



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 202402871 A

(43)公開日：中華民國 113 (2024) 年 01 月 16 日

(21)申請案號：112109251

(22)申請日：中華民國 112 (2023) 年 03 月 14 日

(51)Int. Cl.：

*C08G63/183 (2006.01)**C08J11/24 (2006.01)**B29B17/02 (2006.01)**B01D15/00 (2006.01)*

(30)優先權：2022/03/15

日本

2022-039894

(71)申請人：日商東麗股份有限公司 (日本) TORAY INDUSTRIES, INC. (JP)

日本

(72)發明人：渡一平 WATARI, IPPEI (JP)；牧野正孝 MAKINO, MASATAKA (JP)

(74)代理人：賴經臣；宿希成

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：9 項 圖式數：0 共 31 頁

(54)名稱

以著色 P E T 布帛作為原料之再生聚酯樹脂及由著色 P E T 布帛獲得酯單體之方法

(57)摘要

本發明為一種再生聚酯樹脂，係以著色 PET 布帛作為原料之再生聚酯樹脂，其由相對於總酸成分為 88 莫耳%以上且 100 莫耳%以下之對酞酸殘基與相對於總二醇成分為 88 莫耳%以上且 100 莫耳%以下之乙二醇殘基所構成；且為：(1)二乙二醇含有率為 0.1 質量%以上且未滿 0.8 質量%；(2)氮原子含有率為 0.5 質量 ppm 以上且 15.0 質量 ppm 以下；(3)亨特(Hunter)色調：b 值為-10.0 以上且未滿 5.0；的聚對苯二甲酸乙二酯樹脂。



## 【發明摘要】

【中文發明名稱】 以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂及由著色PET布帛獲得酯單體之方法

### 【中文】

本發明為一種再生聚酯樹脂，係以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂，其由相對於總酸成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之對酞酸殘基與相對於總二醇成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之乙二醇殘基所構成；且為：(1)二乙二醇含有率為0.1質量%以上且未滿0.8質量%；(2)氮原子含有率為0.5質量ppm以上且15.0質量ppm以下；(3)亨特(Hunter)色調：b值為-10.0以上且未滿5.0；的聚對苯二甲酸乙二酯樹脂。

【指定代表圖】 無

## 【發明說明書】

【中文發明名稱】 以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂及由著色PET布帛獲得酯單體之方法

### 【技術領域】

【0001】本發明係關於以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂及由著色PET布帛獲得酯單體之方法，主要係關於以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂。

### 【先前技術】

【0002】過去以來一直維持著大量生產、大量消費、大量廢棄型態之社會系統，但已開始出現天然資源之枯竭或因資源採集所伴隨之自然破壞等對於環境的各種不良影響。因此，為了效率佳地利用有限資源、延續持續性之成長，不可或缺的是建構出再利用或再資源化之循環型社會系統，以極力抑制廢棄物產生，使已產生之廢棄物不致造成環境負擔。

【0003】為了實現此種循環型社會系統，必須建構熱循環或材料循環、化學循環等循環系統。其中，可將廢棄物塑膠再生至原料單體單位，並可由所得再生單體使其再生為品質同等之塑膠材料的化學循環技術正受到矚目。

【0004】由於廉價、且機械特性或乾爽感優越而被使用於廣泛用途的聚酯纖維其循環之必要性亦提高中，作為聚酯纖維之化學循環技術目前已提案有各種方法。

【0005】例如專利文獻1中提案一種化學循環技術，係使用經著色之聚對苯二甲酸乙二酯(PET)纖維之衣料，進行解聚合及屬於解聚合後之單體之雙(2-羥乙基)對酞酸酯(BHET)的蒸發精製。

第1頁，共 27 頁(發明說明書)

【0006】專利文獻2、3提案一種化學循環技術，係使用由著色聚對苯二甲酸乙二酯纖維所構成之布材，進行染料萃取、解聚合、以及使用活性碳之過濾精製。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0007】

[專利文獻1] 日本專利特開2020-176258號公報

[專利文獻2] 日本專利特開2005-330444號公報

[專利文獻3] 日本專利特開2005-255963號公報

【發明內容】

(發明所欲解決之問題)

【0008】然而，上述專利文獻1~3之化學循環技術中，纖維中之染料的事前萃取並不充足。例如，尚存在有必須進行專利文獻1實施例所揭示之<BHET蒸發精製步驟>、專利文獻2、3中實施例所揭示之「蒸餾處理」中之分子蒸餾等高度精製的課題。進而，即使進行此等高度精製，仍有最終所得PET樹脂之色調較由原始原料所製造之PET樹脂劣化的課題。

【0009】本發明之目的係為了解決上述習知技術之問題點，而提供一種再生聚酯樹脂，係於解聚合步驟之前充分實施著色成分之萃取，於解聚合後即使使用活性碳處理或過濾、晶析等簡易之精製步驟，以所得色調優越之酯單體(BHET)作為原料，可成為耐熱性、乾燥性較由原始原料所製造之PET樹脂更優越、且具備同等色調的再生聚酯樹脂。

(解決問題之技術手段)

【0010】上述課題係藉由以下[1]~[9]所解決。

[1]一種再生聚酯樹脂，係以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂，其由相對於總酸成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之對酞酸殘基與相對於總二醇成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之乙二醇殘基所構成；並具有以下(1)~(3)之特徵；

(1)二乙二醇含有率為0.1質量%以上且未滿0.8質量%；

(2)氮原子含有率為0.5質量ppm以上且15.0質量ppm以下；

(3)亨特(Hunter)色調：b值為-10.0以上且未滿5.0。

[2]如[1]之再生聚酯樹脂，其中，具有以下(4)及(5)之特徵；

(4)亨特色調：L值為70.0以上且未滿85.0；

(5)亨特色調：a值為-2.0以上且2.0以下。

[3]如[1]之再生聚酯樹脂，其中，具有以下(6)及(7)之特徵；

(6)依280°C等溫保持5分鐘，依100°C/分鐘以上之速度急冷至室溫後，使用示差掃描熱量計，依16°C/分鐘之升溫速度由20°C加熱至280°C時所觀察到之升溫結晶化溫度為140°C以上且未滿150°C；

(7)依280°C等溫保持5分鐘後，於依16°C/分鐘之升溫速度冷卻時所觀察到之降溫結晶化溫度為高於190°C且205°C以下。

[4]一種聚對苯二甲酸乙二酯成型品，係使用如[1]或[3]之再生聚酯樹脂而成。

[5]一種獲得酯單體之方法，係使用著色PET布帛獲得酯單體的方法，其係具有以下步驟(1)~(3)；

(1)使加熱EG對著色PET布帛接觸，萃取著色成分的步驟，其包含以下(a)及(b)之步驟；

(a)使EG蒸氣對著色PET布帛接觸的步驟；

(b)使185°C以上之加熱EG對著色PET布帛接觸的步驟；

第3頁，共27頁(發明說明書)

