



(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 202000635 A

(43) 公開日：中華民國 109 (2020) 年 01 月 01 日

---

(21) 申請案號：108121890 (22) 申請日：中華民國 108 (2019) 年 06 月 24 日

(51) Int. Cl. : C07C67/00 (2006.01) C07C69/82 (2006.01)  
 C07C29/70 (2006.01) C07C31/30 (2006.01)

(30) 優先權：2018/06/25 美國 62/689,597

(71) 申請人：加拿大商 9449710 加拿大公司 (加拿大) 9449710 CANADA INC. (CA)  
 加拿大

(72) 發明人：亞斯丹姆 愛迪爾 ESSADDAM, ADEL (TN)；亞斯丹姆 菲爾斯 ESSADDAM,  
 FARES (TN)

(74) 代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：81 項 圖式數：0 共 47 頁

---

(54) 名稱

對苯二甲酸酯之形成

(57) 摘要

本發明係關於對苯二甲酸二甲酯(DMT)之形成。本發明亦係關於聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之解聚及對苯二甲酸二甲酯(DMT)之回收。

The present disclosure relates to the formation of dimethyl terephthalate (DMT). The present invention also relates to the depolymerization of polyethylene terephthalate (PET) and the recovery of dimethyl terephthalate (DMT).

## 【發明說明書】

### 【中文發明名稱】

對苯二甲酸酯之形成

### 【英文發明名稱】

TEREPHTHALIC ACID ESTERS FORMATION

### 【技術領域】

【0001】 本發明係關於由聚酯形成酯衍生物，且更特定言之，係關於由聚對苯二甲酸乙二酯(polyethylene terephthalate, PET)形成對苯二甲酸酯。本發明亦係關於形成對苯二甲酸二甲酯(dimethyl terephthalate, DMT)。

### 【先前技術】

【0002】 隨著聚對苯二甲酸乙二酯(PET)樹脂取代碳酸清涼飲料、瓶裝水及食品容器中之玻璃，PET瓶用樹脂市場正迅猛發展。

【0003】 對苯二甲酸二甲酯(DMT)主要用於製造用於纖維、膜、容器塑膠及特殊塑膠應用的聚對苯二甲酸乙二酯(PET)。

【0004】 最大的聚酯行業為纖維市場，在該市場中其用於製造衣服、家用紡織品(諸如床單及窗簾)、地毯及地墊以及工業產品(諸如輪胎簾布、座椅安全帶、軟管及繩索)。PET膜用於諸如介電金屬箔電容器之電器應用中及用於食品封裝。

【0005】 聚酯之發展尚未轉換成對DMT之需求。對於在紡織品以及在食品及飲料容器中所用之大多數等級的聚酯來說，使用經純化之對苯二甲酸比DMT更為經濟。

### 【發明內容】

**【0006】** 本文揭示一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與包含二醇鹽之混合物混雜。

**【0007】** 在該方法之一些實施例中，混合物進一步包含溶劑。

**【0008】** 在該方法之一些實施例中，溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苄醇及其任何組合。在該方法之一些實施例中，溶劑為甲醇。

**【0009】** 在該方法之一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將溶劑添加至聚對苯二甲酸乙二酯(PET)中。

**【0010】** 在該方法之一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約15分鐘至約120分鐘。在該方法之一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約60分鐘。

**【0011】** 在該方法之一些實施例中，在添加二醇鹽之前，在約50°C至約100°C之間的溫度下將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合。在該方法之一些實施例中，在添加二醇鹽之前，在約60°C之溫度下將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合。

**【0012】** 在該方法之一些實施例中，對苯二甲酸酯為對苯二甲酸二甲酯(DMT)。

**【0013】** 在該方法之一些實施例中，二醇鹽為二醇鈉。在該方法之一些實施例中，二醇鹽為二醇單鈉。在該方法之一些實施例中，提供呈懸浮液形式之二醇鈉。

**【0014】** 在該方法之一些實施例中，二醇單鈉懸浮液係藉由包含以

下之方法製備：

- a)加熱單乙二醇；
- b)添加氫氧化鈉，藉此形成二醇單鈉；
- c)乾燥二醇單鈉；
- d)將乾燥的二醇單鈉懸浮於懸浮溶劑中；及
- e)使懸浮液老化。

**【0015】** 在該方法之一些實施例中，步驟(a)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。在該方法之一些實施例中，步驟(a)係在約90°C之溫度下進行。

**【0016】** 在該方法之一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率在約0.05:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。

**【0017】** 在該方法之一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率為約0.2:1 (mol/mol)。

**【0018】** 在該方法之一些實施例中，懸浮溶劑為甲醇。

**【0019】** 在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至14天。在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至7天。在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約7天。

**【0020】** 在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:2與約1:20 (mol/mol)之間。

**【0021】** 在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:5與約1:20 (mol/mol)之間。

**【0022】** 在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:10與約1:20 (mol/mol)之間。

【0023】 在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:10與約1:15 (mol/mol)之間。

【0024】 在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約90 mol%的對苯二甲酸酯。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約95 mol%的對苯二甲酸酯。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約99 mol%的對苯二甲酸酯。

【0025】 在該方法之一些實施例中，該方法進一步得到單乙二醇。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約80 mol%單乙二醇。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約85 mol%單乙二醇。

【0026】 本文揭示一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

(i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；

(ii)將二醇鹽添加至第一混合物；

(iii)添加第二溶劑；及

(iv)進行混雜；

藉此形成對苯二甲酸酯。

【0027】 在該方法之一些實施例中，對苯二甲酸酯為對苯二甲酸二甲酯(DMT)。

【0028】 在該方法之一些實施例中，第一溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苄醇及其任何組合。在該方法之一些實施例中，第一溶劑為甲醇。

【0029】 在該方法之一些實施例中，步驟(i)係進行持續約15分鐘至

約120分鐘。在該方法之一些實施例中，步驟(i)係進行持續約60分鐘。

**【0030】** 在該方法之一些實施例中，步驟(i)係在約50°C至約100°C之間的溫度下進行。在該方法之一些實施例中，步驟(i)係在約60°C之溫度下進行。

**【0031】** 在該方法之一些實施例中，在步驟(ii)之前移除一部分第一溶劑，以得到第二混合物。

**【0032】** 在該方法之一些實施例中，第二混合物係在約70°C至約100°C之間的溫度下加熱。

**【0033】** 在該方法之一些實施例中，第二混合物係在約85°C之溫度下加熱。

**【0034】** 在該方法之一些實施例中，二醇鹽為二醇鈉。在該方法之一些實施例中，二醇鹽為二醇單鈉。在該方法之一些實施例中，提供呈在懸浮溶劑中之懸浮液形式之二醇單鈉。

**【0035】** 在該方法之一些實施例中，二醇單鈉懸浮液係藉由包含以下之方法製備：

- a)加熱單乙二醇；
- b)添加氫氧化鈉，藉此形成二醇單鈉；
- c)乾燥二醇單鈉；
- d)將乾燥的二醇單鈉懸浮於懸浮溶劑中；及
- e)使懸浮液老化。

**【0036】** 在該方法之一些實施例中，步驟(a)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。在該方法之一些實施例中，步驟(a)係在約90°C之溫度下進行。

【0037】 在該方法之一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率在約0.05:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。

【0038】 在該方法之一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率為約0.2:1 (mol/mol)。

【0039】 在該方法之一些實施例中，懸浮溶劑為甲醇。

【0040】 在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至14天。在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至7天。在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約7天。

【0041】 在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)之比率在約1:2與約1:20 (mol/mol)之間。在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)之比率在約1:5與約1:20 (mol/mol)之間。在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)之比率在約1:10與約1:20 (mol/mol)之間。在該方法之一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)之比率在約1:10與約1:15 (mol/mol)之間。

【0042】 在該方法之一些實施例中，第二溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苄醇及其任何組合。在該方法之一些實施例中，第二溶劑為甲醇。

【0043】 在該方法之一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約60分鐘至約600分鐘。在該方法之一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約360分鐘。

【0044】 在該方法之一些實施例中，步驟(iv)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。在該方法之一些實施例中，步驟(iv)係在約85°C之溫

