



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I807101 B

(45)公告日：中華民國 112 (2023) 年 07 月 01 日

(21)申請案號：108133992

(22)申請日：中華民國 108 (2019) 年 09 月 20 日

(51)Int. Cl. : C01B37/08 (2006.01)

C01B39/54 (2006.01)

B01J20/18 (2006.01)

B01J29/85 (2006.01)

B01J32/00 (2006.01)

(30)優先權：2018/10/25 中國大陸

201811250864.3

(71)申請人：大陸商中國石油化工科技開發有限公司(中國大陸) CHINA PETROCHEMICAL TECHNOLOGY CO., LTD. (CN)

中國大陸

(72)發明人：楊為民 YANG, WEIMIN (CN)；袁志慶 YUAN, ZHIQING (CN)；滕加偉 TENG, JIAWEI (CN)；付文華 FU, WENHUA (CN)；劉松霖 LIU, SONGLIN (CN)

(74)代理人：陳展俊

(56)參考文獻：

TW 583140

CN 1391532A

CN 104556092A

CN 106608632A

EP 2085360A1

US 2003/0232006A1

US 2005/0090390A1

US 2006/0292053A1

US 2008/0108857A1

審查人員：洪敏峰

申請專利範圍項數：16 項 圖式數：2 共 82 頁

(54)名稱

矽磷鋁分子篩、其製備方法和用途

(57)摘要

一種新穎的矽磷鋁分子篩、其製備方法及應用，所述分子篩具有按摩爾比計的示意性化學組成 $m\text{SiO}_2 \cdot n\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot p\text{P}_2\text{O}_5$ ，其中 m 表示矽鋁比，並且在約 0.005-0.15 的範圍內， n 表示磷鋁比，並且在約 0.7-1.1 的範圍內。上述矽磷鋁分子篩具有獨特的 X 射線繞射圖譜，可以用作吸附劑、催化劑或者催化劑載體。

指定代表圖：

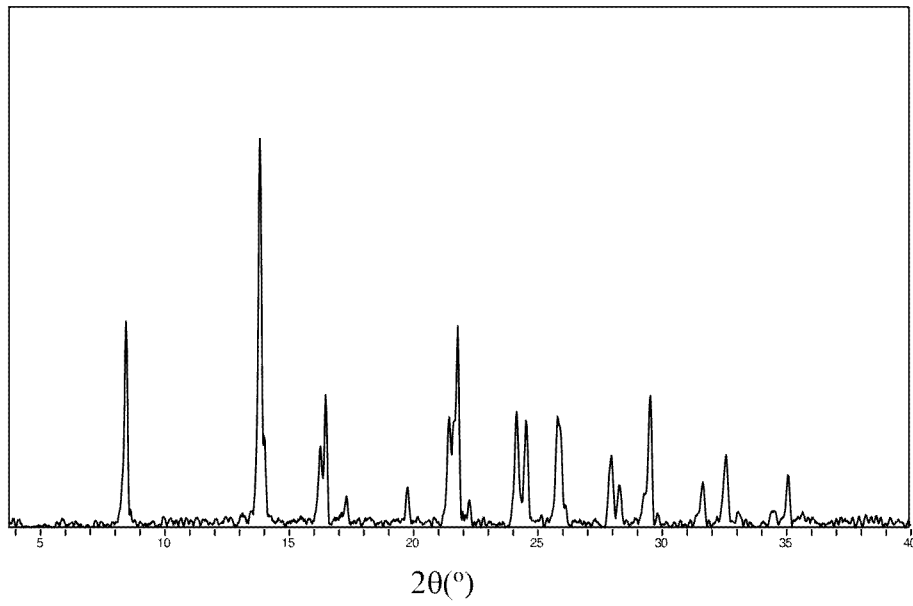


圖2



公告本

I807101

【發明摘要】

【中文發明名稱】 矽磷鋁分子篩、其製備方法和用途

【中文】

一種新穎的矽磷鋁分子篩、其製備方法及應用，所述分子篩具有按摩爾比計的示意性化學組成 $m\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{P}_2\text{O}_5$ ，其中 m 表示矽鋁比，並且在約0.005-0.15的範圍內， n 表示磷鋁比，並且在約0.7-1.1的範圍內。上述矽磷鋁分子篩具有獨特的X射線繞射圖譜，可以用作吸附劑、催化劑或者催化劑載體。

【指定代表圖】 圖2

【代表圖之符號簡單說明】 無

【特徵化學式】 無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 矽磷鋁分子篩、其製備方法和用途

【技術領域】

【0001】 本申請涉及分子篩的技術領域，更具體地涉及一種矽磷鋁分子篩、其製備方法和應用。

【先前技術】

【0002】 分子篩是一類多孔的結晶材料，目前發現的已知結構的分子篩種類已達250多種。大部分分子篩具有大的內比表面積以及開放的內部空間，這些內部空間既可以作為反應的發生場所，也可以用來容納一些客體分子，如金屬、金屬氧化物，有機分子，水分子等等。由於分子篩具有均一規則的孔道，且孔道尺寸與分子屬於同一量級，因而可以對分子的進出進行“選擇”，從而獲得擇形效果。由於分子篩具有上述特徵，因而被廣泛用作催化劑、催化劑的載體、吸附劑和洗滌劑等，在石油化工，環保，以及吸附和分離領域獲得了廣泛應用。

【0003】 分子篩的骨架通常由配位四面體（ TO_4 ）通過共頂點（一般為氧原子）連接而成，對於磷酸鋁分子篩，該類分子篩的骨架通過 AlO_4 四面體和 PO_4 四面體連接而成，因而整個分子篩骨架呈現出電中性。當然，類似於沸石分子篩，磷酸鋁分子篩中的鋁或者磷也可以被其它的元素所取代，其中最為常見的是矽（所得分子篩稱為SAPO）和過渡金屬元素（所得分子篩稱為MAPO），由於這些元素的引入，賦予了磷酸鋁型分子篩新的特性，比如具有

固體酸性或者氧化還原性等。相比沸石分子篩，磷酸鋁分子篩的人工合成研究比較晚。

【0004】 1971年，Flanigen等人報導了磷酸鋁分子篩的合成 (Flanigen E. M. and Grose R. W., Phosphorus Substitution in Zeolite Frameworks. in *Molecular Sieve Zeolites-I*, 1970, P76-P98, ACS, Washington D.C)，其中在水熱合成條件下，混合鋁，矽和磷的氧化物得到了與analcime，chabazite，phillipsite-harmotome，L型分子篩，A型分子篩和B型分子篩等具有相同晶體結構的矽磷鋁分子篩，其中磷的含量為5-25%（以 P_2O_5 計），但沒有發現區別於沸石分子篩的結構。

【0005】 美國專利US4310440使用有機胺或者季銨類化合物作為模版劑，水熱合成出了一系列的磷酸鋁分子篩，它們包括： $AlPO_4-5$ ， $AlPO_4-8$ ， $AlPO_4-9$ ， $AlPO_4-11$ ， $AlPO_4-12$ ， $AlPO_4-14$ ， $AlPO_4-16$ ， $AlPO_4-17$ ， $AlPO_4-18$ ， $AlPO_4-20$ ， $AlPO_4-21$ ， $AlPO_4-22$ ， $AlPO_4-23$ ， $AlPO_4-25$ ， $AlPO_4-26$ ， $AlPO_4-28$ ， $AlPO_4-31$ 等，所使用的模版劑包括四甲基氫氧化銨，四乙基氫氧化銨，四丙基氫氧化銨，四丁基氫氧化銨，三丙基胺，三乙基胺，異丙胺，丁胺，乙二胺，呱啶及其衍生物，環己胺，DABCO，奎寧環等等。

【0006】 美國專利 US4440871給出了含矽的磷鋁分子篩的合成方法，這些矽磷鋁分子篩包括SAPO-5，SAPO-11，SAPO-16，SAPO-17，SAPO-20，SAPO-31，SAPO-34，SAPO-35，SAPO-37，SAPO-40，SAPO-41，SAPO-42和SAPO-44等等。

【0007】 美國專利US4752651給出了一系列含金屬的矽磷鋁分子篩的合成方法，其中包括含鈦的TiAPSO，含鎂的MgAPSO，含錳的MnAPSO，含鈷的CoAPSO，含鋅的ZnAPSO和含鐵的FeAPSO等等。

【0008】對於磷鋁分子篩的合成，有機模版劑的種類是決定其結構的最主要因素，新的模版劑往往更容易獲得新的分子篩，到目前為止，有機胺和季銨型有機化合物是磷鋁分子篩合成中應用最為廣泛的模版劑。

【發明內容】

【0009】本申請的目的之一提供一種新型的矽磷鋁分子篩、其製備方法以及應用，所述矽磷鋁分子篩具有獨特的X射線繞射圖譜，可以用作吸附劑、催化劑或者催化劑載體。

【0010】一方面，本申請提供了一種矽磷鋁分子篩，所述分子篩具有按摩爾計的示意性化學組成 $m\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{P}_2\text{O}_5$ ，其中m表示矽鋁比，並且在約0.005至約0.15的範圍內，n表示磷鋁比，並且在約0.7至約1.1的範圍內，其中所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M

。

【0011】 另一方面，本申請提供了一種矽磷鋁分子篩的製備方法，包括如下步驟：

【0012】 i) 提供矽磷鋁分子篩前驅物，所述前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.15-8.45	10.45-10.83	S-VS
13.36-13.67	6.47-6.62	M-S
15.77-16.07	5.51-5.61	VS
20.80-21.11	4.20 -4.26	VS
21.49-21.79	4.07-4.13	M
22.16-22.46	3.95-4.01	M-S
23.42-23.72	3.75-3.79	M

，以及

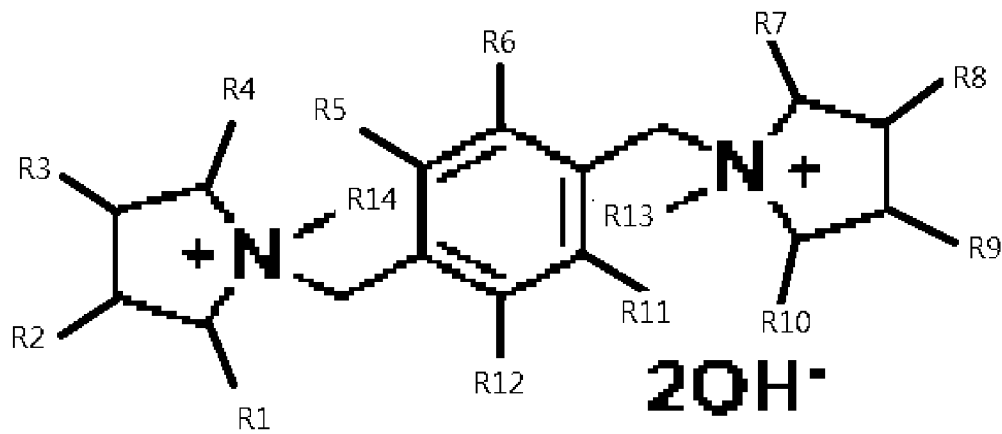
【0013】 ii) 對所述矽磷鋁分子篩前驅物進行焙燒，得到所述矽磷鋁分子篩。

【0014】 優選地，所述步驟i)進一步包括：

【0015】 ia) 將矽源、鋁源、磷源、有機物R和水按照矽源（以SiO₂計）：鋁源（以Al₂O₃計）：磷源（以P₂O₅計）：R：H₂O的摩爾比為大約(0.01-0.3)：1：(1.0-3.0)：(3.0-6.0)：(50-500)的比例混合，得到合成母液；以及

