

90. 8. 日 修正
補充

申請日期	80. 4. 9
案 號	8810 4716
類 別	C07C 253/24, 253/08, B01J 23/287

A4
C4

487693

(以上各欄由本局填註)

第 88104716 號 專利申請案		發 明 專 利 說 明 書		修正頁 修正日期：90 年 08 月
一、發明 名稱	中 文	製造丙烯腈或甲基丙烯腈以及製造不結塊之促進性鈮-銻氧化物催化劑之方法		
	英 文	PROCESSES FOR MAKING ACRYLONITRILE OR METHACRYLONITRILE AND FOR THE MANUFACTURE OF CLUMP FREE PROMPTED VANADIUM-ANTIMONY OXIDE CATALYST		
二、發明 人	姓 名	(1) 詹姆斯 F. 布拉迪爾二世 Brazdil, James. F. Jr. (2) 馬克 A. 多福 Toft, Mark. A.		
	國 籍	美 國		
三、申請人	住、居所	(1) 美國俄亥俄州丘陵高地·中間路 422 號 422 Medway Road, Highland Heights. Ohio 44143, U. S. A. (2) 美國俄亥俄州湖木·西克里夫頓路 1511 號 1511 West Clifton Road, Lakewood, Ohio 44107, U. S. A.		
	姓 名 (名稱)	美商·標準油公司 The Standard Oil Company		
代 表 人 姓 名	國 籍	美 國		
	住、居所 (事務所)	美國俄亥俄州克利夫蘭·公共廣場 200 號 200 Public Square 39-G, Cleveland, Ohio 44114-2375, U. S. A.		

裝 訂 線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6
B6

本案已向：

美 國 (地區) 申請專利，申請日期： 1998,3,26 案號： 09/048,648 ， 有 無主張優先權

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)

本發明是有關一種用於將丙烷和異丁烷氨氧化成 α , β -不飽和單腈(丙烯腈和甲基丙烯腈)的改良型催化劑。本發明的較佳應用是關於係在於回收方法,在該方法中未反應的丙烷和異丁烷與反應生成的丙烯和異丁烯回收至用以轉換成丙烯腈和甲基丙烯腈之反應器內。

如丙烯腈和甲基丙烯腈的腈類,在製造纖維、合成樹脂和合成橡膠類上係為工業生產上的重要中間物。主要的商業化生產方法是在氨和氧存在下,於高溫氣態下,且氨氧化催化劑存在下,將丙烯或異丁烯氨氧化反應。

無論如何,以丙烷和丙烯的價差或異丁烷和異丁烯的價差,目前的重點是在於發展以氨氧化反應生成丙烯腈或甲基丙烯腈的方法和催化劑,其中以丙烷或異丁烷之類的低碳烷為起始物,並讓低碳烷與氨和含氧的氣體在催化劑的存在下產生催化反應。

早期發展將丙烷氨氧化成丙烯腈的有效方法上的嘗試,產生有不夠的產量或必須加入鹵素促進物到進料處的方法。後者步驟不只需要特殊抗腐蝕材料的反應器並需要定量回收促進物。如此增加的成本抵消了丙烷與丙烯價差的好處。

最進發行的專利如EPO 0767164-A1和美國專利5,008,427主要是針對於一種利用特定催化劑解決前述丙烷氨氧化的問題之氨氧化催化劑系統。尤其是讓渡給本發明受讓人美國專利5,008,427特別針對一種用於丙烷氨氧化的鈮-鎘促進性催化劑,其中催化劑是在780°C或更高

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(2)

的溫度下煅燒。本發明中的催化劑和其中說明的氮氧化過程主要是針對'427專利提出改良。

本發明的第一個目的係提供一種將石蠟氮氧化成不飽和單腈類和相關的單烯烴類的方法。

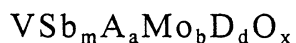
本發明的第二個目的係提供一種將低級石蠟製造成不飽和單腈類而不需使用鹵素促進物之改良催化氮氧化方法。

