



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) DE 697 37 259 T2 2007.05.31

(12)

## Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) EP 0 882 083 B1

(21) Deutsches Aktenzeichen: 697 37 259.6

(86) PCT-Aktenzeichen: PCT/US97/02436

(96) Europäisches Aktenzeichen: 97 905 990.4

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: WO 1997/030102

(86) PCT-Anmeldetag: 14.02.1997

(87) Veröffentlichungstag

der PCT-Anmeldung: 21.08.1997

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: 09.12.1998

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: 17.01.2007

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: 31.05.2007

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: C08G 63/86 (2006.01)

C08G 63/85 (2006.01)

C08G 63/199 (2006.01)

C08K 3/32 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

604047 20.02.1996 US

(84) Benannte Vertragsstaaten:

DE, FR, GB

(73) Patentinhaber:

Eastman Chemical Co., Kingsport, Tenn., US

(72) Erfinder:

ADAMS, Sue, Valerie, Gray, TN 37615, US;

HATAWAY, Earl, James, Kingsport, TN 37660, US;

ROBERTS, Alan, Kenneth, Gray, TN 37615, US

(74) Vertreter:

WUESTHOFF & WUESTHOFF Patent- und  
Rechtsanwälte, 81541 München

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON COPOLYESTERN AUS TEREPHTHALSAURE, ETHYLEN-GLYCOL UND 1,4-CYCLOHEXANEDIMETHANOL MIT NEUTRALEM FARBTON, HOHER KLARHEIT UND ERHÖHTER HELLIGKEIT

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingeleitet, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

**Beschreibung****Gebiet der Erfindung**

**[0001]** Diese Erfindung betrifft ein dreistufiges Verfahren zur Herstellung von Copolyestern von Terephthalsäure, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol, welches ein Produkt mit einer neutralen Färbung, hoher Klarheit und erhöhter Helligkeit liefert.

**Hintergrund der Erfindung**

**[0002]** Poly(1,4-cyclohexandimethylenterephthalat) und insbesondere Copolyester davon, welche 30 bis 90 Molprozent Ethylenglycol enthalten, sind wichtige kommerzielle Polyester, die bei der Herstellung von Kunststoffartikeln wie z.B. Verpackungsmaterialien, Formgegenständen und Folien verwendet werden. Das Herstellungsverfahren, welches historisch bei der Synthese dieser Copolyester benutzt wird, beinhaltet eine anfängliche Esteraustauschreaktion, wobei Dimethylterephthalat, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol in der Gegenwart eines geeigneten Katalysators unter Entfernung des Nebenprodukts Methanol umgesetzt werden. Das Produkt dieser Reaktion wird unter verminderterem Druck und hohen Temperaturen polykondensiert, um das Endprodukt herzustellen.

**[0003]** Eine Schwierigkeit, die bei der Herstellung dieser Copolyester angetroffen wird, ist der Erhalt eines Produkts mit einer neutralen Färbung anstelle einer leicht gelblichen Tönung. Für Anwendungen, bei welchen diese Polymere zu Gegenständen in Form von dicken Platten geformt werden, ist die gelbliche Tönung besonders unangenehm. Eine neutrale Färbung mit einem glasartigen Erscheinungsbild ist in hohem Maße wünschenswert. Es ist ebenfalls ökonomisch wünschenswert, diese Copolyester unter Verwendung von Terephthalsäure anstelle von Dimethylterephthalat zu produzieren.

**[0004]** Versuche, solche Copolyester mit Terephthalsäure nach Lehren des Standes der Technik in Bezug auf die Bedingungen für die Veresterungsreaktion herzustellen, führen jedoch zu einem Veresterungsprodukt mit anschließend verminderter Aktivität bei der Polykondensation. Die verminderte Aktivität wird beobachtet, wenn die Polykondensationsreaktion ausgehend von einem Esteraustauschprodukt, das unter Verwendung von Dimethylterephthalat als Reaktand anstelle von Terephthalsäure hergestellt wurde, verglichen wird.

**[0005]** Das U.S.-Patent Nr. 4,020,049 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von linearen Polyester aus einer Dicarbonsäure und Glycolen. Beschickungsmolverhältnisse von Glycol zu Dicarbonsäure von 1,05:1 bis 1,7:1 werden für die Veresterungsreaktion angegeben. Das U.S.-Patent Nr. 4,020,049 ist nicht relevant für das Verfahren der vorliegenden Erfindung, da es die Verwendung von niedrigeren Beschickungsmolverhältnissen von Glycol zu Dicarbonsäure lehrt, die zu einer verringerten Polykondensationsaktivität bei Copolyestern von Poly(1,4-cyclohexandimethylenterephthalat), welche 30 bis 90 Molprozent Ethylenglycol enthalten, führen.

**[0006]** Das U.S.-Patent Nr. 5,198,530 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Polyester durch Veresterung von Terephthalsäure mit 1,4-Cyclohexandimethanol. Das Verfahren verwendet bei der Veresterungsreaktion Beschickungsmolverhältnisse von Glycol zu Dicarbonsäure von 1,0:1 bis 1,5:1 und erfordert eine geteilte Beschickung von Glycol in den Veresterungsreaktor zusammen mit einem Katalysator. Zusätzlich betrifft das U.S.-Patent Nr. 5,198,530 nur Copolyester mit wenigstens 80 Mol-% 1,4-Cyclohexandimethylenterephthalat-Einheiten. Das U.S.-Patent Nr. 5,198,530 ist nicht einschlägig für das Verfahren der vorliegenden Erfindung, wo Copolyester mit hohem Molekulargewicht produziert werden, wobei 30 bis 90 Mol-% Ethylenglycol als ein Coglycol zusammen mit höheren Beschickungsmolverhältnissen von Glycol zu Dicarbonsäure verwendet werden und wo kein Katalysator zur Veresterung benötigt wird.