【0016】 ib) 對所述合成母液進行晶化，得到所述分子篩前驅物；

【0017】 其中所述有機物R為具有如下結構式的氫氧化銨：



【0018】 其中，基團R1-R12可以相同或不同，且相互獨立地選自H和C₁₋₆烷基，優選選自H和C₁₋₃烷基，更優選H；並且

【0019】 基團R13和R14可以相同或不同，且相互獨立地選自C₁₋₆烷基，優選C₁₋₃烷基，更優選甲基。

【0020】 再一方面，本申請提供了通過本文公開的方法製備得到的矽磷鋁分子篩。

【0021】 再一方面，本申請提供了一種分子篩組合物，其包含根據本申請的矽磷鋁分子篩或者按照本申請方法製備的矽磷鋁分子篩，以及黏合劑。

【0022】 又一方面，本申請提供了根據本申請的矽磷鋁分子篩、按照本申請方法製備的矽磷鋁分子篩、或者根據本申請的分子篩組合物作為吸附劑、催化劑或者催化劑載體的應用。

【0023】 本申請提供的矽磷鋁分子篩具有開放的孔道系統，使用本方法製得的矽磷鋁分子篩的孔體積可達約0.09-0.25毫升/克，比表面積可達約150-450平方米/克，因而它可以作為吸附劑使用，比如作為小的有機分子和水分子的吸附劑。在一些特定反應中，比如甲醇轉化制低碳烯烴的反應中，也可以直接作為催化劑的活性成分使用。

【圖式簡單說明】**【0024】**

圖1為實施例1所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜。

圖2為實施例1所得矽磷鋁分子篩的XRD圖譜。

下面通過實施例對本發明作進一步的闡述，但並不因此限制本發明的保護範圍。

【實施方式】

【0025】 下面對本發明的具體實施方式進行詳細說明，但是需要指出的是，本發明的保護範圍並不受這些具體實施方式的限制，而是由附錄的申請專利範圍來確定。

【0026】 本說明書提到的所有出版物、專利申請、專利和其它參考文獻的全部內容都通過引用方式併入本文。除非另有定義，本說明書所用的所有技術和科學術語都具有本領域技術人員傳統理解的含義。在有衝突的情況下，以本說明書的定義為準。

【0027】 當本說明書以詞開頭“本領域技術人員公知”、“現有技術”或其類似用語來匯出材料、物質、方法、步驟、裝置或部件等時，該詞開頭匯出的物件涵蓋本申請提出時本領域傳統使用的那些，但也包括目前還不常用，卻將變成本領域公認為適用於類似目的的那些。

【0028】 在本說明書的上下文中，所謂“矽鋁比”或“矽鋁摩爾比”是指以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁之間的摩爾比例。

【0029】 在本說明書的上下文中，所謂“磷鋁比”或“磷鋁摩爾比”是指以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁之間的摩爾比例。

【0030】 在本說明書的上下文中，所謂“比表面積”，是指單位品質樣品所具有的總面積，包括內表面積和外表面積。非孔性樣品只具有外表面積，如矽酸鹽水泥、一些粘土礦物粉粒等；有孔和多孔樣品具有外表面積和內表面積，如石棉纖維、矽藻土和分子篩等。有孔和多孔樣品中孔徑小於2 nm的孔的表面積是內表面積，扣除內表面積後的表面積稱為外表面積，單位品質樣品具有的外表面積即外比表面積。

【0031】 在本說明書的上下文中，所謂“孔體積”，是指單位品質分子篩所具有的孔的容積。所謂“總孔體積”，是指單位品質分子篩所具有的全部孔（一般僅計入孔道直徑小於50 nm的孔）的容積。所謂“微孔孔體積”，是指單位品質分子篩所具有的全部微孔（一般指的是孔道直徑小於2 nm的孔）的容積。

【0032】 在本說明書的上下文中，所述矽磷鋁分子篩和分子篩前驅物的示意性化學組成是指分子篩/分子篩前驅物的骨架的化學組成，並且該化學組成僅示意性地表示分子篩/分子篩前驅物的骨架中矽（以 SiO_2 計）、磷（以 P_2O_5 計）和鋁（以 Al_2O_3 計）等元素的摩爾比例，而並不嚴格限定各元素的具體存在形式，其通常可以採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）方法測得。

【0033】 在本說明書的上下文中，分子篩的結構是通過X-射線繞射譜圖（XRD）確定的，所述分子篩的X-射線繞射譜圖（XRD）採用X-射線粉末繞射儀測定，使用Cu-K α 射線源，K α 1波長 $\lambda=1.5405980$ 埃（Å）、採用單色器去除K α 2射線。

【0034】 在本說明書的上下文中，在分子篩的XRD數據中，W、M、S、VS、W-M、M-S和S-VS等代表基於繞射峰面積計算得到的相應繞射峰相對於最強繞射峰（即面積最大的繞射峰）的相對強度 I/I_0 ，其中I表示代表相應繞射峰的峰面積而 I_0 表示最強繞射峰的峰面積，W代表弱，M代表中等，S代表強，VS代表非常強，W-M代表弱到中等，M-S代表中等到強，且S-VS代表強到非常強，這種表示方式是本領域技術人員所熟知的。一般而言，W代表小於20；M代表20-40；S代表40-60；VS代表大於60，W-M代表小於40，M-S代表20-60，而S-VS代表大於40。

【0035】 在本說明書的上下文中，所謂“焙燒後”、“焙燒後形式”或者“焙燒後分子篩”，是指所述分子篩在焙燒之後的狀態。作為所述焙燒後狀態，具體舉例而言，可以是將合成態分子篩通過焙燒而進一步脫除其孔道中可能存在的有機物（特別是有機模版劑）和水等之後而呈現的狀態。

【0036】 需要特別說明的是，在本說明書的上下文中公開的兩個或多個方面（或實施方式）可以彼此任意組合，由此而形成的技術方案（比如方法或系統）屬於本說明書原始公開內容的一部分，同時也落入本發明的保護範圍之內。

【0037】 在沒有相反表示的情況下，本說明書中所提到的所有百分數、份數、比率等都是以摩爾數為基準的，除非以摩爾數為基準時不符合本領域技術人員的傳統認識。

【0038】 在第一方面，本申請提供了一種矽磷鋁分子篩，所述分子篩具有按摩爾計的示意性化學組成 $m\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{P}_2\text{O}_5$ ，其中m表示矽鋁比，並且在

約0.005至約0.15的範圍內，n表示磷鋁比，並且在約0.7至約1.1的範圍內，其中所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M

。

【0039】 在優選的實施方式中，所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M

24.35-24.66	3.60-3.65	W-M
25.61-25.97	3.43-3.48	W-M
27.71-28.13	3.17-3.22	W-M
29.35-29.67	3.01-3.04	W-M

。

【0040】 在進一步優選的實施方式中，所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
13.94-14.15	6.25-6.34	W-M
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
17.13-17.43	5.08-5.17	W
19.62-19.92	4.45-4.52	W
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
22.10-22.40	3.96-4.02	W
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M
24.35-24.66	3.60-3.65	W-M
25.61-25.97	3.43-3.48	W-M
27.71-28.13	3.17-3.22	W-M

28.14-28.44	3.13-3.17	W
29.35-29.67	3.01-3.04	W-M

。

【0041】 在某些優選的實施方式中，所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	66-86
13.67-14.00	6.32-6.44	100
16.15-16.39	5.40-5.48	10-28
16.41-16.61	5.33-5.40	13-36
21.26-21.59	4.11-4.18	16-34
21.62-21.90	4.05-4.10	17-40
23.94-24.33	3.65-3.71	15-33

。

【0042】 在進一步優選的實施方式中，所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	66-86
13.67-14.00	6.32-6.44	100
16.15-16.39	5.40-5.48	10-28
16.41-16.61	5.33-5.40	13-36

21.26-21.59	4.11-4.18	16-34
21.62-21.90	4.05-4.10	17-40
23.94-24.33	3.65-3.71	15-33
24.35-24.66	3.60-3.65	10-27
25.61-25.97	3.43-3.48	10-30
27.71-28.13	3.17-3.22	12-36
29.35-29.67	3.01-3.04	19-44

。

【0043】 在更進一步優選的實施方式中，所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	66-86
13.67-14.00	6.32-6.44	100
13.94-14.15	6.25-6.34	5-15
16.15-16.39	5.40-5.48	10-28
16.41-16.61	5.33-5.40	13-36
17.13-17.43	5.08-5.17	1.5-12
19.62-19.92	4.45-4.52	3-18
21.26-21.59	4.11-4.18	16-34
21.62-21.90	4.05-4.10	17-40
22.10-22.40	3.96-4.02	2-10
23.94-24.33	3.65-3.71	15-33

24.35-24.66	3.60-3.65	10-27
25.61-25.97	3.43-3.48	10-30
27.71-28.13	3.17-3.22	12-36
28.14-28.44	3.13-3.17	3-16
29.35-29.67	3.01-3.04	19-44

。

【0044】 在優選的實施方式中，所述矽磷鋁分子篩的矽鋁比 m 在約0.01至約0.10的範圍內，和/或，磷鋁比 n 在約0.8至約1.0的範圍內。

【0045】 在優選的實施方式中，所述矽磷鋁分子篩的孔體積為約0.09-0.25毫升/克，優選約0.15-0.25毫升/克，比表面積為約150-450平方米/克，優選約200-400平方米/克。

【0046】 在第二方面，本申請提供了一種矽磷鋁分子篩的製備方法，包括如下步驟：

【0047】 i) 提供矽磷鋁分子篩前驅物，所述前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

$2\theta(^{\circ})$	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.15-8.45	10.45-10.83	S-VS
13.36-13.67	6.47-6.62	M-S
15.77-16.07	5.51-5.61	VS
20.80-21.11	4.20 -4.26	VS
21.49-21.79	4.07-4.13	M
22.16-22.46	3.95-4.01	M-S

第13頁，共 73 頁(發明說明書)

