

公告本

申請日期	87 年 4 月 29 日
案 號	87106608
類 別	0863/00, 63/58

90. 4. 27 修正
月 日 補充

C4

482790

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書 (修正頁)

一、發明 名稱	中 文	聚酯之連續製造方法
	英 文	METHOD FOR CONTINUOUS PRODUCTION OF POLYESTER
二、發明 創作人	姓 名	(1) 宮嶋一元 (2) 栗原英資
	國 籍	(1) 日本 (2) 日本
	住、居所	(1) 日本國愛媛縣松山市北吉田町七七番地 帝人株式会社 松山事業所內
	住、居所	(2) 日本國愛媛縣松山市北吉田町七七番地 帝人株式会社松山事業所內
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 帝人股份有限公司 帝人株式会社
	國 籍	(1) 日本
	住、居所 (事務所)	(1) 日本國大阪府大阪市中央區南本町一丁目六番 七號
	代 表 人 姓 名	(1) 安居祥策

裝

訂

線

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
I P C 分類：

A6
B6

本案已向：

國 (地區) 申請專利，申請日期： 案號： ， ☐ 有 ☐ 無主張優先權
日本 1997 年 5 月 6 日 9-115570 ☒ 有主張優先權

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明(1)

本發明係有關聚酯之連續製造方法，其為，一種可使由芳香族二羧酸為主成分之二羧酸、脂環族二羧酸、脂肪族二羧酸等所形成之二羧酸成分及其酯所形成之衍生物與二醇成分所形成之原料，以熔融聚合的方式連續聚合之方法。

因聚對苯二甲酸乙醇酯、聚對苯二甲酸丁醇酯或聚萘二甲酸乙醇酯所代表的「聚酯」具有優良之物理、化學性質，故適用於各種用途。例如，可運用於具有優良之強度或彈性率等機械特性及耐熱性等性質之用途上，因此，其可廣泛使用於衣料用纖維或輪胎帘子線等產業用纖維上，或者其他如加工成面狀之薄膜、加工成立立體狀之工程塑料成型品等用途上。

一般，使用於這類用途上的聚酯係，利用直接聚合法或酯交換法而製得。以下將先說明直接聚合法。此方法為，對以芳香族二羧酸為主成之二羧酸、脂環族二羧酸或脂肪族二羧酸等所形成之二羧酸、或者前者之酯形成衍生物及二醇成分進行直接的酯化反應以形成聚酯先驅物，其後再於常壓或減壓下對此聚酯先驅物進行聚縮合之製造方法。又，酯交換法為，將酸成分之低級烷基酯及二醇進行酯交換反應以形成酯先驅物後，於常壓或減壓下對此酯先驅物進行聚縮合之製造方法。

上述之聚酯的聚合過程一般係以採用分批方式者居多，但，為了製得可符合規模利益之廉價聚酯，較佳為採用連續方式，係因採用連續方式之結果除了可提高合格率及

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明(2)

品質外，尚具有品質標準化，提升操作性及減少成本等極大之優點。

一般，大多數的聚酯連續製造方法係利用，複數個酯化反應器或酯交換反應器及聚縮合反應器之組合流程而進行。例如，將原料供應給酸交換反應器或酯化反應器以生成單體或預聚物後，再連續供應給初期聚縮合反應器，於減壓下使其反應以生成低聚合體，接著將此低聚合體供應給減壓下之聚縮合反應器而得中間聚合體及高聚合體。

又，一般爲了經濟利益，多利用管狀熱交換器或濕式冷凝管使由聚酯之聚縮合反應器餾出的二醇成分凝縮後，經回收再利用以成爲部分之原料。至於回收再利用之方式有，不使二醇成分蒸餾而直接回收之方法，或蒸餾後再予回收之方法。

但，利用前者之方法時，由聚酯之聚縮合反應器所蒸餾出的二醇成分中含有大量的水，副產物等低沸點物，因此不蒸餾直接作爲起始原料時，會影響所得之聚酯物性及因受不純物之影響而阻礙酯交換反應及／或聚縮合反應，結果會有運轉不安定之問題。故較不使二醇成分蒸餾而直接回收之方法爲佳之方法爲，經蒸餾步驟後再利用之方法。

後者之方法因能利用蒸餾過程去除沸點物，故可解決前者之方法的問題。又，後者之方法中需另具蒸餾塔，但由於所生成之低沸點物及二醇成分的沸點差很大，因此不需要大型蒸餾設備，而設備中又以例如附屬於酯化反應器

