

公告本

92年9月9日修正
補充

修正

申請日期：92.2.19

IPC分類

申請案號：92103368

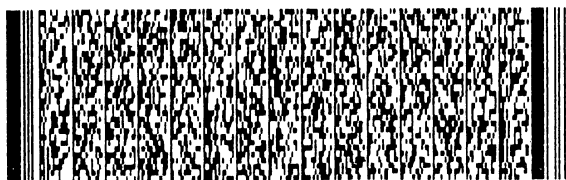
C07C 27/12

591009

(附片)各欄由本局填註)

發明專利說明書

發明名稱	中文	環烷化合物之液相氧化方法
	英文	LIQUID PHASE OXIDATION OF CYCLOALKANE COMPOUND
二、發明人 (共3人)	姓名 (中文)	1. 吳重和 2. 陳政任 3. 楊小惠
	姓名 (英文)	1. 2. 3.
	國籍 (中英文)	1. 中華民國 TW 2. 中華民國 TW 3. 中華民國 TW
	住居所 (中文)	1. 高雄市苓雅區福德三路317巷31號 2. 台北市文山區福興路85號2樓 3. 高雄市苓雅區凱旋一路39號
	住居所 (英文)	1. 2. 3.
三、申請人 (共1人)	名稱或姓名 (中文)	1. 中國石油化學工業開發股份有限公司
	名稱或姓名 (英文)	1.
	國籍 (中英文)	1. 中華民國 TW
	住居所 (營業所) (中文)	1. 台北市松山區東興街12號8-11樓 (本地址與前向貴局申請者相同)
	住居所 (營業所) (英文)	1.
	代表人 (中文)	1. 馮亨
	代表人 (英文)	1.



一、本案已向

國家(地區)申請專利

申請日期

案號

主張專利法第二十四條第一項優先權

無

二、☐主張專利法第二十五條之一第一項優先權：

申請案號：

無

日期：

三、主張本案係符合專利法第二十條第一項☐第一款但書或☐第二款但書規定之期間

日期：

四、☐有關微生物已寄存於國外：

寄存國家：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

☐有關微生物已寄存於國內(本局所指定之寄存機構)：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

☐熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

五、發明說明 (1)

【發明所屬之技術領域】

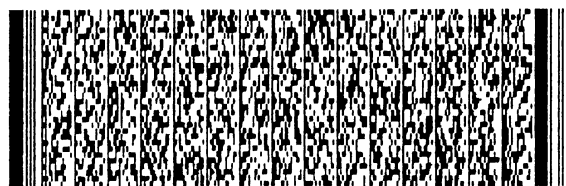
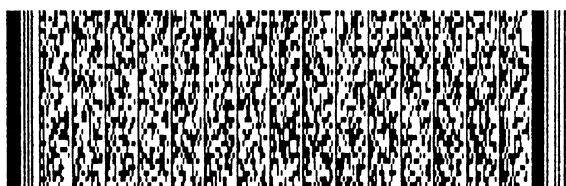
本發明係有關於一種使用含氧氣體於液相中進行環烷化合物之氧化反應的方法，特別是，使用高含氧氣體或純氧進行環己烷之液相氧化反應的方法。

【先前技術】

在石油化學工業的相關領域中，環烷化合物的液相氧化反應係極為重要的一個環節，而在多種液相氧化反應中，又以環己烷之氧化反應特別重要。環己烷經氧化後會產生環己醇、環己酮、以及己二酸等產物，而環己醇、環己酮均可進一步形成己內醯胺。其中，己內醯胺經開環聚合可製成醯胺類纖維尼龍 6(Nylon 6)，而己二胺以及己二酸經縮聚合可製成尼龍 66(Nylon 66)。因此，用以製造該等醯胺類纖維之單體的環己烷氧化反應，在石油化學工業的領域中具有極高之經濟價值。

目前，工業上係採用環己烷或酚作為製造環己酮以及己內醯胺之原料。由於使用酚加氫製成環己酮的方法需要較高之成本，因此，傳統工業上大多係使用環己烷作為反應原料，在高溫高壓的條件下通入空氣進行氧化反應。該種氧化反應首先生成中間物環己基過氧化物，再分解為環己酮與環己醇，即俗稱之酮、醇油(KA oil)。其中，環己醇需要進一步進行脫氫反應轉回環己酮，使用環己酮進行胺化反應後，再以硫酸催化進行貝克曼重排反應而形成己內醯胺。