23.42-23.72	3.75-3.79	M
-------------	-----------	---

，以及

【0048】 ii) 對所述矽磷鋁分子篩前驅物進行焙燒，得到所述矽磷鋁分子篩。

【0049】 在優選的實施方式中，所述矽磷鋁分子篩前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.15-8.45	10.45-10.83	S-VS
13.36-13.67	6.47-6.62	M-S
15.77-16.07	5.51-5.61	VS
16.66-16.96	5.22-5.31	W-M
19.51-19.81	4.48-4.54	W-M
20.80-21.11	4.20 -4.26	VS
21.49-21.79	4.07-4.13	M
22.16-22.46	3.95-4.01	M-S
23.42-23.72	3.75-3.79	M
25.49-25.79	3.45-3.49	W-M
27.14-27.44	3.25-3.28	W-M
29.47-29.77	3.00-3.03	W-M

。

【0050】 在進一步優選的實施方式中，所述矽磷鋁分子篩前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.15-8.45	10.45-10.83	S-VS
13.36-13.67	6.47-6.62	M-S
14.03-14.33	6.17-6.30	W
15.77-16.07	5.51-5.61	VS
16.66-16.96	5.22-5.31	W-M
17.11-17.41	5.09-5.18	W
19.51-19.81	4.48-4.54	W-M
20.80-21.11	4.20 -4.26	VS
21.49-21.79	4.07-4.13	M
22.16-22.46	3.95-4.01	M-S
23.42-23.72	3.75-3.79	M
23.82-24.12	3.68-3.73	W-M
25.06-25.36	3.51-3.55	W
25.49-25.79	3.45-3.49	W-M
27.14-27.44	3.25-3.28	W-M
29.47-29.77	3.00-3.03	W-M

。

【0051】 在某些優選的實施方式中，所述矽磷鋁分子篩前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
---------------------------	--------------------------	----------------------------------

8.15-8.45	10.45-10.83	42-65
13.36-13.67	6.47-6.62	27-45
15.77-16.07	5.51-5.61	65-89
20.80-21.11	4.20 -4.26	100
21.49-21.79	4.07-4.13	15-36
22.16-22.46	3.95-4.01	25-55
23.42-23.72	3.75-3.79	25-38

。

【0052】 在進一步優選的實施方式中，所述矽磷鋁分子篩前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.15-8.45	10.45-10.83	42-65
13.36-13.67	6.47-6.62	27-45
15.77-16.07	5.51-5.61	65-89
16.66-16.96	5.22-5.31	10-25
19.51-19.81	4.48-4.54	10-25
20.80-21.11	4.20 -4.26	100
21.49-21.79	4.07-4.13	15-36
22.16-22.46	3.95-4.01	25-55
23.42-23.72	3.75-3.79	25-38
25.49-25.79	3.45-3.49	12-32
27.14-27.44	3.25-3.28	10-30

29.47-29.77	3.00-3.03	22-36
-------------	-----------	-------

。

【0053】 在更進一步優選的實施方式中，所述矽磷鋁分子篩前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.15-8.45	10.45-10.83	42-65
13.36-13.67	6.47-6.62	27-45
14.03-14.33	6.17-6.30	5-16
15.77-16.07	5.51-5.61	65-89
16.66-16.96	5.22-5.31	10-25
17.11-17.41	5.09-5.18	4-16
19.51-19.81	4.48-4.54	10-25
20.80-21.11	4.20 -4.26	100
21.49-21.79	4.07-4.13	15-36
22.16-22.46	3.95-4.01	25-55
23.42-23.72	3.75-3.79	25-38
23.82-24.12	3.68-3.73	12-30
25.06-25.36	3.51-3.55	5-15
25.49-25.79	3.45-3.49	12-32
27.14-27.44	3.25-3.28	10-30
29.47-29.77	3.00-3.03	22-36

。

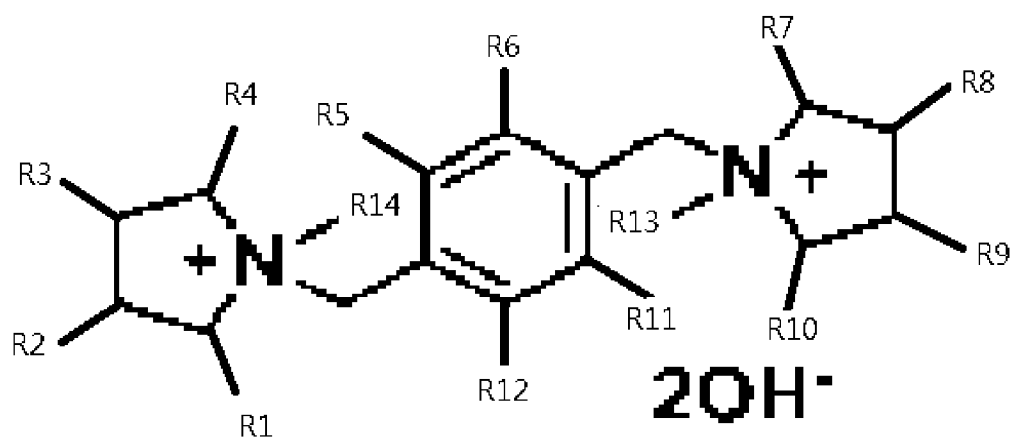
【0054】 在某些優選實施方式中，所述矽磷鋁分子篩前驅物的骨架具有按摩爾計的示意性化學組成 $m\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{P}_2\text{O}_5$ ，其中 m 表示矽鋁比，並且在約0.005至約0.15的範圍內， n 表示磷鋁比，並且在約0.7至約1.1的範圍內。

【0055】 在優選的實施方式中，所述步驟i)進一步包括：

【0056】 ia) 將矽源、鋁源、磷源、有機物R和水按照矽源（以 SiO_2 計）：鋁源（以 Al_2O_3 計）：磷源（以 P_2O_5 計）：R： H_2O 的摩爾比為大約(0.01-0.3)：1：(1.0-3.0)：(3.0-6.0)：(50-500)的比例均勻混合，得到合成母液；以及

【0057】 ib) 對所述合成母液進行晶化，得到分子篩前驅物；

【0058】 其中所述有機物R為具有如下結構式的氫氧化銨：



【0059】 其中，基團R1-R12可以相同或不同，且相互獨立地選自H和 C_{1-6} 烷基，優選選自H和 C_{1-3} 烷基，更優選H；並且

【0060】 基團R13和R14可以相同或不同，且相互獨立地選自 C_{1-6} 烷基，優選 C_{1-3} 烷基，更優選甲基。

【0061】 在本申請的製備方法中，對於所述鋁源並沒有特別的限制，例如可以是傳統用於製備含鋁分子篩的那些。在優選的實施方式中，所述鋁源為

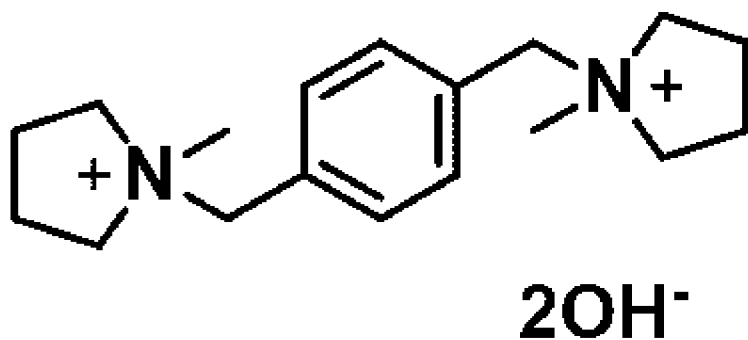
選自擬薄水鋁石，異丙醇鋁，鋁溶膠，氫氧化鋁，硫酸鋁，氯化鋁和氧化鋁中的一種或多種，優選選自擬薄水鋁石和異丙醇鋁。

【0062】 在本申請的製備方法中，對於所述磷源並沒有特別的限制，例如可以是傳統用於製備含磷分子篩的那些。在優選的實施方式中，所述磷源為選自磷酸、亞磷酸和五氧化二磷中的一種或多種，優選磷酸。

【0063】 在本申請的製備方法中，對於所述矽源並沒有特別的限制，例如可以是傳統用於製備含矽分子篩的那些。在優選的實施方式中，所述矽源為選自矽溶膠，白碳黑和正矽酸四乙酯中的一種或多種，優選正矽酸四乙酯。

【0064】 在優選的實施方式中，在步驟ia)中將矽源、鋁源、磷源、有機物R和水按照矽源（以SiO₂計）：鋁源（以Al₂O₃計）：磷源（以P₂O₅計）：R：H₂O的摩爾比為大約(0.01-0.2)：1：(1.0-2.0)：(3.6-4.8)：(100-300)的比例混合。

【0065】 在優選的實施方式中，所述有機物R為*N,N'*-(1,4-亞苯基雙(亞甲基))雙(*N*-甲基吡咯烷)氫氧化銨，其化學結構式可以表示為：



【0066】 在優選的實施方式中，步驟ib)在如下條件下進行：密閉反應容器、晶化溫度為約140-200°C，晶化時間為約48-160小時。更優選地，晶化溫度為約150-190°C，晶化時間為約60-120小時。

【0067】進一步優選地，所述步驟ib)還包括對所得分子篩前驅物進行洗滌和乾燥。本申請對於所述洗滌和乾燥步驟並沒有特別的限制，可以按照傳統方式進行。例如，所述洗滌可以用去離子水進行，採用例如抽濾或者離心分離的方法皆可，直至洗滌溶液接近中性時即可；而所述乾燥可以，例如，在烘箱中於約100-250°C下烘乾約1-48小時。

【0068】在某些優選實施方式中，步驟ib)所得的分子篩前驅物中以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例 (P_2O_5/Al_2O_3) 在約0.7至約1.1的範圍內，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例 (SiO_2/Al_2O_3) 在約0.005至約0.15的範圍內，並且以所述分子篩前驅物的重量計，有機物的重量含量在約10%至約40%的範圍內。

【0069】本申請步驟ib)製得的矽磷鋁分子篩前驅物具有穩定的晶體結構，可以按照傳統的焙燒方法進行焙燒處理，本申請對此並沒有特別的限制。例如，可以在約500-750°C，空氣氣氛下進行焙燒處理，焙燒時間可以為例如約1-10小時。特別地，所述焙燒可以為在約550°C、在空氣氣氛下焙燒約6小時。根據焙燒條件的不同，所得的矽磷鋁分子篩中可能會有一定量的含碳物質的殘留，但是這類殘留的含碳物質不計入所述分子篩的化學組成。

【0070】在優選的實施方式中，步驟ii)得到的矽磷鋁分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS

16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M

。

【0071】 在進一步優選的實施方式中，步驟ii) 得到的矽磷鋁分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M
24.35-24.66	3.60-3.65	W-M
25.61-25.97	3.43-3.48	W-M
27.71-28.13	3.17-3.22	W-M
29.35-29.67	3.01-3.04	W-M

。

【0072】 在更進一步優選的實施方式中，步驟ii) 得到的矽磷鋁分子篩的

X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
13.94-14.15	6.25-6.34	W-M
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
17.13-17.43	5.08-5.17	W
19.62-19.92	4.45-4.52	W
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
22.10-22.40	3.96-4.02	W
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M
24.35-24.66	3.60-3.65	W-M
25.61-25.97	3.43-3.48	W-M
27.71-28.13	3.17-3.22	W-M
28.14-28.44	3.13-3.17	W
29.35-29.67	3.01-3.04	W-M