度下進行。

【0045】 在該方法之一些實施例中，該方法進一步包含步驟(v)過濾對苯二甲酸酯。

【0046】 在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約90 mol%的對苯二甲酸酯。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約95 mol%的對苯二甲酸酯。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約99 mol%的對苯二甲酸酯。

【0047】 在該方法之一些實施例中，該方法進一步得到單乙二醇。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約80 mol%的單乙二醇。在該方法之一些實施例中，獲得產率呈至少約85 mol%的單乙二醇。

【0048】 本文亦揭示一種用於製備二醇單鈉懸浮液之方法；該方法包含：

- a)加熱單乙二醇；
- b)添加氫氧化鈉，藉此形成二醇單鈉；
- c)乾燥二醇單鈉；
- d)將乾燥的二醇單鈉懸浮於懸浮溶劑中；及
- e)使懸浮液老化。

【0049】 在該方法之一些實施例中，步驟(a)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。在該方法之一些實施例中，步驟(a)係在約90°C之溫度下進行。

【0050】 在該方法之一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率在約0.05:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。在該方法之一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率為約0.2:1 (mol/mol)。

【0051】 在該方法之一些實施例中，懸浮溶劑為甲醇。

【0052】 在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至14天。在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至7天。在該方法之一些實施例中，使懸浮液老化持續約7天。

#### 【實施方式】

交叉引用

#### 【0053】

本申請案主張2018年6月25日申請之美國臨時申請案序列號62/689,597之權益，且該案在此以全文引用之方式併入。

【0054】 對苯二甲酸二甲酯(DMT)用於產生聚酯，包括聚對苯二甲酸乙二酯(PET)、聚對苯二甲酸丙二醇酯(PTT)及聚對苯二甲酸丁二酯(PBT)。由於DMT為揮發性的，所以其在一些流程中為用於PET之再循環(例如自塑膠瓶)的中間產物。DMT之氫化得到二醇1,4-環己烷二甲醇，其為形成聚酯樹脂之適用單體。

【0055】 DMT已由多種方式產生。習知地且仍具有商業價值的為對苯二甲酸之直接酯化。或者經由對甲苯甲酸甲酯自對二甲苯交替進行氧化及甲基酯化步驟來製備。用於由對二甲苯及甲醇產生DMT之方法由四個主要步驟組成：氧化、酯化、蒸餾及結晶。在過渡金屬催化劑(Co/Mn)之存在下，用空氣來氧化對二甲苯及對甲苯甲酸酯之混合物。用甲醇來酯化由氧化產生之酸混合物，以產生酯之混合物。蒸餾粗酯混合物以移除所產生之所有重沸物(heavy boiler)及殘餘物；將較輕酯再循環至氧化區段。隨後結晶生DMT來移除DMT異構體、殘餘酸及芳族醛。

【0056】 自PET再循環來產生DMT之改良：歸因於在封裝及纖維

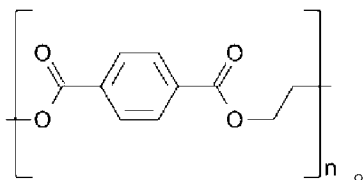
(地毯及其他紡織品)行業中PET及PETG之使用日益增長，因此需要一種高效、低能量、高產率及具成本效益之方式由PET或PETG形成DMT。

## 聚酯

**【0057】** 本文描述一種用於將聚酯轉化成酯衍生物之方法；該方法包含將聚酯與包含二醇鹽之混合物混雜。

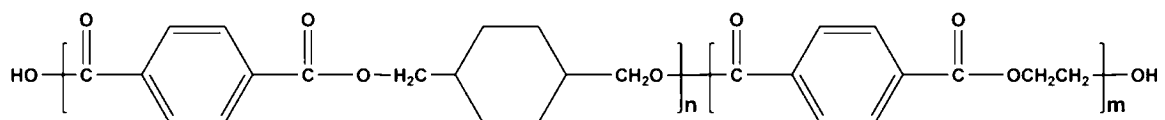
**【0058】** 在一些實施例中，聚酯係選自聚對苯二甲酸乙二酯(PET)、聚(乙二醇-共-1,4-環己烷二甲醇對苯二甲酸酯)(PETG)、聚乙交酯或聚乙醇酸(PGA)、聚乳酸(PLA)、聚己內酯(PCL)、聚羥丁酸酯(PHB)、聚己二酸乙二酯(PEA)、聚丁二酸丁二酯(PBS)、聚(3-羥丁酸酯-共-3-羥戊酸酯)(PHBV)、聚對苯二甲酸丁二酯(PBT)、聚對苯二甲酸丙二醇酯(PTT)、聚萘二甲酸乙二酯(PEN)、Vectran<sup>®</sup>、角質(cutin)及其任何組合。

**【0059】** 在一些實施例中，聚酯為聚對苯二甲酸乙二酯(PET)：

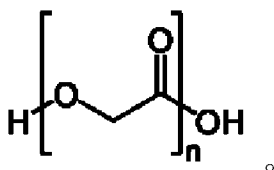


**【0060】** 在一些實施例中，聚酯為對苯二甲酸/乙二醇寡聚物。

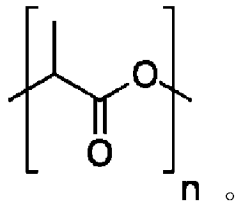
**【0061】** 在一些實施例中，聚酯為聚(乙二醇-共-1,4-環己烷二甲醇對苯二甲酸酯)(PETG)：



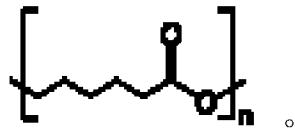
**【0062】** 在一些實施例中，聚酯為聚乙交酯或聚乙醇酸(PGA)，



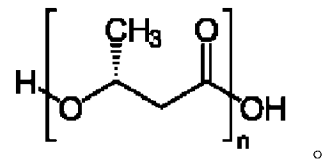
【0063】 在一些實施例中，聚酯為聚乳酸(PLA)：



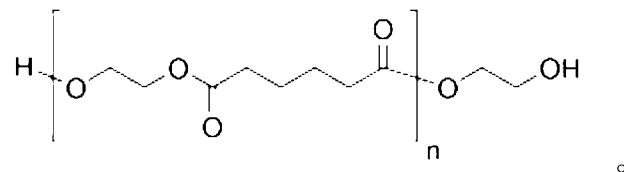
【0064】 在一些實施例中，聚酯為聚己內酯(PCL)：



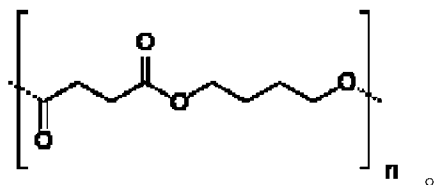
【0065】 在一些實施例中，聚酯為聚羥丁酸酯(PHB)：



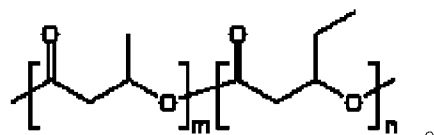
【0066】 在一些實施例中，聚酯為聚己二酸乙二酯(PEA)：



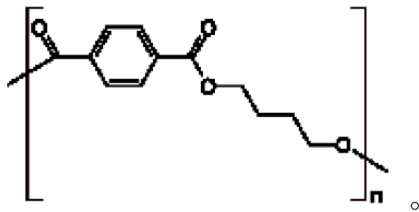
【0067】 在一些實施例中，聚酯為聚丁二酸丁二酯(PBS)：



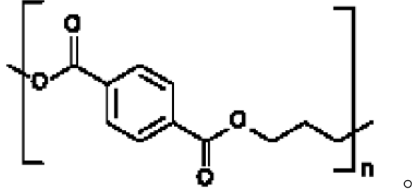
【0068】 在一些實施例中，聚酯為聚(3-羥丁酸酯-共-3-羥戊酸酯)  
(PHBV)：



