

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
I P C 分類：

A6
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ，☒有 ☐無主張優先權
德 1998年5 月15日 198 21 883.4

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

五、發明說明（一）

本發明仍有關由羧酸酯及羥烷胺連續製造羥醯胺之方法。

德國專利 DE-A 2509237 號有記載羥烷醯胺之製法。在此製程中，在或不在溶劑之存在下，使酯及羥烷胺做分批式反應，可得最終產物。此反應需花數小時。

歐洲專利 EP-A-0,473,380 號將此製程改良。調整溫度，使得反應時形成結晶淤漿。部分結晶可導致產率提升，因為可抑制目標分子之非所欲之二聚物形成，而該二聚化會損耗羥烷胺。此反應亦依分批方式進行。反應時間亦需數小時。

此等以往之合成方法有許多缺點：例如若在溶劑中進行反應，則反應後必須移除溶劑。在以往的製法中羥烷胺必須慢慢滴入。在結晶淤漿中操作必須精準地調配粘度及溫度，因為結晶形成太多會抑制產率。此外，由反應器排出結晶淤漿後，物料之混煉很複雜。

因此，本發明之目的乃提供沒有前述缺點，較不複雜、簡單的羥烷醯胺之連續製法。

令人驚異的是羥烷醯胺之製造可在“擠壓機”(extruder)或“強力混煉機”(intensive mixer)中連續進行。

本發明提供由羧酸酯及烷醇胺製造羥烷醯胺之連續方法，其中原料之反應係在擠壓機或強力混煉機中強力混煉，提供熱量就可輕易地反應，同時移除所形成的醇，然後取出最終產物。

本發明之製法原則上不局限制於任何特殊的羧酸酯及

五、發明說明 (>)

烷醇胺原料，均可連續製備羥烷醯胺。

本製程之原理是在例如強捏合機、單螺桿或多螺桿擠壓機、行星齒輪擠壓機，特別是雙螺桿擠壓機中連續地略為加熱至高溫，減壓或汽提移除對應之醇，然後分離取出所欲產物。此項分離產物之較佳為利用其後的急冷。

令人驚異的是以往批式反應需花數小時，本製程則可在短時間內獲得高度的轉化率。以往的製程會形成特殊粘度之結晶淤漿，不易控制；本製程則可避免之。雖然在製程開始時採用高溫會促進二聚物形成，但經適當的參數調整則可實質上完全抑制二聚物之形成。

然而視合成之目的而定，產物除有單體外，亦可包含二聚物，甚至亦可獲得二聚物為主要的產物。

其關鍵係在反應開始時，在擠壓機或強力混煉機中略做加熱，就實質上能使反應充分進行。

一般而言，開始之溫度必須至少 100℃，較佳為 150℃。

在較佳之本發明體系中，可在具有許多相同或不同，且可獨立溫度控制之擠筒區之擠壓機或強力混煉機中進行反應。

可利用合適的混合室、螺桿構造或利用強力的熱交換及強力迅速的混合。如此可依極均勻的滯留時間沿縱向做均勻的流動。在裝置中之各別擠筒區利用不同的溫度控制以完成熱交換。開始反應時，各別擠筒區之溫度為 100 至 250℃，其後就逐漸降溫。

原料通常是在各別物流中計量飼入，但其中某些可一

五、發明說明(3)

起加入。亦可將所有原料一起匯成單一原料流。經烷胺或各種經烷胺之混合物，及／或羧酸酯及／或觸媒，及／或添加劑如流化劑和安定劑可匯合成單一原料流；同樣地，羧酸酯，酯之混合物及前述之添加劑及觸媒亦可匯成一物流。

原料流亦可分批在擠壓機或強力混煉機之不同區的不同點飼入。如此可獲得目標的濃度梯度以促成反應的完成。

原料流之進入點可依序變化，並且隨著時間補償之。

移除醯胺化所形成的醇可確保反應的完成。此項移醇操作可利用擠壓機擠筒或強力混煉機之開口減壓取出，或以氣流通過強力混合過之反應混合物，而使更多的揮發性醇類利用氣流帶出來。

利用觸媒可加速反應。合適的觸媒為鹼金屬之氫氧化物及／或烷氧化物，如氫氧化鈉或鉀，乙醇鈉或鉀，季鹼化氫氧化銨，烷氧化物及／或其他強鹼。觸媒濃度佔所用羧酸酯重量的0.01至5%，較佳為0.1至1%。

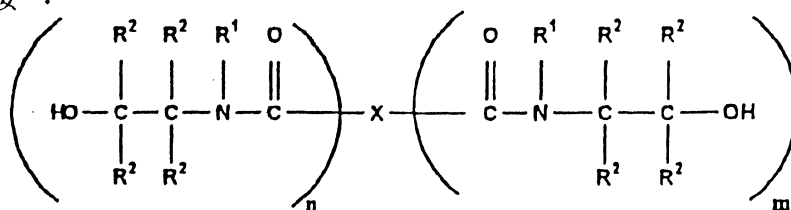
真空罩或氣流通過之位置可依各種方式排列，端賴於原料及所形成醇之種類。亦可在實際反應區之下游再增加殘餘醇之移除操作點。

