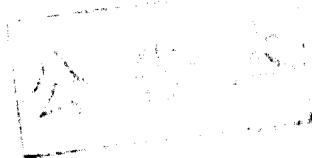


修正
本年 月 日
補充 85 8 28 (金)



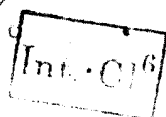
申請日期	84.9.19
案 號	84109802
類 別	B01J 23/94, C07C 55/4, 55%

A4
C4

306888

306888

(以上各欄由本局填註)



發 明 專 利 說 明 書 (修正本)

一、發明 新型名稱	中 文	一種催化劑以及使用此催化劑製備羧酸之方法
	英 文	A CATALYST & A PROCESS FOR PREPARING CARBOXYLIC ACIDS USING THE CATALYST.
二、發明 創作人	姓 名	1. 吉連得拉·那拉印·庫使雷契拉 2. 馬亨得拉·普拉塔布·薩瑟納 3. 亞休克·庫瑪·古布塔 4. 哈里·布哈格旺·哥雅魯
	國 籍	印 度
	住、居所	1. 印度·普拉得許·烏塔·得拉東·印度石油研究所內 2. 印度·普拉得許·烏塔·得拉東·印度石油研究所內 3. 印度·普拉得許·烏塔·得拉東·印度石油研究所內 4. 印度·普拉得許·烏塔·得拉東·印度石油研究所內
三、申請人	姓 名 (名稱)	1. 科學與工業研究院 2. 亞達司化學與肥料公司
	國 籍	印 度
	住、居所 (事務所)	1. 印度·新德里-110001拉非馬格 2. 印度·古加拉394210蘇拉特·烏達那
	代 表 人 姓 名	1. N.R. 舒巴蘭 2. 普拉卡許·達雅博海·巴德

裝

訂

線

306888

申請日期	
案 號	
類 別	

A 4
C 4

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	
	英 文	
二、發明 創作人	姓 名	5. 拉每司瓦·普拉謝得 6. 土耳加·孫達拉·拉馬·普拉沙得·拉歐 7. 普拉卡許·達雅博海·巴特
	國 籍	印 度
	住、居所	5. 印度·普拉得許·烏塔·得拉東·印度石油研究所內 6. 印度·普拉得許·烏塔·得拉東·印度石油研究所內 7. 印度·龐貝·那里曼點·大使中心801號
三、申請人	姓 名 (名稱)	
	國 籍	
	住、居所 (事務所)	
	代 表 人 姓 名	

裝

訂

線

五、發明說明 (|)

本發明為關於一種可有效製造羧酸之催化劑的製備方法。

及利用本催化劑製造羧酸之方法，特別是藉由氧化碳氫化合物而製造羧酸之方法。本發明之催化劑對於氧化特定之碳氫化合物，如環戊烷、環己烷、環庚烷、 C_4-C_6 脂肪烴、甲苯、鄰、二甲苯、間二甲苯、對二甲苯及相似結構之化合物特別有效。氧化過程能在液相中，由空氣或氧氣一個步驟完成。本發明之催化劑在於製造二元酸如、己二酸、庚二酸、戊二酸、鄰苯二酸等及單元酸如醋酸、苯甲酸等特別有效。

現今二元酸的主要用途，在於製造聚酯、聚醯胺、可塑劑、合成潤滑劑及聚醇酸，而其中之己二酸則被廣泛用於製造尼龍66、特殊等級之可塑劑、合成潤滑油、聚醇酸及聚尿素。單元酸則做為製造可塑劑及高純度化學品時所需之溶劑。通常二元酸由過渡金屬如鈷或錳觸媒氧化碳氫化合物所製成。在此類製程中，有時需分離中間產物，再依中間產物及氧化劑之反應性進行更進一步之氧化反應。

例如，己二酸的製造過程為先氧化環己烷而產生環己酮及環己醇混合物，再利用空氣或硝酸繼續氧化此混合物而生成己二酸。目前已二酸的製造方法為兩步驟氧化環己烷，而得，第一步為在約 150°C 及鈷或錳催化劑存在之液相中，由空氣或氧氣將環己烷氧化成環己酮及環己醇之混合物，第二步則藉由鈳-銅之催化，以硝酸在 $50-80^{\circ}\text{C}$ 下將此混合物氧化成己二酸，此製程之己二酸產率約 70%。其他已知之製造流程，用來氧化環己烷之催化劑有高濃度之