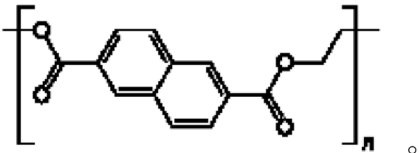
【0069】 在一些實施例中，聚酯為聚對苯二甲酸丁二酯(PBT)：



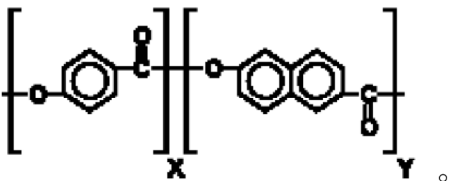
【0070】 在一些實施例中，聚酯為聚對苯二甲酸丙二醇酯(PTT)：



【0071】 在一些實施例中，聚酯為聚萘二甲酸乙二酯(PEN)：



【0072】 在一些實施例中，聚酯為Vectran<sup>®</sup>：



【0073】 在一些實施例中，聚酯為角質。角質為作為植物角質層之主要組分的兩種蠟樣聚合物中之一者，覆蓋植物之所有接觸空氣表面(aerial surface)。角質由 $\omega$ 羧基酸及其衍生物組成，其經由酯鍵互連，形成聚酯聚合物。角質具有兩個主要單體族，即C16族及C18族。C16族主要由16-羧基棕櫚酸及9,16-二羧基棕櫚酸或10,16-二羧基棕櫚酸組成。C18族主要由18-羧基油酸、9,10-環氧基-18-羧基硬脂酸及9,10,18-三羧基硬脂酸酯組成。番茄角質由16-羧基棕櫚酸及10,16-二羧基棕櫚酸組成，其中10-異構體很大程度上占主導。番茄角質為經交酯化作用之聚酯生物聚合物。相當大比例的二級酯(在C-10第二羧基中酯化)展示出聚酯結構顯著支化。

## 酯衍生物

【0074】 本文描述一種用於將聚酯轉化成酯衍生物之方法；該方法包含將聚酯與包含二醇鹽之混合物混雜。

【0075】 在一些實施例中，聚酯為聚乙交酯或聚乙醇酸(PGA)且酯衍生物為2-羥乙酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為2-羥乙酸甲酯。

【0076】 在一些實施例中，聚酯為聚乳酸(PLA)且酯衍生物為2-羥丙酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為2-羥丙酸甲酯。

【0077】 在一些實施例中，聚酯為聚己內酯(PCL)且酯衍生物為6-羥己酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為6-羥己酸甲酯。

【0078】 在一些實施例中，聚酯為聚羥丁酸酯(PHB)且酯衍生物為羥丁酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為羥丁酸甲酯。

【0079】 在一些實施例中，聚酯為聚己二酸乙二酯(PEA)且酯衍生物為己二酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為己二酸二甲酯。

【0080】 在一些實施例中，聚酯為聚丁二酸丁二酯(PBS)且酯衍生物為丁二酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為丁二酸二甲酯。

【0081】 在一些實施例中，聚酯為聚(3-羥丁酸酯-共-3-羥戊酸酯)(PHBV)，且酯衍生物為羥丁酸酯衍生物、羥戊酸酯衍生物或其組合。在一些實施例中，酯衍生物為羥丁酸甲酯、羥戊酸甲酯或其組合。

【0082】 在一些實施例中，聚酯為聚萘二甲酸乙二酯(PEN)，且酯衍生物為萘二甲酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為萘二甲酸二甲酯。

【0083】 在一些實施例中，聚酯為vectran，且酯衍生物為萘甲酸酯衍生物、苜酸酯衍生物或其組合。在一些實施例中，酯衍生物為羥基萘甲

酸甲酯或羥基苧酸甲酯。

【0084】 在一些實施例中，聚酯為角質且酯衍生物為羥基棕櫚酸酯或二羥基棕櫚酸酯衍生物。在一些實施例中，酯衍生物為羥基棕櫚酸甲酯或二羥基棕櫚酸甲酯。

【0085】 在一些實施例中，聚酯為聚對苯二甲酸乙二酯(PET)、聚(乙二醇-共-1,4-環己烷二甲醇對苯二甲酸酯) (PETG)、聚對苯二甲酸丙二醇酯(PTT)或聚對苯二甲酸丁二酯(PBT)，且酯衍生物為對苯二甲酸酯。在一些實施例中，對苯二甲酸酯為對苯二甲酸二甲酯。在一些實施例中，對苯二甲酸酯為對苯二甲酸二乙酯。

【0086】 在一些實施例中，酯衍生物含有小於約10% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約9% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約8% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約7% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約6% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約5% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約4% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約3% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約2% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約1% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約0.5% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約0.4% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約0.3% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約0.2% (w/w)雜質。在一些實施例中，酯衍生物含有小於約0.1% (w/w)雜質。

【0087】 在一些實施例中，酯衍生物含有小於約250 ppm之任何金

屬、小於約240 ppm之任何金屬、小於約230 ppm之任何金屬、小於約220 ppm之任何金屬、小於約210 ppm之任何金屬、小於約200 ppm之任何金屬、小於約190 ppm之任何金屬、小於約180 ppm之任何金屬、小於約170 ppm之任何金屬、小於約160 ppm之任何金屬、小於約150 ppm之任何金屬、小於約140 ppm之任何金屬、小於約130 ppm之任何金屬、小於約120 ppm之任何金屬、小於約110 ppm之任何金屬、小於約100 ppm之任何金屬、小於約90 ppm之任何金屬、小於約80 ppm之任何金屬、小於約70 ppm之任何金屬、小於約60 ppm之任何金屬、小於約50 ppm之任何金屬、小於約40 ppm之任何金屬、小於約30 ppm之任何金屬、小於約20 ppm之任何金屬、小於約10 ppm之任何金屬、小於約5 ppm之任何金屬、小於約4 ppm之任何金屬、小於約3 ppm之任何金屬、小於約2 ppm之任何金屬、小於約1 ppm之任何金屬、小於約0.9 ppm之任何金屬、小於約0.8 ppm之任何金屬、小於約0.7 ppm之任何金屬、小於約0.6 ppm之任何金屬、小於約0.5 ppm之任何金屬、小於約0.4 ppm之任何金屬、小於約0.3 ppm之任何金屬、小於約0.2 ppm之任何金屬、小於約0.1 ppm之任何金屬、小於約0.09 ppm之任何金屬、小於約0.08 ppm之任何金屬、小於約0.07 ppm之任何金屬、小於約0.06 ppm之任何金屬、小於約0.05 ppm之任何金屬、小於約0.04 ppm之任何金屬、小於約0.03 ppm之任何金屬、小於約0.02 ppm之任何金屬、或小於約0.01 ppm之任何金屬。

【0088】 在一些實施例中，酯衍生物含有小於約10 ppm之二醇鹽、小於約5 ppm之二醇鹽、小於約4 ppm之二醇鹽、小於約3 ppm之二醇鹽、小於約2 ppm之二醇鹽、小於約1 ppm之二醇鹽、小於約0.9 ppm之二醇鹽、小於約0.8 ppm之二醇鹽、小於約0.7 ppm之二醇鹽、小於約0.6 ppm

之二醇鹽、小於約0.5 ppm之二醇鹽、小於約0.4 ppm之二醇鹽、小於約0.3 ppm之二醇鹽、小於約0.2 ppm之二醇鹽、小於約0.1 ppm之二醇鹽、小於約0.09 ppm之二醇鹽、小於約0.08 ppm之二醇鹽、小於約0.07 ppm之二醇鹽、小於約0.06 ppm之二醇鹽、小於約0.05 ppm之二醇鹽、小於約0.04 ppm之二醇鹽、小於約0.03 ppm之二醇鹽、小於約0.02 ppm之二醇鹽、或小於約0.01 ppm之二醇鹽。

**【0089】** 在一些實施例中，獲得產率在約80與約99 mol%之間的酯衍生物。在一些實施例中，獲得產率在約85與約99 mol%之間的酯衍生物。在一些實施例中，獲得產率在約90與約99 mol%之間的酯衍生物。在一些實施例中，獲得產率呈至少約90 mol%的酯衍生物。在一些實施例中，獲得產率呈至少約95 mol%的酯衍生物。在一些實施例中，獲得產率呈至少約99 mol%的酯衍生物。