(2)將著色成分萃取後之PET布帛藉由EG進行解聚合，作成含有酯單體之EG溶液的步驟；

(3)對含有酯單體之EG溶液進行精製，得到酯單體的精製步驟。

[6]如[5]之獲得酯單體之方法，其中，對藉由解聚合而得之含有酯單體(BHET)之EG溶液進行精製而得到精製BHET的步驟，係僅包含以下步驟(A)~(D)；

(A)由解聚合後之含有BHET之EG溶液，將EG去除至成為0質量%以上且5質量%以下之範圍，並回收BHET的步驟；

(B)於實施(A)記載之步驟後，使回收BHET溶解於85°C以上且100°C以下之熱水中，進行熱過濾的步驟；

(C)於實施(B)記載之步驟後，將85°C以上且100°C以下之過濾溶液冷卻至30°C以下，使酯單體晶析並回收的步驟；

(D)於(B)及(C)之任一步驟內，於酯單體經溶解於熱水中之狀態進行活性炭處理或離子交換處理的步驟。

[7]如[5]或[6]之獲得酯單體之方法，其中，所得酯單體中之著色分量，係以分光光度計於450~800nm之範圍觀測到之波峰面積為20以下。

[8]如[5]或[6]之獲得酯單體之方法，其中，對著色成分萃取後之PET布帛，藉由相對於PET布帛1質量份為2.0質量份以上且10.0質量份以下之EG進行解聚合。

[9]如[5]或[6]之獲得酯單體之方法，其中，著色PET布帛100質量份中所含之硫原子量為0.01質量份以上且0.83質量份以下。

(對照先前技術之功效)

**【0011】** 根據本發明，以著色PET布帛為原料，僅實施過濾或晶析等簡易之精製步驟，即可獲得色調優越之酯單體(BHET)；藉由將其進行

第4頁，共 27 頁(發明說明書)

聚合，可提供耐熱性、乾燥性較由原始原料依常法所製造的PET樹脂更優越的再生聚酯樹脂。

### 【實施方式】

【0012】以下詳細說明本發明。

尚且，本說明書中，「重量」與「質量」、「重量%」與「質量%」、「重量份」與「質量份」係分別視為同義語。

又，本說明書中，「室溫」意指25°C。

【0013】本發明一實施形態之以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂，係由相對於總酸成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之對酞酸殘基與相對於總二醇成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之乙二醇殘基所構成的聚對苯二甲酸乙二酯樹脂；其特徵在於：(1)二乙二醇含有率為0.1質量%以上且未滿0.8質量%；(2)氮原子含有率為0.5質量ppm以上且15.0質量ppm以下；(3)亨特(Hunter)色調：b值為-10.0以上且未滿5.0。

【0014】本發明之目的在於提供廉價且機械特性或乾爽感優越的PET纖維原料。因此，再生聚酯樹脂必須由相對於總酸成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之對酞酸殘基所構成，以及由相對於總二醇成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之乙二醇殘基所構成。

【0015】由純度更高之PET纖維方面而言，對酞酸殘基之構成比例較佳為90莫耳%以上、更佳為95莫耳%以上、又更佳為98莫耳%以上、最佳為99.5莫耳%以上。同樣地，乙二醇殘基之構成比例較佳為90莫耳%以上、更佳為95莫耳%以上、又更佳為98莫耳%以上、最佳為99.5莫耳%以上。

【0016】本實施形態之再生聚酯樹脂係二乙二醇含有率為0.1質量%以上且未滿0.8質量%。二乙二醇含有率越低，若PET樹脂為高軟化點、

第5頁，共27頁(發明說明書)

高融點則耐熱性優越，故二乙二醇含有率必須未滿0.8質量%。由更加提升耐熱性方面而言，較佳為0.3質量%以下、更佳為0.2質量%以下。又，由於在使BHET進行聚縮合而獲得PET樹脂的過程中必定副產生出二乙二醇，故難以使其含有率成為未滿0.1質量%。

尚且，在由原始材料之對酞酸與乙二醇依常法且未特別經過精製步驟而製造PET樹脂的情況，係難以使二乙二醇含有率未滿0.8質量%。

**【0017】** 本實施形態之再生聚酯樹脂係氮原子含有率為0.5質量ppm以上且15.0質量ppm以下。氮原子係來自使用作為循環原料之布帛之著色成分者，較佳為胺構造或偶氮構造之構成原子。本發明闡明了尤其在含有二乙二醇未滿0.8質量%且含有氮原子0.5質量ppm以上的情況，可改善屬於PET樹脂缺點之一的結晶化速度遲緩。因此，氮原子含有率必須為0.5質量ppm以上；由進一步提升結晶化速度方面而言，較佳為2.0質量ppm以上、更佳為5.0質量ppm以上。另一方面，若氮原子含有率過剩，則PET樹脂之色調惡化，且纖維成形時成為缺陷而高速紡絲之難度變高，故氮原子含有率必須為15.0質量ppm以下；由進一步改善色調而言，較佳為10.0質量ppm以下。

上述氮原子含有率可例如使用三菱化學製微量氮分析裝置ND-100型進行測定。

**【0018】** 本實施形態之再生聚酯樹脂係亨特色調：b值為-10.0以上且未滿5.0。在纖維成形後進行編織加工並使用染料而經染色時，由抑制布帛之藍調變得較目標色調強的觀點而言，必須使再生聚酯樹脂之亨特色調：b值為-10.0以上。又，在纖維成形後進行編織加工並使用染料而經染色時，由抑制布帛之黃調變得較目標色調強的觀點而言，必須使再生聚酯樹脂之亨特色調：b值為未滿5.0、較佳為4.5以下、更佳為4.0以下、又

第6頁，共 27 頁(發明說明書)

更佳為3.5以下、最佳為3.0以下。尤其在纖維製品中，染色為黃色系統以外之顏色的製品係忌諱呈現黃色調，故對於容易呈現黃色的再生聚酯而言，特別重要的是使亨特色調：b值接近0。

【0019】本實施形態之再生聚酯樹脂較佳係亨特色調：L值為70.0以上且未滿85.0。於纖維成形後進行編織加工並使用染料染色為有彩色時，由抑制布帛之鮮豔度較目標色調不足的觀點而言，再生聚酯樹脂之亨特色調：L值較佳為70.0以上、更佳為73.0以上、又更佳為75.0以上、特佳為76.0以上、最佳為77.0以上。又，由於即使未特別添加螢光增白劑等情況下亦可使再生聚酯樹脂之亨特色調：L值為未滿85.0，故再生聚酯樹脂之亨特色調：L值較佳為未滿85.0。