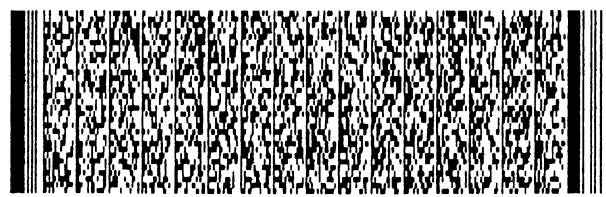
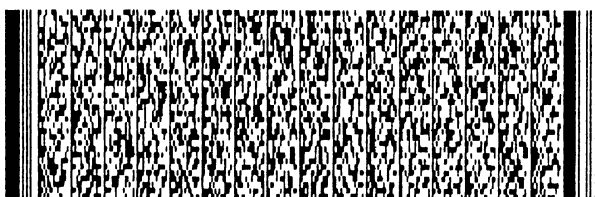
一般而言，傳統工業上之環己烷氧化製程係將溫度控



五、發明說明 (2)

制在 140至 170°C 之溫度範圍內，空氣壓力係控制在 5至 25 bar或更高之壓力下。該種環己烷氧化製程可於使用觸媒或未使用觸媒之條件下，以空氣進行氧化反應而產生中間產物環己基過氧化物、環己醇、以及環己酮。惟，該種環己烷氧化製程之轉化率並不高，通常係在 10% 以下。例如，中華民國公告第 150309號專利所揭示之內容中已指出，該種環己烷氧化製程之目標產物 "環己酮以及環己醇" 皆為低氧化態之化合物，而非常容易更進一步進行反應而形成較高氧化態之化合物。因此，在該種傳統的環己烷氧化製程中，目標產物 "環己酮及環己醇" 的選擇率並不高，此種低轉化率製程之目的主要係為了降低過度氧化而產生之酸或其他副產物。是以，控制產物之選擇性即成為改善該種氧化製程的重點；另一方面，若能同時提高轉化率，則可降低產物分離之負載、提高單位時間及空間的產能，進而提昇該種氧化製程之效率。

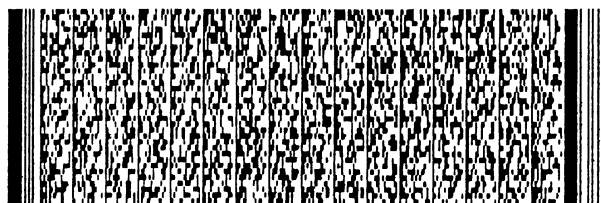
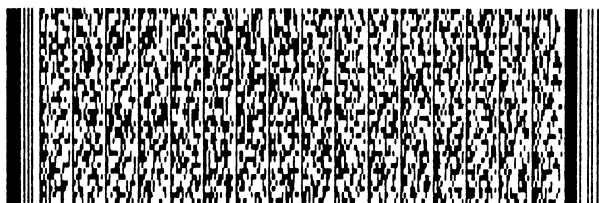
通常，在石油化學工業的相關領域中，係藉由添加特定之觸媒，以達到提昇該種氧化製程之轉化率及選擇率的目的。在碳氫化合物之液相氧化反應中，一般係藉由使用過渡金屬離子或其錯合物之均相觸媒，以增加製程之效率。該等過渡金屬離子的實例包括 Co^{2+} 、 Cr^{2+} 、 Mn^{2+} 、 Cu^{2+} 、以及 Ni^{2+} 等，其中又以 Co^{2+} 之活性為最佳。例如，美國第 3,987,100 號專利係揭示藉由添加鈷與鉻二元觸媒 (包含 0.1 至 5 ppm 之鈷以及 0.02 至 0.9 ppm 之鉻)，以空氣預氧化的方式進行環己烷之氧化反應；美國第 4,658,056 號專利係



五、發明說明 (3)

揭示使用雙[二(2-乙基己基)磷酸]鈷結合環烷酸鉻之二元觸媒，在高溫高壓之反應條件下，通入氣體空氣進行氧化；美國第2,851,496號專利係揭示於反應溫度160°C以及反應壓力160 psi的條件下，使用空氣進行環己烷之氧化反應，並使該環己烷氧化反應所得之產物流過70°C經燒結之氧化鈷固定床反應器，使其接觸15分鐘，以提高該環己烷氧化反應之轉化率及選擇率；以及Luna等人在"Cyclohexane Oxidation Using Transition Metal-Containing Aluminophosphates (MAPO-VFI)," Journal of Molecular Catalysis, vol. 117, pp. 405-11之論文中揭示利用含過渡金屬之鋁磷酸鹽(MAPO-VFI)作為觸媒進行環己烷之氧化反應，可將酮醇比提高至15.3，惟，該反應之時間超過24小時，且觸媒之添加量需高達1%左右，並不適合應用於工業上的大量生產。