**【0090】** 在一些實施例中，獲得產率在約80與約99 mol%之間的對苯二甲酸酯。在一些實施例中，獲得產率在約85與約99 mol%之間的對苯二甲酸酯。在一些實施例中，獲得產率在約90與約99 mol%之間的對苯二甲酸酯。在一些實施例中，獲得產率呈至少約80 mol%的對苯二甲酸酯。在一些實施例中，獲得產率呈至少約85 mol%的對苯二甲酸酯。在一些實施例中，獲得產率呈至少約90 mol%的對苯二甲酸酯。在一些實施例中，獲得產率呈至少約95 mol%的對苯二甲酸酯。在一些實施例中，獲得產率呈至少約99 mol%的對苯二甲酸酯。

## 二醇

**【0091】** 本文描述一種用於將聚酯轉化成酯衍生物及二醇之方法；該方法包含將聚酯與包含二醇鹽之混合物混雜。在一些實施例中，二醇為

單乙二醇(MEG) (或乙二醇)。在一些實施例中，二醇為丙二醇。在一些實施例中，二醇為丁二醇。

**【0092】** 在一些實施例中，獲得產率在約80與約99 mol%之間的二醇。在一些實施例中，獲得產率在約85與約99 mol%之間的二醇。在一些實施例中，獲得產率在約90與約99 mol%之間的二醇。在一些實施例中，獲得產率呈至少約80 mol%的二醇。在一些實施例中，獲得產率呈至少約85 mol%的二醇。在一些實施例中，獲得產率呈至少約90 mol%的二醇。在一些實施例中，獲得產率呈至少約95 mol%的二醇。

## 二醇鹽

**【0093】** 在一些實施例中，本文所述之方法包含自沸點高於水之醇所衍生的醇鹽。在一些實施例中，醇為單乙二醇(MEG)、丙三醇、山梨醇、1,3-丙二醇或環己烷-1,4-二甲醇。在一些實施例中，醇為單乙二醇(MEG)。

**【0094】** 在一些實施例中，本文所述之方法包含具成本效益之醇鹽。在一些實施例中，本文所述之方法包含使用呈重量比形式的與其他催化劑(諸如甲醇鈉)相比節省成本的量的醇鹽。在一些實施例中，本文所述之方法包含使用呈重量比形式的與其他催化劑(諸如甲醇鈉)相比節省成本的量的二醇鈉。在一些實施例中，本文所述之方法包含能夠與甲醇進行交換來生成甲醇鈉之醇鹽。

**【0095】** 在一些實施例中，本文所述之方法包含二醇鹽。在一些實施例中，本文所述之方法包含呈催化量之二醇鹽。在一些實施例中，本文所述之方法包含低於化學計量之量的二醇鹽。

**【0096】** 如本文所使用，「低於化學計量之量」用於指示所使用之

物質之量低於化學計量之量。該術語在本文中與「催化量」互換使用。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約95%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約90%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約85%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約80%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約75%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約70%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約65%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約60%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約55%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約50%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約45%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約40%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約35%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約30%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約25%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約20%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約15%。在一些實施例中，低於化學計量之量為低於或等於化學計量之量的約10%。

**【0097】** 如本文所使用，「化學計量之量」用於指示所使用之物質之量等於存在於聚酯中之酯鍵的數量。

**【0098】** 在一些實施例中，包含二醇根陰離子及陽離子之二醇鹽係

選自鹼金屬二醇鹽、鹼土金屬二醇鹽、金屬二醇鹽、二醇銨及其任何組合。在一些實施例中，陽離子為鋰、鈉、鉀、鎂、鈣、鋇、鋇、鋇、鋇、鋇或銨。在一些實施例中，二醇鹽為二醇鈉。在一些實施例中，二醇鹽為二醇單鈉。

**【0099】** 在一些實施例中，藉由向單乙二醇(MEG)中添加鹼金屬、鹼土金屬或金屬來生成二醇鹽。在一些實施例中，藉由向單乙二醇(MEG)中添加氫氧化鈉來生成二醇鹽。

**【0100】** 在一些實施例中，提供呈懸浮液形式之二醇鹽。

**【0101】** 本文揭示一種用於製備二醇單鈉懸浮液之方法，該方法包含：

- a)加熱單乙二醇；
- b)添加氫氧化鈉，藉此形成二醇單鈉；
- c)乾燥二醇單鈉；
- d)將乾燥的二醇單鈉懸浮於懸浮溶劑中；及
- e)使懸浮液老化。

**【0102】** 在一些實施例中，懸浮溶劑為醇。在一些實施例中，懸浮溶劑為甲醇。

**【0103】** 在一些實施例中，步驟(a)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(a)係在約70°C至約90°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(a)係在約80°C至約100°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(a)係在以下溫度下進行：約70°C、約75°C、約80°C、約85°C、約90°C、約95°C或約100°C。在一些實施例中，步驟(a)係在約90°C之溫度下進行。

【0104】 在一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率在約0.05:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率在約0.1:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率在約0.1:1至約0.3:1 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率為約0.05:1 (mol/mol)、約0.06:1 (mol/mol)、約0.07:1 (mol/mol)、約0.08:1 (mol/mol)、約0.09:1 (mol/mol)、約0.1:1 (mol/mol)、約0.11:1 (mol/mol)、約0.12:1 (mol/mol)、約0.13:1 (mol/mol)、約0.14:1 (mol/mol)、約0.15:1 (mol/mol)、約0.16:1 (mol/mol)、約0.17:1 (mol/mol)、約0.18:1 (mol/mol)、約0.19:1 (mol/mol)、約0.2:1 (mol/mol)、約0.21:1 (mol/mol)、約0.22:1 (mol/mol)、約0.23:1 (mol/mol)、約0.24:1 (mol/mol)、約0.25:1 (mol/mol)、約0.26:1 (mol/mol)、約0.27:1 (mol/mol)、約0.28:1 (mol/mol)、約0.29:1 (mol/mol)、約0.30:1 (mol/mol)、約0.35:1 (mol/mol)、約0.40:1 (mol/mol)、約0.45:1 (mol/mol)或約0.5:1 (mol/mol)。在一些實施例中，二醇單鈉與懸浮溶劑之比率為約0.2:1 (mol/mol)。

【0105】 在一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:2與約1:20 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:2與約1:10 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:2與約1:6 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:5與約1:20 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:10與約1:20 (mol/mol)之間。在一些實

施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:10與約1:15 (mol/mol)之間。在一些實施例中，二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率為約1:2 (mol/mol)、約1:3 (mol/mol)、約1:4 (mol/mol)、約1:5 (mol/mol)、約1:6 (mol/mol)、約1:7 (mol/mol)、約1:8 (mol/mol)、約1:9 (mol/mol)、約1:10 (mol/mol)、約1:11 (mol/mol)、約1:12 (mol/mol)、約1:13 (mol/mol)、約1:14 (mol/mol)、約1:15 (mol/mol)、約1:16 (mol/mol)、約1:17 (mol/mol)、約1:18 (mol/mol)、約1:19 (mol/mol)或約1:2 (mol/mol)。

**【0106】** 在一些實施例中，乾燥二醇單鈉以移除反應期間所形成之水。在一些實施例中，二醇單鈉係在高於水之沸點的溫度下乾燥。在一些實施例中，二醇單鈉係在約100°C與約150°C之間的溫度下乾燥。在一些實施例中，二醇單鈉係在約110°C與約140°C之間的溫度下乾燥。在一些實施例中，二醇單鈉係在約120°C與約130°C之間的溫度下乾燥。在一些實施例中，二醇單鈉係在以下溫度下乾燥：約100°C、約105°C、約110°C、約115°C、約120°C、約125°C、約130°C、約135°C、約140°C、約145°C或約150°C。在一些實施例中，二醇單鈉係在約130°C下乾燥。