【0020】本實施形態之再生聚酯樹脂較佳係亨特色調：a值為-2.0以上且2.0以下。於纖維成形後進行編織加工並使用染料染色時，由抑制布帛之綠調較目標色調強的觀點而言，再生聚酯樹脂之亨特色調：a值較佳為-2.0以上、更佳為-1.5以上。又，於纖維成形後進行編織加工並使用染料染色時，由抑制布帛之紅調較目標色調強的觀點而言，再生聚酯樹脂之亨特色調：a值較佳為2.0以下、更佳為0以下。

【0021】再生聚酯樹脂之亨特色調：L值、a值、b值係例如將再生聚酯樹脂之顆粒填充於高20mm之石英槽中，使用Suga試驗機製色差計SM彩色電腦型式SM-T45依穿透光模式進行測定。

【0022】本實施形態之再生聚酯樹脂較佳係依280°C等溫保持5分鐘，依100°C/分鐘以上之速度急冷至室溫後，使用示差掃描熱量計，依16°C/分鐘之升溫速度由20°C加熱至280°C時所觀察到之升溫結晶化溫度為140°C以上且未滿150°C。結晶化溫度越低，乾燥處理時之結晶化越迅速地進行，由可抑制樹脂顆粒彼此之固黏方面而言，升溫結晶化溫度較佳為

未滿150°C、更佳為147°C以下、又更佳為145°C以下。另一方面，升溫結晶化溫度為過度低溫時，表示樹脂中過剩地存在成為結晶核材之異物，於纖維成形時高速紡絲之難度變高，故升溫結晶化溫度較佳為140°C以上、更佳為143°C以上。

**【0023】** 本實施形態之再生聚酯樹脂較佳係依280°C等溫保持5分鐘後，於依16°C/分鐘之升溫速度冷卻時所觀察到之降溫結晶化溫度為高於190°C且205°C以下。降溫結晶化溫度越高，則使PET樹脂聚縮合後將熔融狀態之樹脂水冷固化為股線狀並加工為顆粒時，所產生之結晶量變越多，由可抑制乾燥處理時之樹脂顆粒彼此之固黏方面而言，降溫結晶化溫度較佳為高於190°C、更佳為193°C以上。另一方面，降溫結晶化溫度為過度高溫時，表示樹脂中過剩地存在成為結晶核材之異物，於纖維成形時高速紡絲之難度變高，故降溫結晶化溫度較佳為205°C以下、更佳為203°C以下、又更佳為200°C以下。

**【0024】** 本實施形態之再生聚酯樹脂較佳係依280°C等溫保持5分鐘，依100°C/分鐘以上之速度急冷至室溫後，使用示差掃描熱量計，依16°C/分鐘之升溫速度由20°C加熱至280°C時所觀察到之融點為253°C以上且258°C以下。由耐熱性之觀點而言，較佳係含有多量之二乙二醇或可與PET進行共聚合之二羧酸或二醇成分，而融點成為253°C以上。另一方面，由於在高純度聚對苯二甲酸乙二酯時，將融點設計為258°C以下並不困難，故融點較佳為258°C以下。

**【0025】** 本實施形態之再生聚酯樹脂亦可配合使用目的，作成為含有著色用之顏料或抗氧化劑等樹脂添加劑的再生聚酯組成物。例如，亦可含有氧化鈦粒子作為顏料，藉由含有氧化鈦粒子，於加工為衣料品時，可賦予防透性。作為抗氧化劑，可例示例如可廉價取得之[季戊四醇-肆(3-

(3,5-二第三丁基-4-羥基酚)丙酸酯)](BASF製IR1010(Irganox(註冊商標)1010))。

**【0026】** 本實施形態之再生聚酯樹脂較佳係藉由熔融成形作為瓶或薄膜、纖維等成形加工品而利用。尤其是將所回收之PET布帛再次加工為纖維製品，由消費者使用後再次回收，藉此可減低聚酯纖維製造時之石油使用量，或可減低廢衣料之焚化時之環境負擔，故特佳可例示使用作為纖維製品。惟，若為成形加工品則其用途並無限定。

**【0027】** 於製造本實施形態之再生聚酯樹脂時，使用為循環原料之布帛為著色PET(聚對苯二甲酸乙二酯)布帛。著色PET布帛中之著色成分為分散染料、陽離子染料或顏料，較佳係分散染料或陽離子染料。

**【0028】** 於製造本實施形態之再生聚酯樹脂時，著色PET布帛中之PET成分，作為共聚成分亦可含有對酞酸以外之二羧酸成分、或乙二醇(EG)以外之二醇成分。

**【0029】** 於製造本實施形態之再生聚酯樹脂時，作為對酞酸以外之二羧酸成分，亦可使異酞酸、萘二羧酸、4,4'-二苯基二羧酸、環己烷二羧酸、5-磺酸基異酞酸等之二羧酸及其酯形成性衍生物進行共聚合。由可使用陽離子染料方面而言，較佳可使用使5-磺酸基異酞酸之二羧酸或其酯形成性衍生物經共聚合者。

**【0030】** 於製造本實施形態之再生聚酯樹脂時，作為著色PET布帛中之PET成分，於使5-磺酸基異酞酸之二羧酸或其酯形成性衍生物進行共聚合的情況，由所得再生聚酯樹脂之色調優越方面而言，其共聚合量係相對於總二羧酸成分，較佳為0.06莫耳%以上且5.0莫耳%以下。作為上限值，由色調更優越而言，更佳為3.5莫耳%以下、又更佳為2.0莫耳%以下。

【0031】本實施形態中，著色PET布帛中之硫原子量係由所得再生聚酯樹脂之色調優越方面而言，相對於著色PET布帛100質量份，較佳為0.01質量份以上且0.83質量份以下；由色調更優越而言，更佳為0.59質量份以下、又更佳為0.33質量份以下。著色PET布帛中之硫原子含有係將著色布帛依260℃熔融成形為板狀後，使用理學電氣(股)製螢光X射線分析裝置(型號：3270)可進行測定。

【0032】於製造本實施形態之再生聚酯樹脂時，作為著色PET布帛中之EG以外的二醇成分，亦可使丙二醇、丁二醇、四亞甲基二醇、六亞甲基二醇、二乙二醇、環己烷二甲醇、新戊二醇、聚丙二醇等二醇化合物及其之酯形成性衍生物等進行共聚合。較佳係於總二醇成分中，EG佔80莫耳%以上。