**Zusammenfassung der Erfindung**

**[0007]** Diese Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Copolyestern aus Terephthalsäure, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol mit 30 bis 90 Molprozent Ethylenglycol in der Glycolkomponente, welche durch eine neutrale Färbung, hohe Klarheit und erhöhte Helligkeit gekennzeichnet sind. Das Verfahren umfasst die folgenden Schritte:

- (1) Umsetzen von Terephthalsäure, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol in einem Beschickungsmolverhältnis von Glycolen insgesamt zu Dicarbonsäure von 1,7:1 bis 6,0:1 bei einer Temperatur von 240°C bis 280°C und einem Druck von 15 psig (200 kPa) bis 80 psig (650 kPa) für 100 bis 300 Minuten, um ein Veresterungsprodukt zu bilden;
- (2) Zugeben eines Polykondensationskatalysators und 0,1 bis 40 ppm eines Toners zu dem Veresterungs-

produkt von Schritt (1), wobei der Polykondensationskatalysator ausgewählt wird aus der Gruppe, bestehend aus Titan, Germanium und Kombinationen von diesen; und  
 (3) Polykondensieren des Produkts von Schritt (2) bei einer Temperatur von 260°C bis 290°C und einem verminderten Druck von 400 mm Hg (50 kPa) bis 0,1 mm Hg (0,01 kPa) für eine ausreichende Zeit, um einen Copolyester mit einer inhärenten Viskosität von wenigstens 0,50 dL/g zu bilden;  
 wobei das Verfahren das Zugeben von 10 bis 100 ppm eines Phosphorstabilisators in Schritt (2) oder in Schritt (3) umfasst.

#### Beschreibung der Erfindung

**[0008]** Das Verfahren der vorliegenden Erfindung ist ein dreistufiges Verfahren zur Herstellung von Copolyestern von Terephthalsäure, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol mit 30 bis 90 Molprozent Ethylenglycol in der Glycolkomponente, bezogen auf 100 Molprozent Dicarbonsäure und 100 Molprozent Glycol. Insbesondere sorgt die Erfindung für ein verbessertes Verfahren zur Durchführung der Veresterungsreaktion, die zu einem Veresterungsprodukt mit verbesserter Aktivität bei der anschließenden Polykondensationsreaktion führt. Die verbesserte Aktivität bei dem Veresterungsprodukt liefert ein Mittel zur anschließenden Verringerung der Katalysatorkonzentrationen, Zunahmen bei den Stabilisatorkonzentrationen und Verringerungen bei den Polykondensationstemperaturen, was zu einem Copolyesterprodukt mit hohem Molekulargewicht mit einer neutralen Färbung, hohen Klarheit und erhöhten Helligkeit führt.

**[0009]** In dem Schritt (1) werden Terephthalsäure, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol in einem Beischickungsmolverhältnis von Glycolen insgesamt zu Dicarbonsäure von 1,7:1 bis 6,0:1 umgesetzt, um ein Veresterungsprodukt zu bilden. Vorzugsweise beträgt das Beischickungsmolverhältnis 2,0:1 bis 4,5:1. Das 1,4-Cyclohexandimethanol kann entweder ein cis- oder trans-Isomer oder eine Mischung der zwei Isomere sein. Das 1,4-Cyclohexandimethanol wird in einer Menge zugegeben, die ungefähr den Molprozent entspricht, die in dem endgültigen Copolyesterprodukt gewünscht werden, und das überschüssige Glycol in dem Beischickungsmaterial der Reaktanden ist Ethylenglycol.

**[0010]** Die Dicarbonsäurekomponente, welche Terephthalsäure enthält, kann gegebenenfalls mit bis zu 10 Molprozent einer anderen Dicarbonsäure modifiziert sein. Fakultative Dicarbonsäuren umfassen aromatische Dicarbonsäuren, die vorzugsweise 8 bis 14 Kohlenstoffatome aufweisen, aliphatische Dicarbonsäuren, die vorzugsweise 4 bis 12 Kohlenstoffatome aufweisen, und cycloaliphatische Dicarbonsäuren, die vorzugsweise 8 bis 12 Kohlenstoffatome aufweisen. Kombinationen von Dicarbonsäuren können ebenfalls verwendet werden. Spezielle Beispiele für Dicarbonsäuren außer Terephthalsäure sind Isophthalsäure, Naphthalindicarbonsäure, Cyclohexadicarbonsäure, Stilbendicarbonsäure, Bernsteinsäure, Glutarsäure, Adipinsäure und Azelainsäure.

**[0011]** Die Glycolkomponente, welche Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol enthält, kann gegebenenfalls mit bis zu 10 Molprozent eines zusätzlichen Glycols modifiziert sein. Solche zusätzlichen Glycole umfassen cycloaliphatische Glycole, die vorzugsweise 6 bis 20 Kohlenstoffatome aufweisen, aliphatische Glycole, die vorzugsweise 3 bis 20 Kohlenstoffatome aufweisen, und Kombinationen von diesen. Spezielle Glycole außer Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol sind 1,2-Propandiol, Neopentylglycol, 1,4-Butandiol, 1,5-Pentandiol und 1,6-Hexandiol.

**[0012]** Die Copolyester dieser Erfindung können ebenfalls kleine Mengen an trifunktionalen oder tetrafunktionalen Comonomeren wie z.B. Trimellithsäureanhydrid, Trimethylolpropan und Pentaerythritol enthalten.

**[0013]** Die Veresterungsreaktion in Schritt (1) wird bei einer Temperatur von 240°C bis 280°C und einem Druck von 15 psig (200 kPa) bis 80 psig (650 kPa) durchgeführt. Vorzugsweise wird die Veresterungsreaktion bei einer Temperatur von 240°C bis 260°C, insbesondere 245°C bis 255°C durchgeführt. Vorzugsweise wird die Veresterungsreaktion bei einem Druck von 20 psig (240 kPa) bis 50 psig (450 kPa) durchgeführt. Die Reaktionszeiten für den Veresterungsschritt (1) variieren von 100 bis 300 Minuten und sind von den ausgewählten Temperaturen, Drucken und Beischickungsmolverhältnissen von Glycol zu Dicarbonsäure abhängig. Es werden keine Katalysatoren für die Veresterungsreaktion benötigt.

**[0014]** Die Veresterungsreaktion kann diskontinuierlich oder in einer Reihe von kontinuierlichen Reaktoren durchgeführt werden. Die Reaktanden werden vorzugsweise als eine Aufschämmung der Terephthalsäure in den Glycolen in den Veresterungsreaktor eingeführt, auch wenn eine getrennte Zugabe jedes Reaktanden ebenfalls verwendet werden kann.