本發明的第三個目的係提供一種製造釩-錒促進性氧化催化劑的方法，其在780°C或更高的溫度煅燒時，會活化催化劑並降低或避免催化劑結集在一起成為大的催化劑顆粒。

本發明的第四個目的係提供一種使用於將低級石蠟氮氧化成相關的單腈類或單烯烴類的改良式催化劑。

本發明的其他目的與觀點、特色和優點可從研讀本申請專利範圍和相關說明中變得明顯。

為達到前述的目的和優點，本發明的方法包含將從丙烷和異丁烷中選出的石蠟，在蒸氣狀態下與分子氧和氮在反應區中與催化劑經反應物的催化接觸，經催化反應生成 α, β -不飽和單腈類、丙烯腈和甲基丙烯腈；進料組成物具有石蠟對氮從2.5到16範圍的莫耳比，石蠟對氧從1.0到10的莫耳比，其中的催化劑有如下實驗式的元素比例：



其中

A是Ti、Sn、Fe、Cr和Ga中的一種或多種；

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (3)

D是Li、Mg、Ca、Sr、Ba、Co、Ni、Zn、Ge、Nb、Zr、W、Cu、Te、Ta、Se、Bi、Ce、In、As、B和Mn中的一種或多種；

m等於0.8到4；

a等於0.01到2；

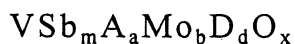
$0 < b < 0.005$ ；

d是0到2；

x是由陽離子的氧化態決定，且該催化劑並經至少780°C溫度的熱處理。

本發明的另一方面是製造一種促進性鈮-銻氧化催化劑，其特徵係在於，該催化劑大體上不會集結成塊，且係藉由在至少780°C或更高的煅燒溫度下。熱處理含至少一或多個A元素和鈮的鈮-銻氧化催化劑的方法製得。

根據本發明之一觀點，本發明提供一種方法，其係將從丙烷和異丁烷中選出的石蠟，在蒸氣狀態下，與分子氧和氮在反應區中與催化劑經反應物的催化接觸，經催化生成 α, β -不飽和單腈類、丙烯腈或甲基丙烯腈，進料組成物具有石蠟對氮在從2.5到16的莫耳比，石蠟對氧在從1.0到10的莫耳比，其中的催化劑有如下列實驗式的元素比例：



其中

A是Ti、Sn、Fe、Cr和Ga中的一種或多種；

D是Li、Mg、Ca、Sr、Ba、Co、Ni、Zn、Ge、Nb、

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (4)

Zr、W、Cu、Te、Ta、Se、Bi、Ce、In、As、B和Mn中的一種或多種；

m等於0.8到4；

a等於0.01到2；

b大於0，最大0.05；

d是0到2；

x是由陽離子的氧化態決定，該催化劑並經至少780°C溫度的熱處理。

煅燒的溫度可高到1200°C；無論如何，煅燒的溫度通常在790°C到1050°C的範圍。煅燒的溫度通常會隨組成而變異，但固定組成的特定煅燒溫度可簡單地藉由反覆實驗來決定。

類似於在此列為參考之美國專利5,008,427，較佳的是，上述實驗式中說明的符號m當至少是1.2而至多是2.0時，可提供最好的結果。

較佳的是，如上定義的符號a至少是0.05，並且不超過0.5，甚至0.4時較佳。在更佳的實施例中，元素A含錫、鈦和鐵中的一樣或多樣。

特別重要且須注意的是，申請人發現鉬要出現在催化劑內並落在在實驗式中說明的特定範圍內，才能得到如下表I實施例中說明的改善效果。鉬的範圍從大於0到0.0045較佳，大於0到0.0035更佳，尤其大於0到0.0035最好。

丙烷或異丁烷氮氧化成丙烯腈或甲基丙烯腈的典型反應條件，已在上文美國專利5,008,427中揭示，在此列為

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

註

訂

線

五、發明說明(5)

參考資料。反應溫度範圍可從350°C到700°C，但通常在430°C到520°C之間。平均接觸時間從0.01到10秒，但通常在0.02到10秒，最好在0.1到5秒之間。反應區的壓力範圍通常是從2到75，但最好不超過50psia。