。

【0073】 在某些優選實施方式中，步驟ii) 得到的矽磷鋁分子篩的X射線

繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.30-8.60	10.27-10.64	66-86
13.67-14.00	6.32-6.44	100
16.15-16.39	5.40-5.48	10-28
16.41-16.61	5.33-5.40	13-36
21.26-21.59	4.11-4.18	16-34
21.62-21.90	4.05-4.10	17-40
23.94-24.33	3.65-3.71	15-33

。

【0074】 在進一步優選的實施方式中，步驟ii) 得到的矽磷鋁分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.30-8.60	10.27-10.64	66-86
13.67-14.00	6.32-6.44	100
16.15-16.39	5.40-5.48	10-28
16.41-16.61	5.33-5.40	13-36
21.26-21.59	4.11-4.18	16-34
21.62-21.90	4.05-4.10	17-40
23.94-24.33	3.65-3.71	15-33
24.35-24.66	3.60-3.65	10-27
25.61-25.97	3.43-3.48	10-30

27.71-28.13	3.17-3.22	12-36
29.35-29.67	3.01-3.04	19-44

。

【0075】 在更進一步優選的實施方式中，步驟ii) 得到的矽磷鋁分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	66-86
13.67-14.00	6.32-6.44	100
13.94-14.15	6.25-6.34	5-15
16.15-16.39	5.40-5.48	10-28
16.41-16.61	5.33-5.40	13-36
17.13-17.43	5.08-5.17	1.5-12
19.62-19.92	4.45-4.52	3-18
21.26-21.59	4.11-4.18	16-34
21.62-21.90	4.05-4.10	17-40
22.10-22.40	3.96-4.02	2-10
23.94-24.33	3.65-3.71	15-33
24.35-24.66	3.60-3.65	10-27
25.61-25.97	3.43-3.48	10-30
27.71-28.13	3.17-3.22	12-36
28.14-28.44	3.13-3.17	3-16
29.35-29.67	3.01-3.04	19-44

。

【0076】 在本申請的製備方法中，在矽源、鋁源、磷源和有機物R的共同作用下，通過控制反應原料間的投料比，可以定向製備得到本申請的具有特定X射線繞射圖譜的矽磷鋁分子篩。

【0077】 在協力廠商面，本申請提供了通過本申請方法製備得到的矽磷鋁分子篩。

【0078】 在第四方面，本申請提供了一種分子篩組合物，其包含根據本申請的矽磷鋁分子篩或者按照本申請方法製備的矽磷鋁分子篩，以及黏合劑。

【0079】 所述分子篩組合物可以呈現為任何的物理形式，比如粉末狀、顆粒狀或者模製品狀（比如條狀、三葉草狀等）。可以按照本領域傳統已知的任何方式獲得這些物理形式，並沒有特別的限定。

【0080】 在本申請中，對於所述黏合劑並沒有特別的限定，例如可以採用傳統用於製備吸附劑或催化劑的那些，包括但不限於粘土，白土，氧化矽，矽膠，氧化鋁、氧化鋅或其混合物。

【0081】 在第五方面，本申請提供了根據本申請的矽磷鋁分子篩、按照本申請方法製備的矽磷鋁分子篩、或者根據本申請的分子篩組合物作為吸附劑、催化劑或者催化劑載體的應用。

【0082】 作為所述吸附劑的例子，可以提及例如用於異丙醇，異丁醇和異丁酮等有機溶劑中少量水分的去除，以及用於天然氣中少量水分的吸附和脫除。

【0083】 作為所述催化劑的例子，可以提及例如用作甲醇轉化製備低碳烯烴，如乙烯和丙烯的催化劑。

【0084】 在某些優選的實施方式中，本申請提供了如下的技術方案：

【0085】 項目1、一種矽磷鋁分子篩，所述分子篩在不計算水分的前提下具有如下摩爾比的化學組成： $(\text{Si}_x\text{Al}_y\text{P}_z)\text{O}_2$ ，其中 $0 < x \leq 0.2$ ， $y \geq 0.2$ ， $z \geq 0.2$ ，且 $x+y+z=1$ ，所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
d=10.46±0.17	56-88
d=6.40±0.12	100
d=6.34±0.11	20-45
d=5.46±0.09	10-32
d=5.39±0.09	10-38
d=5.14±0.09	2-10
d=4.50±0.06	2-15
d=4.15±0.05	15-40
d=4.09±0.05	20-50
d=4.00±0.05	3-12
d=3.69±0.05	18-35
d=3.64±0.05	10-30
d=3.46±0.05	18-35
d=3.19±0.05	10-30
d=3.16±0.05	3-20
d=3.03±0.05	16-38
d=2.83±0.05	5-20

$d=2.75\pm 0.05$	12-35
$d=2.60\pm 0.05$	2-15
$d=2.57\pm 0.05$	2-16

。

【0086】 專案2、根據專案1所述的矽磷鋁分子篩，其特徵在於在不計算水分的前提下它具有如下摩爾比的化學組成： $(\text{Si}_x\text{Al}_y\text{P}_z)\text{O}_2$ ，其中 $0 < x \leq 0.1$ ， $y \geq 0.3$ ， $z \geq 0.3$ ，且 $x+y+z=1$ 。

【0087】 專案3、根據專案1所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，包括如下幾個步驟：

【0088】 a) 將矽源，鋁源，磷源，有機物R和水按照 $(0.01-0.3)\text{SiO}_2$ ： Al_2O_3 ： $(1.0-3.0)\text{P}_2\text{O}_5$ ： $(3.0-6.0)\text{R}$ ： $(50-500)\text{H}_2\text{O}$ 的比例均勻混合，得到合成母液；

【0089】 b) 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化；

【0090】 c) 上述步驟ib)獲得的產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物；

【0091】 d) 將上述矽磷鋁分子篩的前驅物焙燒即可獲得矽磷鋁分子篩。

【0092】 專案4、根據專案3所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，其特徵在於將矽源，鋁源，磷源，有機物R和水按照 $(0.01-0.2)\text{SiO}_2$ ： Al_2O_3 ： $(1.0-2.0)\text{P}_2\text{O}_5$ ： $(3.6-4.8)\text{R}$ ： $(100-300)\text{H}_2\text{O}$ 的比例均勻混合，得到合成母液。

【0093】 專案5、根據專案3所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，其特徵在於有機物R為N,N'-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（N-甲基吡咯烷）氫氧化銨。

【0094】 專案6、根據專案3所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，其特徵在於晶化溫度為140°C-200°C，晶化時間為48-160小時。

【0095】 專案7、根據專案3所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，其特徵在於鋁源至少為擬薄水鋁石，異丙醇鋁，鋁溶膠，氫氧化鋁或氧化鋁中的一種。

【0096】 專案8、根據專案3所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，其特徵在於磷源選自磷酸,亞磷酸或五氧化二磷中的一種或多種。

【0097】 專案9、根據專案3所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，其特徵在於矽源為矽溶膠，白碳黑，或正矽酸四乙酯中的一種。

【0098】 專案10、根據專案3所述的矽磷鋁分子篩的製備方法，其特徵在於矽磷鋁分子篩的前驅物具有如下的X射線繞射圖譜：

晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I ₀)×100
d=10.56±0.16	45-70
d=9.88±0.13	2-10
d=6.54±0.11	30-50
d=6.21±0.10	5-15
d=5.56±0.09	65-86
d=5.46±0.06	4-15
d=5.26±0.06	13-33
d=4.95±0.05	2-12
d=4.50±0.05	6-18
	100

第28頁，共 73 頁(發明說明書)

d=4.23±0.05	8-20
d=4.10±0.05	55-75
d=3.97±0.05	25-40
d=3.77±0.05	10-25
d=3.71±0.05	16-32
d=3.52±0.05	16-32
d=3.47±0.05	5-15
d=3.39±0.05	15-35
d=3.27±0.05	15-35
d=3.01±0.05	

。

實施例

【0099】 下面通過實施例對本申請做進一步的說明，但並不因此而限制本發明的內容。

原料

【0100】 在下述的實施例中，所用的N,N'-(1,4-亞苯基雙(亞甲基))雙(N-甲基吡咯烷)氫氧化銨原料為三開化學公司生產，品質濃度為20.75% (水溶液) 化學純；擬薄水鋁石為山東英朗化學有限公司生產，以Al₂O₃計的重量含量為72%，化學純；磷酸採購自國藥集團化學試劑有限公司，品質濃度為85% (水溶液)，分析純；異丙醇鋁採購自國藥集團化學試劑有限公司，以Al₂O₃計的重量含量為24.7%，化學純。

【0101】 以下實施例中所用的化學試劑未特別注明的，均為市售產品，其規格為化學純。

分析儀器和方法

【0102】在各實施例中，分子篩的XRD圖譜採用PANalytical X'Pert PRO X-射線粉末繞射儀測得，使用Cu-K α 射線源，K α 1波長 $\lambda=1.5405980$ 埃（Å）、採用Ge(111)單色器去除K α 2射線，操作電流和電壓分別為40毫安培和40千伏，掃描步長為 $2\theta=0.02^\circ$ ，掃描速率為 $6^\circ/\text{min}$ 。

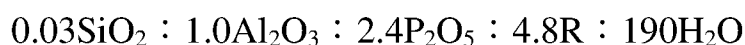
【0103】分子篩的化學組成採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）方法測定，所使用的儀器為Kontron的Model S-35型，測試前固體分子篩樣品利用HF溶解製成溶液。

【0104】分子篩的比表面積和孔體積採用N₂物理吸脫附方法測定，所使用的儀器為康塔公司的Quadrasorb evo型氣體吸附比表面積和孔體積測試儀，測定溫度77K，測試前，將樣品在573 K真空預處理 6 h。由BET方程計算比表面積，採用t-plot方法計算孔體積。

【0105】分子篩前驅物中有機物的含量通過熱重分析的方法測定，所使用的儀器為耐馳 STA449F3型熱重分析儀，空氣流量為30 ml/min, 升溫速率 $10^\circ\text{C}/\text{min}$, 取 250°C 至 550°C 之間的失重百分比作為有機物的重量百分比含量。

實施例1

【0106】稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液（其中SiO₂代表以SiO₂計的矽源，Al₂O₃代表以Al₂O₃計的鋁源，P₂O₅代表以P₂O₅計的磷源，下同）：



【0107】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ P_2O_5/Al_2O_3 ）為0.98，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ SiO_2/Al_2O_3 ）為0.026，有機物的重量含量為18.9%，它具有如圖1所示的XRD圖譜和表1A所示的XRD圖譜數據。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $SiO_2/Al_2O_3=0.026$ ，磷鋁比 $P_2O_5/Al_2O_3=0.98$ （即示意性化學組成為 $0.026 SiO_2 \cdot Al_2O_3 \cdot 0.98 P_2O_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為240平方米/克，微孔孔體積0.19毫升/克，其XRD圖譜如圖2所示，相應的XRD圖譜數據如表1B所示。