**【0107】** 在一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至約2個月。在一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至14天。在一些實施例中，使懸浮液老化持續約7天至14天。在一些實施例中，使懸浮液老化持續約5天至8天。在一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天至7天。在一些實施例中，使懸浮液老化持續約1天、約2天、約3天、約4天、約5天、約6天、約7天、約8天、約9天、約10天、約11天、約12天、約13天或約14天。在一些實施例中，使懸浮液老化持續約7天。在一些實施例中，如本文所使

用之「老化」意謂在室溫及環境壓力下儲存。在一些實施例中，老化步驟允許一部分二醇鈉轉換成甲醇鈉。在一些實施例中，老化的二醇鹽懸浮液包含至高約85%的甲醇鈉。在一些實施例中，經老化的二醇鹽懸浮液包含以下百分比之甲醇鈉：至高約85%、至高約80%、至高約75%、至高約70%、至高約65%、至高約60%、至高約55%、至高約50%、至高約45%、至高約40%、至高約45%、至高約40%、至高約35%、至高約30%、至高約25%、至高約20%、至高約15%、至高約10%或至高約5%。

### 解聚

**【0108】** 本文描述一種用於將聚酯轉化成酯衍生物之方法；該方法包含將聚酯與包含二醇鹽之混合物混雜。本文描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與包含二醇鹽之混合物混雜。

**【0109】** 在一些實施例中，混合物進一步包含溶劑。

**【0110】** 在一些實施例中，溶劑包含直鏈醇、分支鏈醇、環狀醇或其任何組合。在一些實施例中，溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苜醇及其任何組合。

**【0111】** 在一些實施例中，溶劑為直鏈C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>醇。在一些實施例中，溶劑為甲醇、乙醇、丙醇、丁醇或其組合。在一些實施例中，溶劑為甲醇、乙醇、丙醇或其組合。在一些實施例中，溶劑為甲醇。在一些實施例中，醇為乙醇。在一些實施例中，溶劑為分支鏈C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>醇。在一些實施例中，溶劑為第三丁醇、第二丁醇、異丁醇、異丙醇或其任何組合。在一些實施例中，溶劑為環狀C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>醇。在一些實施例中，溶劑為環丙醇、環

丁醇、環戊醇、環己醇、環庚醇、環己烷-1,4-二甲醇或其任何組合。在一些實施例中，溶劑為環己烷-1,4-二甲醇。

**【0112】** 在一些實施例中，溶劑為多元醇。在一些實施例中，溶劑係選自乙二醇、丙三醇及其任何組合。在一些實施例中，溶劑係選自酚、苜醇及其任何組合。

**【0113】** 在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將溶劑添加至聚對苯二甲酸乙二酯(PET)中。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約15分鐘至約120分鐘。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約15分鐘至約90分鐘。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約30分鐘至約90分鐘。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約45分鐘至約90分鐘。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約15分鐘、約20分鐘、約25分鐘、約30分鐘、約35分鐘、約40分鐘、約45分鐘、約50分鐘、約55分鐘、約60分鐘、約65分鐘、約70分鐘、約75分鐘、約80分鐘、約85分鐘、約90分鐘、約95分鐘、約100分鐘、約105分鐘、約110分鐘、約115分鐘或約120分鐘。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合持續約60分鐘。

**【0114】** 在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合且加熱至約50°C至約100°C之間的溫度。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合且加熱至約50°C至約90°C之間的溫度。在一些實施例中，在添加二醇鹽之

前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合且加熱至約50°C至約80°C之間的溫度。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合且加熱至約50°C至約70°C之間的溫度。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合且加熱至以下溫度：約50°C、約55°C、約60°C、約65°C、約70°C、約75°C、約80°C、約85°C、約90°C、約95°C或約100°C。在一些實施例中，在添加二醇鹽之前，將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與溶劑混合且加熱至約60°C之溫度。

**【0115】** 本文描述一種用於將聚酯轉化成酯衍生物之方法；該方法包含：

(i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；

(ii)將二醇鹽添加至第一混合物；

(iii)添加第二溶劑；及

(iv)進行混雜；

藉此形成酯衍生物。

**【0116】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

(i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；

(ii)將二醇鹽添加至第一混合物；

(iii)添加第二溶劑；及

(iv)進行混雜；

藉此形成對苯二甲酸酯。

【0117】 在一些實施例中，第一溶劑包含直鏈醇、分支鏈醇、環狀醇或其任何組合。在一些實施例中，第一溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苜醇及其任何組合。

【0118】 在一些實施例中，第一溶劑為直鏈C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>醇。在一些實施例中，第一溶劑為甲醇、乙醇、丙醇、丁醇或其組合。在一些實施例中，第一溶劑為甲醇、乙醇、丙醇或其組合。在一些實施例中，第一溶劑為甲醇。在一些實施例中，醇為乙醇。在一些實施例中，第一溶劑為分支鏈C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>醇。在一些實施例中，第一溶劑為第三丁醇、第二丁醇、異丁醇、異丙醇或其任何組合。在一些實施例中，第一溶劑為環狀C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>醇。在一些實施例中，第一溶劑為環丙醇、環丁醇、環戊醇、環己醇、環庚醇、環己烷-1,4-二甲醇或其任何組合。在一些實施例中，第一溶劑為環己烷-1,4-二甲醇。

【0119】 在一些實施例中，第一溶劑為多元醇。在一些實施例中，第一溶劑係選自乙二醇、丙三醇及其任何組合。在一些實施例中，第一溶劑係選自酚、苜醇及其任何組合。

【0120】 在一些實施例中，步驟(i)係進行持續約15分鐘至約120分鐘。在一些實施例中，步驟(i)係進行持續約15分鐘至約90分鐘。在一些實施例中，步驟(i)係進行持續約30分鐘至約90分鐘。在一些實施例中，步驟(i)係進行持續約45分鐘至約90分鐘。在一些實施例中，步驟(i)係進行持續約15分鐘、約20分鐘、約25分鐘、約30分鐘、約35分鐘、約40分鐘、約45分鐘、約50分鐘、約55分鐘、約60分鐘、約65分鐘、約70分鐘、約75分鐘、約80分鐘、約85分鐘、約90分鐘、約95分鐘、約100分

鐘、約105分鐘、約110分鐘、約115分鐘或約120分鐘。在一些實施例中，步驟(i)係進行持續約60分鐘。

**【0121】** 在一些實施例中，步驟(i)係在約50°C至約100°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(i)係在約50°C至約90°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(i)係在約50°C至約80°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(i)係在約50°C至約70°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(i)係在以下溫度下進行：約50°C、約55°C、約60°C、約65°C、約70°C、約75°C、約80°C、約85°C、約90°C、約95°C或約100°C。在一些實施例中，步驟(i)係在約60°C之溫度下進行。

**【0122】** 在一些實施例中，在步驟(ii)之前移除一部分第一溶劑，以得到第二混合物。在一些實施例中，移除一部分第一溶劑允許移除在聚對苯二甲酸乙二酯(PET)原料中所收集之水。在一些實施例中，每莫耳PET移除約1 mol與約5 mol之間的第一溶劑。在一些實施例中，每莫耳PET移除約1 mol與約3 mol之間的第一溶劑。在一些實施例中，每莫耳PET移除約2 mol與約4 mol之間的第一溶劑。在一些實施例中，每莫耳PET移除以下量之第一溶劑：約1 mol、約1.1 mol、約1.2 mol、約1.3 mol、約1.4 mol、約1.5 mol、約1.6 mol、約1.7 mol、約1.8 mol、約1.9 mol、約2 mol、約2.1 mol、約2.2 mol、約2.3 mol、約2.4 mol、約2.5 mol、約2.6 mol、約2.7 mol、約2.8 mol、約2.9 mol、約3 mol、約3.1 mol、約3.2 mol、約3.3 mol、約3.4 mol、約3.5 mol、約3.6 mol、約3.7 mol、約3.8 mol、約3.9 mol、約4 mol、約4.1 mol、約4.2 mol、約4.3 mol、約4.4 mol、約4.5 mol、約4.6 mol、約4.7 mol、約4.8 mol、約4.9 mol或約5 mol。