五、發明說明 (3)

或酸交換反應器之蒸餾塔，以兼具使二醇成蒸餾者為佳。

這類的聚酯製造方法及裝置因無需附設新的蒸餾裝置，故可降低運轉經費及簡化裝置，因此為一種有效率之方法。其例子如，日本特開昭 60 - 163918 號公報中所揭示之聚酯連續製造方法，其為利用濕式冷凝器使產生於聚縮合反應器之以乙二醇為主體的氣體凝縮後，將所得凝縮液送入設於酯化反應器之蒸餾塔中，以去除低沸點不純物，其後，返回生料混合槽之方法。另外，日本特許第 1854847 號公報中揭示所使用之聚合裝置為使初期聚合罐或真空狀態所裝設的液封式真空唧筒之封液入口側接連於作為後段聚合法罐之各凝縮器中冷媒用的乙二醇循環液之配管上，或以配管將封液出口側接連於酯化反應槽或者酸交換反應槽所附設之蒸餾塔上，以回收乙二醇之裝置。

但，聚酯製造過程中，聚縮合階段所餾出之二醇成分中含有單體及／或預聚體（以下將此「單體」及／或「預聚體」略稱為「粘結物」等不純物。結果此粘結物會隨著聚縮合階段所產生的二醇，一起混入聚縮合反應器之真空系內，因其於低溫下會固化，故容易產生問題。若直接將由聚縮合反應器餾出且由凝縮管回收之二醇供應給蒸餾塔時，粘結物會於蒸餾塔內產生粘合成長之情形，而降低蒸餾塔之分離效率終至閉塞，而容易產生問題，結果無法安定地進行蒸餾操作。另外，亦會於供應二醇給蒸餾塔之配管內造成閉塞現象。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

訂

五、發明說明 (4)

解決上述問題之方法如，設置冷槽，於事前去除粘結物之方法，如此一來可將粘結物排除系統外。但，排出系統外之粘結物會隨著，爲了提升聚合速率，故加強真空度，反應溫度或反應物之攪拌過程而增加，結果對特別是初期之聚縮合階段產生嚴重問題。

因此，日本特許第 7 6 3 6 0 9 號公報中提出設置障礙板之餾出物的冷卻捕集裝置。另外，日本特許 9 9 8 6 1 4 號公報則揭示，以真空度調節閥及此閥之四周溫度保持爲 1 2 0 ℃ 以下之方式，利用熱水、熱乙醇、水蒸氣、乙醇蒸氣或其混合物使逃散物流動而排出系統外之方法。又，日本特開昭 4 9 - 1 2 6 7 9 3 號公報中揭示，於聚縮合反應器及真空裝置間設置套管，並於套管內設置緩衝板及洗淨用噴嘴以去除異物之聚縮合裝置。因此，日本特許第 1 0 9 2 9 7 9 號公報中提出，於聚縮合反應器及真空產生裝置間，接觸由二乙二醇及／或三乙二醇所形成之捕集液的方法。

爲了去除粘結物，而於冷槽內設置過濾器時，易因過濾器的阻塞而增加壓力損失或閉塞現象，因此，需將過濾器所捕集之粘結物完全排出系外。但，排出予外之粘結物無法再利用，因此，易造成重大損失，又，冷槽所捕集之粘結物會粘結於過濾器內，因此，很難便宜且簡單地回收，故難再利用。

有鑑於上述問題，故本發明之目的爲，提供一種聚酯之連續製造方法，其於使以芳香族二羧爲主成分之二羧酸

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明 (5)

、脂環族二羧酸、脂肪族二羧酸所形成之酸成分，或前者之酯形成衍生物及二醇成分所形成的原料連續熔融聚合，以連續製造聚酯時，不會因粘結物而造成蒸餾塔或配管閉塞，故可安定地進行蒸餾操作。另外，無需大型蒸餾裝置亦可回收二醇成分，故可達到削減運轉經費及設備簡單化之目標。另外，必要時可分離回收粘結物及再利用。

因此，本發明係有關聚酯之連續製造方法，其特徵為，於由芳香族二羧酸為主成分之二羧酸、脂環族二羧酸或脂肪族二羧酸所形成的二羧酸成分及其酯所形成之衍生物所形成的酸成分及二醇成分所構成之原料，以熔融聚合方式連續製造聚酯之方法中，將含有聚縮合反應器下之粘結物的餾出物之二醇成分凝縮後，再離心分離出此粘結物，其後再將殘存之二醇成分予以蒸餾，以供應給酯化反應或酯交換反應。