表1A 實施例1所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.24	10.71	51.8
13.44	6.58	28.8
14.14	6.26	5.9
15.84	5.59	71.0
16.74	5.29	15.8
17.26	5.13	3.4
19.62	4.52	14.2
20.90	4.25	100
21.59	4.11	20.2

22.29	3.98	46.8
23.50	3.78	37.0
23.91	3.72	16.7
25.16	3.54	14.2
25.57	3.48	20.5
27.23	3.27	21.0
29.57	3.02	20.1

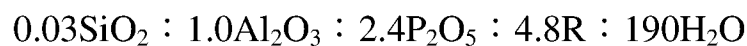
表1B 實施例1的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.56	10.32	87.9
13.97	6.33	100
14.12	6.26	27.5
16.39	5.40	19.5
16.60	5.33	30.8
17.40	5.09	5.9
19.89	4.46	9.4
21.57	4.12	28.2
21.90	4.05	56.2
22.37	3.97	6.1
24.28	3.66	23
24.66	3.60	33.1

25.92	3.44	23.7
28.10	3.17	18.6
28.42	3.14	10.2
29.65	3.01	30.8

實施例2

【0108】稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0109】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為170°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.97，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.028，有機物的重量含量為21.4%，其XRD圖譜數據如表2A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.028$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.97$ （即示意性化學組成為 $0.028 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.97 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為347平方米/克，微孔孔體積0.23毫升/克，相應的XRD圖譜數據如表2B所示。

表2A 實施例2所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.33	10.61	49.1
13.52	6.54	34.7
14.26	6.21	9.5
15.92	5.56	76.1
16.85	5.26	26.9
19.73	4.50	12.6
20.97	4.23	100
21.70	4.09	20.5
22.41	3.96	73.2
23.58	3.77	32.0
24.01	3.70	15.3
25.28	3.52	19.9
25.68	3.47	21.4
27.30	3.26	20.5
29.69	3.00	22.8

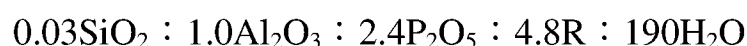
表2B 實施例2的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.47	10.43	94.1
13.86	6.38	100

14.00	6.32	21.4
16.30	5.43	21.4
16.47	5.38	18.9
17.28	5.13	4.1
19.77	4.49	5.4
21.47	4.13	30.3
21.75	4.08	30.3
22.24	3.99	5.1
24.18	3.68	27.8
24.52	3.63	16.5
25.82	3.45	19.5
27.99	3.18	17.5
28.29	3.15	6.7
29.52	3.02	23.3

實施例3

【0110】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0111】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為150°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的

前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例 (P_2O_5/Al_2O_3) 為0.98，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例 (SiO_2/Al_2O_3) 為0.029，有機物的重量含量為30.0%，其XRD圖譜數據如表3A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜 (ICP) 測得產品分子篩中矽鋁比 $SiO_2/Al_2O_3=0.029$ ，磷鋁比 $P_2O_5/Al_2O_3=0.98$ (即示意性化學組成為 $0.029 SiO_2 \cdot Al_2O_3 \cdot 0.98 P_2O_5$)，所得產品分子篩的比表面積為229平方米/克，微孔孔體積0.20毫升/克，其XRD圖譜數據如表3B所示。

表3A 實施例3所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.30	10.64	55.5
13.51	6.55	39.5
14.18	6.24	7.5
15.92	5.56	80.3
16.79	5.28	17.5
17.26	5.13	8.3
19.66	4.51	15.9
20.96	4.23	100
21.64	4.10	29.4
22.31	3.98	42.7
23.58	3.77	33.0
23.97	3.71	20.0
25.19	3.53	12.1

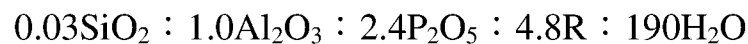
25.62	3.47	19.7
27.28	3.26	19.4
29.62	3.01	20.8

表3B 實施例3的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I ₀)×100
8.50	10.39	80.8
13.89	6.37	100
14.06	6.29	14.0
16.35	5.42	18.1
16.50	5.37	18.0
17.28	5.13	3.3
19.81	4.48	7.2
21.48	4.13	38.4
21.80	4.07	26.5
22.30	3.98	7.1
24.21	3.67	24.2
24.54	3.62	14.5
25.85	3.44	20.3
28.02	3.18	15.8
28.32	3.15	6.9
29.53	3.02	20.6

實施例4

【0112】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0113】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為200°C，晶化時間為48小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.97，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.031，有機物的重量含量為21.5%，其XRD圖譜數據如表4A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.031$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.97$ （即示意性化學組成為 $0.031 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.97 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為350平方米/克，微孔孔體積0.24毫升/克，其XRD圖譜數據如表4B所示。

表4A 實施例4所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I_0) \times 100
8.29	10.65	62.0
13.49	6.56	39.2
14.22	6.22	10.0

15.89	5.57	84.1
16.82	5.27	24.2
17.41	5.09	4.9
19.69	4.51	14.1
20.93	4.24	100
21.66	4.10	14.7
22.37	3.97	66.5
23.54	3.78	33.1
23.97	3.71	15.7
25.24	3.52	19.9
25.62	3.47	22.6
27.25	3.27	19.1
29.64	3.01	23.0

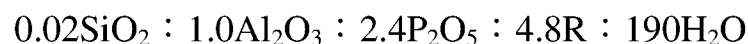
表4B 實施例4的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.43	10.48	72.8
13.81	6.40	100
13.94	6.34	33.1
16.23	5.46	19.1
16.42	5.39	24.8
17.19	5.15	2.5

19.71	4.50	8.8
21.41	4.15	28.8
21.70	4.09	36.7
24.11	3.69	30.8
24.42	3.64	16.2
25.82	3.45	23.7
27.87	3.20	16.7
28.17	3.16	9.0
29.45	3.03	25.3

實施例5

【0114】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.017克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0115】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.99，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.021，有機物的重量含量為18.7%，其XRD圖譜數據如表5A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.021$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.99$

第40頁，共 73 頁(發明說明書)

(即示意性化學組成為 $0.021 \text{ SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.99 \text{ P}_2\text{O}_5$)，所得產品分子篩的比表面積為290平方米/克，微孔孔體積0.18毫升/克，其XRD圖譜數據如表5B所示。

表5A 實施例5所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.22	10.74	58.0
13.42	6.59	31.1
14.13	6.26	6.6
15.82	5.60	68.5
16.72	5.30	20.9
17.26	5.13	7.5
19.60	4.53	15.0
20.87	4.25	100
21.57	4.12	20.2
22.26	3.99	55.9
23.48	3.79	36.5
23.90	3.72	20.3
25.14	3.54	19.8
25.56	3.48	22.4
27.21	3.28	26.7
29.55	3.02	23.8

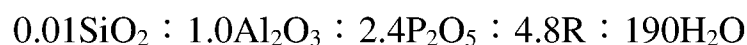
表5B 實施例5的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.45	10.45	100
13.77	6.43	80.3
14.00	6.32	21.6
16.17	5.48	16.7
16.47	5.38	24.8
17.31	5.11	5.9
19.68	4.51	5.3
21.29	4.17	25.2
21.75	4.08	39.6
22.17	4.01	3.9
23.96	3.71	13.4
24.50	3.63	21.9
25.64	3.47	10.7
27.72	3.22	9.0
28.21	3.16	5.8
29.38	3.04	14.7

實施例6

【0116】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加

入0.698克的擬薄水鋁石和0.009克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0117】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.98，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.012，有機物的重量含量為25.9%，其XRD圖譜數據如表6A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.012$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.98$ （即示意性化學組成為 $0.012 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.98 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為249平方米/克，微孔孔體積0.20毫升/克，其XRD圖譜數據如表6B所示。

表6A 實施例6所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.15	10.83	67.3
13.36	6.62	28.3
14.03	6.30	4.3
15.77	5.61	73.1
16.66	5.31	14.2
17.18	5.16	6.0
19.52	4.54	14.1

20.80	4.26	100
21.50	4.13	20.2
22.19	4.00	39.7
23.40	3.79	39.1
23.82	3.73	19.3
25.06	3.55	13.6
25.49	3.49	22.7
27.14	3.28	26.3
29.47	3.03	20.6

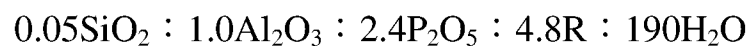
表6B 實施例6的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.50	10.40	100
13.81	6.41	99.1
14.04	6.30	26.1
16.21	5.46	22.9
16.52	5.36	25.6
17.35	5.11	6.4
19.73	4.50	6.5
21.33	4.16	32
21.80	4.07	38.6
22.21	4.00	4.1

24.00	3.70	18.5
24.54	3.62	21.5
25.68	3.47	11.6
27.75	3.21	12.4
28.25	3.16	6.9
29.42	3.03	16.9

實施例7

【0118】稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.043克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0119】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.97，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.047，有機物的重量含量為33.4%，其XRD圖譜數據如表7A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.047$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.97$ （即示意性化學組成為 $0.047 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.97 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為270平方米/克，微孔孔體積0.21毫升/克，其XRD圖譜數據如表7B所示。

表7A 實施例7所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.24	10.72	43.5
13.43	6.58	25.5
14.14	6.26	5.4
15.84	5.59	65.2
16.74	5.29	17.5
19.62	4.52	13.2
20.88	4.25	100
21.59	4.11	15.5
22.29	3.99	54.5
23.49	3.78	37.6
23.92	3.72	18.4
25.16	3.54	18.6
25.56	3.48	22.8
27.21	3.27	23.6
29.57	3.02	24.1

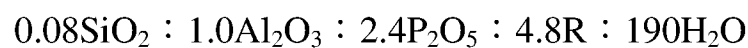
表7B 實施例7的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.45	10.45	100

13.77	6.43	90.0
14.00	6.32	23.2
16.17	5.48	19.7
16.46	5.38	23.2
17.30	5.12	5.3
19.66	4.51	5.9
21.27	4.17	29.2
21.74	4.08	35.5
22.19	4.00	3.9
23.94	3.71	16.1
24.50	3.63	21.3
25.64	3.47	10.2
27.71	3.22	11.5
28.21	3.16	6.0
29.36	3.04	14.5

實施例8

【0120】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.069克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0121】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ P_2O_5/Al_2O_3 ）為0.96，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ SiO_2/Al_2O_3 ）為0.078，有機物的重量含量為15.2%，其XRD圖譜數據如表8A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $SiO_2/Al_2O_3=0.078$ ，磷鋁比 $P_2O_5/Al_2O_3=0.96$ （即示意性化學組成為 $0.078 SiO_2 \cdot Al_2O_3 \cdot 0.96 P_2O_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為302平方米/克，微孔孔體積0.20毫升/克，其XRD圖譜數據如表8B所示。