【0123】 在一些實施例中，第二混合物係在約70°C至約100°C之間的溫度下加熱。在一些實施例中，第二混合物係在約80°C至約100°C之間的溫度下加熱。在一些實施例中，第二混合物係在約70°C至約90°C之間的溫度下加熱。在一些實施例中，第二混合物係在以下溫度下加熱：約70°C、約75°C、約80°C、約85°C、約90°C、約95°C或約100°C。在一些實施例中，第二混合物係在約85°C之溫度下加熱。

【0124】 在一些實施例中，第二溶劑包含直鏈醇、分支鏈醇、環狀醇或其任何組合。在一些實施例中，第二溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苄醇及其任何組合。

【0125】 在一些實施例中，第二溶劑為直鏈C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>醇。在一些實施例中，第二溶劑為甲醇、乙醇、丙醇、丁醇或其組合。在一些實施例中，第二溶劑為甲醇、乙醇、丙醇或其組合。在一些實施例中，第二溶劑為甲醇。在一些實施例中，醇為乙醇。在一些實施例中，第二溶劑為分支鏈C<sub>3</sub>-C<sub>4</sub>醇。在一些實施例中，第二溶劑為第三丁醇、第二丁醇、異丁醇、異丙醇或其任何組合。在一些實施例中，第二溶劑為環狀C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>醇。在一些實施例中，第二溶劑為環丙醇、環丁醇、環戊醇、環己醇、環庚醇、環己烷-1,4-二甲醇或其任何組合。在一些實施例中，第二溶劑為環己烷-1,4-二甲醇。在一些實施例中，第二溶劑為多元醇。在一些實施例中，第二溶劑係選自乙二醇、丙三醇及其任何組合。在一些實施例中，第二溶劑係選自酚、苄醇及其任何組合。

【0126】 在一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約60分鐘至約600分鐘。在一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約120分鐘至約600分鐘。在一

些實施例中，步驟(iv)係進行持續約180分鐘至約600分鐘。在一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約60分鐘至約480分鐘。在一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約180分鐘至約480分鐘。在一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約60分鐘、60分鐘、90分鐘、120分鐘、180分鐘、240分鐘、300分鐘、360分鐘、420分鐘、480分鐘、540分鐘或600分鐘。在一些實施例中，步驟(iv)係進行持續約360分鐘。

**【0127】** 在一些實施例中，步驟(iv)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(iv)係在約70°C至約90°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(iv)係在約80°C至約100°C之間的溫度下進行。在一些實施例中，步驟(iv)係在以下溫度下進行：約70°C、約75°C、約80°C、約85°C、約90°C、約95°C或約100°C。在一些實施例中，步驟(iv)係在約85°C之溫度下進行。

**【0128】** 在一些實施例中，該方法進一步包含步驟(v)過濾對苯二甲酸酯。

**【0129】** 在一些實施例中，該方法進一步包含步驟(vi)蒸餾對苯二甲酸酯。或者，在一些實施例中，該方法進一步包含步驟(vi)昇華對苯二甲酸酯。

**【0130】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

- (i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；
- (ii)將二醇鹽添加至第一混合物；
- (iii)添加第二溶劑；

- (iv) 進行混雜；及
  - (v) 過濾對苯二甲酸酯；
- 藉此分離對苯二甲酸酯。

**【0131】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

- (i) 將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；
  - (ii) 將二醇鹽添加至第一混合物；
  - (iii) 添加第二溶劑；
  - (iv) 進行混雜；
  - (v) 過濾對苯二甲酸酯；及
  - (vi) 蒸餾對苯二甲酸酯；
- 藉此分離純對苯二甲酸酯。

**【0132】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

- (i) 將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；
  - (ii) 將二醇鹽添加至第一混合物；
  - (iii) 添加第二溶劑；
  - (iv) 進行混雜；
  - (v) 過濾對苯二甲酸酯；及
  - (vi) 昇華對苯二甲酸酯；
- 藉此分離純對苯二甲酸酯。

**【0133】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

(i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；

(ii)將一部分第一溶劑自第一混合物移除，以得到第二混合物；

(iii)將二醇鹽添加至第二混合物；

(iv)添加第二溶劑；及

(v)進行混雜；

藉此形成對苯二甲酸酯。

**【0134】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

(i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；

(ii)將一部分第二溶劑自第一混合物移除，以得到第二混合物；

(iii)將二醇鹽添加至第二混合物；

(iv)添加第二溶劑；

(v)進行混雜；及

(vi)過濾對苯二甲酸酯；

藉此分離對苯二甲酸酯。

**【0135】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

(i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；

- (ii)將一部分第二溶劑自第一混合物移除，以得到第二混合物；
  - (iii)將二醇鹽添加至第二混合物；
  - (iv)添加第二溶劑；
  - (v)進行混雜；
  - (vi)過濾對苯二甲酸酯；及
  - (vii)蒸餾對苯二甲酸酯；
- 藉此分離純對苯二甲酸酯。

**【0136】** 本文亦描述一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

- (i)將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；
  - (ii)將一部分第二溶劑自第一混合物移除，以得到第二混合物；
  - (iii)將二醇鹽添加至第二混合物；
  - (iv)添加第二溶劑；
  - (v)進行混雜；
  - (vi)過濾對苯二甲酸酯；及
  - (vii)昇華對苯二甲酸酯；
- 藉此分離純對苯二甲酸酯。

### 特定術語

**【0137】** 本文中所使用之章節標題僅出於組織性目的且不應理解為限制所述標的物。

**【0138】** 除非另有定義，否則本文中所使用之所有技術及科學術語具有與通常理解的所主張之標的物所屬之含義相同的含義。在對於本文中

之術語存在複數個定義之情況下，以此章節中之定義為準。

**【0139】** 應理解，一般描述及詳細描述僅為例示性及解釋性的，且並不限制任何所主張之標的物。在本申請案中，除非另外明確陳述，否則單數之使用包括複數。必須注意，除非上下文另外明確指示，否則如本說明書及隨附申請專利範圍中所使用之單數形式「一(a/an)」及「該(the)」包括複數個參考物。在本申請案中，除非另外陳述，否則「或(or)」之使用意謂「及/或(and/or)」。此外，術語「包括(including)」以及其他形式(諸如「包括(include/includes/included)」)之使用為非限制性的。

**【0140】** 除非上下文另有要求，否則在通篇本說明書及以下申請專利範圍中，詞語「包含(comprise)」及其變化形式(諸如「包含(comprises/comprising)」)應解釋為開放性、包括性之意義，亦即，「包括(但不限於)」。另外，本文中所提供之標題僅出於方便起見，且並不解釋所主張之發明的範疇或含義。

**【0141】** 除非上下文另外明確指示，否則如本說明書及隨附申請專利範圍中所使用，單數形式「一(a/an)」及「該(the)」包括複數個參考物。亦應注意，除非上下文另外明確指示，否則術語「或」通常以其包括「及/或」之意義來採用。

**【0142】** 如本文中所使用，術語「約(about/approximately)」意謂在所給定值或範圍之10%內，較佳10%內，且更佳5%內。

**【0143】** 如本文所使用，環境溫度為對於人類通常所習慣之典型或較佳室內(由氣候控制)溫度之口語表述。其表示空氣讓人感覺既不熱也不冷之小範圍內的溫度，約為21°C。在一些實施例中，環境溫度為25±5°C。在一些實施例中，環境溫度為18°C。在一些實施例中，環境溫度為19°C。在一

些實施例中，環境溫度為20°C。在一些實施例中，環境溫度為21°C。在一些實施例中，環境溫度為22°C。在一些實施例中，環境溫度為23°C。在一些實施例中，環境溫度為24°C。在一些實施例中，環境溫度為25°C。在一些實施例中，環境溫度為26°C。在一些實施例中，環境溫度為27°C。在一些實施例中，環境溫度為28°C。在一些實施例中，環境溫度為29°C。在一些實施例中，環境溫度為30°C。