**[0015]** Die Veresterungsreaktion führt, wenn sie gemäß den spezifizierten Reaktionsparametern durchgeführt wird, zu einem Veresterungsprodukt mit erhöhter Polykondensationsaktivität. Die Verwendung von Beschickungsmolverhältnissen, die niedriger sind als die spezifizierten, führt zu einem Veresterungsprodukt mit verminderter Aktivität bei der nachfolgenden Polykondensationsreaktion. Die erhöhte Polykondensationsaktivität des Veresterungsprodukts erlaubt, wenn dieses mit Beschickungsmolverhältnissen in dem spezifizierten Bereich hergestellt wird, die Verwendung von niedrigeren Katalysatormengen und mildereren Temperaturen bei der nachfolgenden Polykondensationsreaktion.

**[0016]** In Schritt (2) werden ein Polykondensationskatalysator und ein Toner zu dem Veresterungsprodukt von Schritt (1) zugegeben. Der Polykondensationskatalysator wird ausgewählt aus Titan und Germanium. Kombinationen von Polykondensationskatalysatoren können ebenfalls verwendet werden. Titan wird gewöhnlich in der Form eines Alkoxids zugegeben. Beispiele für Titanverbindungen, welche verwendet werden können, sind Acetyltrisopropyltitannat, Tetraisopropyltitannat und Tetraisobutyltitannat. Germanium kann in der Form von Oxiden, organischen Salzen und Glycolaten vorliegen. Der bevorzugte Polykondensationskatalysator ist Titan, welches in einer Menge von 10 bis 60 ppm in der Form eines Alkoxids zugegeben wird. Die Konzentration des Polykondensationskatalysators hängt mit der gewünschten Farbe des Produkts wie auch dem Typ und der Menge der Stabilisatoren und Toner zusammen, welche verwendet werden, um eine gelbe Farbe zu verzögern oder zu maskieren. Für eine optimale Farbtönung, Klarheit und Helligkeit wird Titan in einer Menge von 12 bis 25 ppm zugegeben.

**[0017]** Ein Phosphorstabilisator wird in Schritt (2) oder während der Polykondensationsreaktion in Schritt (3) zugegeben. Der Phosphorstabilisator wird in einer Menge von 10 bis 100 ppm, vorzugsweise 40 ppm bis 70 ppm zugegeben. Bevorzugte Phosphorstabilisatoren sind Phosphorsäure oder Alkylester von dieser, Diethylsäurephosphat und Trioctylphosphat. Noch bevorzugter ist der Phosphorstabilisator Phosphorsäure.

**[0018]** Ein Toner wird in einer Menge von 0,1 bis 40 ppm in Schritt (2) zugegeben, um die neutralen Farbcharakteristika der durch das vorliegende Verfahren hergestellten Copolyester zu verbessern. Wie hierin verwendet umfasst der Begriff „Toner“ organische Pigmente und anorganische Pigmente. Die gegenwärtigen Erfinder haben festgestellt, dass die Verwendung von mehr als 40 ppm eines Toners dem Copolyester jedoch eine graue Farbe verleiht und die Klarheit des Copolyesters verringert. Die Verwendung des Veresterungsprodukts, das gemäß dem Verfahren dieser Erfindung hergestellt wurde, zusammen mit niedrigen Katalysatorkonzentrationen, erniedrigten Polykondensationstemperaturen und höheren Phosphorspiegeln erlaubt die Produktion eines Polyesterprodukts mit weniger inhärenter Gelbfärbung. Dieses erlaubt die Verwendung niedriger Spiegel eines Toners, um die gewünschte neutrale Färbung zu erreichen, und führt zu einem Copolyester, welcher eine hohe Klarheit und Helligkeit zeigt, wenn dieser zu Formgegenständen und einer dicken Platte geformt wird.

**[0019]** Ein bevorzugter anorganischer Toner ist Kobalt, welches in der Form eines organischen Säuresalzes wie z.B. Kobaltacetat oder Kobaltpropionat zugegeben werden kann. Alternativ können thermisch stabile organische gefärbte Verbindungen mit reaktiven Gruppen, die eine Einarbeitung in die Copolyesterkette erlauben, als Toner verwendet werden. Beispiele für geeignete organische Tonersysteme, in welchen thermisch stabile gefärbte Verbindungen mit reaktiven Stellen in einen Polyester eingearbeitet werden, um die Färbung des Polyesters zu verbessern, wie z.B. gewisse blaue und rote substituierte Anthrachinone, werden in den U.S.-Patenten Nr. 5,384,377; 5,372,864; 5,340,910 und 4,745,174 offenbart, auf welche hierdurch im Hinblick auf ihre organischen Tonersysteme vollinhaltlich Bezug genommen wird.

**[0020]** In Schritt (3) durchläuft das Produkt aus Schritt (2) eine Polykondensationsreaktion für eine hinreichen-de Zeit, um einen Copolyester mit einer inhärenten Viskosität von wenigstens 0,50 dL/g zu bilden. Die Polykondensationsreaktion wird bei einer Temperatur von 260°C bis 290°C, vorzugsweise 270°C bis 280°C, durchgeführt. Die Polykondensationsreaktion wird unter einem verminderten Druck von 400 mm Hg (50 kPa) bis 0,1 mm Hg (0,01 kPa) durchgeführt, und das Nebenprodukt Glycol wird entfernt, sobald es entsteht.

**[0021]** Das Molekulargewicht des Copolyesters wird durch ein Maß der inhärenten Viskosität der Lösung (I.V.) angegeben, welche bei 25°C gemessen wird, indem 250 mg des Copolyesters in 50 ml eines Lösungsmittels bestehend aus einem 60/40 Gewichtsverhältnis von Phenol und Tetrachlorethan gelöst werden. Die Copolyester dieser Erfindung haben eine inhärente Viskosität von 0,5 bis 0,9 dL/g, vorzugsweise 0,7 bis 0,8 dL/g.

**[0022]** Die folgenden Beispiele sollen diese Erfindung veranschaulichen, den Umfang aber nicht beschränken. Alle Teile und Prozentsätze in den Beispielen beruhen auf einer Gewichtsbasis, sofern nichts anderes angegeben ist.