表8A 實施例8所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.19	10.79	55.0
13.39	6.60	33.3
14.08	6.28	6.2
15.78	5.61	73.5
16.68	5.31	20.8
17.21	5.15	4.9
19.56	4.54	16.0
20.84	4.26	100
21.53	4.12	17.1
22.23	4.00	53.5

第48頁，共 73 頁(發明說明書)

23.44	3.79	35.1
23.86	3.73	19.9
25.10	3.54	19.0
25.51	3.49	23.7
27.17	3.28	23.1
29.51	3.02	22.1

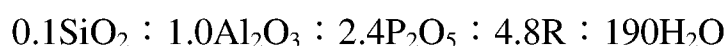
表8B 實施例8的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.45	10.46	100
13.77	6.43	91.2
13.99	6.32	26.1
16.15	5.48	19.9
16.45	5.38	30.7
17.30	5.12	6.7
19.66	4.51	6.6
21.28	4.17	28
21.73	4.08	45.9
22.17	4.01	4.7
23.94	3.71	15.5
24.49	3.63	25.6
25.63	3.47	12.2

27.71	3.22	10.3
28.21	3.16	6.8
29.36	3.04	16.2

實施例9

【0122】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.087克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0123】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.96，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.089，有機物的重量含量為29.4%，其XRD圖譜數據如表9A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.089$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.96$ （即示意性化學組成為 $0.089 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.96 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為310平方米/克，微孔孔體積0.21毫升/克，其XRD圖譜數據如表9B所示。

表9A 實施例9所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I_0)×100
----------------	-------------	-------------------------

8.21	10.77	40.4
13.40	6.60	28.2
14.12	6.27	4.3
15.80	5.60	67.4
16.71	5.30	13.9
19.58	4.53	11.8
20.85	4.26	100
21.56	4.12	12.7
22.25	3.99	34.9
23.46	3.79	35.3
23.88	3.72	15.2
25.13	3.54	12.3
25.53	3.49	20.4
27.18	3.28	22.3
29.54	3.02	19.3

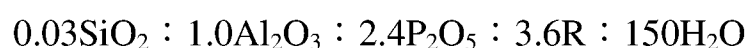
表9B 實施例9的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) \times 100
8.52	10.37	100
13.82	6.40	91.5
14.06	6.29	19.2
16.22	5.46	21.3

16.52	5.36	20.8
17.37	5.10	4.6
19.73	4.50	5.7
21.33	4.16	31.6
21.80	4.07	31.1
22.24	3.99	3.6
24.00	3.70	17.1
24.56	3.62	17.9
25.68	3.47	11.8
27.76	3.21	12.3
28.26	3.15	5.0
29.42	3.03	15.1

實施例10

【0124】稱取20.7克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0125】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為48小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以P₂O₅計的磷和以Al₂O₃計的鋁的摩爾比例（P₂O₅/Al₂O₃）為0.99，以SiO₂計的矽和以Al₂O₃計的鋁的摩爾比例（SiO₂/Al₂O₃）為0.028，有機物的重

量含量為20.5%，其XRD圖譜數據如表10A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.028$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.99$ （即示意性化學組成為 $0.028 \text{ SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.99 \text{ P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為280平方米/克，微孔孔體積0.19毫升/克，XRD圖譜數據如表10B所示。

表10A 實施例10所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜數據

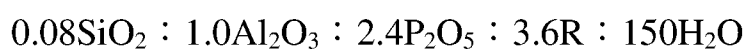
2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.29	10.66	79.1
13.48	6.56	30.5
14.21	6.23	4.9
15.89	5.57	73.6
16.79	5.28	13.4
19.69	4.51	11.9
20.94	4.24	100
21.62	4.11	21.8
22.37	3.97	31.3
23.57	3.77	38.0
23.99	3.71	15.0
25.22	3.53	9.2
25.65	3.47	16.4
27.29	3.26	21.9
29.66	3.01	15.8

表10B 實施例10的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.48	10.41	98.9
13.80	6.41	100
14.03	6.31	23.5
16.19	5.47	22.6
16.49	5.37	23.5
17.34	5.11	5.1
19.70	4.50	6.5
21.30	4.17	35.0
21.77	4.08	36.3
22.20	4.00	3.9
23.97	3.71	18.7
24.53	3.63	20.8
25.65	3.47	12.2
27.74	3.21	13.9
28.24	3.16	5.6
29.39	3.04	16.0

實施例11

【0126】 稱取20.7克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.069克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0127】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.97，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.079，有機物的重量含量為24.2%，其XRD圖譜數據如表11A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.079$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.97$ （即示意性化學組成為 $0.079 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.97 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為380平方米/克，微孔孔體積0.17毫升/克，XRD圖譜數據如表11B所示。

表11A 實施例11所得矽磷鋁分子篩的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I_0) \times 100
8.22	10.75	51.3
13.42	6.59	28.8
14.13	6.26	6.4
15.81	5.60	67.8
16.73	5.29	16.8

19.59	4.53	13.3
20.86	4.26	100
21.56	4.12	20.5
22.26	3.99	46.4
23.47	3.79	38.1
23.89	3.72	19.9
25.13	3.54	15.8
25.53	3.48	20.3
27.20	3.28	23.8
29.55	3.02	23.6

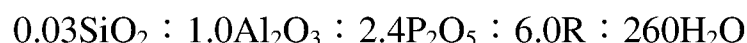
表11B 實施例11的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.43	10.48	100
13.74	6.44	89.9
13.96	6.34	22.5
16.15	5.48	19.1
16.44	5.39	22.8
17.28	5.13	4.5
19.66	4.51	5.9
21.26	4.18	27.5
21.72	4.09	30.7

22.16	4.01	3.7
23.94	3.71	14.8
24.47	3.63	16.4
25.61	3.48	9.9
27.71	3.22	10.1
28.20	3.16	5.1
29.35	3.04	13.2

實施例12

【0128】 稱取34.5克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.698克的擬薄水鋁石和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0129】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為48小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.99，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.026，有機物的重量含量為27.2%，其XRD圖譜數據如表12A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.026$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.99$

(即示意性化學組成為 $0.026 \text{ SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.99 \text{ P}_2\text{O}_5$)，所得產品分子篩的比表面積為315平方米/克，微孔孔體積0.18毫升/克，XRD圖譜數據如表12B所示。

表12A 實施例12所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.28	10.66	43.3
13.49	6.56	24.9
14.20	6.23	4.8
15.87	5.58	62.3
16.78	5.28	15.1
17.30	5.12	2.5
19.66	4.51	11.6
20.92	4.24	100
21.63	4.10	14.2
22.33	3.98	40.3
23.53	3.78	39.5
23.96	3.71	18.4
25.20	3.53	13.7
25.61	3.48	21.4
27.26	3.27	23.7
29.61	3.01	19.5

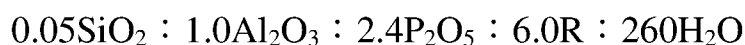
表12B 實施例12的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.48	10.42	66.3
13.88	6.37	100
14.08	6.28	14.7
16.30	5.43	19.7
16.50	5.37	19.4
17.29	5.12	5.7
19.78	4.48	8.9
21.50	4.13	27.6
21.80	4.07	35.4
22.26	3.99	4.4
24.18	3.68	30.0
24.57	3.62	19.2
25.82	3.45	25.2
27.94	3.19	21.0
28.34	3.15	10.1
29.53	3.02	28.5

實施例13

【0130】 稱取34.5克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加

入0.698克的擬薄水鋁石和0.043克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0131】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為48小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.98，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.045，有機物的重量含量為21.3%，其XRD圖譜數據如表13A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.045$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.98$ （即示意性化學組成為 $0.045 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.98 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為268平方米/克，微孔孔體積0.20毫升/克，XRD圖譜數據如表13B所示。

表13A 實施例13所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.35	10.58	65.6
13.56	6.52	28.9
14.03	6.30	4.9
15.96	5.55	67.7
16.86	5.25	13.3
19.76	4.49	12.1
21.02	4.22	100

21.73	4.09	14.8
22.41	3.96	38.8
23.64	3.76	34.8
24.06	3.70	16.9
25.30	3.52	11.9
25.71	3.46	19.7
27.37	3.26	19.6
29.72	3.00	16.6

表13B實施例13的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.52	10.37	83.2
13.89	6.37	100
14.04	6.30	17.8
16.30	5.43	14.9
16.54	5.35	17.3
17.38	5.10	3.0
19.81	4.48	6.0
21.51	4.13	21.0
21.83	4.07	24.3
22.31	3.98	4.0
24.21	3.67	22.3

24.61	3.61	13.0
25.86	3.44	17.0
28.00	3.18	16.7
28.35	3.14	6.5
29.59	3.02	17.5

實施例14

【0132】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.86克的異丙醇鋁和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0133】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.99，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.030，有機物的重量含量為34.1%，其XRD圖譜數據如表14A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.03$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.99$ （即示意性化學組成為 $0.03 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.99 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為310平方米/克，微孔孔體積0.17毫升/克，XRD圖譜數據如表14B所示。

表14A 實施例14所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.24	10.72	40.0
13.45	6.58	28.6
14.15	6.25	6.0
15.85	5.58	69.4
16.76	5.29	22.0
19.65	4.51	14.1
20.91	4.24	100
21.61	4.11	20.5
22.31	3.98	56.1
23.53	3.78	34.7
23.94	3.71	18.3
25.20	3.53	19.5
25.61	3.48	20.8
27.25	3.27	21.1
29.62	3.01	22.0

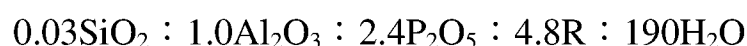
表14B 實施例14的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.49	10.41	63.5

13.90	6.37	100
14.05	6.30	16.5
16.31	5.43	20.1
16.51	5.36	16.9
17.38	5.10	2.3
19.82	4.48	6.6
21.49	4.13	23.4
21.80	4.07	23.1
24.17	3.68	22.3
24.59	3.62	11.7
25.87	3.44	19.6
27.98	3.18	16.2
28.37	3.14	8.2
29.58	3.02	21.1

實施例15

【0134】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.86克的異丙醇鋁和0.026克的正矽酸四乙酯，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0135】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為150°C，晶化時間為84小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的

前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例 (P_2O_5/Al_2O_3) 為0.98，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例 (SiO_2/Al_2O_3) 為0.032，有機物的重量含量為28.8%，其XRD圖譜數據如表15A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜 (ICP) 測得產品分子篩中矽鋁比 $SiO_2/Al_2O_3=0.032$ ，磷鋁比 $P_2O_5/Al_2O_3=0.98$ (即示意性化學組成為 $0.032 SiO_2 \cdot Al_2O_3 \cdot 0.98 P_2O_5$)，所得產品分子篩的比表面積為212平方米/克，微孔孔體積0.15毫升/克，其XRD圖譜數據如表15B所示。