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

點

五、發明說明 (2)

過氧化氫、含溴化物催化劑或高濃度之鈷鹽等。

上述流程所使用之催化劑有如下之缺點：

1. 每批次之環己烷轉化率低(3-8%)，故於第一個氧化步驟需循環濃度約 95% 之環己烷。
2. 在反應溫度 150 °C 下，若使用高濃度 (0.2-10%) 之過氧化氫具爆炸之危險性。
3. 製程中往往會產生不希望有且需分離的副產物如內酯及含氧酸，而其分離步驟非常複雜。
4. 使用含溴化物催化劑會嚴重腐蝕設備，而製程通常在 5-25kg/cm² 之高壓下進行，設備腐蝕將可能產生爆炸。且在第二個氧化步驟中，由氧化劑硝酸所產生之氮氧氣態污染物，除會腐蝕設備外，並造成環境污染問題。
5. 每個氧化步驟需於分開不同之氧化反應器系統中執行。

爲了提升己二酸的產率，也曾使用由鈷與錳、鎳、鉻、銅或鋅等鹽類所組成之催化劑，但仍無法排上述之缺點。

由空氣在單一步驟將環己烷氧化成己二酸的流程在較早時已被發明，由 K. Tanaka 在 Chem. Tech. 4(9), 1974 第 555-559 頁、Chem Engg. news 52(15), 1974 第 24 頁、Amer, Chem. Soc. 19(1), 1974 第 103-111 頁等刊物發表之論文及申請之日本專利第 7519,534 號，及由 JGD schulz 與 A Onopchenko 在 J Org. chem. 38, 1973 第 3729-3733 頁、J Org. chem. 45, 1980 第 3716-3719 頁等刊物發表之論文及申請之美國專利第 4,263,453 號等均爲使用鈷催化劑之單一氧化步驟。最近由 Steinmets 等人所申請之美國專利第 4,902,8

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明(3)

27 號流程中所使用之催化劑即由相當高濃度之鈷與鎳及鉛所組成。另美國專利第 3,649,689 號中聲明，由空氣將環己烷氧化成己二酸所使用之催化劑，是由羧酸鈷及溴化合物組成。

上述由單一氧化步驟製造己二酸之流程，主要焦點在於使用鈷催化劑及在 80-130°C 較低溫度範圍下進行反應。

Tanaka 也說明可添加，如乙醛、乙-丁酮、環己酮等促進劑，在反應同時將催化劑由二價鈷轉化成具活性之三價鈷狀態。促進劑可連續加入反應器中，以保持催化劑之活性。

就目前所知，上述所提之己二酸單一步驟製造流程，仍有下述缺點存在：

1. 反應開始時，高比例二價鈷鹽將生成己內酯且會快速聚合成聚己內酯，故降低己二酸的純度。
2. 使用鉛，鎳等稀有金屬為輔助催化劑，其價格昂貴且監測它們存在的濃度為一複雜的問題。
3. 使用溴化合物為輔助催化劑，需使用抗腐蝕材質所製作之反應器及製程設備，將提高生產成本。

本發明最主要的目的為：

1. 提供一有效之催化劑，能由空氣或氧氣將碳氫化合物如環己烷、環戊烷、環庚烷、甲苯、鄰二甲苯、間二甲苯、對二甲苯及相似結構之化合物氧化成相對應之羧酸，而其產率高於 70% 及較高 (60-98%) 之碳氫化合物轉化率。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明(一)

2. 提供一個由鈷鹽及鐵鹽混合物，製造上述所提之新奇催化劑的流程。
3. 提供一個使用本新奇催化劑，藉由空氣或氧氣氧化適當碳氫化合物成羧酸，而產率超過70%及60-98%高碳氫化合物轉化率之改良流程。此催化劑由重量百分比70-99%之鈷鹽及1-30%之鐵鹽組成，而其鹽類酸根可為醋酸根、丙酸根，環烷酸根、鄰苯二酸根、己二酸根及相似結構之酸根。
4. 提供一個在製造二元酸時，能顯著降低或排除生成不慾得之副產品如內酯、含氧酸等之改善流程。

因此本發明為提供一能有效由氧化碳氫化合物而製造羧酸之新奇的催化劑，而催化劑由重量百分比70-99%之鈷鹽及1-30%之鐵鹽所組成，其鹽類之酸根可為醋酸根、丙酸根、環烷酸根、己二酸根、鄰苯二酸根及相似結構之酸根。