【0033】作為本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法，由可提供色調、耐熱性、乾燥性優越之再生聚酯樹脂方面而言，適合使用下述獲得酯單體之方法：使用著色PET布帛獲得酯單體(BHET)的方法，其具有以下步驟(1)~(3)；

(1)使加熱EG對著色PET布帛接觸，萃取著色成分的步驟，其包含以下(a)及(b)之步驟；

(a)使EG蒸氣對著色PET布帛接觸的步驟；

(b)使185℃以上之加熱EG對著色PET布帛接觸的步驟；

(2)將著色成分萃取後之PET布帛藉由EG進行解聚合，作成含有酯單體之EG溶液的步驟；

(3)對含有酯單體之EG溶液進行精製，得到酯單體的精製步驟。

【0034】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，在對著色PET布帛進行解聚合而獲得酯單體前，由獲得色調優越之BHET及PET樹脂方面而言，較佳係具有使加熱EG接觸而事先萃取消色成分的步驟(1)。

【0035】作為著色成分之事先萃取步驟，係對著色PET布帛使加熱EG接觸的步驟；使加熱EG接觸的步驟係包含：(a)對著色PET布帛使EG蒸氣接觸的步驟；及(b)對著色PET布帛使185°C以上之加熱EG接觸的步驟。藉由使EG蒸氣接觸則著色PET布帛之PET纖維構造緩和，著色成分之萃取變得容易。藉由進一步與185°C以上之加熱EG接觸，由經緩和之PET纖維中萃取消色成分。

【0036】由著色成分之萃取容易度而言，加熱EG更佳為187°C以上。上限溫度並無規定，由可於常壓下實施的觀點而言，較佳為198°C以下、更佳為190°C以下。藉由應用此萃取步驟，除了可將再生聚酯樹脂中之氮原子含有率輕易控制於0.5質量ppm以上且15.0質量ppm以下的範圍，尚可將再生聚酯樹脂中之亨特色調：b值輕易控制為-10.0以上且未滿5.0的範圍。

【0037】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，可將(a)EG蒸氣之接觸與(b)185°C以上之加熱EG之接觸設為各別步驟而實施，較佳係(a)然後(b)之順序，但亦可同時實施。作為同時進行之方法，較佳係可對著色PET布帛經常地使純EG接觸、且亦可削減EG使用量的回流方法。

【0038】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，著色PET布帛之著色成分的萃取時間較佳為15分鐘以上、更佳為30分鐘以上、又更佳為60分鐘以上。上限時間係由防止著色PET布帛脆化方面而言，較佳為150分鐘以內。在未同時進行(a)與(b)情況下的時間分配，較佳係(a)與(b)之比率：(a)/(b)為1/9~5/5之範圍。

【0039】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，具有將著色成分萃取後之PET布帛藉由EG進行解聚合，作成含有酯單體之EG溶液的步驟(2)。解聚合係相對於PET布帛1質量份，添加2.0質量份以上且10.0質量份以下的EG，於常壓下，依190℃以上且210℃以下進行1.0小時以上且6.0小時以下。藉由進行解聚合，可得到含有酯單體(BHET)的EG溶液。

【0040】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，解聚合所添加之EG量若相對於PET布帛1質量份為未滿2.0質量份，則由於所得BHET之分子量變大，故其後所實施之精製步驟的產率惡化、效率降低。添加之EG量係相對於PET布帛1質量份，更佳為2.3質量份以上、又更佳為2.5質量份以上。又，即使EG添加大於10.0質量份，所得效果仍相同，故成本方面並不佳。由成本的觀點而言，更佳為8.0質量份以下、又更佳為6.0質量份以下。

【0041】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，解聚合之溫度較佳為190℃以上且210℃以下，依200℃以上實施時則可縮短解聚合時間，故更佳。又，由可有效率地進行解聚合方面而言，較佳係相對於BHET100質量%，依0.5質量%以上且2.0質量%以下之範圍添加氫氧化鈉、或碳酸鈉。

【0042】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，由可提供色調、耐熱性、乾燥性優越之再生聚酯樹脂方面而言，可適合使用下述BEHT精製法：對藉由解聚合而得之含有酯單體(BHET)之EG溶液進行精製而得到精製BHET的步驟，係僅包含以下步驟(A)~(D)。

(A)由解聚合後之含有BHET之EG溶液，將EG去除至成為0質量份以上且5質量份以下之範圍，並回收BHET的步驟；

(B)於實施(A)記載之步驟後，使回收BHET溶解於85°C以上且100°C以下之熱水中，進行熱過濾的步驟；

(C)於實施(B)記載之步驟後，將85°C以上且100°C以下之過濾溶液冷卻至30°C以下，使酯單體晶析並回收的步驟；

(D)於(B)及(C)之任一步驟內，於酯單體經溶解於熱水中之狀態進行活性炭處理或離子交換處理的步驟。

**【0043】** 尚且，離子交換處理係表示使對象溶液接觸離子交換膜或離子交換樹脂。

**【0044】** 本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，較佳係實施由解聚合後之BHET將EG去除至成為0質量%以上且5質量%以下之範圍的步驟(步驟(A))。若BHET中之EG多於5質量%，則其後實施之熱過濾步驟及晶析步驟中產率惡化，故不佳。

**【0045】** 作為由解聚合後之BHET去除EG的步驟，可使用以下任一方法。

第一為將藉由解聚合所得之BHET之EG溶液滴下至調整為20°C以下的水中，得到白濁溶液後，使用過濾器將含雜質之BHET回收的再沉澱步驟。水溫係由產率變高方面而言，較佳為15°C以下、更佳為10°C以下。

第二為將藉由解聚合所得EG溶液中所含之EG餾除，使其高濃度化的餾除步驟。

由所得再生聚酯樹脂之色調、耐熱性、乾燥性優越之方面而言，較佳係採用再沉澱步驟。

**【0046】** 本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，為了進行著色PET布帛中所含雜質(以氧化鈦為代表之金屬化合物，或以矽膠為代表之無機化合物等)的去除，較佳係採用熱水溶解步驟及熱過濾步驟(步驟

(B))。對藉由EG去除步驟所得之回收BHET滴下水，加熱至85°C以上且100°C以下，使其通過過濾器，藉此可得到溶解了BHET的透明之高溫水溶液。

【0047】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，較佳係具有：對過濾步驟後之透明高溫水溶液添加活性碳或離子交換膜、離子交換樹脂等吸附材，實施水溶液中之雜質去除的吸附步驟。亦即，較佳係具有於酯單體經溶解於熱水中之狀態進行活性碳處理或離子交換處理的步驟(步驟(D))。由不論著色成分構造均可吸附的觀點而言，更佳係活性碳處理步驟。又，在已知著色成分之大部分為來自陽離子染料的情況下，亦可適合採用離子交換處理。