表15A 實施例15所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.26	10.69	44.2
13.47	6.56	28.8
14.18	6.23	2.4
15.88	5.58	69.2
16.76	5.28	9.5
19.67	4.51	10.5
20.93	4.24	100
21.61	4.11	20.3
22.30	3.98	23.4
23.54	3.78	39.3
23.97	3.71	14.6
25.16	3.54	7.7
25.62	3.47	17.1

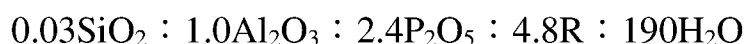
27.28	3.27	21.7
29.60	3.01	13.8

表15B實施例15的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.49	10.40	64.1
13.87	6.38	100
14.04	6.30	14.8
16.29	5.44	15.5
16.52	5.36	14.7
17.33	5.11	2.0
19.81	4.48	4.8
21.47	4.14	21.9
21.81	4.07	20.4
22.29	3.98	2.9
24.17	3.68	21.8
24.57	3.62	10.8
25.82	3.45	12.6
27.98	3.19	17.7
28.32	3.15	5.5
29.55	3.02	18.6

實施例16

【0136】稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.86克的異丙醇鋁和0.021毫升30%的Ludox LS-30溶液，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0137】將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為190°C，晶化時間為60小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為1.0，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.030，有機物的重量含量為25.2%，其XRD圖譜數據如表16A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜（ICP）測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.030$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=1.00$ （即示意性化學組成為 $0.030 \text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 1.00 \text{P}_2\text{O}_5$ ），所得產品分子篩的比表面積為336平方米/克，微孔孔體積0.20毫升/克，其XRD圖譜數據如表16B所示。

表16A 實施例16所得矽磷鋁分子篩前驅物的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I_0) \times 100
8.31	10.63	45.1
13.52	6.54	29.3
14.23	6.22	3.2
15.92	5.56	71.4

16.82	5.26	9.0
19.70	4.50	10.6
20.97	4.23	100
21.69	4.09	20.3
22.40	3.96	28.4
23.60	3.77	40.1
24.01	3.70	14.5
25.26	3.52	8.9
25.68	3.47	19.7
27.33	3.26	22.6
29.69	3.01	17.4

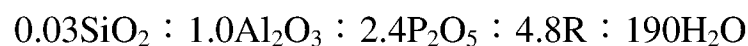
表16B實施例16的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.52	10.37	73.2
13.92	6.35	100
14.09	6.28	21.0
16.36	5.41	15.2
16.59	5.34	22.8
17.42	5.08	3.8
19.87	4.46	6.1
21.53	4.12	21.5

21.89	4.06	33.9
22.35	3.97	5.4
24.23	3.67	22.2
24.66	3.61	18.5
25.87	3.44	14.6
28.03	3.18	15.0
28.43	3.14	8.8
29.62	3.01	23.1

實施例17

【0138】 稱取27.6克濃度為20.75%的*N,N'*-（1,4-亞苯基雙（亞甲基））雙（*N*-甲基吡咯烷）氫氧化銨（以下簡寫為R）溶液，然後一邊攪拌一邊往其中加入0.86克的異丙醇鋁和0.021毫升30%的Ludox LS-30溶液，隨後再緩慢滴加2.30克濃度為85%的磷酸溶液，攪拌均勻後即可得到具有下述摩爾比例組成的合成母液：



【0139】 將上述合成母液置於密閉反應容器中進行晶化，晶化溫度為150°C，晶化時間為120小時，晶化產物經洗滌和乾燥後，得到矽磷鋁分子篩的前驅物，其以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.99，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ）為0.029，有機物的重量含量為20.6%，其XRD圖譜數據如表17A所示。將上述矽磷鋁分子篩的前驅物在550°C下焙燒5小時即可獲得矽磷鋁分子篩，採用電感耦合電漿原子發射光譜

(ICP) 測得產品分子篩中矽鋁比 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=0.029$ ，磷鋁比 $\text{P}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3=0.99$
 (即示意性化學組成為 $0.029 \text{ SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.99 \text{ P}_2\text{O}_5$)，所得產品分子篩的比表面積為290平方米/克，微孔孔體積0.17毫升/克，其XRD圖譜數據如表17 B所示。

表17A 實施例17所得矽磷鋁分子篩的XRD圖譜資料

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/ I ₀)×100
8.20	10.77	47.8
13.42	6.59	27.3
14.13	6.26	5.0
15.82	5.60	66.7
16.72	5.30	16.9
19.60	4.53	15.4
20.87	4.25	100
21.55	4.12	24.2
22.24	3.99	48.5
23.50	3.78	42.4
23.91	3.72	17.5
25.14	3.54	15.1
25.55	3.48	23.8
27.24	3.27	21.0
29.53	3.02	21.5

表17 B 實施例17的矽磷鋁分子篩的XRD圖譜數據

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.57	10.31	70.2
13.97	6.33	100
14.10	6.28	16.1
16.39	5.40	15.2
16.61	5.33	16.5
17.42	5.09	2.2
19.90	4.46	5.4
21.59	4.11	21.0
21.90	4.05	23.3
22.40	3.97	3.6
24.27	3.66	21.8
24.66	3.60	12.2
25.94	3.43	13.7
28.08	3.17	15.9
28.44	3.13	5.0
29.65	3.01	19.3

實施例18

【0140】 取2克實施例2合成的粉末樣品，與3克氧化鋁、0.2克田菁粉充分混合，加入5毫升5重量%硝酸捏合、擠條成型為 $\phi 1.6 \times 2$ 毫米的條狀物，然後在

110°C烘乾，550°C空氣氛圍焙燒8小時，製備成需要的分子篩組合物。該分子篩組合物可作為吸附劑或催化劑使用。

實施例19

【0141】 將實施例18製備的分子篩組合物破碎、過篩，取1克粒徑20-40目之間的顆粒，裝填在固定床反應器中，在500°C氮氣氛圍活化1h後降溫至反應溫度460°C。採用連續進樣方式，甲醇流量為0.125毫升/分鐘，氮氣流量為10毫升/分鐘，甲醇經過分子篩組合物床層發生轉化反應，反應後的混合物直接進入氣相色譜分析，反應進行到60分鐘時，得乙烯收率為51.44%，丙烯收率為22.59%，碳四和碳五總計收率為11.4%，甲醇轉化率為100%。

對照例1

【0142】 取2克SAPO-34分子篩，與3克氧化鋁、0.2克田菁粉充分混合，加入5毫升5重量%硝酸捏合、擠條成型為 $\phi 1.6 \times 2$ 毫米的條狀物，然後在110°C烘乾，550°C空氣氛圍焙燒8小時，製備成需要的分子篩組合物。

【0143】 將分子篩組合物破碎、過篩，取1克粒徑20-40目之間的顆粒，裝填在固定床反應器中，在500°C氮氣氛圍活化1h後降溫至反應溫度460°C。採用連續進樣方式，甲醇流量為0.125毫升/分鐘，氮氣流量為10毫升/分鐘，甲醇經過分子篩組合物床層發生轉化反應，反應後的混合物直接進入氣相色譜分析，反應進行到60分鐘時，得乙烯收率為48.83%，丙烯收率為31.56%，碳四和碳五總計收率為9.9%，甲醇轉化率為100%。

【0144】 通過實施例19與對照例1的比較可以看出，本申請的分子篩/分子篩組合物用於催化甲醇到乙烯的轉化反應時，可以顯著提高乙烯的收率。

【0145】 上文詳細描述了本發明的優選實施方式，但是，本發明並不限於上述實施方式中的具體細節，在本發明的技術構思範圍內，可以對本發明的技術方案進行多種簡單變型，這些簡單變型均屬於本發明的保護範圍。

【0146】 另外需要說明的是，在上述具體實施方式中所描述各個具體技術特徵，在不矛盾的情況下，可以通過任何合適的方式進行組合，為了避免不必要的重複，本申請對各種可能的組合方式不再另行說明，但這種組合同樣落入本發明的範圍內。

【0147】 此外，本發明的各種不同的實施方式之間也可以進行任意組合，只要其不違背本發明的思想，其同樣應當視為本申請所公開的內容。

【符號說明】

【0148】 無

【發明申請專利範圍】

【請求項1】 一種矽磷鋁分子篩，所述分子篩具有按摩爾計的示意性化學組成 $m\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{P}_2\text{O}_5$ ，其中 m 表示矽鋁比，並且在約0.005至約0.15的範圍內， n 表示磷鋁比，並且在約0.7至約1.1的範圍內，其中所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^\circ$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M

。

【請求項2】 如請求項1所述的矽磷鋁分子篩，其中所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^\circ$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M

(2023年01月修正)

21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M
24.35-24.66	3.60-3.65	W-M
25.61-25.97	3.43-3.48	W-M
27.71-28.13	3.17-3.22	W-M
29.35-29.67	3.01-3.04	W-M

。

【請求項3】 如請求項2所述的矽磷鋁分子篩，其中所述分子篩的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I ₀)×100
8.30-8.60	10.27-10.64	VS
13.67-14.00	6.32-6.44	VS
13.94-14.15	6.25-6.34	W-M
16.15-16.39	5.40-5.48	W-M
16.41-16.61	5.33-5.40	W-M
17.13-17.43	5.08-5.17	W
19.62-19.92	4.45-4.52	W
21.26-21.59	4.11-4.18	M
21.62-21.90	4.05-4.10	M-S
22.10-22.40	3.96-4.02	W
23.94-24.33	3.65-3.71	W-M

(2023年01月修正)

24.35-24.66	3.60-3.65	W-M
25.61-25.97	3.43-3.48	W-M
27.71-28.13	3.17-3.22	W-M
28.14-28.44	3.13-3.17	W
29.35-29.67	3.01-3.04	W-M

。

【請求項4】 如請求項1-3中任一項所述的矽磷鋁分子篩，其中：

所述分子篩的矽鋁比 m 在約0.01至約0.10的範圍內；和/或

所述分子篩的磷鋁比 n 在約0.8至約1.0的範圍內。

【請求項5】 一種矽磷鋁分子篩的製備方法，包括如下步驟：

i) 提供矽磷鋁分子篩前驅物，所述前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所

示的相對強度特性：

2 θ (°)	晶面間距 (Å)	相對強度 (I/I_0) \times 100
8.15-8.45	10.45-10.83	S-VS
13.36-13.67	6.47-6.62	M-S
15.77-16.07	5.51-5.61	VS
20.80-21.11	4.20 -4.26	VS
21.49-21.79	4.07-4.13	M
22.16-22.46	3.95-4.01	M-S
23.42-23.72	3.75-3.79	M

，以及

ii) 對所述矽磷鋁分子篩前驅物進行焙燒，得到所述矽磷鋁分子篩。

(2023年01月修正)