**【0144】** 如本說明書及隨附申請專利範圍中所使用，解聚係指將聚合物分解成其起始物質之方式。其基本上與聚合作用相反。在一些實施例中，解聚係藉由糖醇解、甲醇解或水解來達成，其藉由所分別使用之解聚反應物(諸如二醇、甲醇或水)來歸類。

**【0145】** 如本文中所使用，當提及PET時，術語「莫耳(mol)」為莫耳量且係使用「PET」單元之分子量(其為192.17 g/mol)來計算。

**【0146】** 標準化學術語之定義可見於參考著作中，包括(但不限於)Carey及Sundberg之「Advanced Organic Chemistry (第四版)」卷A (2000)及B (2001)，Plenum Press，New York。

## 實例

**【0147】** 以下實例意欲說明但並不限制所揭示之實施例。

### 實例1：形成二醇單鈉

#### 溶解步驟：

**【0148】** 將單乙二醇(MEG，2447.7 g)添加至6 L玻璃反應器中且加熱至90°C，同時在230 RPM下攪拌。緩慢添加氫氧化鈉(NaOH，1770.6 g，呈微型顆粒形式)(極放熱)。MEG/NaOH (mol/mol):1至1.2:1。監測且記錄添加氫氧化鈉後的混合物之溫度。攪拌(280 RPM)混合物，同時將溫

度維持在150°C下持續約10分鐘(以確保所有氫氧化鈉溶解)。將所獲得之液體散佈在Pyrex®盤上且置放於真空烘箱(在130°C及-30吋之Hg壓力下)中持續60分鐘。用氮氣吹掃真空烘箱腔室且置放回真空下。將盤乾燥持續約12小時。催化劑乾燥後，將其自真空烘箱移除，研磨且再次置放於真空烘箱(在130°C及-30吋之Hg壓力下)中。用氮氣吹掃真空烘箱腔室且置放回真空下。將催化劑乾燥持續約12小時。催化劑乾燥後，將其自真空烘箱移除且添加至Pyrex®瓶中。添加甲醇(催化劑/MeOH (mol/mol)比率：0.18:1)且攪拌30分鐘。將懸浮液放在可燃箱中持續至多一週。

## 實例2：解聚聚對苯二甲酸乙二酯

### 膨脹及沖洗：

【0149】 將聚對苯二甲酸乙二酯原料(10 Kg)添加至具有刮擦式雙動攪拌(氣密閉合)的夾套反應器中。用氮氣吹掃反應器持續3分鐘。添加甲醇(6 Kg)且在約60°C下加熱所得混合物且在60 rpm下攪拌約60分鐘。記錄壓力及溫度。排出一部分液體(3.5 Kg)。

### 反應：

【0150】 啟動反應器之中心攪拌(155 RPM)。啟動刮刀(70 RPM)。熱量上升至約85°C。添加二醇鹽懸浮液(973.5 g，31.5重量%二醇鹽)，且加熱混合物且攪拌5分鐘。記錄壓力及溫度。再添加甲醇(3.83 Kg)且使所得混合物反應持續約360分鐘(在達至溫度之後)。隨後將混合物冷卻至25°C。

### 過濾：

【0151】 過濾固體且用甲醇(4.8 Kg)洗滌。對濾餅(對苯二甲酸二甲酯)進行稱重。

**蒸餾：**

【0152】 *DMT*回收：在150°C下熔融含有DMT及未反應物質之餅。隨後在160°C下在2托(torr)真空下或在180°C下在50托真空下在薄膜或蒸餾塔或任何蒸發或蒸餾系統中蒸發或蒸餾混合物。若在150°C下加熱接收系統，則回收呈固體或呈液體狀之DMT。

【0153】 *MEG*回收：使含有MEG及甲醇之母液通過蒸發或蒸餾系統(諸如薄膜、蒸餾塔、蒸發器等)以移除約70%甲醇(在30°C下在完全真空下)。隨後在3°C至-6°C下冷卻經回收之漿液且加以過濾。回收液體且藉由蒸發或蒸餾來移除殘餘的30%甲醇。隨後在完全真空下在100°C下蒸餾或蒸發殘留之MEG。

【0154】 使用各種量之催化劑及不同催化劑的DMT產率展示於下表中。對於所有實例：

- 莫耳PET量(使用192.17 g/mol之「PET」單元分子量來計算)為52 mol；
- 甲醇之莫耳量為218 mol；
- 溫度為70°C；
- 反應時間為480分鐘。

催化劑	催化劑量(mol)	壓力(psi) <sup>1</sup>	DMT產率(%) <sup>2</sup>
二醇單鈉	9.2	9	99
甲醇鈉	9.2	13	99
二醇單鈉	5.5	8	99
甲醇鈉	5.5	10	98
二醇單鈉	3.7	8	99
甲醇鈉	3.7	11	96

<sup>1</sup>氣密閉合反應器中產生的壓力。

<sup>2</sup>在DMT蒸餾之前。

【0155】 使用不同催化劑之MEG產率展示於下表中：

催化劑	催化劑量 (mol)	壓力(psi)	轉化為 MEG之 產率(%)	所產生之 MEG之 量(mol)	過濾後母 液中 MEG之 量(mol)	藉由一次 蒸餾所回 收MEG之 量(mol)	MEG產率 (以母液中 所存在之 量計)
二醇鈉	5.2	8	99	51.5	46.7	38.7	83%
甲醇鈉	5.2	10	98	51.0	46.0	32.1	70%



202000635

## 【發明摘要】

### 【中文發明名稱】

對苯二甲酸酯之形成

### 【英文發明名稱】

TEREPHTHALIC ACID ESTERS FORMATION

### 【中文】

本發明係關於對苯二甲酸二甲酯(DMT)之形成。本發明亦係關於聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之解聚及對苯二甲酸二甲酯(DMT)之回收。

### 【英文】

The present disclosure relates to the formation of dimethyl terephthalate (DMT). The present invention also relates to the depolymerization of polyethylene terephthalate (PET) and the recovery of dimethyl terephthalate (DMT).

### 【指定代表圖】

無

### 【代表圖之符號簡單說明】

無

## 【發明申請專利範圍】

### 【第1項】

一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(polyethylene terephthalate, PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含將聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與包含二醇鹽(glycoxide)之混合物混雜。

### 【第2項】

如請求項1之方法，其中該混合物進一步包含溶劑。

### 【第3項】

如請求項2之方法，其中該溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苜醇及其任何組合。

### 【第4項】

如請求項2或3之方法，其中該溶劑為甲醇。

### 【第5項】

如請求項2至4中任一項之方法，其中在添加該二醇鹽之前，將該溶劑添加至該聚對苯二甲酸乙二酯(PET)中。

### 【第6項】

如請求項5之方法，其中在添加該二醇鹽之前，將該聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與該溶劑混合持續約15分鐘至約120分鐘。

### 【第7項】

如請求項5之方法，其中在添加該二醇鹽之前，將該聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與該溶劑混合持續約60分鐘。

### 【第8項】

如請求項2至5中任一項之方法，其中在添加該二醇鹽之前，在約50°C至約100°C之間的溫度下將該聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與該溶劑混合。

**【第9項】**

如請求項2至8中任一項之方法，其中在添加該二醇鹽之前，在約60°C之溫度下將該聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與該溶劑混合。

**【第10項】**

如請求項1至9中任一項之方法，其中該對苯二甲酸酯為對苯二甲酸二甲酯(dimethyl terephthalate, DMT)。

**【第11項】**

如請求項1至10中任一項之方法，其中該二醇鹽為二醇鈉。

**【第12項】**

如請求項1至11中任一項之方法，其中該二醇鹽為二醇單鈉。

**【第13項】**

如請求項12之方法，其中提供呈懸浮液形式之該二醇單鈉。

**【第14項】**

如請求項13之方法，其中該二醇單鈉懸浮液係藉由包含以下之方法製備：

- a)加熱單乙二醇；
- b)添加氫氧化鈉，藉此形成二醇單鈉；
- c)乾燥該二醇單鈉；
- d)將乾燥的該二醇單鈉懸浮於懸浮溶劑中；及
- e)使該懸浮液老化。

**【第15項】**

如請求項14之方法，其中步驟(a)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。

**【第16項】**

如請求項14或15之方法，其中步驟(a)係在約90°C之溫度下進行。

**【第17項】**

如請求項14至16中任一項之方法，其中二醇單鈉與該懸浮溶劑之比率在約0.05:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。