本發明的更佳實施例是，本反應是發生在一個配備有可將未反應的丙烷和生成的丙烯回收至流體化床反應器的流體化床反應器。

為了製造本專利中所描述的釩-銻氧化催化劑，俾在熱反應期間減少或降低催化劑組成粒子結塊，其必須在780°C或更高的溫度進行煅燒，並在釩-銻氧化催化劑中隨所需鉬元素的含量包含A元素中的一種或多種以。任擇地，其可包含適量的一種或多種D元素，其量係使得該組成物含有符合下列實驗式的所需的元素和比例：



其中

A是Ti、Sn、Fe、Cr和Ga中的一種或多種；

D是Li、Mg、Ca、Sr、Ba、Co、Ni、Zn、Ge、Nb、Zr、W、Cu、Te、Ta、Se、Bi、Ce、In、As、B和Mn中的一種或多種；

m等於0.8到4；

a等於0.01到2；

$0 < b < 0.005$ ；

d是0到2；

x是由陽離子的氧化態決定，該催化劑係經至少780°C

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(6)

溫度的熱處理。

本發明的較佳實施態樣是，m等於1.1到1.8；a等於0.05到0.3與d等於0到0.1。

下面的例子只是為了說明的目的並且不應該被認為是限制了發明的範圍。

所有例子的反應條件是15psig，溫度480°C，除了例子15，其溫度是475°C。催化劑是在鈦製U型管的微反應器中進行的丙烷氨氧化測試。

實施例

催化劑A(比較用) 27.286克的五氧化二鈮粉末加入置於2公升燒杯中的含100毫升30%重量百分濃度的雙氧水及900毫升水的溶液。當五氧化二鈮粉末與雙氧水反應完全，加入69.965克的三氧化二銻後再加入0.959克的二氧化鈦。將燒杯以表玻璃蓋上將混合物攪拌加熱3小時，然後加入4.336克以 $\text{SnO}_2 \cdot \text{XH}_2\text{O}$ (錫酸)分散於氫氧化四甲銨水溶液配製成的20.9%重量百分濃度的二氧化錫 SnO_2 溶液。然後加入14.372克氧化鐵 Fe_2O_3 再加入88.10克的32.2wt%的二氧化矽 SiO_2 溶液。此混合物置於未加蓋的燒杯中攪拌加熱蒸發水份減少體積。當此混合物無法攪動時，將它放在120°C的烤箱中烘乾。隨後在325°C中煅燒3小時，820°C中煅燒3小時再以650°C煅燒3小時。這些煅燒生成粒子粒徑在20到35網目之間的催化劑再經由在粗玻璃製漏斗中與異丁醇接觸使異丁醇通過漏斗而不產生空吸現象。以異丁醇洗過的催化劑再置於120°C的烤箱中加熱去除殘留的異丁醇。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (7)

催化劑B(發明) 鉬以初期濕潤法加附在催化劑A上，取3克的催化劑A並以1.1毫升由0.0162克 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 配製成10毫升的水溶液均勻濕潤。處理過的催化劑在120°C下乾燥後以325°C熱處理3小時。

催化劑C(發明) 鉬以初期濕潤法加附在催化劑A上，取2.8克的催化劑A並以1.0毫升由0.0273克 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 配製成10毫升的水溶液均勻濕潤。處理過的催化劑在120°C下乾燥後以325°C熱處理3小時。

