



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)  
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0023913

(51)<sup>7</sup> C07C 51/42; C07C 63/26

(13) B

(21) 1-2016-02755

(22) 11/02/2014

(86) PCT/US2014/015820 11/02/2014

(87) WO2015/102654 09/07/2015

(30) 61/921,706 30/12/2013 US

(45) 25/06/2020 387

(43) 26/09/2016 342A

(73) BP Corporation North America Inc. (US)

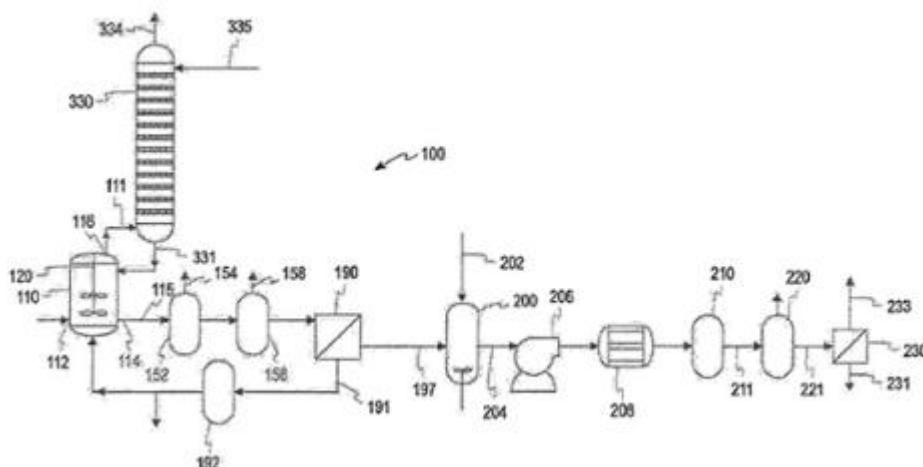
501 Westlake Park Boulevard, Houston, TX 77079, United States of America

(72) BARTOS, Thomas, M. (US)

(74) Công ty TNHH Tầm nhìn và Liên danh (VISION & ASSOCIATES CO.LTD.)

#### (54) QUY TRÌNH SẢN XUẤT AXIT CARBOXYLIC THƠM TINH KHIẾT

(57) Sáng chế đề xuất quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết bao gồm bước gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng gia nhiệt sơ bộ, hỗn hợp phản ứng tinh sạch chứa axit carboxylic thơm dạng thô và dung môi, và tinh sạch axit carboxylic thơm dạng thô trong hỗn hợp phản ứng tinh sạch để tạo thành sản phẩm axit carboxylic thơm tinh khiết. Một hoặc nhiều công đoạn được duy trì ở áp suất cao hơn áp suất môi trường để tiết kiệm năng lượng.



### **Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập**

Nói chung, sáng chế đề cập đến quy trình sản xuất axit carboxylic thơm, và cụ thể là đến quy trình điều chế axit carboxylic thơm dạng thô dùng để tinh sạch.

### **Tình trạng kỹ thuật của sáng chế**

Axit terephthalic (TA) và các axit carboxylic thơm khác có thể được sử dụng trong quy trình sản xuất các polyeste (ví dụ, thông qua phản ứng của các axit này với etylen glycol và/hoặc alkylen glycol cao). Các polyeste thu được có thể được sử dụng để làm ra sợi, màng phủ, vật chứa, chai, các vật liệu bao gói khác, vật đúc và các vật dụng tương tự.

Trong tập quán thương mại, các axit carboxylic thơm được tạo ra bằng phản ứng oxy hóa pha lỏng của các nguyên liệu là benzen và naphtalen được thế methyl trong dung môi là dung dịch nước axit axetic. Vị trí của các phần tử thế methyl tương ứng với vị trí của các nhóm carboxyl trong sản phẩm axit carboxylic thơm. Không khí hoặc các nguồn oxy khác (ví dụ, thường ở trạng thái khí) được sử dụng làm tác nhân oxy hóa khi có mặt, ví dụ, chất xúc tác được tăng cường bởi brom chứa coban và mangan. Phản ứng oxy hóa là phản ứng tỏa nhiệt và tạo ra axit carboxylic thơm cùng với các sản phẩm phụ, bao gồm các sản phẩm oxy hóa một phần hoặc trung gian của nguồn nguyên liệu thơm, và sản phẩm của phản ứng axit axetic (ví dụ, metanol, methyl axetat, và methyl bromua). Nước cũng được tạo ra dưới dạng sản phẩm phụ.

Dạng tinh khiết của axit carboxylic thơm thường được mong muốn cho quy trình sản xuất polyeste sử dụng trong các ứng dụng quan trọng (ví dụ, sợi và chai). Các tạp chất trong axit (ví dụ, các sản phẩm phụ sinh ra từ quá trình oxy hóa nguyên liệu thơm và, thông thường hơn là, các loại hợp chất thơm được thế cacbonyl khác nhau) được cho là tạo ra màu và/hoặc có liên quan đến sự tạo màu ở các polyeste được tạo ra từ axit này, điều này dẫn đến sự mất màu ở các sản phẩm chuyển hóa polyeste. Có thể tạo ra axit carboxylic thơm có hàm lượng các tạp chất giảm bằng cách oxy hóa tiếp các sản phẩm thô từ quá trình oxy hóa pha lỏng như được mô tả ở trên ở một hoặc nhiều nhiệt độ và lượng oxy giảm dần. Ngoài ra, sản phẩm oxy hóa một phần có thể được thu hồi trong quá trình kết tinh và chuyển hóa thành sản phẩm axit mong muốn.

Dạng tinh khiết của axit terephthalic và các axit carboxylic thơm khác có lượng tạp chất giảm - ví dụ, axit terephthalic tinh khiết (PTA) - được tạo ra bằng cách hydro hóa có xúc tác dạng ít tinh khiết hơn của axit hay được gọi là sản phẩm có độ tinh khiết trung bình trong dung dịch ở nhiệt độ và áp suất tăng bằng cách sử dụng chất xúc tác là kim loại quý. Trong tập quán thương mại, việc oxy hóa pha lỏng nguyên liệu cấp alkyl thơm thành axit carboxylic thơm dạng thô và tinh sạch sản phẩm thô thường được thực hiện trong quy trình tích hợp liên tục trong đó sản phẩm thô từ phản ứng oxy hóa pha lỏng được sử dụng làm nguyên liệu ban đầu cho quy trình tinh sạch.