【0048】於接觸至活性碳等時，適合使用使其通過填充了活性碳等之管柱、或對溶液直接添加活性碳等的方法。於使用管柱時，在例如使2.5%BHET水溶液進行通液時，由提升雜質去除率方面而言，通液時間較佳為10分鐘以上、更佳為30分鐘以上、最佳為60分鐘以上。另一方面，由BHET產率不惡化方面而言，通液時間較佳為180分鐘以內、更佳為120分鐘以內、最佳為90分鐘以內。

【0049】又，在將活性碳直接添加於溶液中，進行吸附處理60分鐘至90分鐘的情況，添加量係相對於BHET，依1質量%以上且65質量%以下之範圍添加。由提升雜質去除率而言，活性碳等之添加量更佳為3質量%以上、又更佳為5質量%以上、最佳為10質量%以上。又，由抑制BHET對活性碳之附著量、提升產率方面而言，活性碳等之添加量更佳為40質量%以下、又更佳為30質量%以下、最佳為20質量%以下。實施吸附處理後，使其通過過濾器，藉此可得到去除了雜質與活性碳等吸附材的透明之高溫水溶液，但視吸附材種類並非必須。

【0050】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，較佳係具有將吸附處理後之透明之高溫水溶液冷卻，使酯單體之固形份析出而進行固液分離的晶析步驟。具體而言，較佳係具有將85°C以上且100°C以下之過濾溶液冷卻至30°C以下，使酯單體晶析並回收的步驟(步驟(C))。

【0051】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，較佳係具有對上述晶析步驟前之透明之高溫水溶液進行上述活性碳處理或離子交換處理的步驟(步驟(D))。

【0052】尚且，上述進行活性碳處理或離子交換處理之步驟(步驟(D))較佳係於上述過濾步驟(步驟(B))及晶析步驟(步驟(C))任一步驟內進行。

【0053】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，藉由實施上述精製步驟，可獲得色調優越之高品質之酯單體(BHET)。將所得之高品質酯單體依公知之PET聚合法，於聚合觸媒存在下進行聚合，藉此可製造色調、耐熱性、乾燥性優越的高品質PET。

【0054】藉由本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法所得的酯單體中，作為著色分量之吸光強度可使用分光光度計進行評價，可使450~800nm之波長區域所觀測到之波峰面積為20以下。由吸光量越少，越得到高品質之BHET及PET樹脂的觀點而言，較佳為15以下、更佳為10以下、特佳為5以下、最佳為0.5以下。又，檢測下限值為0.1。

【0055】本實施形態之製造再生聚酯樹脂的方法中，使用分光光度計之吸光強度評價係如以下般進行。用於評價之樣本調製係於作成水與六氟異丙醇之混合溶媒(1:4)後，藉由混合溶媒作成BHET為10質量%的溶液，使用分光光度計、例如Hitachi High-Tech Science製分光光度計U3010，依波長掃描模式算出450~800nm之吸光強度的積分值。

第15頁，共 27 頁(發明說明書)

【0056】本發明亦提供使用本實施形態之再生聚酯樹脂而成的聚對苯二甲酸乙二酯成型品。例如，藉由將本實施形態之再生聚酯樹脂進行熔融成形而作成纖維，可提供適合使用於一般衣料用途、運動衣料用途、寢具用途、裝潢用途的聚對苯二甲酸乙二酯成型品。

[實施例]

【0057】以下表示實施例及比較例，進一步具體說明本發明。又，本發明並不限定於實施例及比較例。

【0058】

#### A. 布帛及BHET之色調分析

於MINOLTA製分光測色計CM-3700d型以黑色校正板為背景設置試料，測定色調L\*值及a\*值、b\*值。

【0059】

#### B. 著色成分含有量

作成水與六氟異丙醇(HFIP)之混合溶媒(1:4)，藉由此混合溶媒調製樣本濃度：10重量%之溶液。在樣本難以溶解時，則在混合溶媒作成之前使其溶解於HFIP後再添加水。

作成樣本溶液後，使用Hitachi High-Tech Science製分光光度計U3010，依波長掃描模式測定450~800nm之吸光光度，算出吸光強度之積分值(波長面積)。

【0060】

#### C. 著色布帛中之硫原子含量(S量)分析

著色布帛中之硫原子含量係在將著色布帛依260℃熔融成形為板狀後，使用理學電氣(股)製螢光X射線分析裝置(型號：3270)進行測定。

【0061】

#### D. 聚酯樹脂顆粒之色調分析

將顆粒填充於高20nm之石英槽中，使用Suga試驗機製色差計SM彩色電腦型式SM-T45依穿透光模式進行測定亨特色調：L值及a值、b值。

**【0062】**

#### E. 氮原子含量(N原子量)分析

再生聚酯樹脂中之氮原子含量係使用三菱化學製微量氮分析裝置ND-100型進行測定。將試料導入至裝置內進行熱分析、氧化，藉由化學發光法測定所生成之一氧化氮。設為電爐溫度：800℃(熱分解部分)/900℃(觸媒部分)、主要氧流量：300mL/分鐘、副氧流量：300mL/分鐘、氫流量：400mL/分鐘，根據使用吡啶標準液所作成之標準曲線進行定量。

**【0063】**

#### F. 二乙二醇(DEG)量分析

於再生聚酯樹脂中，以2-胺基乙醇作為溶通，加入屬於內部標準物質之1,6-己二醇依260℃進行分解。冷卻後，在加入甲醇後以酸進行中和，過濾析出物。對濾液藉由島津製作所製氣體層析儀GC-14B進行測定。

**【0064】**

#### G. 羧基末端基量分析

精秤再生聚酯樹脂0.5g，加入鄰甲酚40ml依90℃進行溶解，使用0.04N氫氧化鉀乙醇溶液進行滴定，以eq/ton為單位算出。重複此操作5次，算出將其單純平均值之小數點第1位四捨五入的值。

**【0065】**

#### H. 固有黏度(IV)分析

將再生聚酯樹脂溶解於鄰氯酚溶媒，調製0.5g/dL、0.2g/dL、0.1g/dL濃度之溶液。其後，藉由烏氏黏度計測定所得濃度C之溶液於25℃下的相

第17頁，共 27 頁(發明說明書)