催化劑D(發明) 27.286克的五氧化二鈮 V_2O_5 粉末加入置於2公升燒杯中的含100毫升30%重量百分濃度的雙氧水 H_2O_2 及900毫升水的溶液中。當五氧化二鈮 V_2O_5 粉末與雙氧水反應完全，加入69.965克的三氧化二銻 Sb_2O_3 後再加入0.959克的二氧化鈦 TiO_2 。將燒杯以表玻璃蓋上將混合物攪拌加熱3小時，然後加入4.336克以 $\text{SnO}_2\cdot x\text{H}_2\text{O}$ (錫酸)分散於氫氧化四甲銨水溶液配製成的20.9%重量百分濃度的二氧化錫溶液，然後加入14.372克氧化鐵 Fe_2O_3 再加入88.10克的32.2wt%的二氧化矽 SiO_2 溶液。此混合物置於未加蓋的燒杯中攪拌加熱蒸發水份減少體積。當此混合物無法攪動時，將它放在120°C的烤箱中烘乾。隨後在325°C中煅燒3小時，820°C中煅燒3小時再以650°C煅燒3小時。鉬以1.2毫升由0.0162克 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 配成10毫升的溶液均勻濕潤粒子粒徑介於20至35網目的3克煅燒製成催化劑的初期濕潤法附在催化劑上。處理過的催化劑置於120°C下乾燥再以325°C熱處理3小時。處理過的催化劑經由在

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(8)

粗玻璃製漏斗中與異丁醇接觸使異丁醇通過漏斗而不產生空吸現象。以異丁醇洗過後，催化劑置於120°C的烤箱中加熱去除殘留的異丁醇。

催化劑E(發明) 30.014克的五氧化二釩 V_2O_5 粉末加入置於2公升燒杯中的含100毫升30wt%的雙氧水 H_2O_2 與900毫升水的溶液中。當五氧化二釩 V_2O_5 粉末與雙氧水 H_2O_2 反應完全，加入76.959克的三氧化二銻 Sb_2O_3 後再加入1.055克的二氧化鈦 TiO_2 。將燒杯以表玻璃蓋上將混合物攪拌加熱3小時，然後加入4.998克以 $SnO_2 \cdot xH_2O$ (錫酸)分散於氫氧化四甲銨配製成的19.9wt%的二氧化錫溶液。然後加入15.809克的氧化鐵粉末，再加入0.1436克的 $(NH_4)_6Mo_7O_{24} \cdot 4H_2O$ ，再加入96.919克32.2wt%的二氧化矽 SiO_2 溶液。此混合物置於未加蓋的燒杯中攪拌加熱蒸發水份以減少體積。當此溶液無法攪動時，將它放在120°C的烤箱中烘乾。隨後在325°C下煅燒3小時，820°C中煅燒3小時再以650°C煅燒3小時。煅燒生成粒子粒徑在20到35網目之間的催化劑再經由在粗玻璃製漏斗中與異丁醇接觸使異丁醇通過漏斗而不產生空吸現象。以異丁醇洗過的催化劑再置於120°C的烤箱中加熱去除殘留的異丁醇。

催化劑F(發明) 30.014克的五氧化二釩 V_2O_5 粉末加入置於2公升燒杯中的含100毫升30wt%的雙氧水 H_2O_2 與900毫升水的溶液中。當五氧化二釩 V_2O_5 粉末與雙氧水 H_2O_2 反應完全後，加入76.959克的三氧化二銻 Sb_2O_3 後再加入1.055克的二氧化鈦 TiO_2 。將燒杯以表玻璃蓋上將混合物攪拌加

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (9)

熱3小時，然後加入4.998克由 $\text{SnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (錫酸)分散於氫氧化四甲銨配製成的19.9wt%的二氧化錫 SnO_2 溶液。然後加入15.809克的氧化鐵 Fe_2O_3 粉末，再加入0.2872克的 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ，再加入96.919克32.2wt%的二氧化矽 SiO_2 溶液。此混合物置於未加蓋的燒杯中攪拌加熱蒸發水份減少體積。當此溶液無法攪動時，將它放在 120°C 的烤箱中烘乾。隨後在 325°C 下煅燒3小時， 820°C 中煅燒3小時再以 650°C 煅燒3小時。煅燒生成粒子粒徑在20到35網目之間的催化劑再經由在粗玻璃製漏斗中與異丁醇接觸使異丁醇通過漏斗而不產生空吸現象。以異丁醇洗過的催化劑再置於 120°C 的烤箱中加熱去除殘留的異丁醇。