Trong các thiết bị tinh sạch truyền thống, axit carboxylic thơm dạng thô thường được trộn với nước để tạo ra hỗn hợp phản ứng tinh sạch trước khi đưa đến thiết bị phản ứng tinh sạch. Việc trộn này diễn ra trong bình trộn nguyên liệu được duy trì ở áp suất môi trường để cho phép tuần hoàn carboxylic thơm từ bình và làm cho có thể sử dụng đường cấp liệu bằng băng tải trực vít đưa carboxylic thơm dạng thô từ silo trung gian đến bình trộn nguyên liệu cấp, quá trình này đòi hỏi bình trộn nguyên liệu cấp phải được làm cho cân bằng áp suất với silo vận hành ở áp suất môi trường. Khi bình trộn nguyên liệu cấp ở áp suất môi trường, nhiệt độ cao nhất có thể có của nước trong bình là khoảng 100°C, nhiệt độ sôi của nước ở áp suất môi trường. Hỗn hợp phản ứng tinh sạch phải được gia nhiệt sơ bộ trước khi đưa vào thiết bị phản ứng tinh sạch, thường chạy ở nhiệt độ từ 250°C đến 300°C. Việc gia nhiệt này đòi hỏi phải tăng nhiệt độ của hỗn hợp phản ứng tinh sạch từ 100°C hoặc thấp hơn lên đến ít nhất là 250°C làm cộng thêm vào chi phí khả biến của quy trình tích hợp để sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết.

Do đó, vẫn có nhu cầu giảm chi phí tổng của quá trình sản xuất axit carboxylic thơm.

### **Bản chất kỹ thuật của sáng chế**

Mục đích của sáng chế là đề xuất quy trình sản xuất axit carboxylic thơm, và cụ thể là quy trình điều chế axit carboxylic thơm dạng thô dùng để tinh sạch.

Theo một khía cạnh của sáng chế, sáng chế đề xuất quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết. Hỗn hợp phản ứng tinh sạch bao gồm axit carboxylic thơm dạng thô và nước được gia nhiệt sơ bộ trong vùng gia nhiệt sơ bộ. Hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở áp suất lớn hơn áp suất môi trường. Axit carboxylic thơm dạng thô

trong hỗn hợp phản ứng tinh sạch sau đó được tinh sạch để tạo ra sản phẩm axit carboxylic thơm tinh khiết.

Theo khía cạnh khác, sáng chế đề xuất quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết. Hỗn hợp của phản ứng tinh sạch bao gồm axit carboxylic thơm dạng thô và nước được gia nhiệt sơ bộ trong vùng gia nhiệt sơ bộ. Hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở nhiệt độ cao hơn 100°C. Axit carboxylic thơm dạng thô trong hỗn hợp phản ứng tinh sạch sau đó được tinh sạch để tạo ra sản phẩm axit carboxylic thơm tinh khiết.

Các khía cạnh khác theo sáng chế sẽ là rõ ràng với người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này dựa theo phần mô tả dưới đây.

### **Mô tả vắn tắt hình vẽ**

FIG.1 thể hiện lưu đồ quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết theo sáng chế.

### **Mô tả chi tiết sáng chế**

Nhìn chung, quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết theo sáng chế bao gồm bước: gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng gia nhiệt sơ bộ, hỗn hợp phản ứng tinh sạch này bao gồm axit carboxylic thơm dạng thô và nước, hỗn hợp này đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở áp suất cao hơn áp suất môi trường; và tinh sạch axit carboxylic thơm dạng thô trong hỗn hợp phản ứng tinh sạch để tạo ra sản phẩm axit carboxylic thơm tinh khiết. Theo một số phương án, hỗn hợp phản ứng tinh sạch cũng đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở nhiệt độ cao hơn 100°C, điều này sẽ là không khả thi nếu hỗn hợp phản ứng tinh sạch được duy trì ở áp suất khí quyển trước khi được cấp vào vùng gia nhiệt sơ bộ. Do vậy, so với các quy trình trước kia, sẽ cần ít nhiệt hơn để tăng nhiệt độ trong vùng gia nhiệt sơ bộ đến nhiệt độ yêu cầu của thiết bị phản ứng tinh sạch.

Theo một số phương án, hỗn hợp phản ứng tinh sạch được đưa vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở áp suất lớn hơn khoảng  $1,0 \times 10^5$  Pa (1,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $2,0 \times 10^5$  Pa (2,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $3,0 \times 10^5$  Pa (3,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $4,0 \times 10^5$  Pa (4,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $5,0 \times 10^5$  Pa (5,0

bar(g)), và theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $6,0 \times 10^5$  Pa (6,0 bar(g)). Theo một số phương án, hỗn hợp phản ứng tinh sạch được đưa vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở nhiệt độ cao hơn khoảng  $105^\circ\text{C}$ . Theo một số phương án, nhiệt độ này cao hơn khoảng  $115^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $120^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $125^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $130^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $140^\circ\text{C}$ .

Theo một số phương án, quy trình còn bao gồm bước tạo ra hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong quá trình trộn nước chứa dòng với bùn chứa axit carboxylic thơm dạng thô. Theo một số phương án, vùng trộn được duy trì ở áp suất lớn hơn khoảng  $1,0 \times 10^5$  Pa (1,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $2,0 \times 10^5$  Pa (2,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $3,0 \times 10^5$  Pa (3,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $4,0 \times 10^5$  Pa (4,0 bar(g)), theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $5,0 \times 10^5$  Pa (5,0 bar(g)), và theo một số phương án áp suất này lớn hơn khoảng  $6,0 \times 10^5$  Pa (6,0 bar(g)). Theo một số phương án, vùng trộn được duy trì ở nhiệt độ cao hơn khoảng  $105^\circ\text{C}$ . Theo một số phương án, nhiệt độ này cao hơn khoảng  $115^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $120^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $125^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $130^\circ\text{C}$ , theo một số phương án nhiệt độ này cao hơn khoảng  $140^\circ\text{C}$ .

