C, y se comenzó la alimentación de metanol por debajo del nivel del líquido en el reactor. Al cabo de tres horas, se obtuvo un producto que arrojaba el análisis siguiente:

10

75% de DMT

5% de MHT

20% de TPA

Ejemplo VII

15

Los ejemplos VIIA y VIIB demuestran una vez más el valor de la adición de MPT a la columna de destilación de xileno.

Ejemplo VIIA

20

Se cargaron DMT y xileno a un aparato de destilación de vidrio que trabajaba a una presión de 25 mm de Hg. Se separó el xileno hasta que el DMT ascendió normalmente en la columna. Se pudo ver una interfase muy definida entre el xileno y el DMT. El DMT solidificó parcialmente en esta interfase, obstruyendo así la columna. Se añe-

18.12.72

dió entonces a la columna MPT, que hierve a 117°C, temperatura intermedia entre el punto de ebullición del xileno, 45°C, y el punto de congelación del DMT, 140°C, con lo cual desaparecieron la interfase y la obstrucción. Los intentos para eliminar la interfase por la adición de ácido para-toluico (PTA) en lugar de MPT, fracasaron.

#### Ejemplo VIIB

En este ejemplo, se demuestra que la introducción de MPT en una columna de destilación de xileno elimina la obstrucción de la columna y permite que el DMT se purifique en una sola destilación a presión reducida. Una columna tal como la ilustrada esquemáticamente en la figura 2 se hizo trabajar de la manera siguiente: se mantuvo xileno a reflujo en la parte superior de la columna, y la zona A era rica en xileno. Impurezas de punto de ebullición bajo, distintas del xileno, estaban contenidas en la zona B, y de las mismas se retiró por la tubería 88 sólo la proporción necesaria para mantener un DMT de pureza elevada en la zona C. La zona D y la zona E del calentador de base eran ricas en DMT y en sus impurezas de punto de ebullición alto, tales como MHT y/o TPA. Se realizaron dos operaciones de destilación de esta manera, en las cuales el producto DMT contenía respectivamente sólo 0,08 y 0,02% de ácido como TPA. La presión en la parte superior de la columna se mantuvo

409313

-3 ENE 1973

a 15-20 mm de Hg, y en la base de la columna a 120 mm.

La temperatura en la zona A era de 35 a 60°C, en la zona B de 150 a 165°C, en la zona C de 190 a 195°C, en la zona D de 200 a 210°C, y en la base de 215 a 220°C.

5                    En los ejemplos precedentes, VIIA y B, la destilación se llevó a cabo con la máxima eficiencia a temperaturas comprendidas entre 140 y 250°C, y a presiones comprendidas entre 10 y 400 mm de Hg. Se prefiere operar por debajo de 100 mm.

10                   Aunque en diversos procedimientos ilustrativos se utilizaron proporciones molares más altas, la proporción molar de metanol a TPA puede ser tan baja como de aproximadamente 3:1 a 4:1, o más baja todavía.

15                   En los experimentos anteriores, se efectuó un contacto suficiente del metanol para proporcionar agitación a la masa de líquido, y se dejó que transcurriese suficiente tiempo para que la reacción entre el metanol y el MHT progresara lo bastante para producir el deseado incremento del rendimiento en DMT.

20                   De los ejemplos y descripciones que anteceden, se pueden deducir fácilmente que se ha proporcionado un método continuo para la producción y purificación del DMT, por el cual, manteniéndose la temperatura de reacción ligeramente por encima del punto de ebullición del DMT a la  
25                   presión atmosférica, se obtiene un producto sustancial-

409313



1973

mente puro en un mínimo de tiempo y resulta un ahorro considerable debido a la recuperación y re-utilización continuas del xileno y del metanol no consumido después de la purificación. La operación a baja presión, así como la  
5 operación no catalítica preferida, permite también una mayor economía. El procedimiento global se puede llevar a cabo ventajosamente utilizando una sola etapa de destilación de metanol en la que sustancialmente se puede eliminar la totalidad del metanol en una zona de destilación,  
10 y una sola etapa simplificada de purificación por destilación de xileno, en la cual se puede evitar la sublimación con la obstrucción acumulativa resultante por congelación del DMT mediante la adición de MPT suplementario a la columna de destilación de xileno.