對黏度( $\eta_r$ )，相對於C繪製 $(\eta_r-1)/C$ ，藉由將所得結果外插至濃度0，求得固有黏度。

### 【0066】

#### I. 結晶化溫度、融點分析

秤量再生聚酯樹脂約5mg，使用TA Instruments製示差掃描熱量計(DSC)Q2000型，測定升溫結晶化溫度、降溫結晶化溫度、融點。測定係對每1試料進行3次，以其平均值作為測定值。

尚且，升溫結晶化溫度係依280°C等溫保持5分鐘，其後立即將樣本取出至冷卻為室溫之鐵板上藉此依100°C/分鐘以上之速度急冷至室溫後，使用示差掃描熱量計，測定依16°C/分鐘之升溫速度由20°C加熱至280°C時所觀察到之溫度而得。

又，降溫結晶化溫度係依280°C等溫保持5分鐘後，測定於依16°C/分鐘之升溫速度冷卻時所觀察到之溫度而得。

### 【0067】

#### J. 乾燥性評價

將聚酯樹脂由熔融狀態進行急冷固化為直徑0.7mm以上且2.0mm以下之股線狀，將切割為高2.0mm以上且4.0mm以下之固柱狀之再生聚酯樹脂顆粒1.5g投入至內徑14mm之試驗管中。於此狀態，於空氣下依170°C實施結晶化處理30分鐘後，將顆粒冷卻至室溫。冷卻後，對試驗管加蓋橡膠栓並上下激烈振動混合5次後取出顆粒，計量彼此未接黏之未熔黏顆粒的重量，算出未熔黏顆粒相對於總重量的重量%。將算出值為35重量%以上且100重量%以下之顆粒之乾燥性設為「S」，將30重量%以上且未滿35重量%之顆粒之乾燥性設為「A」，將0重量%以上且未滿30重量%之顆粒之乾燥性設為「B」。

## 【0068】

## K. 共聚合聚酯之組成分析

聚酯組成物之組成(二碳/二醇成分之種類、共聚合量)分析係使用核磁共振裝置(NMR)之日本電子股份有限公司製「AL-400」，使用1,1,1,3,3,3-六氟-2-丙醇-D<sub>2</sub>(氘化HFIP)，依相對於重溶媒1mL、測定樣本為50mg之樣本濃度進行累積次數128次而可施行分析。確認到本發明記載之實施例所得之聚酯，係全部均由相對於總酸成分為95莫耳%以上且100莫耳%以下之對酞酸殘基與相對於總二醇成分為95莫耳%以上且100莫耳%以下之乙二醇殘基所構成。

## 【0069】

## (實施例1)

將含有氧化鈦0.3重量份之PET布帛，使用染料：TERASIL BLACK WW-KSN，依6%owf濃度進行染色(130℃、45分鐘)，將所得之黑色PET布帛裁斷為1cm正方。於2L之四口燒瓶中加入EG 1000g，並連接放入了經裁斷之黑色PET布帛15g的玻璃管。進而於所連接之玻璃管之上部連接戴氏(Dimroth)冷凝器。將EG之設定溫度設為210℃開始加熱，進行EG回流30分鐘，實施染料萃取。藉由戴氏凝器管所回流之液體EG之溫度為185℃。

將染料萃取後之PET布帛水洗後進行乾燥，於1L之三口燒瓶中加入10g，再添加EG 55g，進行攪拌。依EG溫度200℃、5.5小時實施解聚合。

解聚合溶液降低至100℃以下後，滴下至調整為10℃以下之500mL水中，得到白濁溶液。將所得白濁溶液藉由4  $\mu$  過濾器進行過濾，依固形份得到含有雜質的BHET。

將所得之含有雜質之BHET加入至95°C熱水中，再次使用1.6  $\mu$  過濾器實施過濾。對所得之透明濾液，添加相對於雜質BHET為10重量%的大阪氣體化學之活性碳，一邊加熱、一邊攪拌，1小時後使用1.0  $\mu$  過濾器去除活性碳。將所得透明濾液冷卻至20°C以下，使BHET晶析，進行固液分離，依固形份得到精製BHET。

以進行上述操作複數次而得之精製BHET 100g為原料，依250°C熔融後添加乙酸鈷四水合物與磷酸各0.005重量%、三氧化錒0.03重量%、氧化鈦粒子0.3重量%，一邊依290°C加熱攪拌、一邊餾除EG，藉此聚合得到固有黏度(IV)為0.65之PET。

#### 【0070】

(實施例2)

除了使用含有硫原子量0.83重量份、氧化鈦0.3重量份之共聚合了磺酸基異酞酸鈉(SSIA)的PET布帛，使用染料：Nichilon Black TR200%，依4%owf濃度進行染色(120°C、60分鐘)，將染料萃取時間設為150分鐘以外，其餘與實施例1同樣地實施。

#### 【0071】

(實施例3)

除了於實施例1將精製BHET進行聚合時，為了提高250°C下之熔融速度而追加添加EG 4.5g以外，其餘與實施例1同樣地實施。

#### 【0072】

(實施例4~6)

除了將實施例1之脫色步驟中之染料萃取條件與BHET精製時之吸附處理如表1記載般變更以外，其餘與實施例1同樣地實施。

#### 【0073】

## (實施例7)

除了減低實施例1記載之染色濃度而作成灰色質地，並將脫色步驟之染料萃取條件如表1記載般變更以外，其餘與實施例1同樣地實施。

**【0074】**

## (實施例8)

除了使用含有硫原子量0.01重量份、氧化鈦0.3重量份之共聚合了磺酸基異酞酸鈉的PET布帛以外，其餘與實施例1同樣地實施。

**【0075】**

## (實施例9)

除了使用含有硫原子量0.83重量份、氧化鈦0.3重量份之共聚合了磺酸基異酞酸鈉的PET布帛，使用染料：Nichilon Black TR200%，依4%owf濃度進行染色(120℃、60分鐘)，將染料萃取時間設為150分鐘，將精製處理時所使用之吸附材由活性碳變更為Organo股份有限公司製離子交換樹脂AMBERLITE IR120BH以外，其餘與實施例1同樣地實施。

**【0076】**

## (比較例1)

除了於實施例1中未實施解聚合前之染料萃取，於BHET精製處理時亦未實施活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例1同樣地實施。

比較例1係聚合物之亨特色調b值為5以上，其色調並不適合作為纖維用途。

**【0077】**

## (比較例2)

除了於實施例1中未對PET布帛進行染色而直接使用，於BHET精製處理時亦未實施活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例1同樣地實施。

比較例2係氮原子含有率未滿0.5質量ppm、乾燥性劣化。

**【0078】**

(比較例3)

除了於實施例2中未實施解聚合前之染料萃取，於BHET精製處理時亦未實施活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例2同樣地實施。