Theo một số phương án, việc tinh sạch hỗn hợp phản ứng tinh sạch bao gồm bước cho dung dịch nước chứa ít nhất một phần axit carboxylic thơm dạng thô tiếp xúc với hydro khi có mặt chất xúc tác.

Theo một số phương án, quy trình còn bao gồm bước oxy hóa hydrocacbon thơm được thể bằng khí oxy trong hỗn hợp phản ứng oxy hóa pha lỏng chứa dung môi axit monocarboxylic, nước, và thành phần chất xúc tác. Theo một số phương án, việc tinh sạch bao gồm bước cho dung dịch chứa nước chứa ít nhất một phần axit carboxylic thơm dạng thô tiếp xúc với hydro khi có mặt chất xúc tác.

Theo một số phương án, quy trình bao gồm bước: oxy hóa para-xylen trong vùng phản ứng để tạo ra axit terephthalic thô, trong đó bước oxy hóa bao gồm việc cho para-xylen tiếp xúc với khí oxy trong hỗn hợp phản ứng oxy hóa pha lỏng chứa axit axetic, nước, và

thành phần chất xúc tác được tăng cường bởi brom; kết tinh axit terephthalic thô, chuyển ít nhất một phần axit terephthalic thô này đến vùng trộn được duy trì ở áp suất cao hơn nhiệt độ môi trường và trộn axit terephthalic thô này với nước chứa dòng để tạo ra hỗn hợp phản ứng tinh sạch, đưa hỗn hợp phản ứng tinh sạch vào vùng gia nhiệt sơ bộ và gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch đến nhiệt độ bằng ít nhất  $250^{\circ}\text{C}$ , và tinh sạch axit terephthalic thô trong thiết bị phản ứng hydro hóa bằng cách cho hỗn hợp phản ứng tinh sạch tiếp xúc với hydro khi có mặt chất xúc tác.

Các dấu hiệu khác của quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết nêu trên theo sáng chế sau đây sẽ được mô tả bằng cách tham khảo hình vẽ.

FIG.1 thể hiện quy trình dạng lưu đồ để sản xuất dạng tinh khiết của axit carboxylic thơm theo một phương án của sáng chế. Tóm tắt lại, quy trình 100 bao gồm thiết bị phản ứng oxy hóa 110 có cấu tạo để oxy hóa pha lỏng nguyên liệu cấp; vùng kết tinh có cấu tạo để tạo ra sản phẩm rắn dạng thô từ hỗn hợp phản ứng oxy hóa pha lỏng, và bao gồm các thùng kết tinh 152 và 156; thiết bị tách rắn-lỏng 190 có cấu tạo để tách sản phẩm rắn dạng thô (và các sản phẩm phụ từ quá trình oxy hóa) ra khỏi chất lỏng, vùng trộn bao gồm thùng tạo hỗn hợp phản ứng tinh sạch 200 có cấu tạo để tạo ra hỗn hợp sản phẩm rắn dạng thô trong dung môi phản ứng tinh sạch; vùng gia nhiệt sơ bộ bao gồm thiết bị trao đổi nhiệt 208 để gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch trước khi đưa vào vùng tinh sạch, vùng tinh sạch bao gồm thiết bị phản ứng tinh sạch 210 có cấu tạo để tinh sạch axit carboxylic thơm dạng thô, vùng kết tinh bao gồm thùng 220 có cấu tạo để tạo ra sản phẩm rắn tinh khiết từ dung dịch tinh sạch; và thiết bị tách rắn-lỏng 230 có cấu tạo để tách sản phẩm rắn tinh khiết ra khỏi chất lỏng. Việc hợp nhất các quy trình trên FIG.1 chỉ đơn giản là phương án đại diện, và nhiều kiểu cấu hình hợp nhất và không hợp nhất khác cũng có thể được sử dụng tương tự.

Các dòng chất lỏng và chất khí và các nguyên liệu được sử dụng trong quy trình được biểu diễn trên FIG.1 có thể được dẫn và chuyển qua đường chuyển, đường dẫn và ống dẫn thích hợp được tạo kết cấu, ví dụ, từ các vật liệu thích hợp cho quy trình sử dụng và tính an toàn. Sẽ hiểu rằng các chi tiết cụ thể có thể được đặt cạnh nhau về mặt vật lý và, nếu thích hợp, có thể có các vùng dẻo, vùng cứng, hoặc kết hợp cả hai vùng này. Để dẫn các

dòng hoặc các hợp chất, các thiết bị xen giữa và/hoặc các xử lý tùy ý cũng có thể được bao gồm. Ví dụ, bơm, van, ống góp, đồng hồ đo dòng khí và chất lỏng và bộ chia, thiết bị lấy mẫu và thiết bị cảm biến, và thiết bị khác (ví dụ, để giám sát, kiểm soát, điều chỉnh, và/hoặc làm chệch áp suất, dòng và các thông số vận hành khác) có thể có mặt.