另一方面，環己烷之氧化製程的轉化率及選擇率，亦可藉由改善通入氣體之氣-液接觸方式進行加以改善。例如，美國第3,957,876號專利係揭示利用蒸餾塔式之反應槽，使環己烷進料向下流動並與塔中分佈於每一層並向上流動之空氣有效地接觸，以達均勻混合之目的，並於每一層設有氧氣清除層，使未完全反應殆盡之殘餘氧氣含量從蒸餾塔的液相空間到達氣相空間時維持在4%以下，避免生成爆炸性的混合氣體；以及美國第6,075,169號專利係揭示利用氣-液逆流的方式增加空氣與環己烷液體間之質



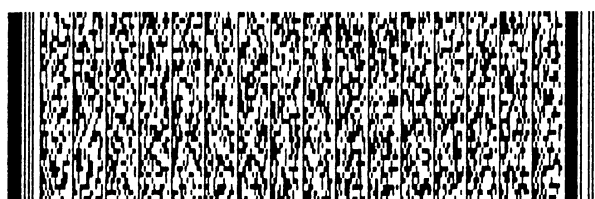
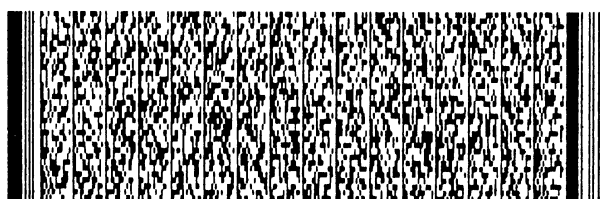
五、發明說明 (4)

傳效果。惟，上述專利所揭示之內容，均未能有效地提高該種環己烷氧化製程之酮醇比。

再者，藉由通入氧濃度超過 21% 之高含氧氣體或純氧來進行氧化反應，亦可改善該種環己烷之氧化製程的轉化率及選擇率。然而，使用該種氧濃度超過 21% 之高含氧氣體或純氧來進行氧化反應可能造成潛在的爆燃

(deflagration) 危害，而難以應用於傳統工業之氧化製程。爆燃是燃燒反應的一種，當可燃性氣體與氧化劑如氧氣等混合後，因引燃所造成溫度與壓力的劇增稱為爆燃或通稱爆炸。爆燃的發生往往是因為反應不走正常的部份氧化而改走完全氧化，而這也是氧化製程中所隱藏之最大危害，反應一旦進入爆炸界限 (explosion limits) 壓力將瞬間驟昇，而可能會導致反應器爆炸的嚴重意外。

美國第 5,780,683 以及 6,008,415 號專利所揭示之環己烷氧化法，係使用特殊的液相氧化反應器，通入高含氧氣體或純氧，利用特殊向下攪動之葉片使環己烷與含氧氣體混合，並藉由擋板有效地阻隔並消耗氧氣，而少數未完全反應殆盡之氧氣由液相空間排至氣相空間時，則利用氮氣加以鈍化。相較於使用空氣進行氧化反應之傳統製程，該種使用高含氧氣體或純氧進行氧化反應之製程，在環己烷之轉換率同為 4% 之情況下，反應溫度可由 160°C 降至 149°C，反應之滯留時間可由 36 分鐘縮短為 8 分鐘，同時，單位時間空間之產率約由 0.45 gmol/hroL 提高至 1.85 gmol/hroL，且所生成之環己酮與環己醇之酮醇比亦由



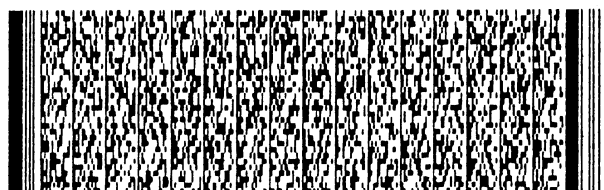
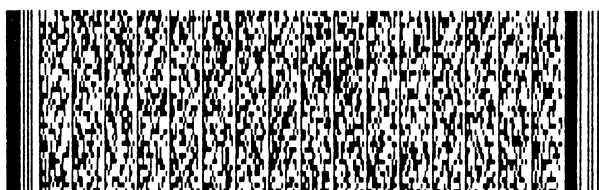
五、發明說明 (5)