15 Es evidente que el empleo de etanol es sustancialmente equivalente al empleo de metanol como se ha descrito en esta solicitud de patente.

La invención se ha descrito con un detalle considerable con referencia particular a ciertas realizaciones preferidas de la misma, pero se entenderá que se pueden  
20 efectuar variaciones y modificaciones dentro del espíritu y alcance de la invención como se han descrito anteriormente en esta memoria, y como se definen en las reivindicaciones del apéndice.

18.12.72

- 35 -

409313



N O T A

5

Los puntos de invención propia, no nueva, pero no establecida, practicada ni divulgada en España, que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Introducción, por DIEZ años, son los que se recogen en las reivindicaciones siguientes:

10

1ª.- Un método continuo para la producción de tereftalato de dimetilo a partir de ácido tereftálico y metanol caracterizado por el hecho de que una cantidad mantenida continuamente de tereftalato de dimetilo se calienta con ácido tereftálico introducido continuamente, llevándose a cabo dicho calentamiento a una temperatura superior al punto de ebullición de dicho tereftalato de dimetilo a la presión atmosférica, con lo cual se produce continuamente hidrogeno-tereftalato de metilo, y se introduce continuamente metanol en contacto con dicho hidrogeno-tereftalato de metilo, con lo cual éste reacciona continuamente con metanol para producir tereftalato de dimetilo, y se retira continuamente una cantidad de tereftalato de dimetilo equivalente a la cantidad de ácido tereftálico que se introduce.

15

20

25

18.12.72

- 36 -

409313



2ª.- El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el ácido tereftálico y el metanol se introducen directamente en la misma zona de reacción.

5 3ª.- El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el ácido tereftálico introducido continuamente y el tereftalato de dimetilo mantenido continuamente se calientan en una zona de reacción para formar hidrogeno-tereftalato de metilo, y el producto de esta zona de reacción se alimenta continuamente a otra zona de reacción  
10 en la que se introduce continuamente el metanol.

4ª.- El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que la producción del tereftalato de dimetilo se lleva a cabo a una presión inferior a aproximadamente 9,1 kg/cm<sup>2</sup> manométricos y en ausencia de un catalizador.

15 5ª.- El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que una porción del tereftalato de dimetilo que se produce es retenida en la zona de reacción en la que se hacen reaccionar metanol e hidrogeno-tereftalato de metilo calentando a reflujo dicho tereftalato de dimetilo,  
20 manteniéndose de este modo en el contenido líquido de dicha zona de reacción una cantidad suficiente de tereftalato de dimetilo en la zona de reacción para mantener la reacción entre el tereftalato de dimetilo y el ácido tereftálico.

25 6ª.- El método de acuerdo con la reivindicación



409313

1ª, en el que el tereftalato de dimetilo que se retira  
 arrastra consigo agua y metanol junto con trazas de á  
 cido tereftálico, hidrógeno-tereftalato de metilo, áci  
 do p- toluico y p-toluato de metilo, y se purifica por  
 5 destilación fraccionada con xileno para separar sustan  
 cialmente la totalidad del metanol y del agua conteni  
 dos en aquél, seguida por otra destilación fraccionada  
 en presencia de cantidades suplementarias añadidas con  
 tinuamente de p-toluato de metilo además de la canti  
 10 dad inherentemente presente como impureza, con lo cual  
 se impide sustancialmente la congelación del tereftala  
 to de dimetilo en el transcurso de dicha última desti  
 lación fraccionada y se recupera tereftalato de dime  
 tilo en forma sustancialmente pura.