本發明也提供。此能有效氧化碳氫化合物而製造羧酸的新奇催化劑之製造方法，此催化劑由重量百分比70-99%相當之二價鈷鹽及1-30%相當之二價鐵鹽，及存在起始劑的狀況下反應而得，反應時選用2-4個碳之單元脂肪酸或它們所組成之混合物為溶劑，以空氣或氧氣為氧化劑，在溫度範圍60-150°C、壓力範圍1-50kg/cm²條件下，反應0.25-8小時即可。

二價鈷及二價鐵鹽之酸根可選用醋酸根、丙酸根、環烷酸根、苯甲酸根、己二酸根、鄰苯二酸根或相似結構之

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 ()

酸根。二價鈷及二價鐵鹽的組成，分別為重量百分比85-99%及1-15%較適宜。起始劑可選用乙-丁酮、三聚乙醛、環己酮、環己醇、乙醛、已部份氧化之碳氫化合物及相似結構之化合物或上述化合物之混合物。起始劑用量可為二價鈷鹽用量的10-100%最佳用量為30-50%，而溶劑則可選用醋酸，丙酸、丁酸及相似結構之酸或上述酸之混合物，溶劑用量可為二價鈷重量之2000-12000%。

反應可能會受氧氣或空氣的通氣速度影響，較適宜之通氣速度為 $30-60\text{h}^{-1}$ 。反應時所用之溫度及壓力，可能之適宜範圍分別為 $80-130^{\circ}\text{C}$ 及 $1-10\text{kg}/\text{cm}^2$ ，而與空氣或氧氣接觸時間，較適宜之範圍可能為0.25-3小時。

提供一種由氧氣或空氣來氧化碳氫化合物而製造羧酸的改善流程為本發明的目的之一，此改善流程包含：

- (a) 碳氫化合物與由重量百分比70-99%之鈷鹽及1-30%之鐵鹽所組成之催化劑混合，而催化劑鹽類之酸根可選用醋酸根、丙酸根、環烷酸根、己二酸根、鄰苯二酸根及相似結構之酸根。
- (b) 上述所得之混合物，在壓力範圍 $1-70\text{kg}/\text{cm}^2$ 、溫度範圍 $60-150^{\circ}\text{C}$ 條件下，與通氣速度 $1-200\text{h}^{-1}$ 之空氣或氧氣反應，而反應時間為1至8小時。
- (c) 使用一般方法分離未反應之碳氫化合物及催化劑。
- (d) 使用結晶化或分餾方法，分離已形成之羧酸。
- (e) 如果需要，上述步驟(b)與(c)反應後之碳氫化合物、溶劑及催化劑可循環再利用。

五、發明說明()

較具體的說明，本發明的改善流程中催化劑使用量與碳氫化合物重量比為0.01至0.5，壓力使用範圍為10-50kg/cm²，溫度範圍為70-150°C及通氣速度為1-60h⁻¹。

本發明最大的展望為能提供，製造己二酸的改良流程，而此改良流程包含：

- (a)將環己烷與催化劑混合接觸。
- (b)上述之混合物在壓力範圍1-70%kg/cm²、溫度範圍70-150°C的條件下，與通氣速度1-200h⁻¹的氧氣或空氣反應，而反應時間為1至8小時。
- (c)使用一般分離方法，分離未反應之環己烷及催化劑。
- (d)使用結晶化或分餾，分離出已生成之己二酸。
- (e)如果需要，上述步驟(b)與(c)反應後未反應之環己烷、溶劑及催化劑可循環再利用。

本發明之催化劑已借由氧化環己烷、環庚烷、環戊烷、甲苯、二甲苯等碳氫化合物，測試其成效。如上述之解釋，測試結果發現羧酸之產率，若由氧化環狀脂肪烴其產率為70-79%，若為甲苯及二甲苯則產率為94-98%，而其碳氫化合物轉化率為80-90%。使用上述之催化劑其產率較其他目前已知之催化劑最高可達到的產率高2-4%。反應後之混合物，可在產物分離後，將未反應或部份氧化之碳氫化合物及溶劑，循環再利用以獲得更多量的酸，所以可增加此流程之效率。

需注意，下述實例為更進一步說明本發明，但並非限制本發明之範圍。

五、發明說明 ()