這類本發明所提供之聚酯的連續製造方法，其最大特徵為。於使上述酸成分及二醇成分所構成之原料，以熔融聚合之方式連續製聚酯時，將合聚縮合反應下之粘結物的餾出物之二醇成分凝縮後，再離心分離出此粘結物。因此不會造成蒸餾塔或配管閉塞，可有效地去除粘結物，故能安定地進行蒸餾處理。又，離心分離出粘結物後，再將殘存之二醇成分予以蒸餾，以供應給酯化反應或酯交換反應，因此無法需大型蒸餾裝置亦可回收二醇成分。另外，無需容易附著粘結物而難於再利用之冷槽，亦可得到不會粘結於過濾器等且能分離出之粘結性物，因此，可廉價且簡

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

90.4.27 修正
補充

五、發明說明(6)

單地回收。再利用粘結物，故可達成削減運轉經費及使設備簡略化之目標。

[圖式簡單說明]

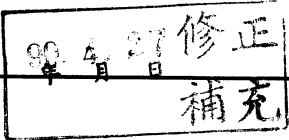
第1圖為，實施本發明之聚酯的連續聚合製造方法之模式說明略線工程圖。

主要元件對照表

1	酯化反應器(酯交換反應器)
2	蒸餾塔
3	初期聚合反應器
4	最終
5, 6	原料供應管
7	排氣管
8, 9	齒輪泵
10, 11	排氣管
12, 13	濕式冷凝管
14, 15	冷卻循環槽
16, 17	循環泵
18, 19, 27	冷却器
20, 24, 26	供給配管
22	遠心分離裝置
23	排出口

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂



五、發明說明 ()

- 2 5 配 管
- 2 8 再 沸 器

下面將說明本發明之實施樣態。

本發明之方法所製得的「聚酯」係指，使二羧酸及／或其酯所形成之衍生物與二醇起反應而得到之物。又，構成此聚酯的芳香族為主成分之二羧酸成分及其酯所形成之衍生物例子如，對苯二甲酸、間苯二甲酸、苯二甲酸、1，4－萘二羧酸、1，5－萘二羧酸、2，6－萘二羧酸、2，7－萘二羧酸及1或前述者之低級烷基酯（烷基之碳數通常為1～4個）等。又，脂環族二羧酸成分及其酯形成性衍生物例子如，環己烷二羧酸等、脂肪族二羧酸成分及其酯形成性衍生物例子如，己二酸、癸二酸、辛二酸等。又，這些二羧酸例子中又以對苯二甲酸、2，6－萘二羧酸、間苯二甲酸及／或其二甲基酯物為佳。至於這些芳香族二羧酸成分、脂環族二羧酸成分、脂肪族二羧酸成分可單獨使用1種或併用2種以上。

其次，二醇成分之例子如，乙二醇、新戊二醇、1，2－丙二醇、1，3－丙二醇、1，3－丁二醇、1，4－丁二醇、1，5－戊二醇、1，6－己二醇、1，2－環己烷二甲醇、1，3－環己烷二甲醇、1，4－環己烷二甲醇、二乙二醇、三乙二醇、聚烷撐乙二醇、丙二醇等，其中又以乙二醇、1，4－丁二醇、二乙二醇為主要成

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

訂

五、發明說明(7)