## Beispiel 1

**[0023]** Veresterungsprodukte wurden hergestellt, indem Ethylenglycol (EG), Terephthalsäure (TPA) und destilliertes Cyclohexandimethanol (CHDM) verwendet wurden, wobei der CHDM-Gehalt des Copolyesters 31 Molprozent des gesamten Glycolgehalts betrug. Das Molverhältnis von Glycolen insgesamt (EG + CHDM) zu TPA betrug entweder 1,7:1 oder 1,4:1, mit dem Überschuss als EG. Die Veresterung wurde bei 40 psig (380 kPa) durchgeführt, wobei ein diskontinuierlicher Sechsmol-Laborreaktor verwendet wurde, welcher mit einer Wassersäule ausgerüstet war, um den erzeugten Wasserdampf zu entfernen. Der Reaktor wurde erwärmt, und die Temperatur wurde langsam auf 240°C steigen gelassen, wo die Veresterungsreaktion begann und der Wasserdampf abdestillierte. Der Abschluss der Reaktion wurde durch eine Abnahme bei der Temperatur der Wassersäule angezeigt.

**[0024]** Zwei Veresterungsprodukte wurden bei einem Beschickungsmolverhältnis von 1,7:1 hergestellt. Eines der Veresterungsprodukte wurde bei einer Temperatur von 240°C hergestellt, und die Veresterung benötigte 180 Minuten, um vollständig zu sein. Bei einer höheren Durchschnittstemperatur von 255°C war die Veresterungsreaktion in 100 Minuten abgeschlossen.

**[0025]** Zwei Veresterungsprodukte wurden bei einem Beschickungsmolverhältnis von 1,4:1 hergestellt. Bei der niedrigsten Temperatur von 240°C benötigte die Veresterung 240 Minuten, um vollständig zu sein. Bei einer höheren durchschnittlichen Temperatur von 255°C war die Veresterungsreaktion in 120 Minuten abgeschlossen.

**[0026]** Nach Abschluss der Veresterungsreaktion wurde das Produkt bei 282°C polymerisiert, wobei 38 ppm Titan, 28 ppm Kobalt und 40 ppm Phosphor verwendet wurden. Die Polykondensationsreaktoren waren mit einem Rührer, Seitenarm, Stickstoffeinlass und Wärmequelle ausgerüstet. Nach einem Schmelzen bei 225°C wurde die Temperatur bei 2°C/min auf 282°C erhöht. Die Polykondensationsreaktionen fanden unter einem verminderten Druck von < 0,5 mm Hg (0,07 kPa) bei einer Rührgeschwindigkeit von 50 UpM statt. Die Testergebnisse sind in Tabelle I zusammengefasst.

TABELLE I

Diskontinuierliche Veresterung			Labormäßige Polykondensation	
Beschickungs- molverhältnis	Temperatur °C	Druck psig (kPa)	Zeit Minuten	IV
1,7:1	240	40 (380)	55	0,782
1,7:1	255	40 (380)	55	0,741
1,4:1	240	40 (380)	95	0,742
1,4:1	255	40 (380)	95	0,765

**[0027]** Die Ergebnisse in Tabelle I zeigen deutlich die erhöhte Polykondensationsaktivität bei den Veresterungsprodukten, die mit dem höheren Beschickungsmolverhältnis hergestellt wurden. Die Veresterungsprodukte, die mit einem Beschickungsmolverhältnis von 1,7:1 erzeugt wurden, erreichten eine I.V. von 0,72 dL/g bis 0,78 dL/g innerhalb von 50 bis 55 Minuten bei 282°C. Die Veresterungsprodukte, die mit einem Beschickungsmolverhältnis von 1,4:1 erzeugt wurden, benötigten 90 bis 95 Minuten bei 282°C, um eine I.V. von 0,72 bis 0,78 dL/g zu erreichen.

## Beispiel 2

**[0028]** Veresterungsprodukte wurden hergestellt, indem Ethylenglycol, Terephthalsäure und destilliertes Cyclohexandimethanol verwendet wurden, wobei der Cyclohexandimethanolgehalt des Copolyesters 31 Mol-% der Glycole insgesamt betrug. Die Veresterungsreaktion wurde in zwei kontinuierlichen Reaktoren, die in Reihe verbunden waren (R1 und R2), durchgeführt. Ein dritter Reaktor wurde als ein Verdampfungstank zum Sammeln des Veresterungsprodukts verwendet. Das Beschickungsmolverhältnis von Glycolen insgesamt zu Terephthalsäure wurde von 2,0:1 bis 1,3:1 variiert, mit dem Überschuss als Ethylenglycol. Die Veresterungsdauer wurde variiert, indem die Beschickungsfließgeschwindigkeit der Aufschämmung in R1 eingestellt wurde. Die Reaktoren mit festem Volumen wiesen ungefähr ein Volumenverhältnis von 2:1 mit 2230 ml in R1 und 1100 ml in R2 auf.

**[0029]** Die Beschickungsfließgeschwindigkeit wurde von 10 bis 19 ml/min variiert, so dass die gesamte Veresterungsdauer von 180 bis 360 Minuten variierte. Die Temperatur des ersten Veresterungsreaktors (R1) wurde von 245°C bis 260°C variiert, und der Druck wurde bei 37 psig (360 kPa) gehalten. Die Temperatur des zweiten Veresterungsreaktors (R2) wurde von 245°C bis 267°C variiert, und der Druck wurde von 10 bis 27 psig (170 bis 290 kPa) variiert.

**[0030]** Das Veresterungsprodukt wurde gesammelt und in diskontinuierlichen Laborreaktoren in Portionen von einem halben Mol polymerisiert. Die Reaktoren waren mit einem Rührer, Seitenarm, Stickstoffeinflass und Wärmequelle ausgerüstet. Das Katalysatorsystem war 48 ppm Titan und 31 ppm Phosphor. Nach zehn Minuten bei 225°C wurde die Temperatur bei 2°/min auf 282°C erhöht. Die Polykondensationsreaktionen fanden unter einem verminderten Druck von < 0,5 mm Hg (0,07 kPa) bei einer Rührgeschwindigkeit bei 50 UpM statt. Jedes Veresterungsprodukt wurde für 60 Minuten polymerisiert. Die Testergebnisse sind in Tabelle II zusammengefasst.

