

公告本

申請日期	85. 6. 10
案 號	8510697/1
類 別	C07C 209/32

A4
C4

418182

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

新 型

一、發明 名稱	中 文	一種以氣相氫化作用製造芳族胺類的方法和 使用於其中的催化劑
	英 文	Process for the manufacture of aromatic amines by gas-phase hydrogenation and catalyst useful thereof
二、發明 創作人	姓 名	1. 瑞爾得 Reinhard Langer 2. 拜漢喬 Hans-Josef Buysch 3. 潘羅拉 Ursula Pentling
	國 籍	1 - 3. 皆德國籍
	住、居所	1. 德國可瑞佛城史柏勒街111號 Scheiblerstr.111, 47800 Krefeld, Germany 2. 德國可瑞佛城柏藍頓街28號 Brandenburger Str.28, 47809 Krefeld, Germany 3. 德國都斯柏格城瑪斯得維街8號 Markscheiderweg 8, 47239 Duisburg, Germany
三、申請人	姓 名 (名稱)	德商拜耳廠股份有限公司 Bayer Aktiengesellschaft
	國 籍	德國籍
	住、居所 (事務所)	德國利佛可生城拜耳工業區D 51368 D 51368 Leverkusen, Bayerwerk, Federal Republic of Germany
	代 表 人 姓 名	白羅夫(Dr. Rolf Braun) 羅勞斯(Dr. Klaus Reuter)

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

418182

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6
B6

本案已向：

德國(地區) 申請專利，申請日期：西元1995年 案號：195 21 587.7 有 無主張優先權
6月14日

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)

本發明涉及通過在氣相中將硝基芳族化合物催化氫化製備芳族胺的改進方法，以及該方法中使用的新的催化劑。

苯胺是製備染料、聚氨酯和植物保護產品的重要中間體。

已知有多種將一硝基甲苯和其它硝基芳族化合物氫化的方法。由於在這些已知的方法中釋放出大量的熱焓，它們都在具有一體化熱載體系統的反應器中實施。例如在EP 476404中描述了用懸浮的催化劑（例如Pd催化劑）在液相中氫化的方法。在例如US 3136818中描述了在氣相中用流化固體催化劑氫化的方法。DE-A 2244401；2849002和4039026描述了用固定催化劑（例如載於載體上的Pd催化劑）在氣相中氫化的方法。

在DE-A 2244401和2849002中，描述了載於氧化鋁載體上的Pd催化劑，它可以以在熱交換器管中的固定催化劑床的形式在常壓和低於1克硝基苯(Nbz)/ml催化劑小時的載荷條件下，以低的氫氣/硝基苯比操作。對於每莫耳硝基苯，將6-11莫耳氫氣送入反應器中。大約每過1000小時，必須將催化劑再生。上述方法均在600-900 h⁻¹之間的氣時空速(GHSV)下操作。

在DE-A 4039026中，描述了載於石墨載體上的Pd催化劑。在這些公開說明書中描述的方法實施的條件類似於使用載於氧化鋁的Pd催化劑的方法的。在明顯低於1g (NBz)/ml催化劑小時的載荷和氫氣/硝基苯比為14-26莫耳比1莫耳的條件下，催化劑產生的轉化不完全。在冷凝物中有

五、發明說明(2)

1000-4000ppm (相對於形成的苯胺) 硝基苯。對苯胺的選擇性在99.1%和99.6%之間變化。所述方法的GHSV範圍在大約2000-3150 h^{-1} 之間。

硝基芳族化合物負荷的增加和氫氣/硝基芳族化合物比的升高都會提高通過催化劑床的體積流率，從而減少了在催化劑上的停留時間。因此，這兩種措施都會導致硝基芳族化合物的突破(即不完全轉化)。