催化劑G(比較) 然後將84.8磅由 $\text{SnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (錫酸)分散於氫氧化四甲銨水溶液的20wt%二氧化錫 SnO_2 溶液，8磅25%的氫氧化四甲銨水溶液，4.45磅的二氧化鈦 TiO_2 ，51.2磅的五氧化二釩 V_2O_5 ，114.8磅的三氧化二銻 Sb_2O_3 和4.5磅的氧化鐵 Fe_2O_3 加入75.2磅置於裝有機械攪拌器和控溫水夾層的50加侖反應槽中的水。將反應器封好在 125°C 下連續攪拌加熱5小時。取出部份混合物置於未加蓋燒杯中攪拌加熱蒸發水份以減少體積。當此溶液無法攪動時，置於 120°C 烘箱中烘乾。隨後以 325°C 煅燒3小時， 820°C 煅燒3小時再以 650°C 煅燒3小時。煅燒生成粒子粒徑在20到35網目之間的催化劑再經由在粗玻璃製漏斗中與異丁醇接觸使異丁醇通過漏斗而不產生空吸現象。以異丁醇洗過的催化劑再置於 120°C 的烘箱中加熱去除殘留的異丁醇。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(10)

催化劑H(發明) 然後將84.8磅由 $\text{SnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (錫酸)分散於氫氧化四甲銨水溶液的20wt%二氧化錫 SnO_2 溶液，8磅的25%的氫氧化四甲銨水溶液，4.45磅的二氧化鈦 TiO_2 ，51.2磅的五氧化二釩 V_2O_5 ，114.8磅的三氧化二銻 Sb_2O_3 和4.5磅的氧化鐵 Fe_2O_3 加入75.2磅置於裝有機械攪拌器和控溫水夾層的50加侖反應槽中的水。將反應器封好在 125°C 下連續攪拌加熱5小時。取出部份混合物置於未加蓋燒杯中攪拌加熱蒸發水份以減少體積。當此溶液無法攪動時，置於 120°C 烘箱中烘乾。隨後以 325°C 煅燒3小時，再於 650°C 中煅燒3小時。鉬以1.5毫升由0.3681克 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 配成100毫升的溶液均勻濕潤10克粒子粒徑介於20至35網目的煅燒生成催化劑的初期濕潤法附在催化劑上。處理過的催化劑置於 120°C 下乾燥再以 820°C 熱處理3小時後再以 650°C 處理3小時。處理過的催化劑經由在粗玻璃製漏斗中與異丁醇接觸使異丁醇通過漏斗而不產生空吸現象，以異丁醇洗過後，將催化劑置於 120°C 烘箱中加熱去除殘留的異丁醇。

催化劑I(比較) 然後將84.8磅由 $\text{SnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (錫酸)分散於氫氧化四甲銨水溶液的20wt%二氧化錫溶液，8磅的25%氫氧化四甲銨水溶液，4.45磅的二氧化鈦 TiO_2 ，51.2磅的五氧化二釩 V_2O_5 ，114.8磅的三氧化二銻 Sb_2O_3 和4.5磅的氧化鐵 Fe_2O_3 加入75.2磅置於裝有機械攪拌器和控溫水夾層的50加侖反應槽中的水。將反應器封好在 125°C 下連續攪拌加熱5小時。得到的混合物被噴霧-乾燥。這些噴霧-

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

註

訂

線

五、發明說明 (11)

乾燥的催化劑以325°C煅燒3小時，820°C煅燒3小時再以650°C煅燒3小時。處理過的催化劑經由在粗玻璃製漏斗中與異丁醇接觸使異丁醇通漏斗而不產生空吸現象，以異丁醇洗過後，將催化劑置於120°C烘箱中加熱去除殘留的異丁醇。

催化劑J(發明) 鉬以2毫升由0.1克 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 配成100毫升的溶液均勻濕潤10克的催化劑I的初期濕潤法附在催化劑I上。處理過的催化劑置於120°C下乾燥再以300°C熱處理1小時。