0.48提高為0.77。因此，在安全無慮之前提下，以相同之反應條件進行環己烷之氧化反應時，增加所使用之含氧氣體的氧濃度，確實可提升該種環己烷氧化反應是此方法放大生產的潛在隱憂。工業上大量生產此方法需特別之效能。然而，Williams等人於 "Developing Safe Oxygen-Based Commercial Liquid-Phase Oxidation Reactors" AIChE Annual Meeting, Miami, FL, 1998已指出，利用高含氧氣體或純氧進行環己烷之氧化反應，在含氧氣體或純氧的氣泡中含有環己烷蒸氣，而可能進入環己烷之爆炸界限，仍有潛在的氣泡爆燃危害，是該種方法放大至工業上大量生產所必須面對的潛在隱憂。此外，該種方法需特別需特別注意氧氣的分散與攪拌的控制，特別是當攪拌失效時，液相中的氣泡可能聚集形成局部、具有潛在爆燃危害的氣相空間，此亦使得該方法在實際操作上需極為謹慎。

【發明內容】

本發明之目的係提供一種環烷化合物之液相氧化方法，該方法可使用高含氧之氣體進行氧化反應以提高反應之產率及轉化率，同時兼顧反應的安全性。

本發明之方法係先使欲進行氧化之環烷化合物與水形成共沸混合物，再通入含氧氣體進行氧化反應。就環己烷之氧化反應而言，使用高含氧氣體（甚至純氧）進行環己烷之氧化反應，可在不使用觸媒之條件下提高製程之產率以及酮醇比，亦具有降低反應溫度以及減少尾氣排放與處理



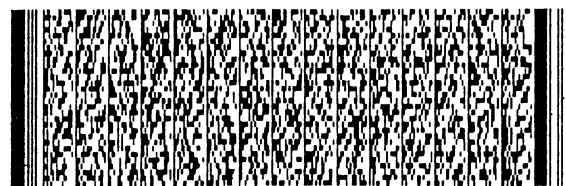
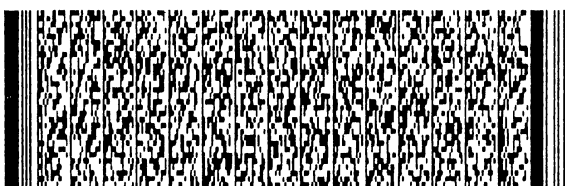
五、發明說明 (6)

等優點。因此，本發明之液相氧化方法應用於環己烷之氧化製程時，不需另外添加氮氣作為惰性化氣體，即可克服使用高含氧氣體所導致潛在的爆燃危險，同時具有提高製程之產率以及酮醇比的優點。

【實施方式】

本發明人經研究後發現，基於環己烷與水會形成正壓共沸混合物，亦即混合物的蒸氣壓會因共沸而高於單獨成分之蒸氣壓，混合物提高的蒸氣壓因含有大量的水蒸氣，該水蒸氣恰可於氧化過程中代替氮氣作為惰性化氣體。因此，使用高含氧氣體或純氧進行環己烷之氧化反應，不需另行通入氮氣作為惰性化氣體。亦即，本發明之方法係利用由將水添加至環己烷形成正壓共沸混合物，該共沸混合物所具有之大量水蒸氣可代替氮氣作為惰性化氣體，使反應中之氧氣濃度能維持在一個安全的範圍內。因此，即使是使用純氧進行環己烷之氧化製程，亦可有效地避免爆燃危害的發生。

再者，環己烷與水所形成之正壓共沸混合物可藉由溫度加以控制，該共沸混合物之壓力與攪拌作用之關聯性並不大。因此，使用高含氧氣體或純氧進行環己烷之氧化反應時，若發生攪拌意外停止之情況，僅需控制該反應系統之溫度，即可避免氧濃度過高而產生爆燃的危險，故仍有充足的時間採取適當的措施，例如緊急添加氮氣加以稀釋，以確保反應系統不會發生爆燃的情形，因而具有較佳之安全性。因此，本發明之液相氧化方法應用於環己烷之