分者較佳。又，此「主要」二字之意義為，其含量對全部二醇成分為50克分子%以上，又以80克分子%更佳。另外，這些二醇成分可單獨使用或2種以上併用。

這些由二羧酸及二醇所形成之聚酯例子較佳為，聚對苯二甲酸乙醇酯、聚對苯二甲酸丁醇酯、聚萘二甲酸乙醇酯、聚萘二甲酸丁醇酯或這些聚酯之共聚合物等。

又，聚酯可與偏苯三酸、均苯四甲酸、甘油等三官能以上之多官能化合物，或安息香酸、異氰酸苯基等單官能化合物等化合物共聚合。

本發明於製造聚酯時可存在觸媒，亦可無觸媒的存在，若使用觸媒時，可使用已知之觸媒。例如，銻化合物、錳化合物、鈦化合物、錫化合物、鋅化合物、鎂化合物、鎳化合物等。又，供應這些觸媒之位置及方法並無特別限定。必要時可直接添加或與二醇成分同時添加其他之熱可塑性樹脂、添加劑、無機填充劑、有機填充劑等一種或二種以上，即，於最終聚縮合反應器之出口部分直接利用成型機、擠押機、混合器等混煉、或顆粒化後先熔融再混煉。此其他之熱可塑性樹脂例子如，聚酯系樹脂、聚醯胺系樹脂、聚苯乙烯系樹脂、聚碳酸酯、聚甲醛等。添加劑之例子如，已知之防氧劑、防靜電劑、或溴化聚碳酸酯、溴化環氧化合物為難燃劑、或三氧化銻、五氧化銻等難燃助劑、或可塑劑、潤滑劑、離型劑、著色劑、結晶核劑等。又，無機填充劑之例子如，玻璃纖維、滑石、雲母、玻璃片、碳纖維、二氧化矽、氧化鋁纖維、中等玻璃絲、粘土

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明(8)

、碳黑、陶土、或氧化鈦、氧化鐵、氧化銻、氧化鋁等金屬化合物，或鉀、鈉等鹼性金屬化合物等。有機填充劑之例子如，芳香族聚酯纖維、液晶性聚酯纖維等。

下面將參照圖面詳細說明本發明之實施樣態。第 1 圖為，實施本發明之連續製造聚酯的流程圖例。

圖中 1 為酯化反應器或酯交換反應器，2 為此酯化反應器或酯交換反應器 1 所附設之蒸餾塔，又，其與酯化反應器或酯交換反應器 1 間係利用配管連結。3 為初期聚縮合反應器，4 為最終聚縮合反應器，5 及 6 分別為原料供給管。另外，7，10 及 11 為排氣管，8 及 9 為齒輪泵，12 及 13 為濕式冷凝管，14 及 15 為冷卻循環媒體之循環槽，16 及 17 為循環泵，18，19 及 27 為冷卻器，20，24 及 26 為供給配管，22 為離心分離裝置，21 為離心分離裝置之供給泵，23 為粘結物之排出口，25 為必要時所設置的回送配管，28 為再沸器。又，設有使酯交換反應器 1 及各反應器 3，4 加熱至所希望之溫度的加熱裝置（圖中未標示）。

接著，將利用上述本發明之實施形態例詳細說明以酯交換反應方法製造聚對苯二甲酸丁醇酯之情形。首先，由供給配管 5 送入原料之二甲基對苯二甲酸，再由供給配管 6 送入 1，4 - 丁二醇及作為觸媒之鈦酸四丁氧化物。又，1，4 - 丁二醇及二甲基對苯二甲酸之克分子比較佳為 1 . 1 - 2 . 0，又以 1 . 3 ~ 1 . 8 特別佳。

又，將酯交換反應器 1 內之溫度設定為 160 ~

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

五、發明說明(9)

200℃，並由供給管5及6供給原料，於常壓下進行酯交換反應。此時所餾出之以甲醇為主成分的副產蒸氣則由排氣器導入蒸餾塔2中。至於所得反應物則為，甲醇餾出量係理論量之80~95%之聚合度為2~6的低聚物。其後藉由齒輪泵將其移送至初期聚縮合反應器3，以進行聚縮合反應器。其次移送至聚縮合反應器4，以進行最終之聚縮合反應器。

其中，酯交換反應器及聚縮合反應器的數量與形式並無特別限定，必要時可使用最適宜者。例如，為了提升反應速度時，可將N₂·Ar般不活性氣體吹入反應器內等。使用本發明之方法時，既使加入不活性氣體，亦能達到分離粘結物之效果。

又，各反應器3及4之溫度及壓力條件分別控制為，初期聚縮合反應器3之溫度230~255℃，真空度10~100Torr，最終聚縮合反應器4之溫度230~255℃，真空氣1~5Torr。最後利用齒輪泵9取出之聚對苯二甲酸丁醇酯聚合體。必要時可利用造粒步驟等使其顆粒化。

又，初期聚縮合反應器3及最終聚縮合反應器所產生的以1,4-丁二醇為主成分之副產蒸氣，則藉由排氣管10及11以1,4-丁二醇為循環液之方式，利用濕式冷凝管12及13分別使其凝縮，再分別送入1,4-丁二醇循環槽14及15中。此1,4-丁二醇為主要成分之副產蒸氣中則含有甲醇、四氫呋喃、水及粘結物等不純

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 (10)

物。又，濕式冷凝管 1 2 及 1 3 之循環液的 1，4 - 丁二醇係分別利用泵 1 6 及 1 7 使其循環，而各循環系中分別設有冷卻器 1 8 及 1 9。