比較例3係聚合物之亨特色調b值為5以上，其色調並不適合作為纖維用途。

**【0079】**

(比較例4)

除了於實施例2中未對PET布帛進行染色而直接使用，於BHET精製處理時亦未實施活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例2同樣地實施。

比較例4係氮原子含有率未滿0.5質量ppm、乾燥性劣化。

**【0080】**

(比較例5)

除了於實施例1之解聚合前之染料萃取步驟中，將所裁斷之黑色PET布帛放入三口燒瓶中，於180°C之加熱EG中進行脫色，且於BHET精製處理時亦未實施活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例1同樣地實施。

比較例5係因變更了脫色方法，聚合物之色調惡化。

**【0081】**

(比較例6)

除了於實施例1之解聚合前之染料萃取步驟中，對裝入著色PET布帛之玻璃管未連接戴氏凝器管、而改為連接餾出管，並使EG蒸氣由連接於四口燒瓶之其他部分的戴氏管回流至燒瓶中，且於BHET精製處理時亦未實施活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例1同樣地實施。

比較例6係因變更了脫色方法，聚合物之色調惡化。

#### 【0082】

(比較例7、8)

除了將實施例1之染料萃取條件如表2記載般變更，於精製處理時亦未進行活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例1同樣地實施。

比較例7、8係聚合物之亨特色調b值為5以上，其色調並不適合作為纖維用途。

#### 【0083】

(比較例9)

除了於實施例8之精製處理時未進行活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例8同樣地實施。

比較例9係聚合物之亨特色調b值為5以上，其色調並不適合作為纖維用途。

#### 【0084】

(比較例10)

除了於實施例2之精製處理時未進行活性碳等吸附材之處理以外，其餘與實施例2同樣地實施。

比較例10係聚合物之亨特色調b值為5以上，其色調並不適合作為纖維用途。

#### 【0085】

(比較例11)

除了於實施例1將精製BHET進行聚合時，為了提高250°C下之熔融速度而追加添加EG 9.0g以外，其餘與實施例1同樣地實施。

比較例11係乙二醇含有率高於0.8重量%，耐熱性、乾燥性劣化。

**【0086】**

(比較例12)

使用以石油(石腦油)為起源之對酞酸與乙二醇，依公知方法經由酯化反應及聚縮合反應而聚合得到固有黏度(IV)0.65之PET。聚合時所使用之添加物係乙酸鈷四水合物與磷酸各0.005重量%、三氧化錒0.03重量%、氧化鈦粒子0.3重量%。

比較例12中由於由對酞酸與乙二醇經由酯化反應合成PET，故乙二醇含有率高於0.8重量%，耐熱性、乾燥性劣化。

【0087】 [表1]

		實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	實施例5	實施例6	實施例7	實施例8	實施例9	比較例1	比較例2		
布帛特徵	聚合物種類	PET	co-PET	PET	PET	PET	PET	PET	co-PET	co-PET	PET	PET		
	SSIA量	(mol%)	0.00	5.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.06	5.00	0.00	0.00		
	S量	(重量份)	0.00	0.83	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.83	0.00	0.00		
	顏色	-	黑	黑	黑	黑	黑	黑	灰	黑	黑	黑	白(未染色)	
	色調	L*	-	17.5	14.5	17.5	17.5	17.5	17.5	50.5	17.5	14.5	17.5	94.5
a*		-	0.0	0.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.5	0.0	3.0	
b*		-	-2.0	-1.5	-2.0	-2.0	-2.0	-2.0	3.0	-2.0	-1.5	-2.0	-12.0	
脫色步驟	脫色時間	分鐘	30	150	30	60	60	15	15	30	150	0	30	
	EG蒸氣	-	○	○	○	○	○	○	○	○	○	-	○	
	加熱EG溫度	℃	185	185	185	185	185	185	185	185	185	-	185	
BHET精製步驟	活性碳添加量	wt%	10	10	10	20	10	20	0	10	0	0	0	
	陽離子交換樹脂添加量	wt%	0	0	0	0	0	0	0	0	10	0	0	
BHET特徵	色調	L*	-	96.0	95.0	96.0	98.0	97.0	96.5	96.5	95.5	97.5	63.0	94.0
		a*	-	-0.5	-1.0	-0.5	-0.5	-0.5	-0.5	-0.5	-0.5	-0.5	5.5	0.5
		b*	-	1.5	2.0	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	19.0	1.0
	分光光度計波峰面積	-	0.5	0.4	0.5	0.2	0.3	0.4	0.4	0.5	0.3	30.0	0.1	
聚合物特徵	SSIA量	mol%	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
	N原子量	ppm	15.0	15.0	15.0	0.5	5.0	10.0	10.0	15.0	2.0	230.0	0.0	
	DEG量	wt%	0.2	0.2	0.7	0.2	0.2	0.2	0.3	0.2	0.3	0.3	0.2	
	COOH末端基量	eq/t	14	13	16	14	14	14	14	13	14	14	13	
	固有黏度(IV)	-	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	
	熱特性	升溫結晶化溫度	℃	143	143	149	148	147	145	144	144	148	135	151
		降溫結晶化溫度	℃	203	204	191	191	200	202	203	203	193	208	189
		融點	℃	255	255	254	255	255	255	255	255	255	255	255
		未熔黏率	%	46	45	30	32	37	41	43	45	35	55	29
		乾燥性評價	-	S	S	A	A	S	S	S	S	S	S	B
亨特色調	L	-	75.0	74.0	74.5	77.0	76.0	72.5	73.0	74.5	76.5	41.0	77.5	
	a	-	-1.5	-1.5	-1.0	-1.0	-1.0	-1.5	-1.5	-1.0	-1.5	13.0	-1.0	
	b	-	4.5	4.5	4.5	3.0	3.5	4.0	4.0	4.5	3.5	21.5	2.5	

【0088】 [表2]