催化劑K(發明) 鉬以2毫升由0.3克 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 配成100毫升的溶液均勻濕潤10克的催化劑I的初期濕潤法附在催化劑I上。處理過的催化劑置於120°C下乾燥再以300°C熱處理1小時。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

A7
B7

五、發明說明 (12)

表 I

例子	催化劑	C.T. (秒)	進料比				%C ₃ H ₈	選定產物%			
			C ₃ H ₈	NH ₃	O ₂	N ₂		丙烯腈	C ₃ H ₆	丙烯腈	CO+CO ₂
例1(比較)	A	0.9	3.0	0.8	2.0	2.0	19.4	58.9	0.9	59.8	25.3
例2(比較)	A	1.0	3.0	0.8	2.0	2.0	20.2	58.3	1.1	59.4	25.4
例3(發明)	B	1.1	3.0	0.8	2.0	2.0	20.2	60.3	1.3	61.7	23.5
例4(發明)	B	1.2	3.0	0.8	2.0	2.0	20.6	59.9	1.2	61.1	23.2
例5(發明)	C	1.4	3.0	0.8	2.0	2.0	20.7	59.7	1.1	60.8	23.3
例6(發明)	C	1.1	3.0	0.8	2.0	2.0	18.2	58.3	2.5	60.8	21.9
例7(發明)	C	1.1	3.0	0.8	2.0	2.0	20.0	59.9	1.3	61.2	22.7
例8(發明)	C	1.1	3.0	0.8	2.0	2.0	19.2	60.2	2.0	62.2	22.0
例9(發明)	D	0.7	3.0	0.8	2.0	2.0	21.8	61.2	1.6	62.9	21.1
例10(發明)	E	1.2	3.0	0.8	2.0	2.0	19.5	59.5	1.4	61.0	22.4
例11(發明)	F	1.5	3.0	0.8	2.0	2.0	19.7	57.6	2.5	60.1	22.6
例12(比較)	G	1.0	3.0	0.8	2.1	2.0	19.6	56.6	2.4	59.0	25.0
例13(發明)	H	1.1	3.0	0.8	2.0	2.0	19.8	58.2	2.4	60.5	23.4
例14(比較)	I	1.3	3.0	0.8	2.0	2.0	19.5	53.9	2.9	56.8	27.5
例15(發明)	J	1.6	3.0	0.8	2.0	2.0	19.7	55.6	2.2	57.8	26.9
例16(發明)	K	1.8	3.0	0.8	2.0	2.0	19.9	57.0	3.5	60.6	24.8

A58. - 2 修正
94年5月 日 補充

四、中文發明摘要(發明之名稱： 製造丙烯腈或甲基丙烯腈以及製造不結塊之促進性鈮-錒氧化物催化劑之方法)

從選自丙烷和異丁烷之石蠟類在蒸氣狀態下與分子氧和氨在反應段內與催化劑接觸，製造丙烯腈和甲基丙烯腈的催化反應的製造方法，該進料組成物之石蠟對氨莫耳比例約為2.5到16的範圍內，石蠟對氧的莫耳比約1.0到10，其中的催化劑以下列實驗式說明含有的元素和比例：



其中

A是Ti、Sn、Fe、Cr和Ga中的一種或多種；

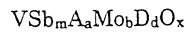
D是Li、Mg、Ca、Sr、Ba、Co、Ni、Zn、Ge、Nb、Zr、W、Cu、Te、Ta、Se、Bi、Ce、In、As、B和Mn中的一項或多項；

(接下頁)

英文發明摘要(發明之名稱：)

PROCESSES FOR MAKING ACRYLONITRILE OR METHACRYLONITRILE AND FOR THE MANUFACTURE OF CLUMP FREE PROMPTED VANADIUM-ANTIMONY OXIDE CATALYST

A process of manufacturing acrylonitrile or methacrylonitrile by the catalytic reaction in the vapor phase of a paraffin selected from propane and isobutane with molecular oxygen and ammonia by catalytic contact of the reactants in a reaction zone with a catalyst, the feed composition having a mole ratio of the paraffin to ammonia in the range of from about 2.5 to 16 and a mole ratio of paraffin to oxygen in the range of from about 1.0 to 10, wherein said catalyst has the elements in the proportions indicated by the empirical formula:



where

A is one or more of Ti, Sn, Fe, Cr and Ga;