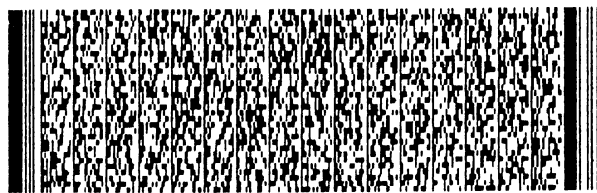
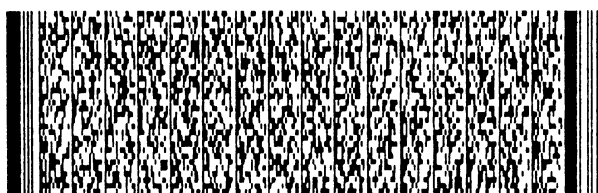


五、發明說明 (7)

氧化製程時，不但可以使用純氧進行氧化反應以改善該氧化製程的轉化率以及選擇率，獲得較高的酮醇比，以降低環己醇脫氫再轉化成環己酮的負載，亦可兼顧整個操作系統的安全性以及生產效益，具有極高的經濟效益。

另一方面，在環己烷氧化製程中加水共同進行反應，並不會影響該氧化反應的進行。例如，美國第 2,565,087 號專利所揭示之環脂族化合物的氧化製程，已提到在環己烷的空氣氧化製程中加入 10 至 30 重量 % 之水共同進行反應，可有效地抑制副產物酯類的生成。惟，該專利中並未揭示環己烷與水會生成正壓共沸混合物，而該共沸混合物所具有之大量水蒸氣恰能代替氮氣作為氧化製程中的惰性氣體，而得以在沒有安全顧慮的考量下，使用高含氧氣體或純氧進行氧化反應。理論上，在環己烷氧化製程中所添加之水量多寡雖不會影響反應的進行，但所添加之水卻會佔據有效的反應體積，而相對地降低單位體積、時間的產率。因此，本發明之液相氧化方法應用於環己烷之氧化製程時，所需加入之水量多寡，並未受限於美國第 2,565,087 號專利所揭示 10 至 30 重量 % 之範圍的限制，只要所形成之共沸混合物中，其氣相空間的水蒸氣分壓足以惰性化所使用的純氧即可。通常，所需加入之水的確切量，應由實際的操作溫度與爆炸測試結果來決定。若條件許可，所添加之水量越少，則產率越佳，且產率的提升甚至可達使用空氣的兩倍以上。

使用本發明之液相氧化方法進行環己烷之氧化製程

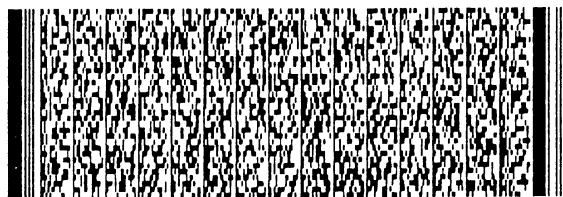
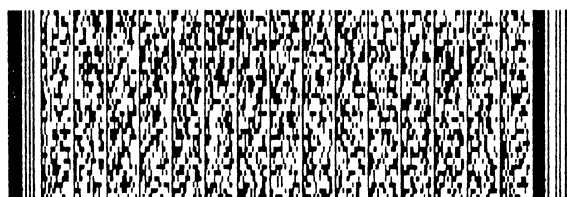


五、發明說明 (8)

時，較佳係將 0.01 至 50 重量% 的水添加至環己烷中，又更佳係將 0.1 至 30 重量% 的水添加至環己烷中，並於 100 至 200°C，較佳為 140 至 170°C 的溫度條件下形成正壓共沸混合物；再以高於該正壓共沸混合物之蒸氣壓約 0.001 至 10 bar，較佳為 0.1 至 2 bar 的進氣壓力將含氧氣體，特別是氧濃度為 30 至 100% 之高含氧氣體或爆炸範圍以外之純氧通入其中，進行氧化反應。該種高含氧氣體之進氣壓力可視反應溫度與水的添加量加以調整，而反應氣體的進氣方式可採用一進一出的連續進氣方式，或採用密閉、不足時才補給的進氣方式；其中，使用純氧進行氧化反應時，採用密閉、不足時才補給的進氣方式可減少反應廢氣的排放與處理，更符合環保的考量，所節省之反應廢氣排放與處理的費用，亦可彌補使用純氧之費用，有利於成本之考量。

本發明之液相氧化方法可適用於連續式或批次式操作，通常係以連續式操作較佳。此外，本發明之方法所使用之反應器亦不需特殊設計，可以使用一個或多個串聯的攪拌槽或氣泡槽作為反應器，通常係以多個串聯的攪拌槽較佳。因此，就設備設置之成本而言，本發明之方法不需設置額外的裝置，即可克服使用高含氧氣體進行氧化反應所導致潛在的爆燃危險，同時兼顧提高製程之產率以及安全性的優點。