15 7ª.- El método de acuerdo con la reivindica  
 ción 6ª, en el que una porción del tereftalato de di  
 metilo se recircula después del último fraccionamien  
 to a la zona de reacción en la que se hacen reaccionar  
 el metanol y el hidrógeno-tereftalato de metilo, mante  
 20 niéndose así en el contenido líquido de dicha zona de  
 reacción una cantidad suficiente de tereftalato de di  
 metilo en la zona de reacción para mantener la reac  
 ción entre el tereftalato de dimetilo y el ácido teref  
 tálico.

25 8ª.- Un método continuo para la producción

14.5.73



409313

de tereftalato de dimetilo a partir de ácido tereftá-  
lico y metanol, caracterizado por la mejora que com-  
prende mantener una temperatura en una zona de reac-  
ción, superior al punto de ebullición del tereftalato  
5 de dimetilo a la presión atmosférica, mantener una can-  
tidad de tereftalato de dimetilo en dicha zona de reac-  
ción, a un nivel suficiente para que el tereftalato  
de dimetilo reaccione con el ácido tereftálico que se  
introduce en dicha zona de reacción a fin de convertir  
10 lo en hidrógeno-tereftalato de metilo, poner en con-  
tacto dicho hidrógeno-tereftalato de metilo en una zo-  
na de reacción con metanol para convertirlo en teref-  
talato de dimetilo, retirar una porción del tereftala-  
to de dimetilo, y continuar estas conversiones mien-  
15 tras que se mantiene dicho nivel de tereftalato de di-  
metilo hasta que, en primer lugar, se haya consumido  
la totalidad del ácido tereftálico y, en segundo lugar,  
prácticamente la totalidad del hidrógeno-tereftalato  
de metilo se haya convertido en tereftalato de dimeti-  
20 lo.

9ª.- Método de acuerdo con la reivindicación  
8ª.- en el que el procedimiento se lleva a cabo en una  
única zona de reacción, y el nivel de tereftalato de  
dimetilo se mantiene calentando a reflujo tereftalato  
25 de dimetilo en la zona de reacción.

14.5.73

- 39 -

*Dez*

409313



10ª.- Método de acuerdo con la reivindicación 8ª, en el que el nivel de tereftalato de dimetilo se mantiene mediante recirculación de una porción del tereftalato de dimetilo que se retira.

5 11ª.- Método de acuerdo con la reivindicación 8ª, en el que el nivel del tereftalato de dimetilo se mantiene por la combinación de (1) calentamiento a reflujo de tereftalato de dimetilo en la zona de reacción en la que se hacen reaccionar metanol e hidrógeno-tereftalato de metilo, y (2) recirculación de una  
10 porción del tereftalato de dimetilo que se retira.

12ª.- Método de acuerdo con la reivindicación 8ª, en el que el nivel de tereftalato de dimetilo se mantiene por introducción de tereftalato de dimetilo en la zona de reacción en la que se hacen reac  
15 cionar metanol e hidrógeno-tereftalato de metilo.

13ª.- Método de acuerdo con la reivindicación 8ª, en el que el tereftalato de dimetilo recogido se destila subsiguientemente en condiciones de des  
20 tilación fraccionada con xileno para eliminar sustancialmente la totalidad del metanol y el agua de reacción de aquél, y a continuación se destila fraccionalmente de nuevo en una columna de destilación que tie  
25 ne una zona en la que se añade cantidad suficiente de para-toluate de metilo para impedir la acumulación en

14.5.73

- 40 -

*Dez*

409313

19 1973



el interior de la columna de tereftalato de dimetilo solidificado, se eliminan el xileno y otras impurezas, y se recupera tereftalato de dimetilo sustancialmente puro desde un punto intermedio de dicha columna.

5                    14<sup>a</sup>.- Un método continuo para la producción de tereftalato de dimetilo.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, representado en los dibujos que se acompañan y para los fines que se han especificado.

10                    Esta Memoria consta de cuarenta y una hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, 19 MAIO 1973

P.A.