TABELLE II

Beschickungs- molverhältnis	Kontinuierliche Veresterung				Labormäßige Polykondensation		
	Temperatur °C		Druck psig (kPa)		Zeit Minuten	Zeit Minuten	IV
	R1	R2	R1	R2			
2,0:1	245	250	37 (360)	27 (290)	180	60	0,756
2,0:1	260	270	37 (360)	27 (290)	180	60	0,738
2,0:1	245	250	37 (360)	27 (290)	320	60	0,731
1,8:1	245	250	37 (360)	27 (290)	180	60	0,738
1,8:1	245	250	37 (360)	10 (170)	180	60	0,700
1,3:1	245	250	37 (360)	10 (170)	180	100	0,232

**[0031]** Die Ergebnisse in Tabelle II zeigen deutlich die erhöhte Polykondensationsaktivität bei den Veresterungsprodukten, die mit dem höheren Beschickungsmolverhältnis hergestellt wurden, und die erhöhte Polykondensationsaktivität bei niedrigeren Temperaturen und kürzeren Veresterungszeiten. Das Veresterungsprodukt mit der höchsten Polykondensationsaktivität, welche durch eine höhere LV. angegeben wird, wurde produziert, indem das höchste Beschickungsmolverhältnis von 2,0:1, niedrige Veresterungstemperaturen und 180 Minuten Gesamtveresterungsdauer verwendet wurden. Ein Erhöhen der Veresterungstemperaturen, während ein Beschickungsmolverhältnis von 2,0:1 beibehalten wurde, erniedrigte die Polykondensationsaktivität des Veresterungsprodukts. Ein Erhöhen der Veresterungsreaktionsdauer von 180 auf 320 Minuten, während ein Beschickungsmolverhältnis von 2,0:1 beibehalten wurde, erniedrigte ebenfalls die Polykondensationsaktivität. Ein Erniedrigen des Beschickungsmol[verhältnisses] auf 1,8:1 verminderte die Polykondensationsaktivität, und ein Erniedrigen des Druckes in dem zweiten Veresterungsreaktor verminderte die Polykondensationsaktivität weiter. Veresterungsprodukte, die mit einem Beschickungsmolverhältnis von 1,3:1 produziert wurden, waren mit einer LV. von weniger als 0,7, die nach 100 Minuten Polykondensationsdauer erreicht wurde, bei der Polykondensation inaktiv.

## Beispiel 3

**[0032]** Veresterungsprodukte wurden hergestellt mit verschiedenen 1,4-Cyclohexandimethanol (CHDM)-Zusammensetzungen, wobei eine Aufschlammungsbeschickung von Ethylenglycol (EG), Terephthalsäure (TPA) und 1,4-Cyclohexandimethanol (CHDM) verwendet wurde, wobei der CHDM-Gehalt des Copolyesters entweder 12 Molprozent oder 62 Molprozent des Gesamtglycolgehalts betrug. Die Veresterungsreaktionen wurden wie in Beispiel 2 beschrieben durchgeführt. Das Beschickungsmolverhältnis von Gesamtglycolen (EG + CHDM) zu TPA betrug 2,0:1, mit dem Überschuss als EG. Die Temperatur des ersten Veresterungsreaktors (R1) betrug 245°C, und der Druck lag bei 37 psig (360 kPa). Die Temperatur des zweiten Veresterungsreaktors (R2) betrug 250°C, und der Druck betrug 27 psig (290 kPa). Die Polykondensation wurde wie in Beispiel 2 beschrieben bei 282°C bis zu einer Ziel-IV von 0,70 bis 0,80 durchgeführt. Die Testergebnisse sind in Tabelle III zusammengefasst.

TABELLE III

Mol-% CHDM	Beschickungs- molverhältnis	Kontinuierliche Veresterung				Labormäßige Polykondensation		
		Temperatur °C		Druck psig (kPa)		Zeit Minuten	Zeit Minuten	IV
		R1	R2	R1	R2			
12%	2,0:1	245	250	37(360)	27(290)	180	65	0,721
62%	2,0:1	245	250	37(360)	27(290)	180	30	0,792
62%	1,8:1	245	250	37(360)	27(290)	180	30	0,648

**[0033]** Tabelle III veranschaulicht die Polykondensationsaktivität bei Veresterungsprodukten, die mit verschiedenen 1,4-Cyclohexandimethanolspiegeln hergestellt wurden. Tabelle III zeigt deutlich eine erhöhte Polykondensationsaktivität bei Veresterungsprodukten, die mit dem höheren Beschickungsmolverhältnis hergestellt wurden. Die verbesserte Polykondensationsaktivität mit dem höheren Glycol zu Dicarbonsäure-Molverhältnis wurde bei den Veresterungsprodukten mit mehr Cyclohexandimethanol gezeigt, wobei ein Veresterungsprodukt, das unter Verwendung eines niedrigeren Beschickungsmolverhältnisses hergestellt wurde, mit dem Beschickungsmolverhältnis von 2,0:1 verglichen wurde. Das Veresterungsprodukt, das mit einem Beschickungsmolverhältnis von 1,8:1 hergestellt wurde, erreichte die Ziel-I.V. innerhalb von 30 Minuten nicht, wogegen das Veresterungsprodukt, das mit einem Beschickungsmolverhältnis von 2,0:1 hergestellt wurde, eine LV. von 0,79 dL/g in 30 Minuten erreichte.

#### Beispiel 4

**[0034]** Veresterungsprodukte wurden hergestellt, indem Ethylenglycol, Terephthalsäure und destilliertes Cyclohexandimethanol verwendet wurden, wobei der Cyclohexandimethanolgehalt des Copolyesters 31 Molprozent des Gesamtglykolgehalts betrug. Die Veresterungsreaktion wurde in zwei kontinuierlichen Reaktoren durchgeführt, welche in Reihe verbunden waren (R1 und R2). Das Beschickungsmolverhältnis von Glycolen insgesamt zu Terephthalsäure wurde von 4,3:1 bis 2,3:1, mit dem Überschuss als Ethylenglycol, variiert. Die gesamte Veresterungsverweildauer betrug ungefähr 155 Minuten. Die Temperatur des ersten Veresterungsreaktors (R1) wurde von 250°C bis 265°C variiert, und der Druck betrug 45 psig (410 kPa). Die Temperatur des zweiten Veresterungsreaktors (R2) wurde von 250°C bis 265°C variiert, und der Druck betrug 27 psig (290 kPa).