本發明之方法可於未使用觸媒之條件下進行，亦可搭配使用適當的觸媒進行該反應。該等適當的觸媒可由熟悉



五、發明說明 (9)

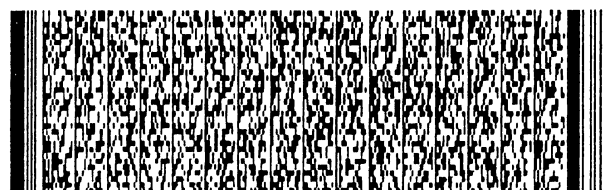
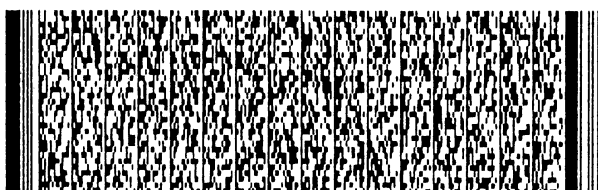
該項技術者，視欲進行氧化反應之碳氫化合物的種類以及所使用之反應系統加以選擇。一般而言，未使用觸媒之條件下所進行之反應，可以節省觸媒的分離與處理成本，具有簡化製成以及降低成本之優點。

再者，本發明之液相氧化方法除可應用於環己烷之氧化製程外，亦適合應用於其他可與水產生共沸之環烷化合物之氧化製程，特別是具有4至14個碳原子之環烷類化合物，例如環戊烷、環庚烷、環辛烷、環壬烷、環癸烷等。惟，將本發明之方法應用於碳氫化合物之氧化製程時，需注意所通入之純氧係在爆炸範圍以外，而確切的量應以實際的量測為準。測量方法可參照Chen, J. R.以及K. Liu, 等人於 "A Simple Apparatus for Flammability at Elevated Pressures," 2001 Asia-Pacific Symposium on Safety, Kyoto, Japan, Nov. 2001. 所揭示之內容。

實施例

實施例 1

於高溫高壓反應容器中添加1500毫升環己烷與水之混合物（體積比為95：5，重量比為93.7：6.3），待溫度達165°C後，再以高於蒸氣壓1 bar之進氣壓力，採密閉、不足即補氣的方式通入純氧氣體，於攪拌下進行氧化反應。記錄環己酮之產率、總可用產率（包括環己酮、環己醇及環己基過氧化物）、以及酮醇比之結果，如下表1所示：



五、發明說明 (10)

表 1

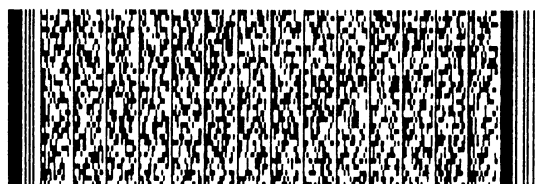
反應時間 (hr)	環己酮之產率 (gmol/L · hr)	總可用產率 (gmol/L · hr)	酮醇比
1	0.0706	0.203	1.44
1.5	0.0544	0.171	0.622
2	0.0342	0.110	0.503

實施例 2

於高溫高壓反應容器中添加 1500 毫升環己烷與水之混合物 (體積比為 95: 5, 重量比為 93.7: 6.3), 待溫度達 160°C 後, 再以高於蒸氣壓 1 bar 之進氣壓力, 採密閉、不足即補氣的方式通入純氧氣體, 於攪拌下進行氧化反應。記錄環己酮之產率、總可用產率 (包括環己酮、環己醇及環己基過氧化物)、以及酮醇比之結果, 如下表 2 所示:

表 2

反應時間 (hr)	環己酮之產率 (gmol/L · hr)	總可用產率 (gmol/L · hr)	酮醇比
1	0.0430	0.131	3.27
1.5	0.0468	0.130	1.35
2	0.0411	0.127	0.819



五、發明說明 (11)

實施例 3

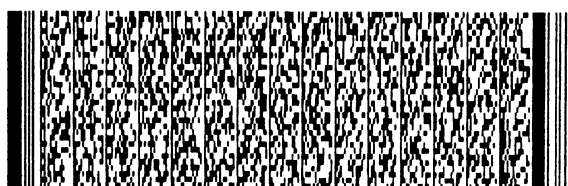
於高溫高壓反應容器中添加 1500 毫升環己烷與水之混合物 (體積比為 95: 5, 重量比為 93.7: 6.3), 待溫度達 155°C 後, 再以高於蒸氣壓 1 bar 之進氣壓力, 採密閉、不足即補氣的方式通入純氧氣體, 於攪拌下進行氧化反應。記錄環己酮之產率、總可用產率 (包括環己酮、環己醇及環己基過氧化物)、以及酮醇比之結果, 如下表 3 所示:

表 3

反應時間 (hr)	環己酮之產率 (gmol/L · hr)	總可用產率 (gmol/L · hr)	酮醇比
1	0.0124	0.0441	1.89
1.5	0.0152	0.0513	3.63
2	0.0240	0.0740	3.01

實施例 4

於高溫高壓反應容器中添加 1500 毫升環己烷與水之混合物 (體積比為 75: 25, 重量比為 70.3: 29.7), 待溫度達 165°C 後, 再以高於蒸氣壓 1 bar 之進氣壓力, 採密閉、不足即補氣的方式通入純氧氣體, 於攪拌下進行氧化反應。記錄環己酮之產率、總可用產率 (包括環己酮、環己醇及環己基過氧化物)、以及酮醇比之結果, 如下表 4 所



五、發明說明 (12)

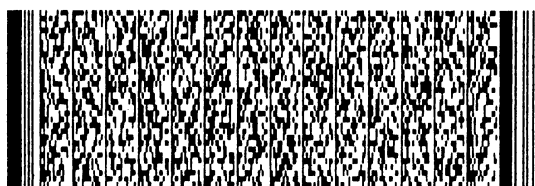
示：

表 4

反應時間 (hr)	環己酮之產率 (gmol/L · hr)	總可用產率 (gmol/L · hr)	酮醇比
1	0.0166	0.0688	0.999
1.5	0.0217	0.0777	0.815
2	0.0284	0.0722	0.827

實施例 5

於高溫高壓反應容器中添加 1500 毫升環己烷與水之混合物 (體積比為 75: 25, 重量比為 70.3: 29.7), 待溫度達 160°C 後, 再以高於蒸氣壓 1 bar 之進氣壓力, 採密閉、不足即補氣的方式通入純氧氣體, 於攪拌下進行氧化反應。記錄環己酮之產率、總可用產率 (包括環己酮、環己醇及環己基過氧化物)、以及酮醇比之結果, 如下表 5 所示：



五、發明說明 (13)

表 5

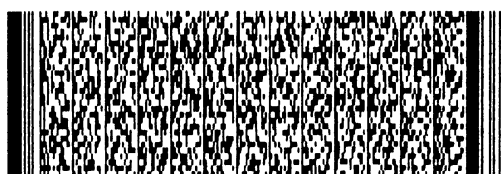
反應時間 (hr)	環己酮之產率 (gmol/L · hr)	總可用產率 (gmol/L · hr)	酮醇比
1	0.0072	0.0377	1.48
1.5	0.0135	0.0530	1.49
2	0.0238	0.0648	1.19

比較例 1

於高溫高壓反應容器中添加 600 毫升之環己烷，待溫度達 165°C 後，再以一進一出連續進氣的方式通入氣體空氣至 12 bar，於攪拌下進行氧化反應。記錄環己酮之產率、總可用產率（包括環己酮、環己醇及環己基過氧化物）、以及酮醇比之結果，如下表 6 所示：

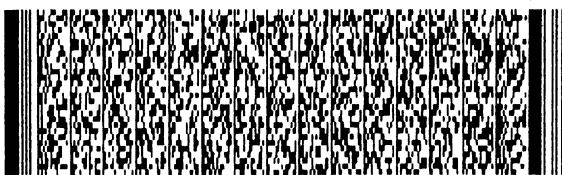
表 6

反應時間 (hr)	環己酮之產率 (gmol/L · hr)	總可用產率 (gmol/L · hr)	酮醇比
1	0.0338	0.101	0.761
1.5	0.0355	0.104	0.633
2	0.0310	0.089	0.612



五、發明說明 (14)

由上述結果可知，本發明之液相氧化方法應用於環己烷之氧化製程時，先使環己烷與水形成正壓共沸混合物，可克服使用高含氧氣體或純氧進行氧化反應時的潛在爆燃危害。另一方面，相較於一般使用空氣進行氧化反應之製程，在相同的溫度條件下，利用本發明之方法可具有較佳之環己酮產率以及總可用產率。再者，本發明之方法適合應用於使用純氧進行氧化反應之製程，藉以提高酮醇比，有效地改善該種氧化製程之轉化率以及選擇率。