這一通過催化劑床的氣流的一般量度是以 h^{-1} 為單位表示的氣時空速(GHSV)。

然而，在芳族胺中即使少量硝基芳族化合物也會導致無色芳族胺明顯變色，因此是不合需要的。必須通過蒸餾除去硝基芳族化合物，這需要設備和能耗。

在這些方法變體中，產生的大量反應熱必須通過複雜的熱量攜帶系統將其從工業反應器中帶走。

用簡單的絕熱催化劑床進行的氣相催化方法特別經濟，因為可以使用簡單的裝置而不必使用一體化熱交換器系統。然而，硝基基團氫化的大量放熱意味著催化劑必須滿足一定的要求。催化劑必須在較寬的範圍內具有氫化選擇性。在絕熱法中，還將熱載體(在氫化過程中，該載體通常是氫氣)與排出混合物混合，使得停留時間很短(即GHSV很大)。因此，催化劑除了具有在較寬的溫度範圍內的選擇性之外，還必須具有高活性，以便即使在低硝基苯負荷下也可以獲得硝基苯的完全轉化。

本發明的一個目的是提供一種比已知的催化劑具有更高

五、發明說明(3)

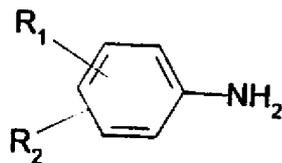
負荷能力的催化劑，即提供一種能夠在大GHSV下完全轉化的並且可以用於簡單反應器結構的催化劑。

本發明的目的還在於提供一種生產芳族胺的方法，它從催化劑的開始到失活都能夠實現連續的高選擇性，從而無需用特製的設備對芳族胺冷凝物進行昂貴的蒸餾處理。

本發明的另一目的是提供一種能夠以出人意料長的在線時間和高選擇性實施的生產芳族胺的方法。

上述目的以及其它本領域技術人員顯而易見的目的通過在載於石墨或石墨碳載體上的鉍-鉛催化劑和大量過量的氫氣存在下，硝基芳族化合物在氣相中的氫化得以實現。可以使用可選的熱載體系統將熱從催化劑床中移出。迄今尚不能夠用於硝基苯氫化的簡單絕熱反應器結構是適當的。本發明方法的連續高選擇性使得冷凝芳族胺的蒸餾處理成爲不必要。

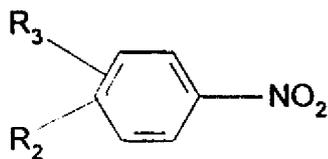
本發明涉及生產下式(I)芳族胺的方法



專利代理人
蔡中治律師

式中，

R¹ 和 R² 相互獨立地代表氫、甲基或乙基，R¹ 也可以代表胺基；該方法包括用氫氣以固定催化劑在氣相中將式(II)代表的硝基芳族化合物氫化，



專利代理人
蔡中治律師

五、發明說明(4)

式中，

R² 和 R³ 相互獨立地代表氫、甲基或乙基，R³ 也可以代表硝基；所述固定催化劑由載於 BET 表面積為 0.2-10 平方米/克的石墨或含石墨焦炭載體上的鉍和鉛組成。基於催化劑的總重量計，催化劑的鉍含量為 0.001-7%(重量)，優選 0.1-6%(重量)，更優選 0.5-5%(重量)，最優選 1.5-4%(重量)；於鉍的重量計，鉛含量為 0.1-50%(重量)，優選 0.2-30%(重量)；氫氣用量應使得對於每當量硝基有 30-6000 當量、優選 80-1000 當量、更優選 100-300 當量的氫氣送入催化劑中。

本發明還涉及載於 BET 表面積為 0.2-10 平方米/克的石墨或含石墨焦炭上的催化劑。基於催化劑的總重量計，催化劑的鉍含量為 0.0001-7%(重量)；基於鉍含量計，鉛含量為 0.1-50%(重量)、優選 0.2-30%(重量)。

在催化劑的製造中，含石墨材料被用作載體材料。適宜的石墨的例子有電解石墨和焦炭，例如針狀焦炭或石油焦炭。這些載體的 BET 表面積通常為 0.2-10 平方米/克。