實例1-3說明本發明之新奇催化劑的製備流程。

<實例 1>

將18g醋酸亞鈷($\text{Co}(\text{OCOCH}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$)，2g醋酸亞鐵，3g環己酮溶於500g醋酸中，將此溶液加熱至 95°C ，然後以通氣速度 20h^{-1} 之氧氣處理，通氣1小時後，三價鈷及三價鐵離子約達到總金屬離子的85%。此時，此已製備完成之催化劑中各離子濃度(以總金屬鹽類之重量百分比計算)分別為：醋酸鈷79%、醋酸亞鈷11%、醋酸鐵6%、醋酸亞鐵4%。

<實例 2>

將17g環烷酸亞鈷，3g環烷酸亞鐵及3.5g之乙-丁酮溶於400g之醋酸中，將此溶液加熱至 100°C ，通入氧氣並保持壓力為 $20\text{kg}/\text{cm}^2$ ，持續攪拌2個小時，經過此處理程序，此製備完成之催化劑中約有89%的亞鈷及亞鐵離子已轉化成較高氧化態離子。此時，各離子所佔之重量百分率分別為：三價鈷79%、二價鈷6%、三價鐵13%及二價鐵為2%。

<實例 3>

將16g己二酸亞鈷、4g己二酸亞鐵，6g溶於150g醋酸中，將溶液加熱至 120°C ，通入氧氣並保持壓力為 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ ，持續反應4個小時，經此反應後二價鐵及二價鈷離子有90%轉化成較高氧化態離子。已製備完成之催化劑，以總離子重量百分比計算，各離子組成分別為：三價鈷75%、二價鈷5%、三價鐵15%及二價鐵5%。

依上述範例所製備之催化劑，可用於藉由氧化環己烷、環戊烷、環庚烷、甲苯、 C_4 - C_6 之脂肪烴、鄰二甲苯、間二

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明()

甲苯、對二甲苯等碳氫化合物，製造相對應之二元酸或單元酸，換言之即為，己二酸、戊二酸、庚二酸、苯甲酸、醋酸、間苯二酸、鄰苯二酸、對苯二酸、及相似結構之酸。

< 實例 4 >

165g由範例1所製備之催化劑與35g環己烷混合後，與通氣速度 25h^{-1} 之氧氣，在 95°C 、 $20\text{kg}/\text{cm}^2$ 條件下在容量500ml滅菌斧中反應。

經過3小時後，注水入反應後之混合物中，可收集到80g物質，其中包含8.7g未反應之環己烷、10.2g水及6.1g醋酸。剩下的物質經冷卻至 25°C 後，可得24.0g純度95%之己二酸粗產物晶体，濾液及醋酸清洗液共為150g，此濾液中包含9.6g己二酸及12.1g部份氧化產物，如環己酮、環己醇、乙酸環己酯、己二酸單環己酯等、及碳數較少之二元酸，上述之部份氧化產物可再循環利用。此反應之環己烷轉化率為75.1%，而己二酸之產率為71%。

< 實例 5 >

35g環己烷及165g由範例2所製備之催化劑混合後，以通氣速度 20h^{-1} 之氧氣在 110°C 、 $30\text{kg}/\text{cm}^2$ 條件下氧化2個小時，反應結束後將水注入混合物中可收集到100g物質，其中包含10.5g之環己烷、10.1g水及79.4g醋酸。

剩下之部份經冷卻、過濾後，可獲得純度98.5%之己二酸粗產物25.3g，濾液中含有11.9g之己二酸，此反應碳氫化合物轉化率為82%，己二酸產率為73.8%。

< 實例 6 >

五、發明說明()

將5.0g含4倍水分子之水合醋酸亞鈷及0.5g醋酸亞鐵、2g環己酮溶於160g冰醋酸中，此溶液與流量每分鐘100ml之氧氣反應，經攪拌2個小時後約90%之二價鈷鹽及二價鐵鹽已轉變成三價鈷鹽及三價鐵鹽。再加入35g之環己烷，然後與通氣速度 25h^{-1} 之氧氣在95%及 $49\text{kg}/\text{cm}^2$ 之條件下反應4個小時，反應完成後產物以蒸餾方式去除未反應之環己烷、水，此時部份己二酸也會被排除。剩下物質經冷卻、過濾後可獲後純度98.5%之己二酸23.8g，而濾液中含9.1g之己二酸。此反應之碳氫化合物轉化率為71%，己二酸之產率為76.8%。