**[0035]** Titan- und Phosphorlösungen wurden, zusammen mit organischen Tonerfarbstoffen, in den ersten der zwei Polykondensationsreaktoren, zugegeben, welche ebenfalls in Reihe verbunden waren. Das benutzte Katalysatorsystem war 48 ppm Titan und 31 ppm Phosphor. Der erste Polykondensationsreaktor (P1) wurde bei 265°C bei einem Druck von 175 mm Hg (23 kPa) gehalten. Die ungefähre Verweildauer in dem kontinuierlichen Reaktor P1 betrug 65 Minuten. Der letzte Polykondensationsreaktor (P2) war von horizontaler Gestaltung, mit motorgetriebenen Scheibenringen, um die Oberflächenerzeugung zur Entfernung von Ethylenglycol aus dem geschmolzenen Polymer zu erhöhen, wenn die Polykondensationsreaktion voranschritt.

**[0036]** Die ungefähre Zeit in dem letzten Polykondensationsreaktor betrug 220 Minuten, und die letzte Polykondensationstemperatur betrug 272°C. Die Polykondensationsreaktion fand unter einem verminderten Druck von ungefähr 1,0 mm Hg (0,13 kPa) statt. Nach der Polymerisation wurde das geschmolzene Polymer in ein Wasserbad extrudiert, um abzukühlen und auszuhärten, in Pellets geschnitten und im Hinblick auf die inhärente Viskosität analysiert. Die Testergebnisse sind in Tabelle IV zusammengefasst.

TABELLE IV

Beschickungs- molverhältnis	Kontinuierliche Veresterung				Kontinuierliche Polykondensation		
	Temperatur °C		Druck psig (kPa)		Zeit Minuten	Zeit Minuten	IV
	R1	R2	R1	R2			
4,3:1	250	250	45 (410)	27 (290)	155	220	0,767
4,3:1	255	265	45 (410)	27 (290)	155	220	0,748
2,3:1	255	265	45 (420)	27 (290)	155	220	0,685

**[0037]** Die Ergebnisse in Tabelle IV zeigen deutlich die erhöhte Polykondensationsaktivität bei den Verestersprodukten, die mit dem höheren Beschickungsmolverhältnis hergestellt wurden, und die erhöhte Polykondensationsaktivität bei niedrigeren Veresterungstemperaturen. Das Verestersprodukt mit der höchsten Polykondensationsaktivität insgesamt wurde produziert, indem das höchste Beschickungsmolverhältnis von 4,3:1 und niedrige Veresterungstemperaturen verwendet wurden. Ein Erhöhen der Veresterungstemperaturen, während ein Beschickungsmolverhältnis von 4,3:1 beibehalten wurde, erniedrigte die Polykondensationsaktivität des Verestersprodukts, was durch die niedrigere LV. angezeigt wird. Ein Erniedrigen des Beschickungsmolverhältnisses auf 2,3:1 erniedrigte die Polykondensationsaktivität signifikant, und die Ziel-I.V. konnte nicht erreicht werden.

#### Beispiel 5

**[0038]** Verestersprodukte wurden hergestellt, indem Ethylenglycol, Terephthalsäure und destilliertes Cyclohexandimethanol verwendet wurden, wobei der Cyclohexandimethanolgehalt des Copolyesters 31 Molprozent des Gesamtglycolgehalts betrug. Die Verestersreaktion wurde in zwei kontinuierlichen Reaktoren durchgeführt, die in Reihe verbunden waren, wie in Beispiel 2 beschrieben wird. Das Beschickungsmolverhältnis von Glycolen insgesamt zu Terephthalsäure betrug 2,0:1, mit dem Überschuss als Ethylenglycol, und die gesamte Verestersdauer betrug 180 Minuten. Die Temperatur des ersten Verestersreaktors (R1) betrug 245°C, und der Druck betrug 37 psig (360 kPa). Die Temperatur des zweiten Verestersreaktors (R2) betrug 250°C, und der Druck betrug 27 psig (290 kPa).

**[0039]** Der Polykondensationskatalysator und die Temperatur wurden bei diesem Satz von Experimenten variiert, um die Wirkung des Polykondensationskatalysatorspiegels und der Temperatur auf die Geschwindigkeit der Polykondensation und die Geschwindigkeit der Bildung einer gelben Farbe in dem endgültigen Polymer zu demonstrieren. Der Farbwert  $b^*$  ist ein Maß der Gelbfärbung, wobei eine höhere Zahl stärker gelb bedeutet. Organische Tonerfarbstoffe wurden vor dem Schmelzen und der Polykondensation zu den Verestersprodukten zugegeben. Der Phosphorspiegel wurde konstant bei 25 ppm gehalten, und die Tonerfarbstoffspiegel wurden konstant gehalten. Die Polykondensationsreaktion wurde in diskontinuierlichen Laborreaktoren wie in Beispiel 2 beschrieben durchgeführt. Nach einem Schmelzen bei 225°C wurde die Temperatur auf entweder 282°C oder 272°C erhöht. Jedes Verestersprodukt wurde bis zu einer Ziel-I.V. von 0,72 bis 0,78 dL/g polymerisiert. Die Copolyesterprodukte wurden im Hinblick auf inhärente Viskosität, Katalysatorspiegel und Hunter Ultrascan  $b^*$ -Werte analysiert. Die Testergebnisse sind in Tabelle V zusammengefasst.