Alberto de Eizaguru  
Per Podest

409313

409313

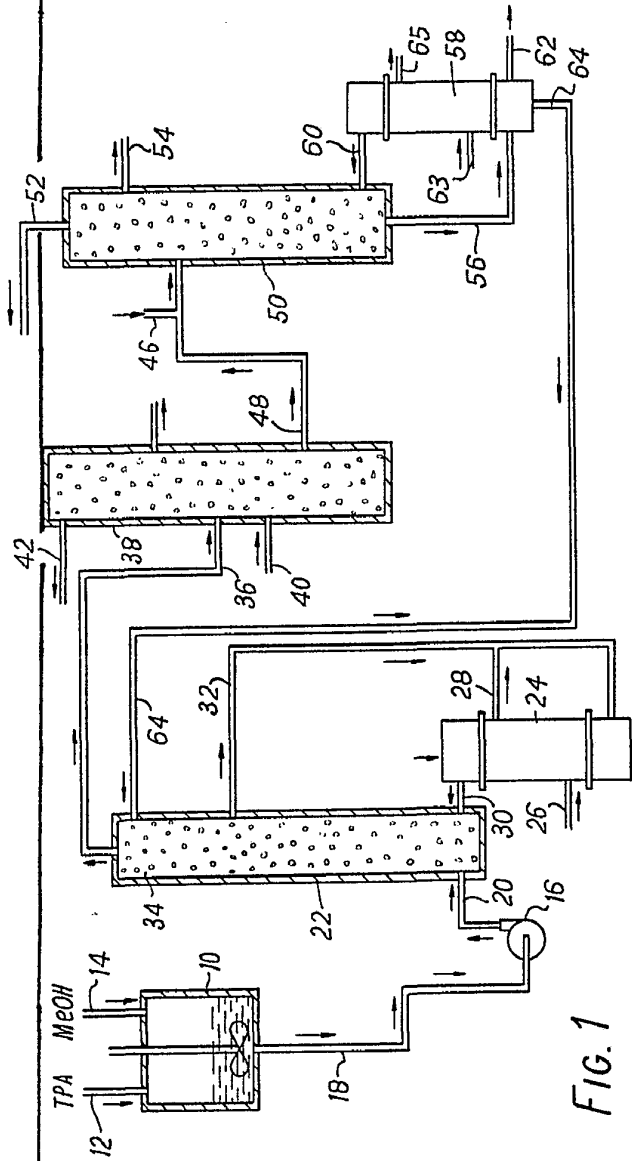
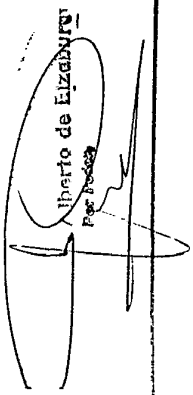
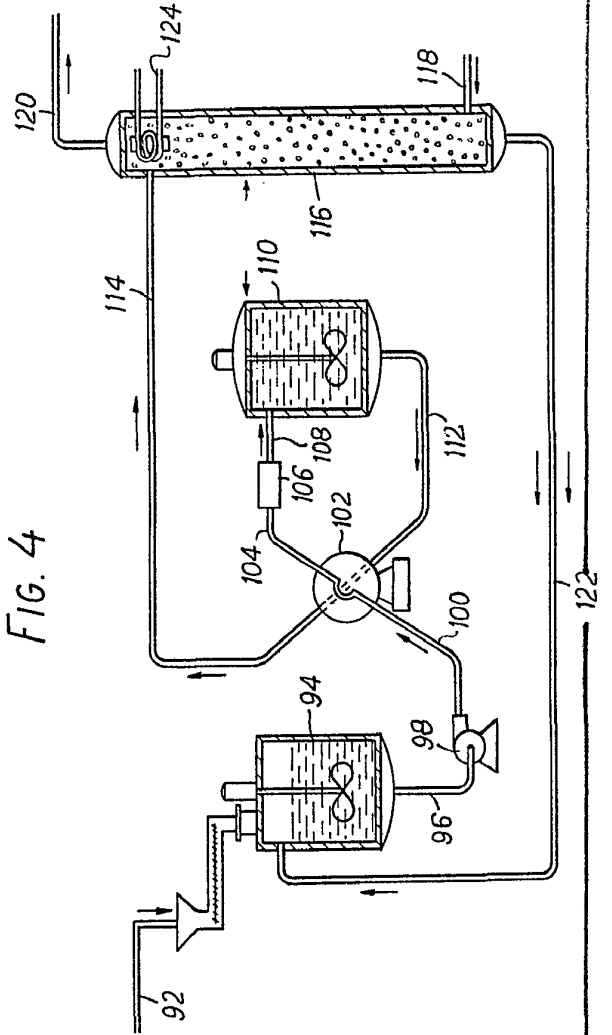