在迅速反應後，較佳為做迅速、強力的冷卻，亦即整合形成多區之反應器，例如是擠壓機或"剛特捏機"(Conterna machine)。亦可採用殼管熱交換器，管圈、冷卻輥、空氣輸送器及金屬輸送帶。

五、發明說明(4)

端賴於粘度，首先將最終產物利用前述合適的裝置進一步冷卻至適當的溫度，然後採用壓碎棍、針棍，錘式磨、坯片棍等製粒或粉碎至所欲的顆粒大小。

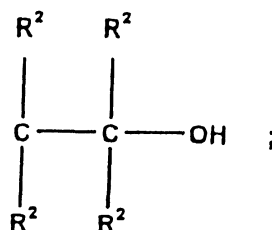
較佳的本發明體系乃由羧酸酯及烷醇胺連續地製造式 I 之羧烷醯胺：



(式 I)

式中 X：化學鍵，氫（若 $m = 0$ ）， C_{1-24} 烷基，芳基，烯基，烷氧羰基或羧烯基，或被雜原子取代之此等基；

R^1 係氫， C_{1-24} 烷基，烯基，芳基或芳烷基，被雜原子取代之此等基，或



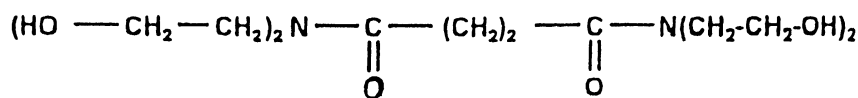
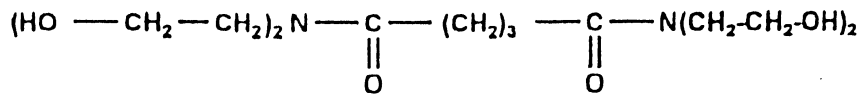
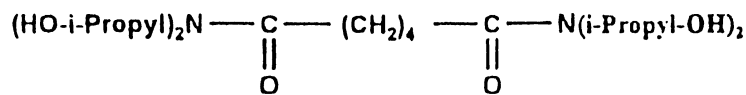
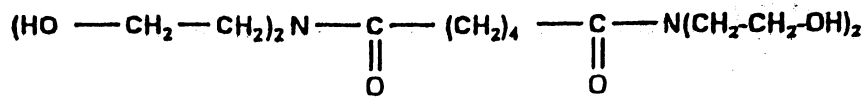
R^2 各自獨立，可為相同或不同之基，選自氫， C_{1-24} 烷基，芳基，芳烷基及烯基，以及被雜原子取代之此等基；

n 係 1 至 10 之整數；

m 係 0 至 2 之整數。

本製程特別適合製造

五、發明說明(5)

概略製程

在溫度為 25 至 220℃ 之雙螺桿擠壓機的進料區加入羧酸酯，同時在 25 至 200℃ 之溫度計量地加入經烷胺。兩物流之一包含溶解之觸媒。必要時（轉化率太低時），兩物流之一可分支飼入；計量飼入此物流，使得在進料區計量引入主要部份（大於 50%），而在其後之區引入少量的物流，以便產生後反應。

擠壓機包含不同的擠筒區，通常其中至少有一半是可溫度控制的。

在具有八區之擠壓機的場合，溫度設定如下：

Z1：100-220℃，Z2至Z6：80-220℃，Z7，Z8：60-160℃

若進料物流分支，則第二進料點之溫度和 Z1 相同或類

五、發明說明(6)

似。

Z1後之兩區覆以真空罩以移除反應時所形成之醇。

所有的溫度均加以設定，利用電熱及水或空氣(氣體力學)冷卻以控制溫度。

整個長度的雙螺桿包含進料件及捏合件，其轉速為10至380轉／分鐘。

酯基對羥烷胺分子之比為1：0.5～1.5，較佳為1：1。

冷卻反應產物，然後粉碎或成形並包裝之。

實施例

由"己二酸二甲酯"(以下略為DMA)和"二乙醇胺"(以下略為DEA)反應而得"醯胺酯"(以下略為ADE)。

使每莫耳的DMA和兩莫耳的DEA反應。所用的觸媒為氫氧化鉀(佔DMA重量之0.2%)。

物流1為DMA，而物流2包含DEA，其中溶有氫氧化鉀。此等物流不分支。它們引入雙螺桿擠壓機之第一區。利用兩個真空罩去除主要量的所形成甲醇。所形成的產物放入冷卻輸送帶。在擠壓機中之滯留時間小於1分鐘。

根據¹³C-NMR(核磁共振)可知

DEA	2.0%
ADE	97.5%
CH ₃ OH	0.5%

四、中文發明摘要 (發明之名稱：

)

經基烷醯胺之連續製法

由羧酸酯及烷醇胺連續製法經基烷醯胺之方法，係使原料在擠壓機或強力混煉機中強力混煉，並加熱即可輕易引起反應，同時移除所形成的醇並取出最終產物。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

英文發明摘要 (發明之名稱：**Process for the continuous preparation of hydroxyalkylamides**)

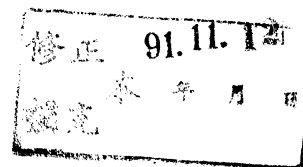
Process for the continuous preparation of hydroxyalkylamides from carboxylic esters and alkanolamines, wherein the reaction of the starting materials is carried out in an extruder or intensive mixer by intensive mixing and brief reaction with supply of heat and simultaneous removal of the alcohol formed and the final product is then isolated.