TABELLE V

Beschickungsmolverhältnis	Kontinuierliche Veresterung		Druck psig (kPa)		Zeit Minuten	Temperatur °C	$T_1$ ppm	Zeit Minuten	IV	$b^*$
	<u>R1</u>	<u>R2</u>	<u>R1</u>	<u>R2</u>						
2,0:1	245	250	37 (360)	27 (290)	180	282	48	40	0,731	9,3
2,0:1	245	250	37 (360)	27 (290)	180	282	30	55	0,730	8,0
2,0:1	245	250	37 (360)	27 (290)	180	272	48	70	0,729	8,1
2,0:1	245	250	37 (360)	27 (290)	180	272	30	85	0,741	6,4
2,0:1	245	250	37 (360)	27 (290)	180	272	16	85	0,760	4,9

**[0040]** Die Ergebnisse in Tabelle V veranschaulichen, dass Veresterungsprodukte, die mit einem hohen Beschickungsmolverhältnis erzeugt wurden, eine hinreichende Polykondensationsaktivität aufweisen, um die Ziel-I.V. mit verringerten Katalysatorspiegeln und verringerten Polykondensationstemperaturen zu erreichen.

Die Ergebnisse zeigen deutlich eine verringerte Bildung gelber Farbe (niedrigerer  $b^*$ ) bei verringertem Katalysatorspiegel und verringerten Polykondensationstemperaturen. Da die Veresterungsprodukte dieselben sind und der Phosphorspiegel und die Spiegel des organischen Tonerfarbstoffs konstant sind, sind die Faktoren, welche die Polykondensationsgeschwindigkeit und die Menge der gelben Farbe, die in dem Polymer entwickelt wird, beeinflussen, der Spiegel des Polykondensationskatalysators (Ti) und die Polykondensationstemperatur.

**[0041]** Wenn die Polykondensationsreaktion bis zu der Ziel-I.V. von 0,72 bis 0,78 dL/g durchgeführt wird, wird das meiste gelbe Polymer erhalten, indem die höchste Temperatur (282°C) und der höchste Titanspiegel (48 ppm Ti) verwendet werden. Signifikant niedrigere Gelbwerte werden bei der niedrigeren Polykondensationstemperatur (272°C) erhalten, wobei der niedrigste  $b^*$ -Wert mit dem niedrigsten Titanspiegel (16 ppm) erhalten wird.

#### Beispiel 6

**[0042]** Veresterungsprodukte wurden hergestellt, indem Ethylen glycol, Terephthalsäure und destilliertes Cyclohexan dimethanol verwendet wurden, wobei der Cyclohexan dimethanolgehalt des Copolyesters 31 Molprozent des Gesamtglycolgehalts betrug. Die Veresterungsreaktion wurde in zwei kontinuierlichen Reaktoren durchgeführt, die in Reihe verbunden waren (R1 und R2). Das Beschickungsmolverhältnis von Glycolen insgesamt zu Terephthalsäure betrug 3,5:1, mit dem Überschuss als Ethylen glycol. Die gesamte Veresterungsverweildauer wurde bei ungefähr 185 Minuten konstant gehalten. Die Temperatur des ersten Veresterungsreaktors (R1) betrug 255°C, und der Druck betrug 69 psig (580 kPa). Die Temperatur des zweiten Veresterungsreaktors (R2) betrug 255°C, und der Druck betrug 27 psig (290 kPa).

**[0043]** Der Polykondensationskatalysator, die Temperatur und der Phosphorspiegel wurden bei diesem Satz von Experimenten variiert, um die Wirkung des Spiegels des Polykondensationskatalysators, der Temperatur und des Phosphorspiegels auf die Geschwindigkeit der Polykondensation und die Geschwindigkeit der Bildung einer gelben Farbe in dem endgültigen Polymer zu demonstrieren. Der Farbwert  $b^*$  ist ein Maß für die Gelbfärbung, wobei eine höhere Zahl stärker gelb bedeutet. Organische Tonerfarbstoffe wurden vor dem Schmelzen und der Polykondensation zu den Veresterungsprodukten zugegeben. Die Polykondensationsreaktion wurde in diskontinuierlichen Laborreaktoren wie in Beispiel 2 beschrieben durchgeführt. Nach einem Schmelzen bei 225°C wurde die Temperatur auf entweder 285°C oder auf 275°C erhöht. Jedes Veresterungsprodukt wurde bis zu einer Ziel-IV von 0,72 bis 0,78 dL/g polymerisiert. Die Copolyesterprodukte wurden im Hinblick auf inhärente Viskosität, Katalysatorspiegel und Hunter Ultrascan  $b^*$ -Werte analysiert. Die Testergebnisse sind in Tabelle VI zusammengefasst.

TABELLE VI

Polykondensation mit 25 ppm P bei 285°C

Beschickungs- molverhältnis	Kontinuierliche Veresterung						Labormäßige Polykondensation			
	Temperatur °C		Druck psig (kPa) R1 R2		Zeit Minuten		Temperatur °C		Zeit Minuten	
	R1	R2	R1	R2	Minuten	Minuten	Ti ppm	ppm	Minuten	Minuten
3,5:1	255	255	69 (580)	27 (290)	180	285	48	45	0,819	4,7
3,5:1	255	255	69 (580)	27 (290)	180	285	32	60	0,827	3,1

Polykondensation mit 45 ppm P bei 275°C

Beschickungs- molverhältnis	Kontinuierliche Veresterung						Labormäßige Polykondensation			
	Temperatur °C		Druck psig (kPa) R1 R2		Zeit Minuten		Temperatur °C		Zeit Minuten	
	R1	R2	R1	R2	Minuten	Minuten	Ti ppm	ppm	Minuten	Minuten
3,5:1	255	255	69 (580)	27 (290)	180	275	32	32	130	0,755
3,5:1	255	255	69 (580)	27 (290)	180	275	16	16	130	0,751

**[0044]** Die Ergebnisse in Tabelle VI veranschaulichen, dass Veresterungsprodukte, die mit einem hohen Beschickungsmolverhältnis erzeugt wurden, eine hinreichende Polykondensationsaktivität aufweisen, um die Ziel-I.V. bei verringerten Katalysatorspiegeln und verringerten Polykondensationstemperaturen zu erreichen.

Die Ergebnisse zeigen deutlich eine signifikant verringerte Bildung von gelber Farbe (niedrigerer  $b^*$ ) bei verringertem Katalysatorspiegel, verringerten Polykondensationstemperaturen und erhöhtem Phosphorspiegel.