FIG. 1

FIG. 4



409313

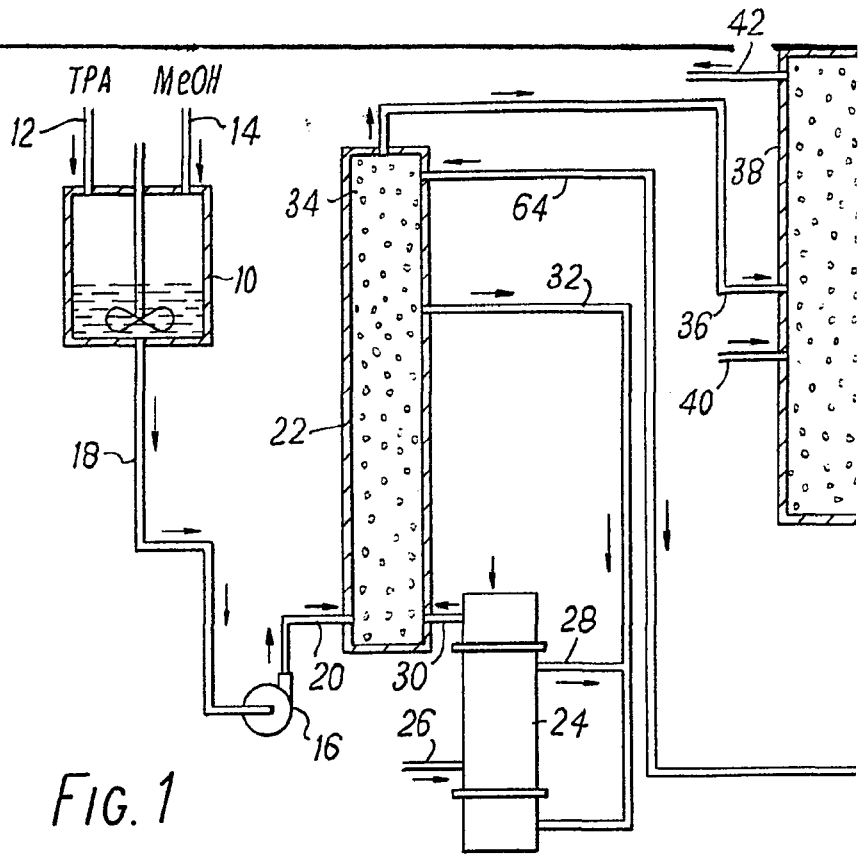