本發明的催化劑可以這樣製備：通過 1-50 個、優選 2-30 個、最優選 4-10 個浸漬步驟將鉍與鉛分別或一起施用到載體上。在各浸漬步驟之間，將催化劑載體在熱氣流中、優選在空氣或氫氣流中乾燥。在鉍和鉛浸漬之間，可以用例如氫氣將鉍還原。

本發明的催化劑可通過將適宜的鹽形式的鉍施用到直徑為 1-30mm 的片狀、球狀、粒狀、Rasching 環狀、Pall 環狀

五、發明說明 (5)

、馬車車輪狀或蜂窩狀結構的載體上來生產。在使用這種方法製備時，可以用幾個浸漬步驟進行，每次施用後均進行乾燥。乾燥在空氣流中，在30-140°C、優選30-60°C的溫度下，優選在常壓下進行。可以將水性溶劑和有機溶劑以及它們的混合物用於載體的浸漬。適宜的溶劑包括：水、NH₃，簡單醇類、胺類、酮類、酯類、環狀酯類、鹵代煙類和肟類。適宜的有機溶劑的具體例子有：甲醇、乙醇、丙醇、異丙醇、甲胺、乙胺、異丙胺、丙酮、甲基乙基酮、二氧六環、二氯甲烷、乙肟和相當的溶劑。適宜的鉍鹽包括氯化鉍、硝酸鉍、乙醯丙酮酸鉍、乙酸鉍和鉍的胺配合物。催化劑最好在沒有任何含鹵素溶劑和金屬鹽存在的情況下製備。

有機和無機鉛化合物可以用來製備本發明的催化劑。適宜的有機鉛化合物包括例如四烷基鉛化合物，像四乙基鉛。適宜的鉛鹽包括：氯化鉛、硝酸鉛和乙酸鉛。催化劑最好在沒有任何含鹵素溶劑或金屬鹽存在下的情況下製備。在浸漬並最後乾燥後，便製得了本發明的催化劑。

在使用之前，可以在大約250-450°C、優選大約300-400°C的溫度下用1-10巴的氫氣流將催化劑處理大約1-50小時、優選5-30小時進行活化。

本發明的氫化方法通常在1-30巴、優選大約1-15巴、最優選1-7巴下進行。

在催化劑床之前，含有一硝基芳族化合物和氫氣的排出氣體混合物的溫度為大約200-400°C，優選大約230-370°C

五、發明說明(6)

，最優選250-350°C。最高催化劑溫度為600°C，優選550°C，更優選500°C，最優選460°C。

本發明的催化劑可以用於不帶有熱去除系統的反應器。

本發明方法的短停留時間(即高GHSV)可以允許催化劑負荷達到每小時每升催化劑0.05-20kg、優選0.1-10kg硝基芳族化合物。這樣的停留時間被認為是驚人的。

本發明方法的不同之處還在於不存在催化劑起始相並且初始選擇性高於大約99.7%，短時後達到並超過99.9%。

本發明方法的另一個重要優點是硝基芳族化合物的定量轉化，令人驚訝的出人意料是即使在短的停留時間即高的GHSV下也可達到定量轉化。

在本發明的方法中，硝基芳族化合物的轉化率通常大於99.95%，優選99.99%以上，更優選99.995%以上。當然，在必要時可以選擇過程參數來獲取低的轉化率。

本發明的催化劑可以用於任意的具有固定催化劑床的反應器中。

在本發明的一個實施方案中，催化劑是固定的，並且被用於任何一種已知的絕熱反應器中。關於這種已知反應器的描述可參見例如：Ullmann's, Encyclopedia of Industrial Chemistry, 第四版, 第3卷, 第468-469頁；和Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology, 第19卷(1982), 第880-914頁。然而，催化劑床也可以分布在數個並聯或串聯的反應器中，這類反應器的實例是用來將甲醇氧化為甲醛所用的已知的反應器。

五、發明說明(7)