必要時可利用供給管將 1，4 - 丁二醇供應給 1，4 - 丁二醇循環槽 1 5。又，1，4 - 丁二醇循環槽 1 4 及 1 5 間利用配管連結，而含不純物之 1，4 - 丁二醇則利用溢流方式由循環槽移送至循環槽化。此時，循環槽雖能捕集部分之粘結物，但，很難完全去除。若無法完全去除粘結物時，易如上述般產生聚縮合階段所產生之合於 1，4 - 丁二醇為主要成分之二醇成分中的粘結物，使供給配管 2 6 及蒸餾塔 2 閉塞的重大問題。

為了解決此問題，因此，本發明之一大特徵為，利用泵 2 1 由循環槽 1 4 將含不純物之 1，4 - 丁二醇送入離心分離裝置 2 2 內，以充分去除粘結物。

至於離心分離裝置 2 2 之形式並無特別限制，但，以傾析型離心沈澱機、分離板型離心沈澱機等較適合，又，為了得到較佳之捕集效率，需選定適當的離心條件等。另外，離心分離裝置 2 2 之設置位置可於供應給蒸餾塔 2 之前，或設置於濕式冷凝器之循環泵 1 7、2 1 的出口側，如此一來將不會產生粘結物使濕式冷凝器之噴嘴閉塞等問題，而具有可安定運轉之優點。又，進行離心分離處理時，分離出粘結物時 1，4 - 丁二醇中會產生氣泡，因此，可利用離心分離裝置 2 2 內充滿 N_2 、 Ar 等不活性氣體或維持於減壓狀之方式解決此問題。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 (11)

離心分離裝置 2 2 上則設有粘結物之排出口 2 3，另供給配管 2 4 供給新的 1，4-丁二醇，以使伴隨著粘結物之 1，4-丁二醇由離心分離裝置排出。接著，由配管 2 5 將伴隨著 1，4-丁二醇之粘結物送回聚縮合反應器，如此一來可大幅提升聚合物收穫率。此時，最好能於聚縮合反應器之前，將粘結物及／或 1，4-丁二醇加熱至一定溫度。

經分離出粘結物之殘存 1，4-丁二醇則利用供給配管將其送入附屬於酯交換反應器 1 之蒸餾塔 2，以進行蒸餾。因此蒸餾塔 2 需兼具同時使由酯交換反應器導入之以甲醇為主成分的副產蒸氣及，去除粘結物之 1，4-丁二醇進行蒸餾之功能。至於蒸餾塔 2 之頂端溫度則可利用冷卻器 2 7 之還流量加以控制，底部溫度則可利用鍋爐加以控制。結果可由頂端餾出以甲醇為主成分之含四氫呋喃及水的蒸氣，再利用冷卻器 2 7 使其凝縮。另外，可由底部回收以 1，4-丁二醇為主成分之二醇成分，而再利用為至少部分之起始原料二醇。

由上述內容得知，本發明可防止因聚縮合反應所產生之，含於 1，4-丁二醇為主成分之二醇成分中的粘結物所造成的閉塞等問題。

下面將以使用圖 1 所示之聚酯的連續聚合製造方法之流程圖的實施例具體說明本發明。

五、發明說明 (12)

〔實施例 1〕

連續將二甲基對苯二甲酸 $103 \text{ kg} / \text{hr}$ ，1，4-丁二醇 $76 \text{ kg} / \text{hr}$ 及鈦酸四丁氧化物 $0.09 \text{ kg} / \text{hr}$ 供應給酯交換反應器 1，並於溫度 $165 \sim 190^\circ\text{C}$ ，常壓下進行酯交換反應，得酯交換反應率 90% 之聚對苯二甲酸丁醇酯低聚物。

其次，藉著泵 8 將所得低聚物連續供應給初期聚縮合反應器 3，並於溫度 240°C ，真空度 35 Torr 下進行聚縮合反應，得聚對苯二甲酸丁醇酯低聚合物。其後，將此低聚合物連續供給最終聚縮合反應器 4，並於溫度 $240 \sim 248^\circ\text{C}$ ，真空度 1.5 Torr 下進行聚縮合反應。接著，利用齒輪泵 9 取出此聚對苯二甲酸丁醇酯聚合物，再利用造粒步驟使其顆粒化。

初期聚縮合反應器 3 及最終聚縮合反應器 4 所產生之 1，4-丁二醇為主要成分的副產蒸氣則伴隨著粘結物，藉由排氣管 10，11 以 1，4-丁二醇為循環液之方式，利用濕式冷凝管 12 及 13 使其 12 予完全凝縮，其後，再分別移送至 1，4-丁二醇循環槽 14 及 15。