<實例 7>

175g由範例3所製備之催化劑及35g環己烷混合後，與流速每分鐘50ml的氧氣，在 100°C 及 $30\text{kg}/\text{cm}^2$ 條件下反應6個小時。可得己二酸產率為74.5%、環己烷轉化率為80%。

雖然本發明由上述實例所說明之用途，均針對己二酸之製備方法，但不能認定本發明的用途僅為製備己二酸。本發明之製備流程可用於製備如、戊二酸、庚二酸、鄰苯二酸、間苯二酸、對苯二酸等二元酸及醋酸、丙酸、及苯由酸等單元酸。製造其他單元酸、二元酸的實例如下說明：

<實例 8>

40g對二甲苯與5.5g由重量百分比80%之醋酸鈷、10%之醋酸鐵、8%醋酸亞鈷、2%醋酸亞鐵所組成之催化劑混合後與過氣速度 30h^{-1} 之氧氣，在 130°C 、 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ 條件下，反應4個小時。反應後之氧化物，經注入水及蒸餾後，可收

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

不

訂

給

五、發明說明()

集30.0之蒸餾液，其中包含4.0g未反應之對二甲苯及8.2g水及醋酸混合物。蒸餾後剩餘物經冷卻、過濾，所收之固體以醋酸淋洗及乾燥後可得51.9g純度98%之對苯二甲酸粗產物，本反應對苯二甲酸產率為92%，對二甲苯轉化率為90%。純化流程所產生之清洗液，若再循環反應則對苯二甲酸產量可達53.5g即產率為95%。

< 實例 9 >

由40g之間二甲苯，6g由重量百分比85%之醋酸鈷、8%之醋酸鐵、5%之醋酸亞鈷、2%之醋酸亞鐵與200g之醋酸所組成之溶液，與通氣速度 25h^{-1} 之氧氣，在 135°C 及 $20\text{kg}/\text{cm}^2$ 之條件下反應4小時，注入水後蒸餾，可得組成為3.5g未反應之間二甲苯、8.5g水及6.5g醋酸之蒸餾物。蒸餾剩餘之物質，待冷卻至室溫，過濾後再以醋酸淋洗及乾燥，可得純度98.5%之間苯二甲酸53.4g，若以已反應之間二甲苯計算則產率為93.5%，相當於總產率於91.2%。濾液若重新循環至另一新反應流程，則間苯二甲酸之產率為97%。

< 實例 10 >

由30g之環戊烷、5.0g由重量百分比80%之醋酸鈷、12%醋酸鐵、6%醋酸亞鈷、2%之醋酸亞鐵組成之催化劑及150g醋酸所組成之溶液，與通氣速度 60h^{-1} 之空氣，在 95°C 及 $45\text{kg}/\text{cm}^2$ 之條件下反應4小時。氧化完成後注入水，蒸餾可得4g未反應之環戊烷、10g水及36g醋酸所組成之蒸餾液。蒸餾後剩餘之物質含34.3g之戊二酸，相當於環戊烷之轉化率為86%，戊二酸之產率為71%。

五、發明說明()

< 實例 11 >

由 4.0g 85% 醋酸鈷、8% 醋酸鐵、5% 醋酸亞鈷、2% 醋酸亞鐵所組成之催化劑與 50g 甲苯，溶於醋酸所形成之 200g 溶液，與通氣速度 40h^{-1} 之氧氣在 85°C 下反應 4 小時，氧化後之產物經處理後，可得 61.7g 之苯甲酸、2.1g 苯甲醛及 1.0g 未反應之甲苯，相當於 98% 之碳氫化合物轉化率及 95% 之苯甲酸產率，超過 40% 之苯甲醛。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

製

訂

分

四、中文發明摘要(發明之名稱：

一種催化劑以及使用此催化劑

製備羧酸之方法

一種催化劑之製備方法，及利用本催化劑，藉由氧氣或空氣氣化碳氫化合物製備羧酸之方法；上述之催化劑由重量百分比70—99%之鈷鹽及1-30%之鐵鹽所組成，而鹽類之酸根可為醋酸根、丙酸根、環烷酸根、己二酸根及鄰苯二酸根。

英文發明摘要(發明之名稱：

A catalyst comprising 70-99% by wt. of cobaltic salt and 1-30% by wt. of ferric salt, the acid component of the salt being such as acetate; propionate; naphthenate adipate and phthalate; a process for preparing the above catalyst, and a process for the preparation of carboxylic acids by oxidation of a hydrocarbon with oxygen or air in the presence of the above catalyst.