圖式簡單說明

(本 案 無 圖 式)



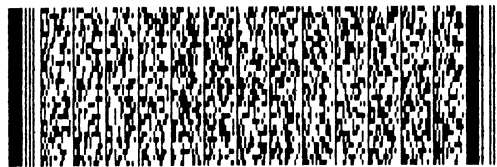
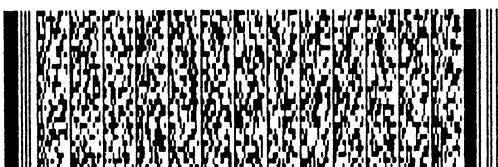
四、中文發明摘要 (發明名稱：環烷化合物之液相氧化方法)

本發明係揭示一種環烷化合物之液相氧化方法，該方法係先使欲進行氧化反應之環烷化合物與水形成共沸混合物，再通入含氧氣體進行氧化反應。本發明之方法特別適合應用於使用高含氧氣體或純氧進行環己烷之液相氧化反應，不但可以改善環己烷之氧化製程的轉化率與選擇率，亦可提昇使用高含氧氣體或純氧進行環己烷氧化製程的安全性。

(本案無圖式)

六、英文發明摘要 (發明名稱：LIQUID PHASE OXIDATION OF CYCLOALKANE COMPOUND)

A method for liquid phase oxidation of a cycloalkane compound is provided by which the cycloalkane compound intended to be oxidized mixes with water to form an azeotropic mixture, and then an oxygen enriched gas is introduced to perform an oxidation reaction. This method is particularly suitable for liquid phase oxidation of cyclohexane by using an oxygen enriched gas or pure oxygen,



四、中文發明摘要 (發明名稱：環烷化合物之液相氧化方法)

六、英文發明摘要 (發明名稱：LIQUID PHASE OXIDATION OF CYCLOALKANE COMPOUND)

which not only enhances conversion rate and selectivity of the cyclohexane oxidation process but also improves process safety in the use of an oxygen enriched gas or pure oxygen for cyclohexane oxidation.



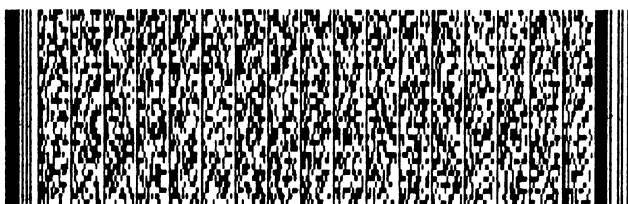
公告
申請專利範圍

案號 92103368

92 年 9 月 9 日
修正
補充

修正

1. 一種環烷化合物之液相氧化方法，係包括下列步驟：
使該環烷化合物與水形成正壓共沸混合物；以及
將氧濃度 30 至 100% 之含氧氣體通入該正壓共沸混合物進行氧化反應，該含氧氣體係以高於所形成之正壓共沸混合物之蒸氣壓 0.001 至 10 bar 之進氣壓力通入。
2. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中，該環烷化合物係選自環戊烷、環己烷、環庚烷、環辛烷、環壬烷以及環癸烷所構成之組群之一者。
3. 如申請專利範圍第 2 項之方法，其中，該環烷化合物係環己烷。
4. 如申請專利範圍第 3 項之方法，其中，該環己烷係於 100 至 200°C 之溫度條件下，與 0.01 至 50 重量% 之水形成正壓共沸混合物。
5. 如申請專利範圍第 4 項之方法，其中，該環己烷係於 140 至 170°C 之溫度條件下，與 0.1 至 30 重量% 之水形成正壓共沸混合物。
6. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中，該含氧氣體係以高於所形成之正壓共沸混合物之蒸氣壓 0.1 至 2 bar 之進氣壓力通入。
7. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中，該含氧氣體之氧濃度係 90 至 100%。
8. 如申請專利範圍第 7 項之方法，其中，該含氧氣體之進氣方式係採密閉、不足即補氣的方式通入。



六、申請專利範圍

9. 如申請專利範圍第 8 項之方法，其中，該反應係於多個串聯的攪拌槽中進行。
10. 如申請專利範圍第 9 項之方法，其中，該反應係以連續式操作進行。
11. 如申請專利範圍第 1 至 10 項中任一項之方法，其中，該反應係於使用觸媒的條件下進行。
12. 如申請專利範圍第 1 至 10 項中任一項之方法，其中，該反應係於未使用觸媒的條件下進行。