此時，由供給管 10 送入新的 1，4-丁二醇，並將其供應給 1，4-丁二醇循環槽 15。又，1，4-丁二醇循環槽 14 及 15 間以配管連結，並利用溢流方式將含粘結物之 1，4-丁二醇由循環槽 15 移送至循環槽 14。

其後，利用泵 21 以 $45 \text{ kg} / \text{hr}$ 之方式將 1，4

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 (13)

— 丁二醇中含有 4 重量 % 的粘結物之 1，4-丁二醇，連續由循環槽 14 供應給傾析離心分離裝置 22，並以離心力 800 G 之方式將含於 1，4-丁二醇中之 99.5 重量 % 的粘結物分離出。

接著，由離心分離裝置 22 所設置之粘結物的排出口，將粘結物排出系統外。再利用供給配管 26 將分離出粘結物之殘存的 1，4-丁二醇供應給附屬於酯交換反應器之蒸餾塔 2。又，蒸餾塔 2 之頂端溫度為 101℃，底部則利用鍋爐 28 使其溫度控制為 190℃。其後，由頂端將以甲醇為主成分之含四氫呋喃及水的蒸氣餾出，再利用冷卻器使其凝縮液化而排出系外。另外，由底部回收含少量水之 1，4-丁二醇，而再利用為部分開始原料。

結果此實施例完全無粘結物附著於蒸餾塔及配管而造成閉塞所引發的問題，故可安定運轉。

[實施例 2]

除了將供給配管 24 所供應之新的 1，4-丁二醇速度改為 10 kg / hr，以使離心分離裝置 22 之粘結物的排出口 23 所分離出的粘結物伴隨新的 1，4-丁二醇排出，其後利用具有加熱過程之回送配管 25 將此排出物送回初期聚縮合反應器 3 外，其他同實施例 1，以製造聚苯二由酸丁醇酯。結果全無粘結物附著於蒸餾塔及配管而造成閉塞所引發的問題，故可安定運轉。另外，因粘結物的再利用，故可防止遺漏而大大提升聚合物收穫率。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 (14)

[比較例 1]

除了未進行粘結物之離心分離裝置步驟外，其他同實施例 1，以製造聚苯二甲酸丁醇酯，結因蒸餾塔內堆積著單體，低聚物等粘結物，而使蒸餾塔內之內壓上升，故無法安定運轉。

[實施例 3]

將對苯二甲酸 8 k g / h r、乙二醇 6 0 k g / h r 調製成淤漿後，連續供應給酯化反應器 1，並於溫度 2 8 5 °C，常壓下進行酯化反應，得酯化率 9 5 % 之聚對苯二甲酸乙醇酯低聚物。其次，藉由泵 8 將三氧化錫加入此低聚物中，再連續供應給初期聚縮合反應器 3，並於溫度 2 8 5 °C，真空度 2 0 T o r r 下進行聚縮合反應，得聚對苯二甲酸乙醇酯低聚合物。其次，將此低聚合物連續供應給最終聚縮合反應器 4，並於溫度 2 8 5 ~ 2 9 3 °C，真空度 1 . 5 T o r r 下進行聚縮合反應。其後利用齒輪泵 9 直接將此聚對苯二甲酸乙醇酯聚合物移送至紡絲步驟以製成絲。至於初期聚縮合反應器 3 及最終聚縮合反應器 7 所產生的乙二醇為主成分之副產蒸氣則伴隨著粘結物藉由排氣管 1 0 及 1 1，以乙二醇為循環液方式利用濕式冷凝管 1 2 及 1 3 使其幾乎完全凝縮，再移送至乙二醇循環槽 1 4 及 1 5。此時另利用供給配管 2 0 將新的乙二醇供應給循環槽 1 5。又，乙二醇循環 1 4 與 1 5 間利用配管連結，並以溢流方式將含粘結物之二醇由循環槽 1 5 移

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 (15)

送到循環槽 1 4 。另外，利用泵 2 1 以 5 k g / h r 方式將乙二醇中含 2 重量 % 之粘結物的乙二醇連續由循環槽 1 4 供應給分離板型離心分離裝置 2 2 ，並以離心力為 1 0 0 0 G 之方式分離出含於乙二醇中的 9 9 . 8 重量 % 之粘結物離心分離裝置 2 2 則設有粘結物之排出口 2 3 ，並由此將粘結物排出系統外。而分離出粘結物後所殘存的乙二醇則利用供給配管將其供應給酯化反應器 1 所附屬之蒸餾塔。並將蒸餾塔之頂部溫度控制為 1 0 3 ℃，底部則利用鍋爐 2 8 將其溫度控制為 1 9 7 ℃。由頂端餾出以水為主成分之蒸氣後，利用冷卻器 2 7 使其凝縮液化，以排出系統外。又，由底部回收含少量水之乙二醇，並再利用為部分之起始原料。

結果此實施例完全無粘結物附著於蒸餾塔及配管而造成閉塞所引發的問題，故可安定運轉。

〔實施例 4〕

除了將供給配管 2 4 供應新的乙二醇之速率改為 1 0 k g / h r ，而使離心分離裝置 2 2 之粘結物排出口 2 3 所分離出的粘結物伴隨著新的乙二醇一起排出後，再利用具有加熱過程之配管 2 5 將其送回初期聚縮合反應器 3 外，其他同實施例 3 ，以製造聚對苯二甲酸乙醇酯，結果完全無粘結物附著於蒸餾塔及配管而造成閉塞所引發的問題，故可再利用，因此，能防止遺漏而大大提升聚合物收穫率。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

裝

五、發明說明 (16)

[比較例 2]

除了未進行粘結物之離心分離外，其他同實施例 3，以製造聚對苯二甲酸乙醇酯，結果單體、低聚物等粘結物會堆積於蒸餾塔內，而使蒸餾塔內壓上升，故無法安定運轉。

[實施例 5]

將 2，6－萘二羧酸二由基 100 kg / hr、乙二醇 51 kg / hr 連續供應給酯交換反應器 1，並以酯酸錳四氫鹽 0.03 kg / hr 為酯交換觸媒之情形下，於溫度 160 ~ 250 °C，常壓下進行酯交換反應，其後再加入三甲基磷鹽，得酯交換反應率 99.5 % 之聚萘二甲酸乙醇酯低聚物。其次，藉由泵 8 將三氧化銻加入所得低聚物中，再連續供應給初期聚縮合反應器 3，並於溫度 280 °C，真空度 50 Torr 下進行聚縮合反應，得聚萘二甲酸乙醇酯低聚合物。其後將此低聚合物連續供應給最終聚縮合反應器 4，並於溫度 280 ~ 290 °C，真空度 1.5 Torr 下進行聚縮合反應。接著利用齒輪泵 9 取出所得聚合體，再利用造粘步驟進行顆粒化及利用固相聚合使其高聚合度化。至於初期聚縮合反應器 3 及最終聚縮合反應器 4 所產生的以乙二醇為主成分之副產蒸氣則伴隨著粘結物藉由排氣管 10 及 11，以乙二醇為循環液之方式利用濕式冷凝管 12 及 13 使其幾乎完全凝縮，再分別送至乙二醇循環槽 14 及 15。此時，利用供給管 20

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 (17)

將新的乙二醇供應給乙二醇循環槽 1 5。又，乙二醇循環槽 1 4 及 1 5 間利用配管連結著，並且利用溢流方式將含粘結物之乙二醇由循環槽 1 5 移送至循環槽 1 4。另外，利用泵 2 1 將 5 0 k g / h r 方式將乙二醇中含 1 . 5 重量 % 之粘結物的乙二醇連續供應給傾析型離心分離裝置，並以離心力為 7 0 0 G 方式分離出乙二醇中所含有的 9 9 . 5 重量 % 之粘結物。離心分離裝置 2 2 則設有粘結物排出口 2 3，並由此出口將其排出系外。又，利用供給配管 2 6 將分離出粘結物之殘存的乙二醇供應給附屬於酯交換反應器 1 之蒸餾塔 2。並將蒸餾塔 2 頂端溫度控制為 1 0 1 °C 及，以鍋爐方式將底部溫度控制於 1 9 7 °C。由頂端餾出以甲醇為主成分之含水的蒸氣後利用冷卻器 2 7 使其凝縮液化，以排出系統外。另外，由底部回收含少量水之乙二醇，再利用為部分之起始原料。

結果此實施例完全無粘結物附著於蒸餾塔及配管內而造成閉塞所引發的問題，故可安定運轉。

〔實施例 6〕

除了將分離出粘結性物之乙二醇供應給取代附屬於酯交換反應器 1 之蒸餾塔 2 的另設之連續蒸餾塔（圖中未標示），其後將此蒸餾塔頂端溫度控制為 1 0 1 °C，並利用鍋爐將底部控制為 1 9 7 °C，而由頂端餾出以甲醇為主成分之含水的蒸氣，再以冷卻器使其凝縮液化後再排出及，由底部回收含少少量水，再利用為部分之起始原料外，其

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

五、發明說明 (18)

他同實施例 5，以製造聚苯二甲酸乙醇酯，結果完全無粘結物附著於蒸餾塔及配管內而造成閉塞所引發的問題，故可安定運轉。

[實施例 7]

除了供給配管 10 kg / h r 方式供給新的乙二醇，而使離心分離裝置 22 之粘結物排出口 23 所分離出的粘結物伴隨新的乙二醇排出，再利用備有加熱過程之回送配管 25 將其回送至初期聚縮合反應器 3 外，其他同實施例 5，以製造聚苯二甲酸乙醇酯，結果完全無粘結物附著於蒸餾塔及配管內而造成閉塞所引發的問題，故可安定運轉。又，能再利用粘結物，因此可防止遺漏而大大提升聚合物收穫率。

[比較例 3]

除了未進行粘結物之離心分離外，其他同實施例 5，以製造聚苯二甲酸乙醇酯，結果蒸餾塔內會堆積單體，低聚物等粘結物，而使蒸餾塔內壓上升，故無法安定運轉。

由上述內容得知，因本發明可直接將聚縮合反應所餾出之含粘結物的二醇成分供應給離心分離裝置，且未供應給蒸餾塔之前先分離出粘結物，因此，無粘結物所造成的蒸餾塔閉塞情形，故可安定製造聚酯。又，無需複雜的經去除粘結物之二醇成分的蒸餾處理亦可回收，另外，易於廉價地回收。再利用經去除之粘結物。因此，對熔融聚合

五、發明說明 (19)

以連結製造聚酯之方法而言，具有極大之達成削減運轉經費及原料成本且使設備簡略化之目標的效果。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

裝

90. 4. 27修正
90. 月 日
補充

四、中文發明摘要 (發明之名稱： 聚酯之連續製造方法)

本發明係有關聚酯之連續製造方法，其特徵為，於由芳香族二羧酸為主成分之二羧酸、脂肪族二羧酸、脂肪族二羧酸等所形成之二羧酸及其酯所形成之衍生物與二醇成分所形成之原料，以熔融聚合方式連續製造聚酯的方法中，先凝縮含有聚縮合反應下之粘結物的餾出物之二醇成分，其後再以離心分離出此粘結物，再將殘存之二醇成分予以蒸餾，以供應酯化反應或酯交換反應。

英文發明摘要 (發明之名稱： METHOD FOR CONTINUOUS PRODUCTION OF POLYESTER)

A method for continuously producing a polyester by continuously melt-polymerizing a raw material consisting of a dicarboxylic acid component composed of mainly an aromatic dicarboxylic acid and containing an alicyclic dicarboxylic acid or an aliphatic dicarboxylic acid, or their ester-forming derivatives with a diol component, characterized in that said diol component as a distillate in the polycondensation reaction, including an adhering material, is condensed, said adhering material is separated centrifugally, and then the residual diol component, after distillation, is supplied to an esterification reaction or an ester interchange reaction.

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

公告本
六、申請專利範圍修正 90.4.27
本 年 月 日
補充

第 87106608 號 專利申請案

中文申請專利範圍修正本

民國 90 年 4 月修正

1 . 一種聚酯之連續製造方法，其特徵為，於由芳香族二羧酸為主成分之二羧酸、脂環族二羧酸或脂肪族二羧酸所形成之二羧酸及酯所形成之衍生物與，二醇成分為乙二醇、1，4-丁二醇或二乙二醇之二醇成分所構成的原料，以熔融聚合之方式連續製造聚酯之方法中，

先將聚縮合反應下之餾出物的二醇成分凝縮，其後將粘結物離心分離後，再將殘存之二醇成分蒸餾以供給酯化反應或酯交換反應。

2 . 如申請專利範圍第 1 項之製造方法，其中，離心分離裝置為傾析型離心分離機或分離板型離心分離機。

3 . 如申請專利範圍第 1 或 2 項之製造方法，其中，係將殘存之二醇成分供應給酯化反應器或附屬酯交換器的蒸餾塔，以使其蒸餾。

4 . 如申請專利範圍第 1 或 2 項之製造方法，其中，係將離心分離裝置所分離、回收的粘結物供應於聚縮合反應中。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

圖 1