Nguyên liệu cấp thơm tiêu biểu thích hợp để sử dụng trong thiết bị phản ứng oxy hóa 110 bao gồm, nhưng không giới hạn ở, các hợp chất thơm (ví dụ, hydrocacbon) được thế ở một hoặc nhiều vị trí bằng ít nhất một nhóm có thể oxy hóa thành nhóm axit carboxylic. Theo một số phương án, vị trí của các phần tử thế tương ứng với vị trí của các nhóm axit carboxylic của axit carboxylic thơm được điều chế. Theo một số phương án, phần tử thế có thể oxy hóa bao gồm nhóm alkyl (ví dụ, nhóm methyl, ethyl, và/hoặc isopropyl). Theo phương án khác, phần tử thế có thể oxy hóa bao gồm các nhóm chứa oxy, như nhóm hydroxyalkyl, formyl, aldehyt, và/hoặc keto. Các phần tử thế này có thể giống hoặc khác nhau. Phần thơm của hợp chất nguyên liệu cấp có thể là nhân benzen hoặc có thể là vòng đôi hoặc nhiều vòng (ví dụ, nhân naphthalen và/hoặc anthracen). Theo một số phương án, số phần tử thế có thể oxy hóa trên phần thơm của hợp chất nguyên liệu cấp bằng số vị trí khả dụng trên phần thơm. Theo phương án khác, số phần tử thế có thể oxy hóa trên phần thơm của hợp chất cấp nhỏ hơn số lượng của tất cả các vị trí này (ví dụ, theo một số phương án số phần tử oxy hóa được là 1 đến 4 và, theo một số phương án là 2). Hợp chất cấp tiêu biểu có thể được sử dụng theo sáng chế - ở dạng riêng rẽ hoặc ở dạng kết hợp - bao gồm nhưng không giới hạn ở toluen; ethylbenzen và các benzen được thế alkyl khác; o-xilen; p-xilen; m-xilen; tolualdehyt, axit toluic, rượu alkyl benzylic, 1-formyl-4-methylbenzen, 1-hydroxymethyl-4-methylbenzen; methylacetophenon; 1,2,4-trimethylbenzen; 1-formyl-2,4-dimethyl-benzen; 1,2,4,5-tetramethyl-benzen; naphthalen được thế alkyl, formyl, axyl, và hydroxymethyl (ví dụ, 2,6-dimethylnaphthalen, 2,6-diethylnaphthalen, 2,7-dimethylnaphthalen, 2,7-diethylnaphthalen, 2-formyl-6-methylnaphthalen, 2-axyl-6-methylnaphthalen, 2-methyl-6-ethylnaphthalen, và các chất tương tự); và các chất tương tự; và các dẫn xuất được oxy hóa một phần của hợp chất bất kỳ được nêu ở trên; và các hỗn hợp của chúng. Theo một số phương án, hợp chất thơm được thế bao gồm hydrocacbon thơm được thế methyl, ethyl, và/hoặc isopropyl. Theo một số phương án, hợp chất thơm được thế bao gồm benzen được thế alkyl, o-xilen, p-xilen, m-xilen, hoặc chất tương tự, hoặc hỗn

hợp của các chất này.

Axit carboxylic thơm được sản xuất theo sáng chế không bị giới hạn và bao gồm, nhưng không giới hạn ở, các loại được carboxyl hóa một lần và nhiều lần, có một hoặc nhiều vòng thơm. Theo một số phương án, axit carboxylic thơm được sản xuất bởi phản ứng của các chất phản ứng dạng khí và lỏng trong hệ pha lỏng. Theo một số phương án, axit carboxylic thơm chỉ bao gồm một vòng thơm. Theo phương án khác, axit carboxylic thơm bao gồm nhiều (ví dụ, hai hoặc nhiều hơn hai) vòng thơm mà, theo một số phương án, được dung hợp (ví dụ, naphtalen, anthraxen, v.v.) và, theo phương án khác, không được dung hợp. Theo một số phương án, axit carboxylic thơm chỉ bao gồm một gốc axit carboxylic (ví dụ,  $\text{-CO}_2\text{H}$ ) hoặc muối của nó (ví dụ,  $\text{-CO}_2\text{X}$ , trong đó X là loại cation bao gồm, nhưng không giới hạn ở, cation kim loại, ion amoni, và loại tương tự). Theo phương án khác, axit carboxylic thơm bao gồm nhiều (ví dụ, hai hoặc nhiều hơn hai) gốc axit carboxylic hoặc muối của chúng. Axit carboxylic thơm tiêu biểu bao gồm, nhưng không giới hạn ở, axit terephthalic, axit trimesic, axit trimelitic, axit phthalic, axit isophthalic, axit benzoic, axit naphtalen dicarboxylic, và axit tương tự, và hỗn hợp của chúng. Theo một số phương án, sáng chế đề xuất quy trình sản xuất dạng tinh khiết của axit terephthalic bao gồm axit terephthalic tinh khiết (PTA) và các axit được gọi là axit terephthalic tinh khiết ở mức trung bình.

Kiểu oxy hóa tiêu biểu có thể được thực hiện trong thiết bị phản ứng oxy hóa 110 là oxy hóa pha lỏng bao gồm bước cho khí oxy tiếp xúc với nguyên liệu cấp chứa hydrocarbon thơm có các phần tử thế có thể oxy hóa thành nhóm axit carboxylic trong hỗn hợp phản ứng pha lỏng. Theo một số phương án, hỗn hợp phản ứng pha lỏng bao gồm dung môi monoaxit carboxylic và nước với sự có mặt của thành phần chất xúc tác chứa ít nhất một thành phần kim loại nặng (ví dụ, Co, Mn, V, Mo, Cr, Fe, Ni, Zr, Ce, Hf, hoặc kim loại tương tự, và hỗn hợp của chúng) và chất tăng cường (ví dụ, hợp chất halogen, v.v.). Theo một số phương án, phản ứng oxy hóa được thực hiện ở nhiệt độ và áp suất tăng có hiệu quả để duy trì hỗn hợp phản ứng pha lỏng và tạo thành pha hơi có nhiệt độ cao, áp suất cao. Theo một số phương án, phản ứng oxy hóa nguyên liệu cấp thơm trong bước oxy hóa pha lỏng tạo ra axit carboxylic thơm cũng như các sản phẩm phụ của phản ứng, như sản phẩm oxy hóa một phần hoặc trung gian của nguyên liệu cấp thơm và/hoặc sản phẩm phụ dung

môi. Theo một số phương án, axit carboxylic thơm bao gồm axit terephthalic, và bước oxy hóa gồm việc cho para-xylen tiếp xúc với khí oxy trong hỗn hợp phản ứng oxy hóa pha lỏng chứa axit axetic, nước, và thành phần chất xúc tác được tăng cường bởi brom. Phản ứng oxy hóa pha lỏng và các quy trình kết hợp có thể được thực hiện dưới dạng quy trình theo mẻ, quy trình liên tục, hoặc quy trình bán liên tục. Phản ứng oxy hóa có thể được thực hiện trong một hoặc nhiều thiết bị phản ứng.