可以將催化劑床置於透氣的壁之間。然而，必須注意確保足夠的氣體分佈。也可以製備催化劑並將其用於作為載體材料的適當填料上，而不以床的形式使用。

在催化劑床之前，將新鮮的硝基芳族化合物計量送入循環氣流中，該循環氣流主要包含循環和新添加的氫氣。最好將硝基芳族化合物在新鮮氫氣中完全汽化，然後以氣態加到循環氣流中。在通過催化劑床之後，通過蒸汽回收將產物氣體冷卻。蒸汽回收可以用任何已知的熱交換器來完成。然後通過冷凝將產物氣體冷卻，以便從反應混合物中除去芳族胺和反應的水。在分出少量氣體以除去循環氣中的氣態成分後，將剩下的循環氣循環。在循環之前，循環氣和新鮮排出物必須混合預熱至入口溫度。

本發明方法特別適用於硝基苯和硝基甲苯的氫化。

本發明方法允許使用超過了先有技術方法的高催化劑負荷或GHSV。此外，本發明的催化劑能夠獲得高於99.7%的選擇性，反應一開始便完全轉化。該選擇性是已知的硝基芳族化合物的氣相氫化所達到的最高選擇性。該高選擇性使得通過蒸餾對冷凝的芳族胺的處理變得不必要。

通過下述實施例進一步闡述本發明（但不受其限制），除非另有說明，其中所有份數和百分數均為重量份數和重量百分數。

實施例

GHSV（氣時空速）表明在正常條件下或者在所述壓力下，相對於催化劑床所佔的空體積氣體的時空速度。

五、發明說明(8)

催化劑的製備

以BET表面積為0.4-0.8平方米/克的粒狀石墨EG 17(可從Ringsdorff公司購得)作為在這些實施例中所用的各催化劑的載體材料。石墨的顆粒尺寸在1-3mm之間。

當然，其它具有小的BET表面積的石墨和含石墨材料用作本發明的催化劑的載體材料時將產生類似的結果。

這些實施例中所用的催化劑是用下述方法製備的：

將吸收度為7ml乙腈/100g載體的粒狀石墨EG 17(1-3mm的顆粒，堆積密度為650-1000g/l)投入到一個可旋轉容器中，使混合物保持運動直至溶劑被載體完全吸收。然後將固體在40°C的迅速上升的空氣流中乾燥5分鐘。重複浸漬和乾燥步驟，直到施加了所需量的鉍。

然後，以相同的方式，用三水合乙酸鉛的水溶液進行浸漬和乾燥，直到施加了所需量的鉛。

然後在常壓下，將乾燥的催化劑在熱氫氣流中活化。

實施例1

按照上述方法將2000g載體用在140g乙腈中的9.25g PdAc₂浸漬9次，用在130g水中的18g PbAc₂·3H₂O浸漬2次，然後在370°C下活化20小時製得催化劑1(2% Pd, 0.5% Pb, 載於EG 17上)。

實施例2

將2000g載體用在140g乙腈中的9.25g PdAc₂浸漬9次，然後在370°C下活化20小時製得催化劑2(不含鉛的比較催化劑, 2% Pd, 載於EG 17上)。

五、發明說明(9)

實施例 3

將220ml (219.0g)含2.0% Pd和0.5% Pb的催化劑1(在實施例1中製備的)引入床高度為180mm的隔熱非常好的反應器中。在反應器的上端裝有蒸發器和過熱器。為連續排出產物氣，在反應器出口處連接一隔熱良好的管子。該隔熱良好的管子引導產物進入管簇和旋管冷凝器以便將其冷凝。催化劑床前、中和後溫度用滑動熱電偶測定。首先將催化劑在200°C和常壓下在反應器中處理10個小時，氫氣通過蒸發器和過熱器供給。隨後，將氫氣流調節至1620 l/h。在 $T_{init}=202^{\circ}\text{C}$ 的起始溫度下，用計量泵通過蒸發器過熱器計量送入氫氣流中。這對應於氫氣/硝基苯莫耳比為81/1，它在定量轉化率和在絕熱條件下導致排出氣流與產物氣流之間產生大約200°C的溫度差。數小時後，在催化劑床在自動建立了溫度分佈。該溫度分佈對應於通過反應器壁的大約10%的熱損失。剩下的反應熱與產物氣體混合物離開催化劑床。冷凝物的氣相色譜分析結果示於下表中。3000h後，催化劑仍未表現出任何失活的跡象。