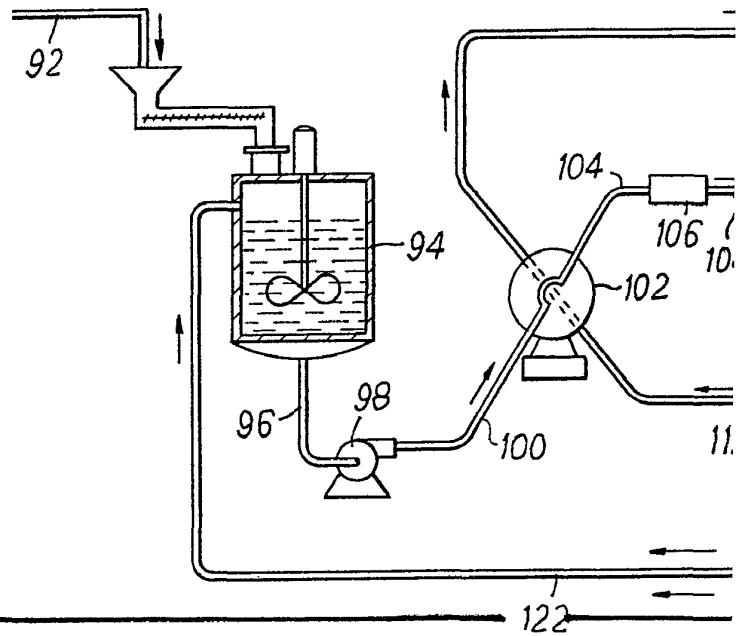
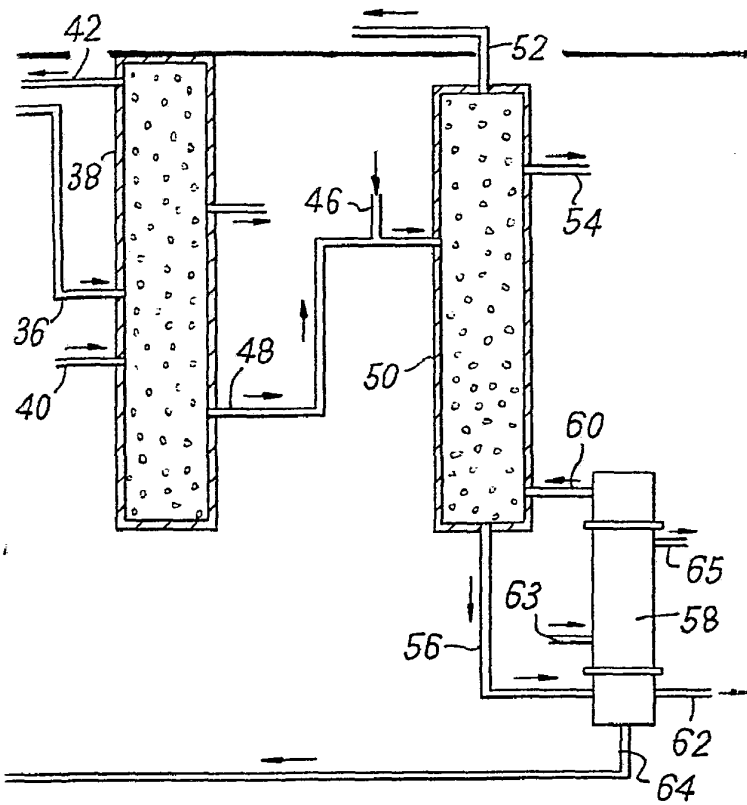