Theo phương án tiêu biểu, như có thể thực hiện như trên FIG.1, nguyên liệu cấp dạng lỏng chứa ít nhất khoảng 99% trọng lượng hydrocacbon thơm được thể, dung dịch nước axit axetic (ví dụ, chứa khoảng 70 đến khoảng 95% trọng lượng axit axetic), các hợp chất tan của coban và mangan (ví dụ, như các axetat tương ứng của chúng) làm nguồn kim loại xúc tác, brom (ví dụ, hydro bromua) làm chất tăng cường xúc tác, và không khí có thể được nạp liên tục vào bình phản ứng oxy hóa 110 qua đường vào, như đường vào 112. Theo một số phương án, bình 110 là thiết bị phản ứng dạng thùng khuấy liên tục, được định mức áp suất.

Theo một số phương án, việc khuấy có thể được thực hiện bằng sự quay của máy khuấy 120, trục của nó được dẫn động bởi nguồn điện từ bên ngoài (không được thể hiện). Cánh quạt được lắp lên trục và nằm trong khối lỏng có cấu tạo để tạo ra lực giúp trộn các chất lỏng và phân tán khí trong khối lỏng, từ đó tránh được hiện tượng lắng của các chất rắn nằm ở vùng phía dưới của khối lỏng.

Theo một số phương án, para-xylen được oxy hóa trong thiết bị phản ứng 110, phần lớn là thành axit terephthalic. Các sản phẩm phụ có thể tạo ra ngoài axit terephthalic bao gồm, nhưng không giới hạn ở, sản phẩm oxy hóa một phần và trung gian (ví dụ, 4-carboxybenzaldehyt, axit 1,4-hydroxymetyl benzoic, axit p-toluic, axit benzoic, và chất tương tự, và hỗn hợp của chúng). Do phản ứng oxy hóa là phản ứng tỏa nhiệt, nhiệt sinh ra từ phản ứng có thể làm sôi hỗn hợp phản ứng pha lỏng và tạo thành pha hơi ở trên đầu bao gồm axit axetic hóa hơi, hơi nước, các sản phẩm phụ dạng khí từ phản ứng oxy hóa, cacbon oxit, nitơ từ không khí được nạp vào phản ứng, oxy chưa phản ứng, và các sản phẩm tương tự, và hỗn hợp của chúng.

Hơi phía trên đầu có thể được lấy ra khỏi thiết bị phản ứng thông qua lỗ thông hơi

116 và được gửi vào dòng 111 đến cột chung cất áp suất cao 330. Vùng tách có cấu tạo để tách nước ra khỏi dung môi axit monocarboxylic và đưa pha lỏng giàu dung môi quay lại thiết bị phản ứng thông qua đường 331. Pha khí giàu nước được lấy ra khỏi vùng tách thông qua đường 334 và được xử lý tiếp, ví dụ, bằng cách thu hồi năng lượng qua bộ giãn nở, bằng cách ngưng tụ nước từ dòng khí để sử dụng trong vùng tinh sạch hoặc các phần khác của quy trình, và bằng việc xử lý khí thải. Dòng hồi lưu được cho quay trở lại cột 330 thông qua đường 335. Chất lỏng hồi lưu có thể bao gồm các phần đã ngưng tụ của dòng khí giàu nước 334 hoặc có thể bao gồm chất lỏng từ các nguồn khác. Ví dụ về việc xử lý thêm dòng khí phía trên đầu và các nguồn chất lỏng hồi lưu được mô tả đầy đủ hơn trong Patent Mỹ số 5,723,656, 6,137,001, 7,935,844, 7,935,845, và 8,173,834.

Theo một số phương án, chất lỏng đi ra bao gồm sản phẩm oxy hóa dạng rắn được làm sệt trong hỗn hợp phản ứng pha lỏng được lấy ra khỏi bình phản ứng 110 thông qua cửa ra bùn sệt 114 và được dẫn theo dòng 115 đến thùng kết tinh 152, và đến thùng kết tinh 156, để thu hồi sản phẩm rắn.

Theo một số phương án, sản phẩm thô dạng rắn có thể được thu hồi từ chất lỏng bằng cách kết tinh trong một hoặc nhiều giai đoạn, như trong thùng kết tinh đơn hoặc, như được thể hiện trên FIG.1, trong dãy nhiều thùng kết tinh có khuấy. Theo một số phương án, quy trình kết tinh bao gồm việc giảm liên tục nhiệt độ và áp suất từ giai đoạn đầu đến giai đoạn cuối để tăng hiệu suất thu hồi sản phẩm. Ví dụ, như được thể hiện trên FIG.1, thùng kết tinh 152 và 156 có thể được cung cấp thành dãy và thông chất lỏng với nhau, sao cho sản phẩm bùn sệt từ thùng 152 có thể được chuyển đến thùng 156. Có thể thực hiện việc làm nguội trong thùng kết tinh bằng cách xả áp. Một hoặc nhiều thùng kết tinh có thể được làm thông hơi, như tại các lỗ thông hơi 154 và 158, để loại bỏ hơi thu được từ quá trình giảm áp và tạo thành hơi nước từ hơi tiết lưu đến thiết bị trao đổi nhiệt (không được thể hiện).

Như được thể hiện trên FIG.1, thùng kết tinh 156 thông chất lỏng với thiết bị tách rắn-lỏng 190. Thiết bị tách rắn-lỏng 190 có cấu tạo để nhận bùn sệt chứa sản phẩm rắn từ thùng kết tinh 156. Theo một số phương án, thiết bị tách rắn-lỏng 190 còn có cấu tạo để tách sản phẩm rắn dạng thô và các sản phẩm phụ ra khỏi chất lỏng. Theo một số phương án,

thiết bị tách 190 là thiết bị ly tâm, thiết bị lọc chân không quay, thiết bị lọc áp suất, hoặc thiết bị tương tự, hoặc kết hợp các thiết bị này. Theo một số phương án, thiết bị tách 190 bao gồm thiết bị lọc áp suất có cấu tạo để trao đổi dung môi (ví dụ, bằng sự chiếm chỗ tĩnh tiến dịch cái trong bánh lọc bằng chất lỏng rửa chứa nước dưới áp lực). Dịch cái oxy hóa thu được từ việc tách này có thể thoát ra ngoài thiết bị tách 190 theo dòng 191 để chuyển đến trống chứa dịch cái 192. Một phần dịch cái và, theo một số phương án, phần lớn dịch cái, có thể được chuyển từ trống 192 đến thiết bị phản ứng oxy hóa 110. Theo cách này, dung môi axit monocarboxylic, nước, chất xúc tác, và/hoặc các sản phẩm phụ của phản ứng oxy hóa được hòa tan và/hoặc có mặt dưới dạng các hạt rắn mịn trong dịch cái có thể được đưa trở lại phản ứng oxy hóa pha lỏng.