GHSV = 7460小時⁻¹

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

球

五、發明說明 (10)

運行時間 h	催化 劑號	Nbz* ppm	選擇性 %	T _{init} °C	T _{max} °C
6	1	0	99.88	202	385
129	1	0	99.90	202	385
983	1	0	99.94	202	386
1804	1	0	99.93	202	383
2912	1	0	99.95	202	384

*Nbz = 硝基苯

超過99.85%的連續高選擇性使得冷凝的苯胺可不必進一步處理而直接使用。產物的純度可選地通過部分冷凝而進一步提高，這將使得低或高沸點副產物的比例小於0.12%。因此，能夠避免昂貴的蒸餾處理。

實施例4 (使用不含鉛的催化劑的比較例)

用相同的反應器重複實施例3的程序，不同的是使用220ml (223g)具有2.0% Pd的催化劑2 (實施例2製備)。氫化處理後，從T_{init}=201°C的初始溫度開始計量加入硝基苯。40小時後，在定量的轉化劑下獲得99.5%的苯胺選擇性。170小時後，對苯胺的選擇性升高至99.5%以上。1000小時後，催化劑未表現出開始失活的跡象。本實施例的結果示於下表中。

五、發明說明(11)

運行時間 h	催化 劑號	Nbz* ppm	選擇性 %	T _{init} °C	T _{max} °C
40	2	0	99.49	207	376
214	2	0	99.63	206	375
1004	2	0	99.73	207	377

*Nbz = 硝基苯

在其它相同的條件下，使用催化劑2 得到比催化劑1 多400%以上的副產物。

實施例5(比較)

用相同的反應器重複實施例3 的程序，不同的是使用220ml按照DE 2849002的實施例1 所述的方法製備的催化劑。該催化劑是由載於 α -氧化鋁上(SPH 512可從Rhone Poulenc Company購得)的9g Pd, 9g V和3g Pb組成。在與實施例3 所用的條件相同的條件下活化和氫化之後，得到如下的結果：

GHSV = 7460 h⁻¹

運行時間 h	Nbz* ppm	選擇性 %	T _{init} °C	T _{max} °C
3.5	0	98.8	199	383
90	0	99.1	195	372
160	100	99.6	200	375

五、發明說明(12)

*Nbz = 硝基苯

在相同的硝基苯負荷的油熱管式反應器中和氫氣/硝基苯比率為6/1 (GHSV=637 h⁻¹)的條件下，該催化劑在轉化周期中顯示出大約1000小時的壽命和平均為大約99.8%的選擇性。

因此該催化劑不適用於大量氫氣過量和大硝基苯負荷的情況。所得選擇性明顯低於用本發明方法獲得的選擇性。

下述實施例6和7是用大約2升催化劑1在常壓下在油熱熱交換器管中進行的。該管為具有大約300cm的習知長度和大約3cm的內徑的V2A管。

負荷為0.65g/ml h，熱傳遞介質的溫度被調節至250°C。

實施例6

GHSV=9707 h⁻¹

H₂/Nbz=81/1 催化劑壽命大於5000小時(沒有硝基苯突破)

實施例7(比較)

GHSV=2131 h⁻¹

H₂/Nbz=17/1 催化劑壽命為108小時(硝基苯突破大於100ppm)

儘管氣體負荷和GHSV明顯較小，但實施例7中的催化劑卻比實施例6中的催化劑失活得性。因此顯然在低於一臨界氫氣/硝基苯比率時，催化劑明顯逐漸失活。

儘管為說明的目的在上文中詳細地描述了本發明，但應

五、發明說明(13)