D is one or more of Li, Mg, Ca, Sr, Ba, Co, Ni, Zn, Ge, Nb, Zr, W, Cu, Te, Ta, Se, Bi, Ce, In, As, B and Mn;

m equals 0.8 to 4;

a equals 0.01 to 2;

0 < b < 0.005;

d is 0 to 2;

x is determined by the oxidation state of the cations present, and

the catalyst has been heat treated at a temperature of at least 780°C.

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝 訂

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

四、中文發明摘要(發明之名稱：
(承上頁)

m等於0.8到4；

a等於0.01到2；

$0 < b < 0.005$ ；

d是0到2；

x是由陽離子的氧化態決定，該催化劑並經至少780°C
溫度的熱處理。

英文發明摘要(發明之名稱：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

訂

線

公告本

六、申請專利範圍

第88104716號專利申請案 申請專利範圍修正本 修正日期：90年08月

1. 一種製造丙烯腈或甲基丙烯腈之方法，其藉由選自丙烷和異丁烷之石蠟類與氧和氮分子之氣相狀態下催化反應來進行，該催化反應係藉由在反應區內的反應物與催化劑之催化接觸來進行，進料組成物含石蠟對氮的莫耳比率在2.5到16之範圍、且石蠟對氧的莫耳比率在1.0到10之範圍，其中該催化劑具有下列實驗式所示之元素比例：



其中

A為一個或以上之Ti、Sn、Fe、Cr和Ga；

D為一個或以上之Li、Mg、Ca、Sr、Ba、Co、Ni、Zn、Ge、Nb、Zr、W、Cu、Te、Ta、Se、Bi、Ce、In、As、B和Mn；

m相當於0.8到4；

a相當於0.01到2；

$0 < b < 0.005$ ；

d為0到2；

x由該等陽離子表現的氧化態決定之，且該催化劑為已至少經780°C溫度的熱處理。

2. 如申請專利範圍第1項之方法，其中m範圍為從1.2到2.0。
3. 如申請專利範圍第1項之方法，其中a範圍為從0.05到0.5。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂
線

六、申請專利範圍

4. 如申請專利範圍第1項之方法，其中a範圍為從0.05到4。
5. 如申請專利範圍第1項之方法，其中A包含一個或以上的錫、鈦和鐵。
6. 如申請專利範圍第1項之方法，其中該反應在流體化床反應器中進行。
7. 如申請專利範圍第6項之方法，其中任何未反應的丙烷和異丁烷為再循環至該流體化床反應器內。
8. 如申請專利範圍第1項之方法，其中b範圍從0到0.0045。
9. 如申請專利範圍第1項之方法，其中b範圍從0到0.0035。
10. 如申請專利範圍第1項之方法，其中b範圍從0到0.0030。
11. 一種製造不結塊之促進性鈳-銻氧化物催化劑的方法，該催化劑具有如申請專利範圍第1項實驗式，該方法包含在該催化劑煅燒前，令一或以上的所需之A元素與所需的鉬元素一起加入該催化劑中，並且在至少780°C的溫度下將含該A元素和鉬的催化劑煅燒。
12. 如申請專利範圍第11項之方法，其中鉬是在該催化劑為已至少經780°C溫度的煅燒後再加至該催化劑。
13. 如申請專利範圍第12項之方法，其中鉬是以含鉬的水溶液均勻濕潤煅燒過的催化劑之方式加至該催化劑，再乾燥和熱處理該催化劑。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂
線

六、申請專利範圍

14. 如申請專利範圍第12項之方法，其中鉬是以含鉬原料的粉末完全滲入該催化劑之方式加至該催化劑。
15. 如申請專利範圍第14項之方法，其中該粉末為擇自由 MoO_3 與鉬酸銨所構成的族群。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂
線