Như được thể hiện trên FIG.1, dòng 197 chứa sản phẩm rắn dạng thô đã gia nhiệt có thể được dẫn đến vùng trộn bao gồm thùng tạo hỗn hợp phản ứng 200. Sản phẩm rắn dạng thô trong dòng 197 có thể được trộn và được làm sệt trong thùng tạo hỗn hợp phản ứng 200 với dung môi cấu thành đi vào thùng 200 qua đường 202 để tạo ra hỗn hợp phản ứng tinh sạch. Theo một số phương án, dung môi dùng để tinh sạch chứa nước. Theo một số phương án, đường dung môi 202 nối với thùng chứa (không được thể hiện) để chứa dung môi cấu thành. Theo phương án khác, dung môi chứa nước được khử khoáng mới được cấp từ bộ khử khí. Theo phương án khác, dung môi được cấp từ phần khác của quy trình hợp nhất 100. Ví dụ, theo một phương án, dung môi bao gồm chất ngưng thu được từ quy trình tách khí thải trong cột 330 hoặc từ các hơi được thu hồi từ vùng kết tinh. Nguồn dung môi dùng để tinh sạch được mô tả đầy đủ hơn, ví dụ, trong Patent Mỹ số 5,723,656, 6,137,001, 7,935,844, 7,935,845, và 8,173,834.

Vùng trộn có cấu tạo để hoạt động ở áp suất cao hơn áp suất môi trường. Áp suất này được duy trì trong thùng 200 bằng cách bịt kín đường vào 197 và 202 có bơm, bộ lọc, van kiểm soát hoặc van quay (không được thể hiện) và đường ra 204 có bơm 206. Theo một phương án, việc làm kín bằng áp suất thùng 200 được thực hiện bằng cách cung cấp thiết bị lọc áp suất quay dưới dạng thiết bị tách rắn-lỏng 190. Thiết bị lọc áp suất quay ép bùn sệt được xả thoát ra ngoài thiết bị 190 và đi vào đường 197. Thiết bị lọc áp suất quay thích hợp được bán bởi BHS-Sonthofen và được bộc lộ, ví dụ, trong Patent Mỹ số 2,741,369, 7,807,060 và đơn yêu cầu cấp patent Mỹ số 20050051473. Hỗn hợp phản ứng

tinh sạch sau khi được tạo ra trong thùng 200 được hút qua đường 204 và được chuyển đến bơm 206, bơm này cũng có vai trò duy trì áp suất trong thùng 200. Bằng cách duy trì áp suất ở thùng 200 cao hơn áp suất môi trường, dung môi dùng để tinh sạch 202 có thể đi vào thùng 200 và được giữ lại trong thùng 200 ở áp suất cao hơn áp suất môi trường, và do đó có thể đi vào và có khả năng được duy trì ở nhiệt độ cao hơn so với trường hợp thùng được duy trì ở nhiệt độ môi trường. Ví dụ, nước trong dung môi dùng để tinh sạch chỉ có thể được bổ sung vào thùng ở nhiệt độ tối đa là 100°C nếu thùng được duy trì ở một áp suất khí quyển tuyệt đối. Bằng cách cho dung môi dùng để tinh sạch có áp suất và nhiệt độ cao hơn khi đi vào thùng 200, hỗn hợp phản ứng tinh sạch thu được được tạo ra trong thùng 200 có khả năng có nhiệt độ cao hơn so với trường hợp thùng 200 không được duy trì ở áp suất này.

Nguồn dung môi dùng để tinh sạch được tạo áp thích hợp bao gồm nước được khử khoáng, chất ngưng hơi nước, chất ngưng từ quá trình chưng cất trong vùng oxy hóa, như phần phía trên đầu được ngưng tụ từ dòng 334, và chất ngưng từ thiết bị kết tinh tinh sạch như 220.

Hỗn hợp phản ứng tinh sạch thoát ra ngoài thùng 200 qua đường 204 đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ. Hỗn hợp phản ứng tinh sạch được đưa vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở áp suất cao hơn áp suất môi trường, cho phép hỗn hợp phản ứng tinh sạch có thể được đưa vào ở nhiệt độ cao hơn so với khi không được tạo áp. Vùng gia nhiệt sơ bộ được thể hiện trên FIG.1 bao gồm bơm 206 và thiết bị trao đổi nhiệt 208. Người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực này sẽ hiểu rằng mặc dù FIG.1 chỉ thể hiện một thiết bị trao đổi nhiệt, vùng gia nhiệt sơ bộ có thể bao gồm nhiều thiết bị trao đổi nhiệt khác được bố trí nối tiếp hoặc song song. Thiết bị trao đổi nhiệt 208 nâng nhiệt độ của hỗn hợp phản ứng tinh sạch đến nhiệt độ cần thiết cho phản ứng tinh sạch như được mô tả dưới đây. Theo một phương án, nhiệt độ được tăng đến ít nhất là 250°C. Theo một phương án, nhiệt độ được tăng đến khoảng 290°C. Do hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào ở nhiệt độ cao hơn hệ thống không được tạo áp truyền thống, năng lượng cần để gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng gia nhiệt sơ bộ cần đến sẽ thấp hơn so với hệ thống không được tạo áp truyền thống.