**[0045]** Da die Veresterungsprodukte dieselben sind und die Spiegel der organischen Tonerfarbstoffe konstant sind, sind die Faktoren, welche die Polykondensationsaktivität und die Menge der in dem Polymer entwickelten gelben Farbe beeinflussen, der Spiegel des Polykondensationskatalysators (Ti), die Polykondensationstemperatur und der Phosphorspiegel. Das am meisten gelbe Polymer wurde erhalten, indem die hohe Polykondensationstemperatur (285°C) und der höchste Titanspiegel (48 ppm Ti) mit 25 ppm Phosphorstabilisator verwendet wurden. Die Farbe wurde etwas verbessert, indem der Titanspiegel auf 32 ppm verringert wurde. Signifikant niedrigere Gelbwerte wurden bei der niedrigeren Polykondensationstemperatur (275°C) mit höheren Spiegeln des Phosphorstabilisators (45 ppm P) erhalten. Auch wenn eine viel längere Polykondensationsdauer benötigt wurde, wurde die Ziel-I.V. von 0,72 bis 0,78 dL/g erhalten, und der niedrigste  $b^*$ -Wert wurde mit dem niedrigsten Titanspiegel (16 ppm) erhalten.

**[0046]** Den Fachleuten auf diesem Gebiet werden sich in Anbetracht der obigen detaillierten Beschreibung viele Variationen anbieten. Alle derartigen offensichtlichen Modifikationen liegen innerhalb des vollen beabsichtigten Umfangs der angefügten Ansprüche.

### Patentansprüche

1. Ein Verfahren zur Herstellung von Copolyestern aus Terephthalsäure, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol mit 30 bis 90 Molprozent Ethylenglycol in der Glycolkomponente, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

(1) Verestern von Terephthalsäure, Ethylenglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol in einem Beschickungsmolverhältnis von Glycolen insgesamt zu Dicarbonsäure von 1,7:1 bis 6,0:1 bei einer Temperatur von 240°C bis 280°C und einem Druck von 15 psig (200 kPa) bis 80 psig (650 kPa) für 100 bis 300 Minuten;

(2) Zugeben eines Polykondensationskatalysators, bestehend aus: Titan oder Germanium, Verbindungen von Titan oder Germanium oder Kombinationen von diesen; und 0,1 bis 40 ppm eines Toners zu dem Veresterungsprodukt von Schritt (1); und

(3) Polykondensieren des Produkts von Schritt (2) bei einer Temperatur von 260°C bis 290°C und einem verminderten Druck von 400 mm Hg (50 kPa) bis 0,1 mm Hg (0,01 kPa) für eine ausreichende Zeit, um einen Copolyester mit einer inhärenten Viskosität von wenigstens 0,50 dL/g zu bilden; wobei das Verfahren weiterhin das Zugeben von 10 bis 100 ppm eines Phosphorstabilisators in Schritt (2) oder in Schritt (3) umfasst.

2. Das Verfahren gemäß Anspruch 1, wobei in Schritt (2) der Polykondensationskatalysator einen Titangehalt von 10 bis 60 ppm aufweist.

3. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, wobei Schritt (1) bei einer Temperatur von 245°C bis 255°C und einem Druck von 20 psig (240 kPa) bis 50 psig (450 kPa) durchgeführt wird.

4. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, wobei der Polykondensationskatalysator einen Titanangehalt von 12 ppm bis 25 ppm aufweist.

5. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, wobei 40 ppm bis 60 ppm eines Phosphorstabilisators zugegeben werden.

6. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, wobei der Phosphorstabilisator Phosphorsäure ist.

7. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, wobei die Polykondensationstemperatur von Schritt (3) 270°C bis 280°C beträgt.

8. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, wobei bis zu 10 Molprozent der Terephthalsäure ersetzt werden durch eine Dicarbonsäure, welche ausgewählt wird aus der Gruppe, bestehend aus aromatischen Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 Kohlenstoffatomen, aliphatischen Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen, cycloaliphatischen Dicarbonsäuren mit 8 bis 12 Kohlenstoffatomen und Kombinationen von diesen.

9. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, wobei bis zu 10 Molprozent der Glycole ersetzt werden durch ein Glycol, welches ausgewählt wird aus der Gruppe, bestehend aus cycloaliphatischen Glycolen mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, aliphatischen Glycolen mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen und Kombinationen von

diesen.

10. Das Verfahren gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, welches zusätzlich 0,1 bis 0,5 Molprozent eines trifunktionalen oder tetrafunktionalen Comonomers enthält.
11. Das Verfahren gemäß Anspruch 10, wobei das trifunktionale oder tetrafunktionale Comonomer ausgewählt wird aus der Gruppe, bestehend aus Trimellithsäureanhydrid, Trimethylolpropan und Pentaerythritol.
12. Das Verfahren gemäß irgendeinem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Titan in dem Polykondensationskatalysator in der Form eines Alkoxids ist.
13. Das Verfahren gemäß Anspruch 12, wobei das Titanalkoxid Acetyltriisopropyltitannat, Tetraisopropyltitannat oder Tetraisobutyltitannat ist.
14. Das Verfahren gemäß irgendeinem vorhergehenden Anspruch, wobei der gebildete Polyester eine inhärente Viskosität von 0,5 bis 0,9 dL/g aufweist.
15. Das Verfahren gemäß Anspruch 14, wobei der gebildete Polyester eine inhärente Viskosität von 0,7 bis 0,8 dL/g aufweist.
16. Das Verfahren gemäß irgendeinem vorhergehenden Anspruch, wobei die Veresterung bei einer Temperatur zwischen 240°C bis 260°C durchgeführt wird.
17. Das Verfahren gemäß Anspruch 16, wobei die Veresterung bei einer Temperatur zwischen 245°C bis 255°C durchgeführt wird.
18. Das Verfahren gemäß Anspruch 17, wobei die Polykondensation bei einer Temperatur zwischen 270°C bis 280°C durchgeführt wird.
19. Das Verfahren gemäß Anspruch 18, wobei der gebildete Polyester eine inhärente Viskosität von 0,5 bis 0,9 dL/g aufweist.
20. Das Verfahren gemäß Anspruch 19, wobei der gebildete Polyester eine inhärente Viskosität von 0,7 bis 0,8 dL/g aufweist.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen