

# 公告本

|      |                                |
|------|--------------------------------|
| 申請日期 | 89 年 8 月 3 日                   |
| 案 號  | 89115626                       |
| 類 別  | C07C39/04, 37/08, 49/08, 45/53 |

A4  
C4

(以上各欄由本局填註)

572881

## 發明專利說明書

|                 |               |                                                                                                                                                                                                                                                                        |
|-----------------|---------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 一、發明<br>名稱      | 中 文           | 苯酚的製法                                                                                                                                                                                                                                                                  |
|                 | 英 文           | Production of phenol                                                                                                                                                                                                                                                   |
| 二、發明<br>人<br>創作 | 姓 名           | (1) 杜倫·拉分 Levin, Doron<br>(2) 僑斯·聖多史得本 Santiesteban, Jose G.<br>(3) 詹姆士·法丘立 Vartuli, James C.                                                                                                                                                                          |
|                 | 國 籍           | (1) 南非                      (2) 墨西哥                      (3) 美國                                                                                                                                                                                                        |
|                 | 住、居所          | (1) 美國賓夕法尼州貝拉辛威得 D 2 區公寓蒙哥瑪利路一二五號<br>125 Montgomery Avenue, Apt. D2, Bala Cynwyd, PA 19004, U.S.A.<br>(2) 美國賓夕法尼州西柴司特蘋果門路一九一號<br>191 Applegate Drive, West Chester, PA 19382, U.S.A.<br>(3) 美國賓夕法尼州西柴司特摩司汀路一三四六號<br>1346 Morstein Road, West Chester, PA 19380, U.S.A. |
|                 | 代 表 人<br>姓 名  | (1) 丹尼斯·聖提尼 Santini, Dennis P.                                                                                                                                                                                                                                         |
| 三、申請人           | 姓 名<br>(名稱)   | (1) 摩必爾石油公司<br>Mobil Oil Corporation                                                                                                                                                                                                                                   |
|                 | 國 籍           | (1) 美國                                                                                                                                                                                                                                                                 |
|                 | 住、居所<br>(事務所) | (1) 美國德州海灣鎮海灣路五二〇〇號<br>5200 Bayway Drive, Baytown, TX 77520, U.S.A.                                                                                                                                                                                                    |
|                 | 代 表 人<br>姓 名  | (1) 丹尼斯·聖提尼 Santini, Dennis P.                                                                                                                                                                                                                                         |

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  
美國 1999 年 8 月 3 日 09/366,249 ☒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

## 五、發明說明 ( 1 )

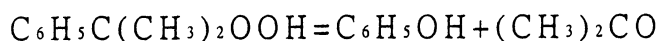
### 發明背景

### 發明範圍

本發明係關於苯酚之製造，且更確定地說，係關於一種用於從枯烯氫過氧化物製造苯酚及丙酮之方法。

### 先前技藝之說明

苯酚是一種重要的有機化學品並具有廣泛的工業用途，其係用於例如製造酚醛樹脂、雙酚-A及己內醯胺，目前有多種方法用於製造苯酚，但是提供最大部份總生產能力的單一方法是枯烯法，其目前總數是大於四分之三的總美國產量，在此方法中的基本反應包括將枯烯氫過氧化物解離成苯酚及丙酮：



在工業規模中，枯烯氫過氧化物通常在約50至70℃之溫度下用稀釋的硫酸（5至25%濃度）處理，完成解離後，將反應混合物分離並蒸餾油層而得到苯酚及丙酮以及枯烯、 $\alpha$ -甲基苯乙烯、乙醯苯及焦油，枯烯可以回收用於轉化成氫過氧化物且隨後解離，在此方式下製造的枯烯適合在樹脂中使用，雖然對於藥劑級產物需要進一步的純化。

雖然上述方法可在良好產率下同時製造苯酚及丙酮，其需要尋找一種方法其可減少產物分離及純化步驟之需求

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 2 )

，其天生是一種均勻的方法且可避免對環境有害的液體酸類之需求。

枯烯氫過氧化物 ( C H P ) 經由多種固體酸觸媒之不均勻解離已經被報導，例如美國專利 4 , 4 9 0 , 5 6 5 號揭示  $\beta$  沸石在枯烯氫過氧化物解離中的用途，而美國專利 4 , 4 9 0 , 5 6 6 號揭示 Constraint Index 1-12 沸石例如 Z S M - 5 在相同方法中的用途。

美國專利 4 , 8 9 8 , 9 9 5 號揭示一種經由含主要是雜多元酸例如 1 2 - 鎢基磷酸在惰性載體例如矽石、氧化鋁、二氧化鈦及二氧化鋯上的不均勻觸媒使枯烯氫過氧化物反應而共同生產苯酚及丙酮之方法，此雜多元酸觸媒在大於 3 5 0 °C 之溫度下是天生不安定。

美國專利 5 , 9 0 8 , 8 0 0 號揭示一種生產混合的鋯及鉍氧化物作為觸媒使用，經由使鉍及鋯化合物之液體混合物與碳酸鹽及碳酸氫鹽在中性或鹼性情形下接觸而形成含碳酸鉍及鋯氫氧化物之沈澱物，且然後煅燒沈澱物，用於減少汽車廢氣中的氮氧化物之方法。

根據本發明，頃經發現含鉍及 I V B 族金屬混合氧化物之固體酸觸媒可對枯烯氫過氧化物解離顯現活性及選擇性。

### 發明概述

本發明係關於從枯烯氫過氧化物製造苯酚及丙酮之方法，其中此方法之步驟包括使枯烯氫過氧化物與含鉍及

### 五、發明說明 ( 3 )

I V B 族金屬混合氧化物之固體酸觸媒接觸。

I V B 族金屬較宜是銦。

該固體酸觸媒較宜也含選自 I B 、 VII B 及 VIII 族金屬之其他金屬，且較宜選自鐵、錳及銅。

製造該固體酸觸媒較宜經由在至少 400℃ 之溫度下煅燒含 I V B 族金屬氧化物來源及氧化鉍來源之觸媒前驅物。

該溫度較宜至少 500℃ 且更宜是 600 - 700℃。

該觸媒前驅物較宜從含鉍及該 I V B 族金屬離子的液體混合物在 pH 低於 9 且更宜 3 至 8 下沈澱。

該接觸步驟較宜在溫度是 20 至 150℃ 且壓力是大氣壓至 1000 p s i g 下進行，且更宜在溫度是 40 至 120℃ 且壓力是大氣壓至 400 p s i g 下進行。

本發明方法可在低同時產生雜質例如異丙叉丙酮及雙丙酮醇下，達成將枯烯氫過氧化物大部份轉化成苯酚及丙酮。

#### 特定具體實施例之說明

本發明方法使用 I V B 族金屬及鉍混合氧化物作為固體酸觸媒，用於將枯烯氫過氧化物解離成苯酚及丙酮

本發明觸媒經計算之莫耳比例，以  $X O_2 / C e O_n$  之形式表示其中 X 是至少一種 I V B 族金屬（也就是 T i 、 Z r 及 H f ），是至多 1000，例如至多 300，例如

## 五、發明說明 ( 4 )

從 2 至 1 0 0，例如從 4 至 8 0，雖然當然這些形式的氧化物，也就是  $XO_2$  及  $CeO_n$ ，可能不實際上存在於本發明觸媒內。

I V B 族金屬氧化物較宜選自二氧化鈦、二氧化鋯及二氧化鉛，以二氧化鋯最佳，存在於最終觸媒之 I V B 族及銨金屬物質不限於任何特定價狀態，且可存在為各物質可能的任何正氧化值。

I V B 族金屬氧化物之合適來源包括在與三氧化二銻煅燒期間可產生此氧化物之化合物例如氮氧化物、氮化物及硝酸鹽，醇鹽也可作為 I V B 族金屬氧化物之來源使用，例如正丙醇鋯及異丙醇鈦，I V B 族金屬氧化物之較佳來源是水合二氧化鋯，水合二氧化鋯係用於隱含含鋯原子經由橋接的氧原子共價連接至其他鋯原子且還含可供使用的表面羥基之物質，這些可供使用的表面羥基咸信是與三氧化二銻物質反應而形成本發明之酸性觸媒成份，水合二氧化鋯可經由在約 1 0 0 °C 至約 4 0 0 °C 之溫度下預煅燒  $Zr(OH)_4$  而形成。

雖然不侷限於此化學，推測二氧化鋯及三氧化二銻之間的相互作用與二氧化鋯及鎢酸鹽氧化物之間類似，且因此水熱處理水合 I V B 族金屬氧化物例如水合二氧化鋯，可促進與三氧化二銻物質的相互作用，水熱處理情形可包括溫度至少 8 0 °C，例如至少 1 0 0 °C，水熱處理可在大於大氣壓力之密封容器內進行，但是，較佳的處理模式包括在迴流情形下使用開口容器，在液體介質中攪拌水合

## 五、發明說明 ( 5 )

I V B 族金屬氧化物，例如經由迴流液體之作用及／或攪拌，促進水合氧化物與液體介質之有效相互作用，水合氧化物與液體介質之接觸期間可為至少 1 小時，例如至少 8 小時，用於此處理之液體介質其 pH 可為約 7 或更高，例如 9 或更高，合適的液體介質包括水、氫氧化物溶液（包括  $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  及  $\text{Ca}^{2+}$  之氫氧化物）、碳酸鹽及碳酸氫鹽溶液（包括  $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  及  $\text{Ca}^{2+}$  之碳酸鹽及碳酸氫鹽）、吡啶及其衍生物、及烷基／羥基胺類。

氧化銫的合適來源包括但不限於含氧的鹽類，例如硫酸銫。

在本發明之一個具體實施例中，製備觸媒是經由用含銫離子之水溶液浸漬經水熱處理的 I V B 族金屬水合氧化物，隨後乾燥，然後將所得的觸媒前驅物在下述方式下煅燒。

在本發明之另一個具體實施例中，製備觸媒是經由從銫及 I V B 族離子之液體混合物共同沈澱，然後將所得的觸媒前驅物在下述方式下煅燒，製備液體混合物可經由將含 I V B 族金屬氧化物來源之第一種液體溶液混合含銫離子來源之第二種液體溶液，此兩種溶液之混合是在足以造成觸媒前驅物以固體從液體介質共同沈澱之情形下進行，或者是，I V B 族金屬氧化物來源與銫離子來源可在單一溶液中混合，此溶液可隨後進行足以造成觸媒同沈澱之情形，例如經由添加沈澱試劑例如氨至溶液，水是供這些溶

## 五、發明說明 ( 6 )

液使用的較佳溶劑，液體混合物在共同沈澱期間保持的 pH 顯示對測定最終觸媒之活性很重要，且因此 pH 必須保持低於 9，較宜介於 3 及 8，且最宜介於 6 及 8，液體介質在共同沈澱期間保持的溫度通常是低於約 200℃ 且較宜從約 50℃ 至約 100℃。

煅燒觸媒前驅物較宜在氧化氣壓下，在至少 400℃ 之溫度下進行，較宜至少 500℃，且更宜從約 550℃ 至約 800℃，且最宜從約 600℃ 至約 700℃，煅燒時間可至多 48 小時，較宜約 0.5 - 24 小時，且更宜約 1.0 - 10 小時，在一個最佳具體實施例中，煅燒是在約 700℃ 下進行約 1 至約 3 小時。

所得的觸媒可在慣用情形下進行最終的煅燒，以便使觸媒脫水並給予觸媒所需的機械強度，觸媒在使用前可進行預硫化作用，例如經由在硫化氫存在下加熱，將金屬成份之氧化物形式轉化成其對應的硫化物。

其他金屬例如 IB、VII B 及 VIII 族金屬且較宜是鐵、錳及／或銅可視需要加入本發明觸媒以改變其催化性質。

本發明觸媒可與基質物質混合而形成觸媒之完成形式且對於此目的，合適使用慣用的基質物質例如氧化鋁、矽石-氧化鋁及矽石，較宜用矽石作為非酸性黏著劑，可以使用其他黏著劑物質，例如二氧化鈦、二氧化鋯及其他金屬氧化物或黏土，此活性觸媒可在從 80 : 20 至 20 : 80 之重量下與基質混合，例如從 80 : 20 至 50 : 50 之活性觸媒：基質，混合可經由慣用的方法完成，包

## 五、發明說明 ( 7 )

括將物質一起研磨，隨後擠壓或粒化成所要的完成觸媒粒子。

進行本發明之解離反應是經由使枯烯氫過氧化物與上述固體氧化物觸媒在 20 至 150 °C 且較宜是 40 至 120 °C 的溫度及在大氣壓力至 1000 p s i g 且較宜是大氣壓力至 400 p s i g 之壓力下之液相中接觸，爲了進行與枯烯氫過氧化物接觸，上述固體氧化物觸媒可包含在固定或流體化床中，且接觸操作可連續或批次進行，如果連續進行接觸，以枯烯氫過氧化物爲基準之 L H S V 是在 0.1 至 100 小時<sup>-1</sup>之範圍內，較宜是 1 至 50 小時<sup>-1</sup>，如果批次進行接觸，駐留時間是在 1 至 360 分鐘之範圍內，較宜是 1 至 180 分鐘，枯烯氫過氧化物較宜溶解在對解離反應惰性之有機溶劑中，例如苯、甲苯、枯烯且最宜是丙酮，較宜使用溶劑以便有助於消散反應熱（約 60 千卡／莫耳）。

現在將參照下列實例更確定地說明本發明。

### 實例 1

在攪拌下將 500 克  $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$  及 32 克硫酸鉍溶解在 3.0 升蒸餾水中，製備含 260 克濃  $NH_4OH$  及 2.94 升蒸餾水之另一種溶液，在攪拌下將兩種溶液混合，添加濃  $NH_4OH$  將此合併的混合物之 pH 調整成 8，然後將此稠漿放入聚丙烯瓶內並在蒸汽箱（100 °C）內放置 72 小時，經由過濾回收形成的產物，

## 五、發明說明 ( 8 )

用大量的水清洗，並在 85℃ 下乾燥過夜，一部份此觸媒在流動空氣中煅燒至 700℃ 歷時 3 小時，製造在二氧化鋁上含通稱 5% Ce 之酸性氧化物觸媒。

### 實例 2

在配備冷凝器、攪拌器及添加漏斗且放在溫度控制的水浴之 250 毫升圓底燒瓶中加入 100.0 克丙酮及 1.00 克實例 1 觸媒之混合物，將混合物在攪拌下加熱至迴流 (57℃)，在約 2 克／分鐘之速率下逐滴加入 50.0 克“80%”枯烯氫過氧化物 (CHP) 溶液 (分析為 80.8% CHP、7.7% 枯烯、6.9% 2-苯基-2-丙醇、2.1% 乙醯苯)，加入 CHP 溶液後，在規律間隔下取出反應物溶液之少量樣品 (~0.2 毫升)，過濾並經由氣象層析儀分析，下表顯示反應物溶液在完成添加 CHP 後 1 及 3 小時之組成 (質量%)。

## 五、發明說明 ( 9 )

|                 | 進料    | 1 小時  | 3 小時  |
|-----------------|-------|-------|-------|
| 丙酮              | 66.67 | 76.63 | 77.43 |
| 異丙叉丙酮           | 0.0   | 0.00  | 0.00  |
| 枯烯              | 2.56  | 2.61  | 2.63  |
| 苯酚              | 0.09  | 15.17 | 16.78 |
| $\alpha$ -甲基苯乙烯 | 0.07  | 1.20  | 0.37  |
| 乙醯苯             | 0.70  | 1.34  | 0.88  |
| 2-苯基-2-丙醇       | 2.36  | 1.82  | 1.48  |
| 枯烯氫過氧化物         | 26.93 | 1.54  | 0.06  |
| CHP 轉化率         |       | 94.3% | 99.8% |

實例 3

在攪拌下將 500 克  $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$  及 64 克硫酸鉍溶解在 3.0 升蒸餾水中，製備含 260 克濃  $NH_4OH$  及 3.0 升蒸餾水之另一種溶液，將兩種溶液都加熱至  $60^\circ C$ ，使用噴嘴混合器在 50 毫升／分鐘之速率下將兩種加熱後的溶液混合，添加濃  $NH_4OH$  將此合併的混合物之 pH 調整成 8，然後將此稠漿放入聚丙烯瓶內並在蒸汽箱 ( $100^\circ C$ ) 內放置 72 小時，經由過濾回收形成的產物，用大量的水清洗，並在  $85^\circ C$  下乾燥過夜，一部份此觸媒在流動空氣中煅燒至  $700^\circ C$  歷時 3 小時，製造在二氧化鋯上含通稱 10% Ce 之酸性氧化物觸媒。

## 五、發明說明 ( 10)

## 實例 4

在配備冷凝器、攪拌器及添加漏斗且放在溫度控制的水浴之 250 毫升圓底燒瓶中加入 100.0 克丙酮及 1.00 克實例 3 觸媒之混合物，將混合物在攪拌下加熱至迴流（57℃），在約 2 克／分鐘之速率下逐滴加入 50.0 克“80%”枯烯氫過氧化物（CHP）溶液（分析為 80.8% CHP、7.7% 枯烯、6.9% 2-苯基-2-丙醇、2.1% 乙醯苯），加入 CHP 溶液後，在規律間隔下取出反應物溶液之少量樣品（~0.2 毫升），過濾並經由 GC 分析。

下表顯示反應物溶液在完成添加 CHP 後 1 及 3 小時之組成（質量%）。

|                 | 進料    | 1 小時  | 3 小時  |
|-----------------|-------|-------|-------|
| 丙酮              | 66.67 | 70.01 | 72.36 |
| 異丙叉丙酮           | 0.0   | 0.00  | 0.00  |
| 枯烯              | 2.56  | 2.59  | 2.60  |
| 苯酚              | 0.09  | 5.38  | 8.87  |
| $\alpha$ -甲基苯乙烯 | 0.07  | 0.17  | 0.20  |
| 乙醯苯             | 0.70  | 1.32  | 1.63  |
| 2-苯基-2-丙醇       | 2.36  | 2.26  | 2.19  |
| 枯烯氫過氧化物         | 26.93 | 17.49 | 11.26 |
| CHP 轉化率         |       | 35.1% | 58.2% |

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 11)

### 實例 5

在攪拌下將 50 克  $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$  溶解在 300 毫升蒸餾水中，製備含 3.2 克硫酸銨及 300 毫升蒸餾水之另一種溶液，在攪拌下將兩種溶液混合，添加濃  $NH_4OH$  溶液將此合併的混合物之 pH 調整成 3，然後將此稠漿放入聚丙烯瓶內並在蒸汽箱（100℃）內放置 72 小時，經由過濾回收形成的產物，用大量的水清洗，並在 85℃ 下乾燥過夜，一部份此觸媒在流動空氣中煅燒至 700℃ 歷時 3 小時，製造在二氧化鋯上含通稱 5% Ce 之酸性氧化物觸媒。

### 實例 6

在配備冷凝器、攪拌器及添加漏斗且放在溫度控制的水浴之 250 毫升圓底燒瓶中加入 100.0 克丙酮及 1.00 克實例 5 觸媒之混合物，將混合物在攪拌下加熱至迴流（57℃），在約 2 克／分鐘之速率下逐滴加入 50.0 克“80%”枯烯氫過氧化物（CHP）溶液（分析為 80.8% CHP、7.7% 枯烯、6.9% 2-苯基-2-丙醇、2.1% 乙醯苯），加入 CHP 溶液後，在規律間隔下取出反應物溶液之少量樣品（~0.2 毫升），過濾並經由氣象層析儀分析，下表顯示反應物溶液在完成添加 CHP 後 1 及 3 小時之組成（質量%）。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 12 )

|                 | 進料    | 1 小時  | 3 小時  |
|-----------------|-------|-------|-------|
| 丙酮              | 66.67 | 76.02 | 77.30 |
| 異丙叉丙酮           | 0.0   | 0.00  | 0.00  |
| 枯烯              | 2.56  | 2.58  | 2.61  |
| 苯酚              | 0.09  | 15.31 | 16.73 |
| $\alpha$ -甲基苯乙烯 | 0.07  | 0.21  | 0.28  |
| 乙醯苯             | 0.70  | 1.50  | 0.96  |
| 2-苯基-2-丙醇       | 2.36  | 1.81  | 1.51  |
| 枯烯氫過氧化物         | 26.93 | 3.27  | 0.14  |
| CHP 轉化率         |       | 87.9% | 99.5% |

實例 7

在攪拌下將 500 克  $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$  及 32 克硫酸銨溶解在 3.0 升蒸餾水中，製備含 260 克濃  $NH_4OH$  及 2.94 升蒸餾水之另一種溶液，在攪拌下將兩種溶液混合，添加濃  $NH_4OH$  將此合併的混合物之 pH 調整成 8，然後將此稠漿放入聚丙烯瓶內並在蒸汽箱（ $100^\circ C$ ）內放置 72 小時，經由過濾回收形成的產物，用大量的水清洗，並在  $85^\circ C$  下乾燥過夜，一部份此觸媒在流動空氣中煅燒至  $600^\circ C$  歷時 3 小時，製造在二氧化鋯上含通稱 5% Ce 之酸性氧化物觸媒。

實例 8

### 五、發明說明 ( 13 )

在配備冷凝器、攪拌器及添加漏斗且放在溫度控制的水浴之 250 毫升圓底燒瓶中加入 100.0 克丙酮及 1.00 克實例 7 觸媒之混合物，將混合物在攪拌下加熱至迴流 (57℃)，在約 2 克／分鐘之速率下逐滴加入 50.0 克“80%”枯烯氫過氧化物 (CHP) 溶液 (分析為 80.8% CHP、7.7% 枯烯、6.9% 2-苯基-2-丙醇、2.1% 乙醯苯)，加入 CHP 溶液後，在規律間隔下取出反應物溶液之少量樣品 (~0.2 毫升)，過濾並經由氣象層析儀分析，下表顯示反應物溶液在完成添加 CHP 後 1 及 3 小時之組成 (質量%)。

|                 | 進料    | 1 小時   | 3 小時  |
|-----------------|-------|--------|-------|
| 丙酮              | 66.67 | 70.07  | 73.14 |
| 異丙叉丙酮           | 0.0   | 0.00   | 0.00  |
| 枯烯              | 2.56  | 2.52   | 2.54  |
| 苯酚              | 0.09  | 5.25   | 9.28  |
| $\alpha$ -甲基苯乙烯 | 0.07  | 0.18   | 0.21  |
| 乙醯苯             | 0.70  | 1.48   | 1.89  |
| 2-苯基-2-丙醇       | 2.36  | 2.22   | 2.09  |
| 枯烯氫過氧化物         | 26.93 | 17.51  | 9.72  |
| CHP 轉化率         |       | 34.98% | 63.7% |

## 四、中文發明摘要(發明之名稱: 苯酚的製法)

揭示一種用於從枯烯氫過氧化物製造苯酚及丙酮之方法，其中該枯烯氫過氧化物是與含銨及 I V B 族金屬的混合氧化物之固體酸觸媒接觸。

## 英文發明摘要(發明之名稱: Production of phenol)

A process for producing phenol and acetone from cumene hydroperoxide is described in which the cumene hydroperoxide is contacted with a solid-acid catalyst comprising a mixed oxide of cerium and a Group IVB metal.

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

附件 1(A)：

第 89115626 號專利申請案

中文申請專利範圍修正本

民國 91 年 10 月 25 日修正

1 . 一種由枯烯氫過氧化物製造苯酚及丙酮之方法，其步驟包括使枯烯氫過氧化物與含銫及 I V B 族金屬的混合氧化物之固體酸觸媒接觸，其中該固體酸觸媒是經由在至少 4 0 0 °C 之溫度下煅燒含 I V B 族金屬氧化物來源及氧化銫來源之觸媒前驅物而製得，而該觸媒前驅物是在 p H 低於 9 的情況下從含銫及該 I V B 族金屬離子之液體混合物中沈澱出，及其中該接觸步驟是在溫度為 2 0 至 1 5 0 °C 且壓力為大氣壓力至 1 0 0 0 p s i g 下進行。

2 . 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該 I V B 族金屬是鋅。

3 . 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該溫度是至少 5 0 0 °C 。

4 . 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該溫度是 6 0 0 - 7 0 0 °C 。

5 . 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該 p H 是 3 至 8 。

6 . 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該固體酸觸媒也含選自週期表 I B 、 VII B 或 VIII 族之金屬。

7 . 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該接觸步驟是在溫度為 4 0 至 1 2 0 °C 且壓力為大氣壓力至 4 0 0

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

p s i g 下進行。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線