【請求項6】 如請求項5所述的製備方法，其中所述矽磷鋁分子篩前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.15-8.45	10.45-10.83	S-VS
13.36-13.67	6.47-6.62	M-S
15.77-16.07	5.51-5.61	VS
16.66-16.96	5.22-5.31	W-M
19.51-19.81	4.48-4.54	W-M
20.80-21.11	4.20 -4.26	VS
21.49-21.79	4.07-4.13	M
22.16-22.46	3.95-4.01	M-S
23.42-23.72	3.75-3.79	M
25.49-25.79	3.45-3.49	W-M
27.14-27.44	3.25-3.28	W-M
29.47-29.77	3.00-3.03	W-M

。

【請求項7】 如請求項6所述的製備方法，其中所述矽磷鋁分子篩前驅物的X射線繞射圖譜顯示出如下表所示的相對強度特性：

2 θ ($^{\circ}$)	晶面間距 (\AA)	相對強度 (I/I_0) $\times 100$
8.15-8.45	10.45-10.83	S-VS
13.36-13.67	6.47-6.62	M-S

(2023年01月修正)

14.03-14.33	6.17-6.30	W
15.77-16.07	5.51-5.61	VS
16.66-16.96	5.22-5.31	W-M
17.11-17.41	5.09-5.18	W
19.51-19.81	4.48-4.54	W-M
20.80-21.11	4.20 -4.26	VS
21.49-21.79	4.07-4.13	M
22.16-22.46	3.95-4.01	M-S
23.42-23.72	3.75-3.79	M
23.82-24.12	3.68-3.73	W-M
25.06-25.36	3.51-3.55	W
25.49-25.79	3.45-3.49	W-M
27.14-27.44	3.25-3.28	W-M
29.47-29.77	3.00-3.03	W-M

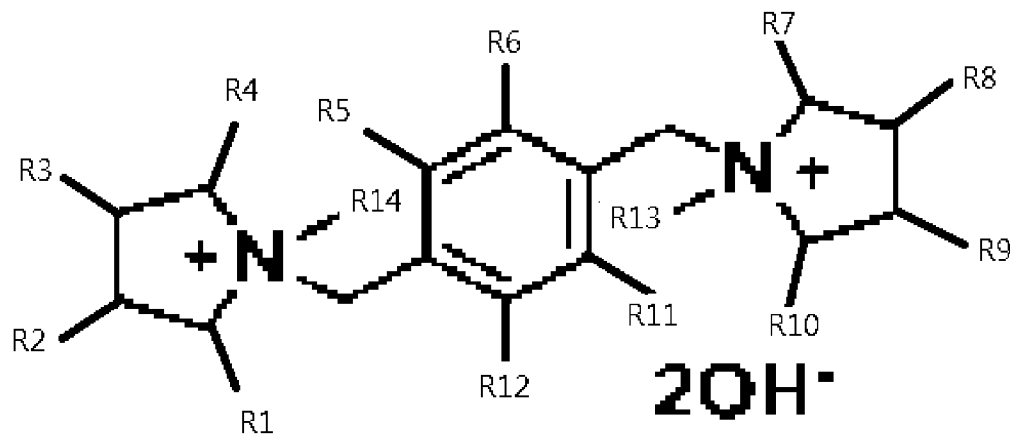
。

【請求項8】 如請求項5所述的製備方法，其中所述步驟i)進一步包括：

ia) 將矽源、鋁源、磷源、有機物R和水按照矽源（以 SiO_2 計）：鋁源（以 Al_2O_3 計）：磷源（以 P_2O_5 計）：R： H_2O 的摩爾比為大約(0.01-0.3)：1：(1.0-3.0)：(3.0-6.0)：(50-500)的比例混合，得到合成母液；以及

ib) 對所述合成母液進行晶化，得到所述矽磷鋁分子篩前驅物；

其中所述有機物R為具有如下結構式的氫氧化銨：



其中，基團R1-R12可以相同或不同，且相互獨立地選自H和C₁₋₆烷基；並且基團R13和R14可以相同或不同，且相互獨立地選自C₁₋₆烷基。

【請求項9】如請求項8所述的製備方法，其中所述有機物R中，基團R1-R12可以相同或不同，且相互獨立地選自H和C₁₋₃烷基；並且基團R13和R14可以相同或不同，且相互獨立地選自C₁₋₃烷基。

【請求項10】如請求項8所述的製備方法，其中在步驟ia)中將矽源、鋁源、磷源、有機物R和水按照矽源（以SiO₂計）：鋁源（以Al₂O₃計）：磷源（以P₂O₅計）：R：H₂O的摩爾比為大約(0.01-0.2)：1：(1.0-2.0)：(3.6-4.8)：(100-300)的比例混合。

【請求項11】如請求項8所述的製備方法，其中所述有機物R為*N,N'*-(1,4-亞苯基雙(亞甲基))雙(*N*-甲基吡咯烷)氫氧化銨。

【請求項12】如請求項8-11中任一項所述的製備方法，其中步驟ib)在如下條件下進行：

密閉反應容器，晶化溫度為約140-200°C，晶化時間為約48-160小時。

(2023年01月修正)

【請求項13】 如請求項8-11中任一項所述的製備方法，其中所述鋁源為選自擬薄水鋁石，異丙醇鋁，鋁溶膠，氫氧化鋁，硫酸鋁，氯化鋁和氧化鋁中的一種或多種；

所述磷源為選自磷酸,亞磷酸和五氧化二磷中的一種或多種；和/或

所述矽源為選自矽溶膠，白碳黑和正矽酸四乙酯中的一種或多種。

【請求項14】 如請求項8-11中任一項所述的製備方法，其中，所述矽磷鋁分子篩前驅物中以 P_2O_5 計的磷和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例(P_2O_5/Al_2O_3)在約0.7至約1.1的範圍內，以 SiO_2 計的矽和以 Al_2O_3 計的鋁的摩爾比例(SiO_2/Al_2O_3)在約0.005至約0.15的範圍內。

【請求項15】 一種分子篩組合物，包含如請求項1-4中任一項所述的矽磷鋁分子篩，以及黏合劑。

【請求項16】 一種如請求項1-4中任一項所述的矽磷鋁分子篩、或如請求項15所述的分子篩組合物作為吸附劑、催化劑或者催化劑載體的用途。

【發明圖式】

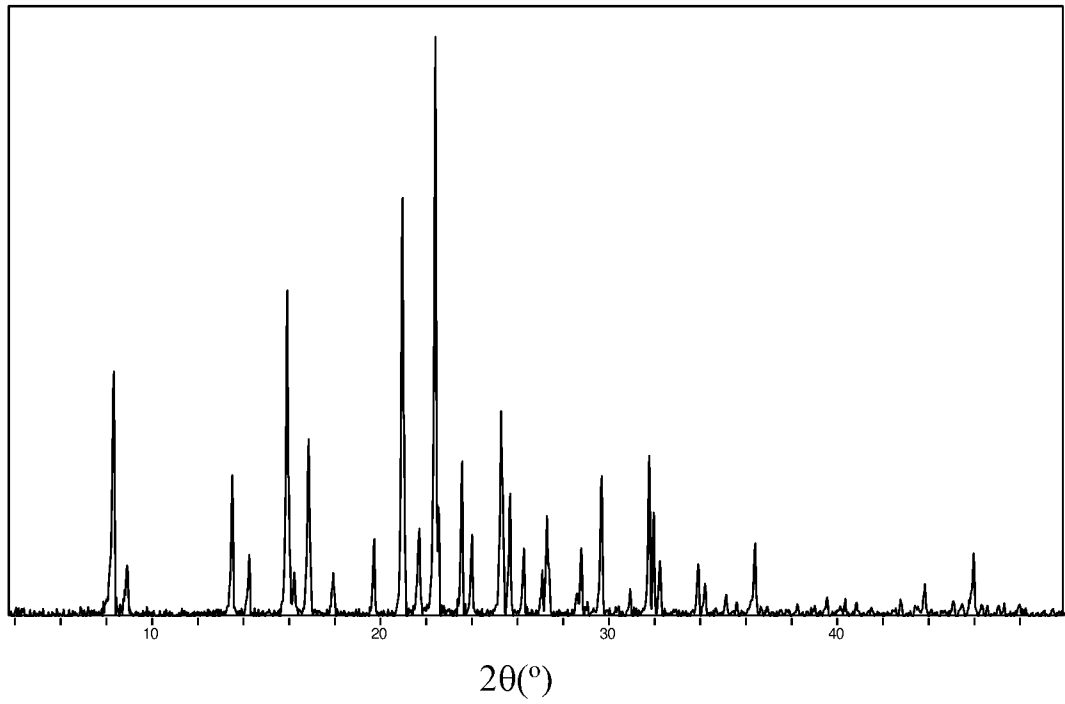


圖1

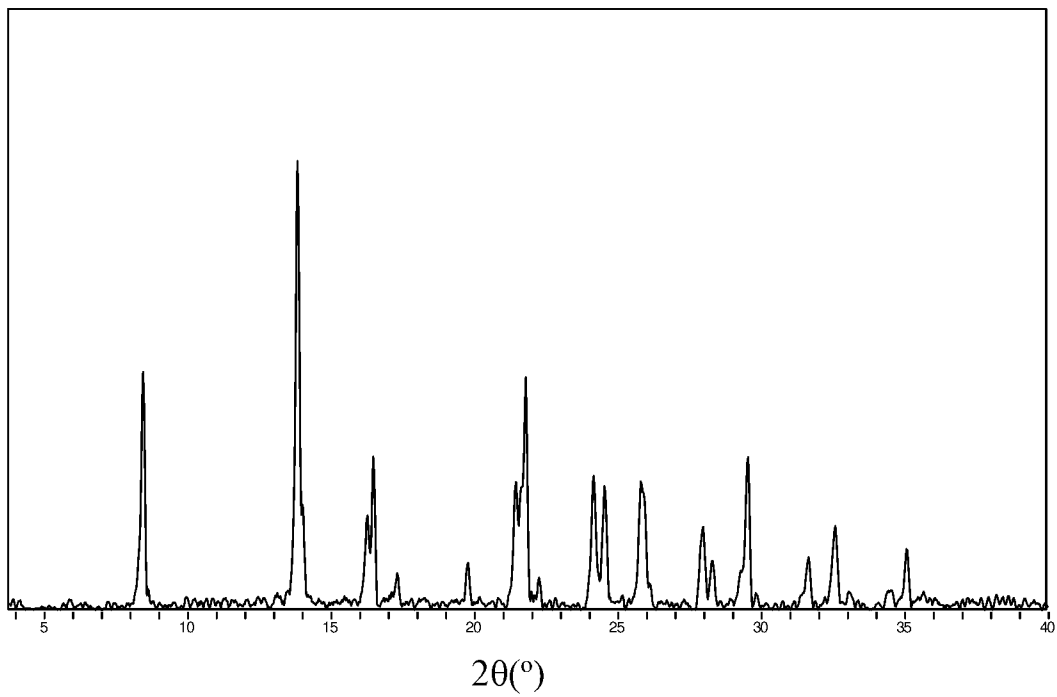


圖2