六、申請專利範圍

1. 一種由氧化碳氫化合物製造羧酸之催化劑，此催化劑由重量百分比70-99%之鈷鹽及1-30%之鐵鹽所組成，催化劑鹽類之酸根可選用醋酸根、丙酸根、環烷酸根、己二酸根、鄰苯二酸根及相似結構之化合物。

2. 如申請專利範圍第1項之催化劑，其中由重量百分比70-99%之鈷鹽及1-30%之鐵鹽所組成。

3. 一種用於由氧化碳氫化合物製造羧酸之催化劑之製備方法，其係混合重量百分比70-99%之適當亞鈷鹽及1-30%之適當之亞鐵鹽，添加起始劑及以2至4個碳範圍之脂肪酸或上述脂肪酸之混合物為溶劑，與空氣或氧氣反應，反應溫度範圍60-150℃，壓力範圍為1-50kg/cm²，反應所需時間為0.25至8小時。

4. 如申請專利範圍第3項之製備方法，其中有效之通氣速度為10-90h⁻¹。

5. 如申請專利範圍第4項之製備方法，其中亞鈷鹽使用量範圍為重量百分比80-99%，亞鐵鹽之使用量範圍為1-20%，起始劑之用量為亞鈷鹽用量重量百分比之10-100%，而溶劑用量則為亞鈷鹽用量重量百分比之2000-12000%，通氣速度則為30-60h⁻¹，溫度範圍為80-150℃，壓力範圍為1-25kg/cm²，而反應所需時間則為0.5-3小時。

6. 如申請專利範圍第3項之製備方法，其中所使用之起始劑如2-丁酮，環己醇、環己酮、乙醛、已部份氧化之碳氫化合物及相似結構之化合物。

7. 如申請專利範圍第3項之製備方法，其中使用之溶劑如

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

表

訂

第

六、申請專利範圍

醋酸、丙酸、丁酸或三者之混合物。

8. 一種由空氣或氧氣氧化碳氫化合物製造羧酸之方法，包含：

(a) 碳氫化合物與催化劑混合接觸，此催化劑由重量百分比70-99%之鈷鹽及1-30%之鐵鹽所組成，鹽類之酸根可使用如醋酸根、丙酸根、環烷酸根、己二酸根、鄰苯二酸根及相似結構之化合物；

(b) 混合後之混合物與通氣速度 $1-200\text{h}^{-1}$ 之空氣或氧氣在溫度範圍 $60-150^{\circ}\text{C}$ ，壓力範圍 $1-70\text{kg}/\text{cm}^2$ 條件下，反應1至8小時；

(c) 使用一般分離方法，分離未反應之碳氫化合物及催化劑；

(d) 使用結晶化或分餾等方法，分離羧酸產物；及

(e) 上述步驟(b)與(c)所回收之未反應碳氫化合物、溶劑及催化劑，如需要可循環再利用。

9. 如申請專利範圍第8項之製造方法，其中催化劑用量與碳氫化合物量之比值，以重量計為0.01至0.5之間，壓力使用範圍為 $10-50\text{kg}/\text{cm}^2$ ，溫度使用範圍為 $70-150^{\circ}\text{C}$ ，通氣速度範圍為 $10-90\text{h}^{-1}$ 。

10. 一種使用如申請專利範圍第1項或第2項催化劑由氣化環己烷製造己二酸之方法，包含：

(a) 環己烷與催化劑混合接觸，催化劑由重量百分比70-99%之適當鈷鹽及1-30%適當之鐵鹽所組成，鹽之酸根可選用醋酸根、丙酸根、環烷酸根、己二酸根、鄰苯

六、申請專利範圍

二酸根及相似結構之酸根；

(b)混合後之混合物與通氣速度 $1-200\text{h}^{-1}$ 之空氣或氧氣在壓力範圍 $1-70\text{kg/cm}^2$ ，溫度範圍 $70-150^\circ\text{C}$ 之條件下，反應1至8小時；

(c)使用一般分離方法，分離未反應之環己烷及催化劑；

(d)使用結晶化或分餾方法，分離已生成之己二酸；及

(e)由步驟(b)、(c)分離之未反應環己烷、溶劑及催化劑，如果需要，可循環再利用。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