FIG. 1

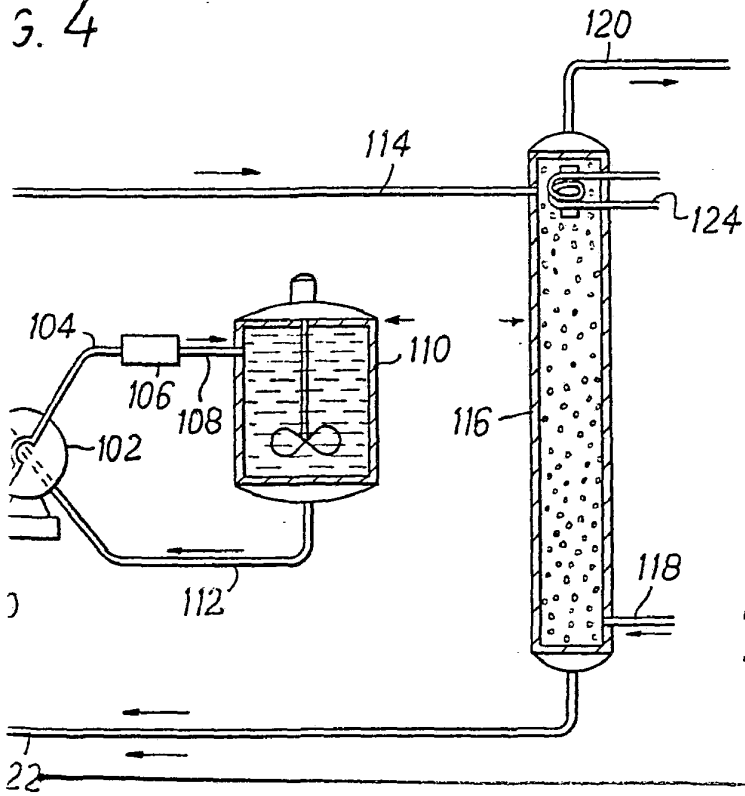
FIG. 4



409 313



G. 4



Alberto de Eizaburo  
Per Rodon

409313



FIG. 2

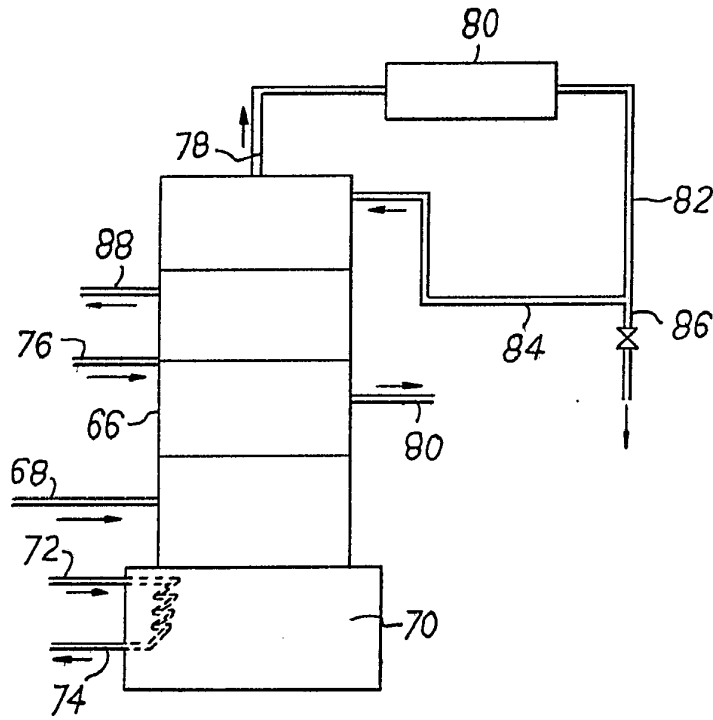
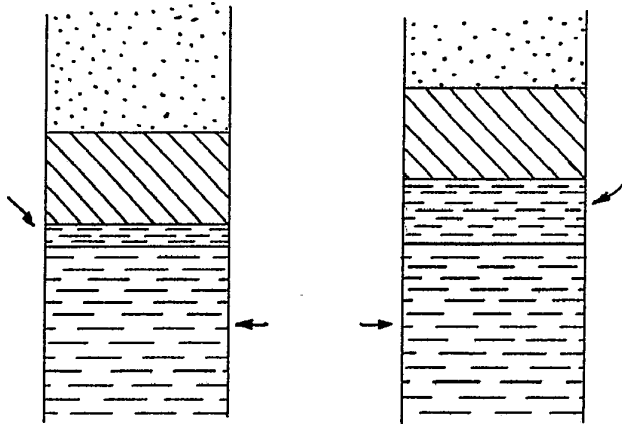


FIG. 3



Alberto de Lazzarini  
Per Engler