當理解，上述細節僅僅用於該目的，本領域技術人員能夠在不背離本發明實質和範圍的情況下在其中作出改變，只是它可能會受到本發明的申請專利範圍的限制。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

紙

四、中文發明摘要 (發明之名稱： 一種以氣相氫化作用製造芳族胺類的方法和使用於其中的催化劑)

通過在氣相中硝基芳族化合物的催化氫化製備了芳族胺。催化劑包括載於石墨或含石墨焦炭載體上的鈀和鉛。在該方法中，對於每當量硝基，使30-6000當量氫氣與催化劑接觸。

英文發明摘要 (發明之名稱： Process for the manufacture of aromatic amines by gas-phase hydrogenation and catalyst useful thereof)

Aromatic amines are produced by catalytic hydrogenation of nitroaromatic compounds in the gas phase. The catalyst includes palladium and lead on graphite or on a graphite-containing coke support. From 30 to 6000 equivalents of hydrogen for each equivalent of nitro groups are contacted with the catalyst during this process.

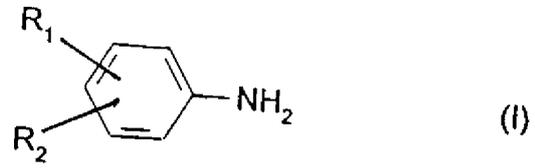
修正
89.6.1日
核定

A8
B8
C8
D8

專利申請案第 85106931 號
ROC Patent Appln. 85106931
修正之申請專利範圍中文本 - 附件一
Amended Claims in Chinese - Encl. I
(民國 89 年 6 月 1 日送呈)
(Submitted on June 1, 2000)

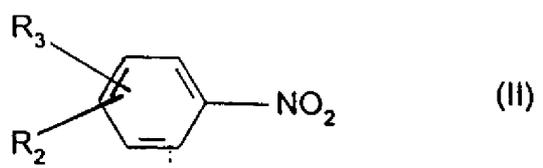
六、申請專利範圍

1. 一種製備下式 (I) 芳族胺的方法：



式中，

R¹ 和 R² 各自獨立地代表氫、甲基或乙基，R¹ 也可以代表胺基；該方法包括用氫氣以固定催化劑在氣相中將式 (II) 代表的硝基芳族化合物氫化，



式中，

R² 和 R³ 各自獨立地代表氫、甲基或乙基，R³ 也可以代表硝基；

所述固定催化劑的組成為：

- (a) 基於催化劑總重量計，0.001-7% (重量) 鈦；
- (b) 基於鈦 (a) 的重量計，0.1-50% (重量) 鉛；
- (c) BET 表面積為 0.2-10 平方米 / 克的石墨或含石墨的焦炭載體；

氫氣用量應使得對於每當量硝基有 30-6000 當量的氫氣與催化劑接觸。

- 2. 如申請專利範圍第 1 項的方法，其中氫化是在 1-30 巴的操作壓力下進行的。
- 3. 如申請專利範圍第 1 項的方法，其中含有硝基芳族化合

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

六、申請專利範圍

- 物和氫氣的排出氣體混合物在與催化劑接觸之前的溫度為200-400°C，催化劑最高溫度為600°C。
4. 如申請專利範圍第1項的方法，其中將催化劑載荷設定在每小時每升催化劑0.05-20公斤硝基芳族化合物。
 5. 如申請專利範圍第1項的方法，其中氫化反應在沒有分散反應熱的系統的反應器中進行。
 6. 如申請專利範圍第1項的方法，其中所述硝基芳族化合物是硝基苯或硝基甲苯。
 7. 一種適用於硝基芳族化合物的氫化的催化劑，它載於BET表面積為0.2-10平方米/克的石墨或含石墨焦炭載體上；浸漬有催化劑總重量的0.001-7%(重量)的鈀和鈷重量的0.1-50%(重量)的鉛。
 8. 如申請專利範圍第7項的催化劑，其中通過1-50個浸漬步驟將含鈀溶液施用到載體上而將鈀浸漬到載體上，在每個步驟之間將催化劑載體在熱氣流中乾燥。
 9. 如申請專利範圍第7項的催化劑，其中將催化劑在1-10巴的氫氣流中，在250-450°C的溫度下活化。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(8)