			比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12		
布帛特徵	聚合物種類		co-PET	co-PET	PET	PET	PET	PET	co-PET	co-PET	PET	-		
	SSIA量		(mol%)	5.00	5.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.06	5.00	0.00	-	
	S量		(重量份)	0.83	0.83	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.83	0.00	-	
	顏色		-	黑	白(未染色)	黑	黑	黑	黑	黑	黑	黑	-	
	色調	L*	-	14.5	93.5	17.5	17.5	17.5	17.5	17.5	14.5	17.5	-	
		a*	-	0.5	-1.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	-	
b*		-	-1.5	4.5	-2.0	-2.0	-2.0	-2.0	-2.0	-1.5	-2.0	-		
脫色步驟	脫色時間		分鐘	0	150	30	30	30	60	30	150	30	-	
	EG蒸氣		-	-	○	-	○	○	○	○	○	○	-	
	加熱EG溫度		℃	-	185	180	-	185	185	185	185	185	-	
BHET精製步驟	活性炭添加量		wt%	0	0	0	0	0	0	0	0	10	-	
	陽離子交換樹脂添加量		wt%	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-	
BHET特徵	色調	L*	-	74.0	97.0	90.0	70.0	93.0	94.0	92.0	91.5	96.0	92.0	
		a*	-	-13.5	0.0	1.0	5.0	-2.0	-1.5	-2.0	-1.0	-0.5	-1.0	
		b*	-	-2.0	1.5	2.5	15.0	3.0	2.5	3.0	3.5	1.5	1.5	
	分光光度計波峰面積		-	50.0	0.1	5.0	28.0	3.0	1.5	3.0	3.0	0.5	0.1	
聚合物特徵	SSIA量		mol%	0	0	0	0	0	0	0	0	0		
	N原子量		ppm	380.0	0.0	40.0	220.0	30.0	20.0	30.0	20.0	15.0	0.0	
	DEG量		wt%	0.3	0.2	0.2	0.3	0.2	0.2	0.2	0.2	0.9	1.0	
	COOH末端基量		eq/t	15	14	13	14	15	15	14	13	19	20	
	固有黏度(IV)		-	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	0.65	
	熱特性	升溫結晶化溫度		℃	133	152	137	135	137	138	138	139	151	152
		降溫結晶化溫度		℃	210	185	210	208	208	206	208	206	188	179
		融點		℃	255	255	255	255	255	255	255	255	252	253
		未熔黏率		%	56	28	48	54	47	47	48	48	26	25
		乾燥性評價		-	S	B	S	S	S	S	S	S	B	B
	亨特色調	L		-	38.0	77.0	60.5	45.0	67.5	70.0	65.0	63.0	74.5	80.0
a		-	11.5	-1.5	0.5	12.0	0.0	-1.0	0.0	0.5	-1.0	-1.5		
b		-	17.5	2.0	9.5	20.0	7.0	6.5	7.5	6.0	4.5	1.5		

【0089】以上參照圖式說明了各種實施形態，但本發明並不限定於此等之例。對於本發明中具有通常知識者而言，當明白在申請專利範圍記載之範圍內可思及各種變更例或修正例，並了解該等亦屬於本發明之技術範圍內。又，在不脫離發明旨趣之範圍內，亦可將上述實施形態中之各構成要素任意組合。

【0090】尚且，本申請案係根據2022年3月15日提出申請之日本專利申請案(特願2022-039894)，將其內容引用於本申請案中作為參考。  
(產業上之可利用性)

【0091】本發明係以經回收之PET布帛為原料之色調優越的再生聚酯樹脂，相較於由原始原料所製造之PET樹脂，可得到耐熱性、乾燥性更優越的PET樹脂，藉由將其熔融成形作為纖維，可適合使用於一般衣料用途、運動衣料用途、寢具用途、裝潢用途。

## 【發明申請專利範圍】

【請求項1】 一種再生聚酯樹脂，係以著色PET布帛作為原料之再生聚酯樹脂，

其由相對於總酸成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之對酞酸殘基與相對於總二醇成分為88莫耳%以上且100莫耳%以下之乙二醇殘基所構成；並具有以下(1)~(3)之特徵；

(1) 乙二醇含有率為0.1質量%以上且未滿0.8質量%；

(2) 氮原子含有率為0.5質量ppm以上且15.0質量ppm以下；

(3) 亨特(Hunter)色調：b值為-10.0以上且未滿5.0。

【請求項2】 如請求項1之再生聚酯樹脂，其中，具有以下(4)及(5)之特徵；

(4) 亨特色調：L值為70.0以上且未滿85.0；

(5) 亨特色調：a值為-2.0以上且2.0以下。

【請求項3】 如請求項1之再生聚酯樹脂，其中，具有以下(6)及(7)之特徵；

(6) 依280°C等溫保持5分鐘，依100°C/分鐘以上之速度急冷至室溫後，使用示差掃描熱量計，依16°C/分鐘之升溫速度由20°C加熱至280°C時所觀察到之升溫結晶化溫度為140°C以上且未滿150°C；

(7) 依280°C等溫保持5分鐘後，於依16°C/分鐘之升溫速度冷卻時所觀察到之降溫結晶化溫度為高於190°C且205°C以下。

【請求項4】 一種聚對苯二甲酸乙二酯成型品，係使用請求項1或3之再生聚酯樹脂而成。

【請求項5】 一種獲得酯單體之方法，係使用著色PET布帛獲得酯單體的方法，其係具有以下步驟(1)~(3)；

(1)使加熱EG對著色PET布帛接觸，萃取著色成分的步驟，其包含以下(a)及(b)之步驟；

(a)使EG蒸氣對著色PET布帛接觸的步驟；

(b)使185°C以上之加熱EG對著色PET布帛接觸的步驟；

(2)將著色成分萃取後之PET布帛藉由EG進行解聚合，作成含有酯單體之EG溶液的步驟；

(3)對含有酯單體之EG溶液進行精製，得到酯單體的精製步驟。

**【請求項6】** 如請求項5之獲得酯單體之方法，其中，對藉由解聚合而得之含有酯單體(BHET)之EG溶液進行精製而得到精製BHET的步驟，係僅包含以下步驟(A)~(D)；

(A)由解聚合後之含有BHET之EG溶液，將EG去除至成為0質量%以上且5質量%以下之範圍，並回收BHET的步驟；

(B)於實施(A)記載之步驟後，使回收BHET溶解於85°C以上且100°C以下之熱水中，進行熱過濾的步驟；

(C)於實施(B)記載之步驟後，將85°C以上且100°C以下之過濾溶液冷卻至30°C以下，使酯單體晶析並回收的步驟；

(D)於(B)及(C)之任一步驟內，於酯單體經溶解於熱水中之狀態進行活性碳處理或離子交換處理的步驟。

**【請求項7】** 如請求項5或6之獲得酯單體之方法，其中，所得酯單體中之著色分量，係以分光光度計於450~800nm之範圍觀測到之波峰面積為20以下。

**【請求項8】** 如請求項5或6之獲得酯單體之方法，其中，對著色成分萃取後之PET布帛，藉由相對於PET布帛1質量份為2.0質量份以上且10.0質量份以下之EG進行解聚合。

【請求項9】 如請求項5或6之獲得酯單體之方法，其中，著色PET布帛100質量份中所含之硫原子量為0.01質量份以上且0.83質量份以下。