Hỗn hợp phản ứng tinh sạch đã gia nhiệt thoát ra ngoài vùng gia nhiệt sơ bộ và đi

vào vùng tinh sạch. Vùng tinh sạch bao gồm thiết bị phản ứng tinh sạch 210. Theo một số phương án, bước tinh sạch trong thiết bị phản ứng tinh sạch 210 bao gồm việc cho hỗn hợp phản ứng tinh sạch tiếp xúc với hydro ở nhiệt độ và áp suất tăng khi có mặt chất xúc tác hydro hóa. Theo một số phương án, áp suất này nằm trong khoảng từ khoảng 85 đến khoảng 95 kg/cm<sup>2</sup>. Theo một số phương án, một phần hỗn hợp phản ứng tinh sạch lỏng có thể được lấy ra liên tục từ thiết bị phản ứng hydro hóa 210 trong dòng 211 và được dẫn đến thùng kết tinh 220 trong vùng kết tinh nằm phía sau. Trong thùng kết tinh 220, axit terephthalic và lượng tạp chất giảm có thể được kết tinh từ hỗn hợp phản ứng (ví dụ, bằng cách giảm áp suất lên chất lỏng). Bùn sệt thu được của axit terephthalic tinh khiết và chất lỏng được tạo ra trong thùng 220 có thể được dẫn đến thiết bị tách rắn-lỏng 230 theo dòng 221. Hơi thu được từ áp suất giảm trong thiết bị phản ứng kết tinh 220 có thể được ngưng tụ bằng cách di chuyển đến thiết bị trao đổi nhiệt (không được thể hiện) để làm mát. Chất ngưng lỏng thu được có thể được dẫn quay lại quy trình, ví dụ tuần hoàn đến thùng tạo nguyên liệu cấp tinh sạch (không được thể hiện), qua đường chuyển thích hợp (không được thể hiện) và/hoặc được dẫn đến bước xử lý nước thải (WWT). Axit terephthalic tinh khiết thoát ra ngoài thiết bị tách rắn-lỏng 230 theo dòng 231. Theo một số phương án, ít nhất một phần, theo một số phương án là tất cả hoặc về cơ bản là tất cả, dịch cái tinh sạch có thể được dẫn theo dòng 233 hồi lưu đến cột chưng cất áp suất cao 330, như được mô tả đầy đủ hơn, ví dụ, trong Patent số 5,723,656, 6,137,001, 7,935,844, 7,935,845, và 8,173,834. Theo phương án khác, dòng 233 có thể được dẫn đến bộ phận xử lý nước thải. Thiết bị tách rắn-lỏng 230 có thể là thiết bị ly tâm, thiết bị lọc chân không quay, thiết bị lọc áp suất, hoặc thiết bị tương tự, hoặc kết hợp các thiết bị này.

Toàn bộ nội dung của từng và tất cả các tài liệu là patent hoặc công bố không phải patent được viện dẫn trong bản mô tả được kết hợp bằng cách viện dẫn, trừ trường hợp bộc lộ hoặc định nghĩa từ bản mô tả không thống nhất, phần bộc lộ hoặc định nghĩa trong bản mô tả sẽ được ưu tiên sử dụng.

Phân mô tả chi tiết trên đây và hình vẽ kèm theo được đưa ra nhằm mục đích giải thích và minh họa, và không được dự định làm giới hạn phạm vi của các yêu cầu bảo hộ kèm theo. Nhiều cải biến ở các phương án được ưu tiên theo sáng chế được minh họa trong bản mô tả sẽ là rõ ràng với người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực này, và vẫn nằm trong

phạm vi của các yêu cầu bảo hộ kèm theo và các dạng tương đương của chúng.

Được hiểu là các chi tiết và dấu hiệu được viện dẫn trong các yêu cầu bảo hộ kèm theo có thể được kết hợp theo nhiều cách để tạo ra các yêu cầu bảo hộ mới tương tự nằm trong phạm vi của sáng chế. Do đó, mặc dù các điểm phụ thuộc được kèm theo dưới đây phụ thuộc vào chỉ một điểm độc lập hoặc điểm phụ thuộc, cần hiểu rằng các điểm phụ thuộc này có thể, hoặc, được làm cho phụ thuộc trong phương án thay thế vào điểm yêu cầu bảo hộ trước đó, dù cho là độc lập hay phụ thuộc, và các kết hợp như vậy được hiểu là tạo nên một phần của bản mô tả sáng chế.

**YÊU CẦU BẢO HỘ**

1. Quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết, quy trình này bao gồm các bước:

gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng gia nhiệt sơ bộ; hỗn hợp phản ứng tinh sạch chứa axit carboxylic thơm dạng thô và dung môi, hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở áp suất cao hơn áp suất môi trường; và

tinh sạch axit carboxylic thơm dạng thô trong hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng tinh sạch để tạo ra sản phẩm axit carboxylic thơm tinh khiết.

2. Quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết, quy trình này bao gồm các bước:

gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng gia nhiệt sơ bộ; hỗn hợp phản ứng tinh sạch chứa axit carboxylic thơm dạng thô và dung môi, hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở nhiệt độ cao hơn 100°C; và

tinh sạch axit carboxylic thơm dạng thô trong hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng tinh sạch để tạo thành sản phẩm axit carboxylic thơm tinh khiết.

3. Quy trình sản xuất axit carboxylic thơm tinh khiết, quy trình này bao gồm các bước:

trộn axit carboxylic thơm dạng thô và dung môi trong vùng trộn để tạo thành hỗn hợp phản ứng tinh sạch, dung môi được cấp vào vùng trộn ở áp suất cao hơn áp suất môi trường;

gia nhiệt hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng gia nhiệt sơ bộ; hỗn hợp phản ứng tinh sạch chứa axit carboxylic thơm dạng thô và dung môi, hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở nhiệt độ cao hơn 100°C; và

tinh sạch axit carboxylic thơm dạng thô trong hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng tinh sạch để tạo ra sản phẩm axit carboxylic thơm tinh khiết.

4. Quy trình theo điểm 1 hoặc 2, quy trình này còn bao gồm bước:

tạo thành hỗn hợp phản ứng tinh sạch trong vùng trộn bằng cách trộn dung môi với dòng chứa axit carboxylic thơm dạng thô.