催化劑的製備

以BET表面積為0.4-0.8平方米/克的粒狀石墨EG 17(可從Ringsdorff公司購得)作為在這些實施例中所用的各催化劑的載體材料。石墨的顆粒尺寸在1-3mm之間。

當然，其它具有小的BET表面積的石墨和含石墨材料用作本發明的催化劑的載體材料時將產生類似的結果。

這些實施例中所用的催化劑是用下述方法製備的：

將吸收度為7ml乙腈/100g載體的粒狀石墨EG 17(1-3mm的顆粒，堆積密度為650-1000g/l)投入到一個可旋轉容器中，使混合物保持運動直至溶劑被載體完全吸收。然後將固體在40°C的迅速上升的空氣流中乾燥5分鐘。重複浸漬和乾燥步驟，直到施加了所需量的鉍。

然後，以相同的方式，用三水合乙酸鉛的水溶液進行浸漬和乾燥，直到施加了所需量的鉛。

然後在常壓下，將乾燥的催化劑在熱氫氣流中活化。

實施例1

按照上述方法將2000g載體用在140g乙腈中的9.25g PdAc₂ 浸漬9次，用在130g水中的18g PbAc₂ · 3H₂O浸漬2次，然後在370°C下活化20小時製得催化劑1(2% Pd, 0.5% Pb, 載於EG 17上)。

實施例2

將2000g載體用在140g乙腈中的9.25g PdAc₂ 浸漬9次，然後在370°C下活化20小時製得催化劑2(不含鉛的比較催化劑, 2% Pd, 載於EG 17上)。

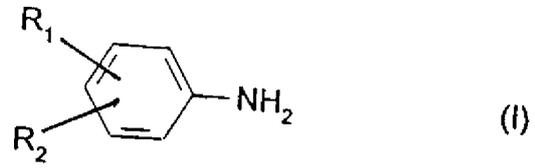
修正
89.6.1日
核定

A8
B8
C8
D8

專利申請案第 85106931 號
ROC Patent Appln. 85106931
修正之申請專利範圍中文本 - 附件一
Amended Claims in Chinese - Encl. I
(民國 89 年 6 月 1 日送呈)
(Submitted on June 1, 2000)

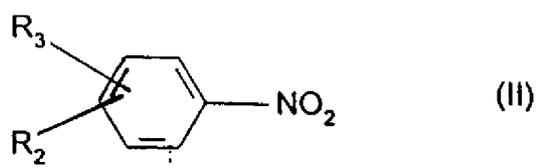
六、申請專利範圍

1. 一種製備下式 (I) 芳族胺的方法：



式中，

R¹ 和 R² 各自獨立地代表氫、甲基或乙基，R¹ 也可以代表胺基；該方法包括用氫氣以固定催化劑在氣相中將式 (II) 代表的硝基芳族化合物氫化，



式中，

R² 和 R³ 各自獨立地代表氫、甲基或乙基，R³ 也可以代表硝基；

所述固定催化劑的組成為：

- (a) 基於催化劑總重量計，0.001-7% (重量) 鈦；
- (b) 基於鈦 (a) 的重量計，0.1-50% (重量) 鉛；
- (c) BET 表面積為 0.2-10 平方米 / 克的石墨或含石墨的焦炭載體；

氫氣用量應使得對於每當量硝基有 30-6000 當量的氫氣與催化劑接觸。

- 2. 如申請專利範圍第 1 項的方法，其中氫化是在 1-30 巴的操作壓力下進行的。
- 3. 如申請專利範圍第 1 項的方法，其中含有硝基芳族化合

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製