訂

線

公 告 本

申請日期	88.4.15
案 號	88106011
類 別	C07C 231/02, 233/18



539662

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

一、發明 新型名稱	中 文	羥基烷醯胺之連續製法 (91年11月12日修正)
	英 文	PROCESS FOR THE CONTINUOUS PREPARATION OF HYDROXYALKYLAMIDES
二、發明 創作人	姓 名	1. 來尼艾 (Dr. Rainer Elm) 2. 湯姆士威豪奇 (Dr. Thomas Weihrauch) 3. 克勞斯白蘭尼 (Klaus Behrendt) 4. 昔爾伐荷達 (Silvia Herda)
	國 籍	1. 德國 2. 德國 3. 德國 4. 德國
	住、居所	1. 德國瑪耳 D-45772 烏迪格街 6 號 2. 德國杜門 D-48249 斯德荷弗威格 3 號 3. 德國荷內 D-44628 斯其德門街 133 號 4. 德國荷內 D-44623 布朗內街 36C 號
三、申請人	姓 名 (名稱)	德固薩哈爾斯股份有限公司 ✓ (Degussa-Hüls AG)
	國 籍	德國
	住、居所 (事務所)	德國 60287 法蘭克福美因維伯福倫街 9 號
	代 表 人 姓 名	克里斯多夫雷次 (Christoph Leps) 艾伯梅爾 (Ulrich Ebmeier)

六、申請專利範圍

第 88106011 號「羥基烷醯胺之連續製法」專利案

(91 年 11 月 12 日修正)

六、申請專利範圍：

1. 一種由羧酸酯及烷醇胺連續製造羥基烷醯胺之方法，係使原料在擠壓機或強力混煉機中強力混合，加熱就輕易引發反應，同時移除所形成之醇，並取出最後產物；

其中擠壓機係單螺桿、多螺桿或行星齒輪擠壓機，而強力混煉機係強力捏合機或靜態混煉機；

其中開始反應之溫度至少為 100-250℃，其後溫度就逐漸下降。

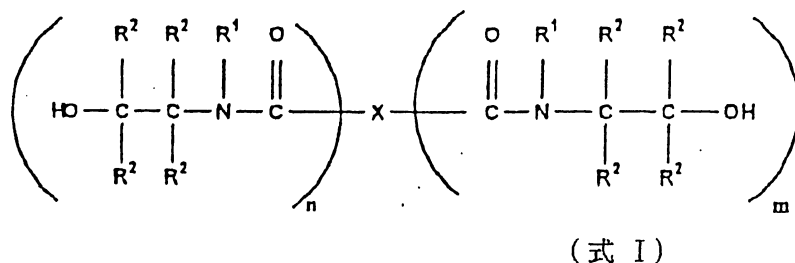
2. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中反應係在無溶劑之條件下進行。
3. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中反應係在雙螺桿擠壓機中進行。
4. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中反應係在觸媒及／或添加劑存在下進行。
5. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中反應係在具有許多相同或不同的且可各自獨立地溫度控制之擠筒區的擠壓機或強力混煉機中進行。
6. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中原料及／或添加劑可各自或一起加入。
7. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中利用減壓及／或

六、申請專利範圍

使惰性氣流通過強力混煉之反應混合物以移除所形成之醇。

8. 如申請專利範圍第1項之方法，其中經迅速強力冷卻可獲得最終產物。

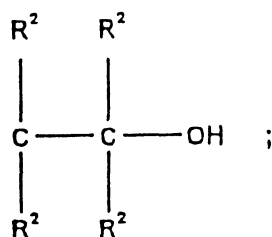
9. 如申請專利範圍第1至8項中任一項之方法，其係乃由羧酸酯及烷醇胺連續地製造式I之羥烷醯胺：



式中取代基具有下列定義：

X：化學鍵，氫（若 $m=0$ ）， C_{1-24} 烷基，芳基，烯基，烷氧羰基或羧烯基，或被雜原子取代之此等基；

R^1 係氫， C_{1-24} 烷基，烯基，芳基或芳烷基，被雜原子取代之此等基，或



R^2 各自獨立，可為相同或不同之基，選自氫， C_{1-24} 烷基，芳基，芳烷基及烯基，以及被雜原子取代之此等基；

六、申請專利範圍

n係1至10之整數；

m係0至2之整數。

10. 如申請專利範圍第1至8項中任一項之方法，其係用以製備：