5. Quy trình theo điểm 4, trong đó dung môi đi vào vùng trộn ở áp suất cao hơn áp suất môi trường.
6. Quy trình theo điểm 3 hoặc 5, trong đó dung môi đi vào vùng trộn ở áp suất ít nhất là  $1 \times 10^5$  Pa (1 bar(g)).
7. Quy trình theo điểm 3 hoặc 5, trong đó dung môi chứa dòng đi vào vùng trộn ở áp suất ít nhất là  $2 \times 10^5$  Pa (2 bar(g)).
8. Quy trình theo điểm 3 hoặc 4, trong đó dung môi chứa dòng đi vào vùng trộn ở nhiệt độ cao hơn 100°C.
9. Quy trình theo điểm 3 hoặc 4, trong đó dung môi chứa dòng đi vào vùng trộn ở nhiệt độ ít nhất là 120°C.
10. Quy trình theo điểm 3 hoặc 4, trong đó vùng trộn được duy trì ở áp suất ít nhất là  $2 \times 10^5$  Pa (2 bar(g)).
11. Quy trình theo điểm 1, 2 hoặc 3, trong đó hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở áp suất ít nhất là  $80 \times 10^5$  Pa (80 bar(g)).
12. Quy trình theo điểm 1 hoặc 2, trong đó hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở nhiệt độ cao hơn 100°C.
13. Quy trình theo điểm 1, 2 hoặc 3, trong đó hỗn hợp phản ứng tinh sạch đi vào vùng gia nhiệt sơ bộ ở nhiệt độ ít nhất là 120°C.
14. Quy trình theo điểm 1, 2 hoặc 3, trong đó axit carboxylic thơm bao gồm axit terephthalic.
15. Quy trình theo điểm 1, 2 hoặc 3, quy trình này còn bao gồm các bước:

oxy hóa hợp chất thơm được thể trong vùng phản ứng để tạo thành axit carboxylic thơm dạng thô;

chuyển dòng ra từ vùng phản ứng đến vùng kết tinh;

thu hồi ít nhất một phần carboxylic thơm dạng thô dưới dạng chất rắn từ vùng kết tinh;

chuyển dòng ra từ vùng kết tinh đến thiết bị tách rắn-lỏng, trong đó thiết bị tách rắn-lỏng có cấu tạo để hoạt động ở áp suất cao hơn áp suất môi trường.

16. Quy trình theo điểm 15, trong đó thiết bị tách rắn-lỏng bao gồm thiết bị lọc áp suất quay.

17. Quy trình theo điểm 1, 2 hoặc 3, trong đó vùng tinh sạch bao gồm thiết bị phản ứng hydro hóa, và trong đó bước tinh sạch bao gồm việc cho dung dịch nước chứa ít nhất một phần axit carboxylic thơm dạng thô tiếp xúc với hydro trong điều kiện có mặt chất xúc tác.

18. Quy trình theo điểm 1, 2 hoặc 3, trong đó dung môi bao gồm nước.

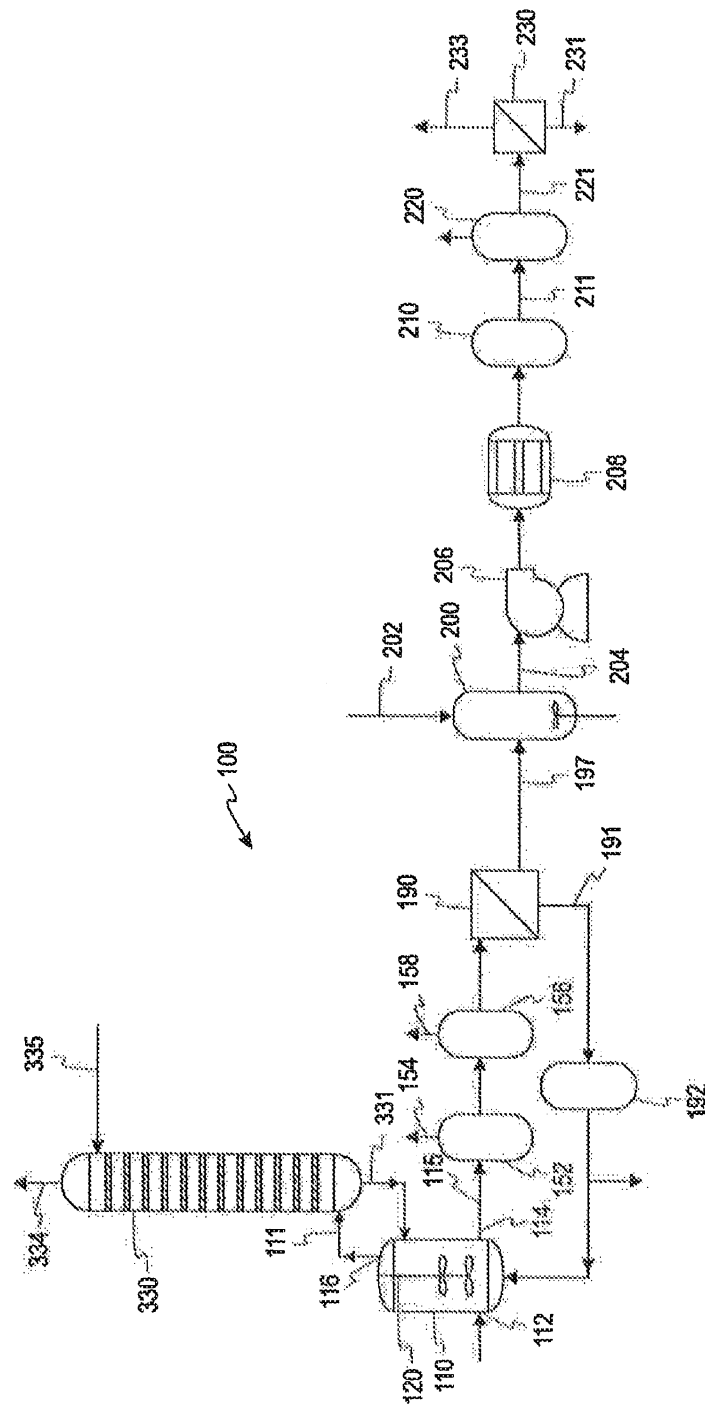


Fig. 1