**【第18項】**

如請求項14至17中任一項之方法，其中二醇單鈉與該懸浮溶劑之比率為約0.2:1 (mol/mol)。

**【第19項】**

如請求項14至18中任一項之方法，其中該懸浮溶劑為甲醇。

**【第20項】**

如請求項14至19中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約1天至14天。

**【第21項】**

如請求項14至20中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約1天至7天。

**【第22項】**

如請求項14至21中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約7天。

**【第23項】**

如請求項1至22中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯

(PET)之比率在約1:2與約1:20 (mol/mol)之間。

**【第24項】**

如請求項1至23中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)之比率在約1:5與約1:20 (mol/mol)之間。

**【第25項】**

如請求項1至24中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)之比率在約1:10與約1:20 (mol/mol)之間。

**【第26項】**

如請求項1至25中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)之比率在約1:10與約1:15 (mol/mol)之間。

**【第27項】**

如請求項1至26中任一項之方法，其中獲得產率呈至少約90 mol%的該對苯二甲酸酯。

**【第28項】**

如請求項1至27中任一項之方法，其中獲得產率呈至少約95 mol%的該對苯二甲酸酯。

**【第29項】**

如請求項1至28中任一項之方法，其中獲得產率呈至少約99 mol%的該對苯二甲酸酯。

**【第30項】**

如請求項1至29中任一項之方法，其中該方法進一步得到單乙二醇。

**【第31項】**

如請求項30之方法，其中獲得產率呈至少約80 mol%的該單乙二

醇。

**【第32項】**

如請求項30之方法，其中獲得產率呈至少約85 mol%的該單乙二醇。

**【第33項】**

一種用於使聚對苯二甲酸乙二酯(PET)解聚以形成對苯二甲酸酯之方法；該方法包含：

(i)將該聚對苯二甲酸乙二酯(PET)與第一溶劑混雜，以得到第一混合物；

(ii)將二醇鹽添加至該第一混合物；

(iii)添加第二溶劑；及

(iv)進行混雜；

藉此形成該對苯二甲酸酯。

**【第34項】**

如請求項33之方法，其中該對苯二甲酸酯為對苯二甲酸二甲酯(DMT)。

**【第35項】**

如請求項33或34之方法，其中該第一溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苄醇及其任何組合。

**【第36項】**

如請求項33至35中任一項之方法，其中該第一溶劑為甲醇。

**【第37項】**

如請求項33至36中任一項之方法，其中步驟(i)係進行持續約15分鐘至約120分鐘。

**【第38項】**

如請求項33至37中任一項之方法，其中步驟(i)係進行持續約60分鐘。

**【第39項】**

如請求項33至38中任一項之方法，其中步驟(i)係在約50°C至約100°C之間的溫度下進行。

**【第40項】**

如請求項33至39中任一項之方法，其中步驟(i)係在約60°C之溫度下進行。

**【第41項】**

如請求項33至40中任一項之方法，其中在步驟(ii)之前移除一部分該第一溶劑，以得到第二混合物。

**【第42項】**

如請求項41之方法，其中該第二混合物係在約70°C至約100°C之間的溫度下加熱。

**【第43項】**

如請求項41或42之方法，其中該第二混合物係在約85°C之溫度下加熱。

**【第44項】**

如請求項33至43中任一項之方法，其中該二醇鹽為二醇鈉。

**【第45項】**

如請求項33至44中任一項之方法，其中該二醇鹽為二醇單鈉。

**【第46項】**

如請求項45之方法，其中提供呈在懸浮溶劑中之懸浮液形式之該二醇單鈉。

**【第47項】**

如請求項46之方法，其中該二醇單鈉懸浮液係藉由包含以下之方法製備：

- a)加熱單乙二醇；
- b)添加氫氧化鈉，藉此形成二醇單鈉；
- c)乾燥該二醇單鈉；
- d)將乾燥的該二醇單鈉懸浮於懸浮溶劑中；及
- e)使該懸浮液老化。

**【第48項】**

如請求項47之方法，其中步驟(a)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。

**【第49項】**

如請求項47或48之方法，其中步驟(a)係在約90°C之溫度下進行。

**【第50項】**

如請求項47至49中任一項之方法，其中二醇單鈉與該懸浮溶劑之比率在約0.05:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。

**【第51項】**

如請求項47至50中任一項之方法，其中二醇單鈉與該懸浮溶劑之比率為約0.2:1 (mol/mol)。

**【第52項】**

如請求項47至51中任一項之方法，其中該懸浮溶劑為甲醇。

**【第53項】**

如請求項47至52中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約1天至14天。

**【第54項】**

如請求項47至52中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約1天至7天。

**【第55項】**

如請求項47至52中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約7天。

**【第56項】**

如請求項33至52中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:2與約1:20 (mol/mol)之間。

**【第57項】**

如請求項33至56中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:5與約1:20 (mol/mol)之間。

**【第58項】**

如請求項33至57中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:10與約1:20 (mol/mol)之間。

**【第59項】**

如請求項33至58中任一項之方法，其中二醇鹽與聚對苯二甲酸乙二酯(PET)之比率在約1:10與約1:15 (mol/mol)之間。

**【第60項】**

如請求項33至59中任一項之方法，其中該第二溶劑係選自甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、第三丁醇、乙二醇、丙三醇、環己烷-1,4-二甲醇、酚、苜醇及其任何組合。

**【第61項】**

如請求項33至60中任一項之方法，其中該第二溶劑為甲醇。

**【第62項】**

如請求項33至61中任一項之方法，其中步驟(iv)係進行持續約60分鐘至約600分鐘。

**【第63項】**

如請求項33至62中任一項之方法，其中步驟(iv)係進行持續約360分鐘。

**【第64項】**

如請求項33至63中任一項之方法，其中步驟(iv)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。

**【第65項】**

如請求項33至64中任一項之方法，其中步驟(iv)係在約85°C之溫度下進行。

**【第66項】**

如請求項33至65中任一項之方法，其進一步包含步驟(v)過濾該對苯二甲酸酯。

**【第67項】**

如請求項33至66中任一項之方法，其中獲得產率呈至少約90 mol%的該對苯二甲酸酯。

**【第68項】**

如請求項33至67中任一項之方法，其中獲得產率呈至少約95 mol%的該對苯二甲酸酯。

**【第69項】**

如請求項33至68中任一項之方法，其中獲得產率呈至少約99 mol%的該對苯二甲酸酯。

**【第70項】**

如請求項33至69中任一項之方法，其中該方法進一步得到單乙二醇。

**【第71項】**

如請求項70之方法，其中獲得產率呈至少約80 mol%的該單乙二醇。

**【第72項】**

如請求項70之方法，其中獲得產率呈至少約85 mol%的該單乙二醇。

**【第73項】**

一種用於製備二醇單鈉懸浮液之方法；該方法包含：

- a)加熱單乙二醇；
- b)添加氫氧化鈉，藉此形成二醇單鈉；
- c)乾燥該二醇單鈉；
- d)將乾燥的該二醇單鈉懸浮於懸浮溶劑中；及
- e)使該懸浮液老化。

**【第74項】**

如請求項73之方法，其中步驟(a)係在約70°C至約100°C之間的溫度下進行。

**【第75項】**

如請求項73或74之方法，其中步驟(a)係在約90°C之溫度下進行。

**【第76項】**

如請求項73至75中任一項之方法，其中二醇單鈉與該懸浮溶劑之比率在約0.05:1至約0.5:1 (mol/mol)之間。

**【第77項】**

如請求項73至76中任一項之方法，其中二醇單鈉與該懸浮溶劑之比率為約0.2:1 (mol/mol)。

**【第78項】**

如請求項73至77中任一項之方法，其中該懸浮溶劑為甲醇。

**【第79項】**

如請求項73至78中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約1天至14天。

**【第80項】**

如請求項73至79中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約1天至7天。

**【第81項】**

如請求項73至80中任一項之方法，其中使該懸浮液老化持續約7天。