



# (12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 116219457 A

(43) 申请公布日 2023. 06. 06

(21) 申请号 202111458960.9

G25B 11/032 (2021.01)

(22) 申请日 2021.12.02

G25B 11/052 (2021.01)

G25B 13/00 (2006.01)

(71) 申请人 中国科学院过程工程研究所

地址 100190 北京市海淀区中关村北二街1号

(72) 发明人 王昊 刘艳荣 张国帅 张军平  
张锁江

(74) 专利代理机构 北京品源专利代理有限公司  
11332

专利代理师 边人洲

(51) Int. Cl.

G25B 9/21 (2021.01)

G25B 3/07 (2021.01)

G25B 3/09 (2021.01)

G25B 3/29 (2021.01)

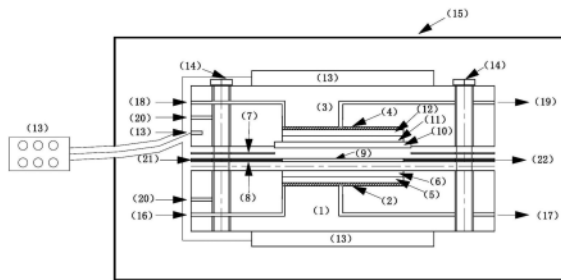
权利要求书2页 说明书5页 附图7页

## (54) 发明名称

一种新型高温电化学制尿素电解池装置及应用

## (57) 摘要

本发明提供了一种高温电化学制尿素电解池装置,利用氮气和二氧化碳在加热条件下电化学直接耦合制备尿素,属于电化学及电催化反应设备技术领域。该装置包括阴极板、阴极流道、阳极板、阳极流道、阴极气体扩散层、阴极催化剂层、普通垫片、阴极电解液室垫片、阴极电解液层、固态电解质层、阳极催化剂层、阳极气体扩散层、加热系统、高温压紧螺丝、电解池保温箱。具有上述结构的高温电化学制尿素电解池装置,设计结构合理、组装过程简单、尿素转化率高、材料成本低且使用寿命长等特点,可实现大规模尿素生产,大大提高了生产效率,满足生产需求。



1. 一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:包括阴极板(1)、阴极流道(2)、阳极板(3)、阳极流道(4)、阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、普通垫片(7)、阴极电解液室垫片(8)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12)、加热系统(13)、高温压紧螺丝(14)、电解池保温箱(15),

高温电解池的阴极板(1)和阳极板(3)上分别刻有供气液流通的阴极流道(2)和阳极流道(4),阴极板(1)上有阴极流道进口(16)和阴极流道出口(17),阳极板(3)上有阳极流道进口(18)和阳极流道出口(19),每侧极板上均设有一个电源接口(20);阴极板(1)和阳极板(3)之间通过普通垫片(7)分隔,普通垫片(7)与阴极板(1)之间可额外增加一个阴极电解液室垫片(8),用于存放阴极电解液层(9);阴极电解液室垫片(8)上设有电解液进口(21)和电解液出口(22);阴极板(1)、阳极板(3)、普通垫片(7)及阴极电解液室垫片(8)通过高温压紧螺丝(14)连接固定;阴极板(1)上和阳极板(3)上设有加热系统(13),电解池外部设有电解池保温箱(15);阴极板(1)、阳极板(3)、普通垫片(7)及阴极电解液室垫片(8)之间形成封闭空间,该封闭空间内设有催化剂层、气体扩散层、电解质及电解液层,其排列顺序由阴极板(1)至阳极板(3)依次为,阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12)。

2. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述电解池阴极板(1)和阳极板(3)为圆形、方形或菱形。

3. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述电解池的阴极板(1)、阴极流道(2)、阳极板(3)、阳极流道(4)、加热系统(13)、高温压紧螺丝(14)、阴极流道进口(16)、阴极流道出口(17)、阳极流道进口(18)、阳极流道出口(19)、电源接口(20)的材质为石墨、不锈钢、工程塑料中的一种或二种以上。

4. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述电解池保温箱(15),用于保证电解池内反应温度,其材质为无机保温材料、有机保温材料中的一种或二种以上。

5. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述普通垫片(7)和阴极电解液室垫片(8)用于密封电解池、避免双极板短路,此外,阴极电解液室垫片(8)用于构建一个阴极电解液室;垫片材质为硅胶、聚四氟乙烯、工程塑料中的一种或二种以上。

6. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述阴极气体扩散层(5)、阳极气体扩散层(12)的材质为碳纸、碳布、多孔金属及合金、多孔金属化合物、多孔不锈钢中的一种或二种以上。

7. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述阴极催化剂层(6)、阳极催化剂层(11)的材质为非金属、非贵金属、贵金属中的一种或二种以上。

8. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述阴极板(1)、阳极板(3)、普通垫片(7)及阴极电解液室垫片(8)之间形成封闭空间,该封闭空间内设有催化剂层、气体扩散层、电解质及电解液层,各层厚度总和与封闭空间厚度一致。

9. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置,其特征在於:所述阴极流道进口(16)、阴极流道出口(17)设于阴极板(1)外侧,阳极流道进口(18)、阳极流道出口

口 (19) 设于阳极板 (2) 外侧, 电解液进口 (21)、电解液出口 (22) 设于阴极电解液室垫片 (8) 外侧, 进口及出口位置可根据实际反应需求互换。

10. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置应用, 其特征在于: 所述阳极反应物为水蒸汽, 由阳极流道进口 (18) 进入阳极流道 (4), 经阳极气体扩散层 (12) 分散后到达阳极催化剂层 (11) 表面, 被氧化成氧气, 由阳极流道出口 (19) 流出, 同时生成的质子穿过固态电解质层 (10) 和阴极电解液层 (9), 到达阴极催化剂层 (6) 表面。

11. 根据权利要求1所述的一种新型高温电化学制尿素电解池装置应用, 其特征在于: 所述阴极反应物为二氧化碳和氮气, 由阴极流道进口 (16) 进入阴极流道 (2), 经阴极气体扩散层 (5) 分散后到达阴极催化剂层 (6) 表面, 与从阳极过来的质子, 在阴极催化剂层 (6) 表面耦合生成尿素, 由阴极流道出口 (17) 流出。

12. 根据权利要求10所述应用, 其特征在于: 所述阴极电解液层 (9) 具有离子交换、增强阴极反应选择性等功能, 材质为离子液体、有机溶剂、有机高分子、无机盐复合物中的一种或二种以上, 阴极电解液层 (9) 具有一定流动性, 或呈不具有流动性的片状, 其厚度与阴极电解液室垫片 (8) 一致, 阴极电解液层 (9) 可根据实际反应需求使用或撤掉。

13. 根据权利要求10所述应用, 其特征在于: 所述固态电解质层 (10) 具有离子交换功能, 其材质为有机高分子、硅氧化物、磷氧化物、硼氧化物、金属及合金、金属化合物中的一种或二种以上, 固态电解质层 (10) 呈片状。

14. 根据权利要求10所述应用, 其特征在于: 所述阳极流道 (4) 为环形、蛇形、平行形、交叉形、折线形中的一种或二种以上, 阳极气体扩散层 (12)、阳极催化剂层 (11) 呈片状。

15. 根据权利要求11所述应用, 其特征在于: 所述阴极流道 (2) 为环形、蛇形、平行形、交叉形、折线形中的一种或二种以上, 阴极气体扩散层 (5)、阴极催化剂层 (6) 呈片状。

## 一种新型高温电化学制尿素电解池装置及应用

### 技术领域

[0001] 本发明属于电化学及电催化反应设备技术领域,具体涉及一种新型高温电化学制尿素电解池装置及其应用。

### 背景技术

[0002] 尿素,又名脲、碳酰胺,化学式为 $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$ ,是化学工业中的重要原料。尿素较稳定、易保存,使用方便,对土壤破坏力小,是含氮量最高的化肥氮源。然而目前尿素的工业生产以二氧化碳和氨气为原料,其中工业制取氨气在高温高压下进行,能耗高,操作危险。此外,工业上利用二氧化碳和氨气制取尿素,首先生成氨基甲酸铵,后经过脱水形成尿素,该反应条件也为高温高压,能耗较高,其反应方程式为:



[0004] 通过电解技术,利用电能合成具有高附加值化学品对于人类社会的可持续发展具有重要意义。目前,已有报道在室温下将氮气和二氧化碳电化学还原制备尿素,是一种较新的方法。然而该方法通常在室温下采用H型电解池(H-cell),将氮气和二氧化碳气体通入阴极电解液中,利用溶解的氮气和二氧化碳进行反应。但这种使用H-cell及利用溶解气体的方法,反应效率低,尿素产率小,其中最重要的原因包括:一是在室温下氮气的活化转化较为困难;二是只靠溶解的二氧化碳和氮气反应导致传质困难;三是阴极副反应析氢严重。

[0005] 因此寻找一种新型的高温电化学制尿素电解池装置,在较高温度下原位活化氮气和二氧化碳,并利用气相直接进行耦合制备尿素,同时在阴极添加耐高温电解液层抑制析氢反应并降低过电势,是领域内研究人员未来关注的重点。

### 发明内容

[0006] 鉴于此,针对现有室温H-cell电化学制备尿素技术的不足,本发明提供一种新型高温电化学制尿素电解池装置,该装置可在较高温度下,利用氮气和二氧化碳的直接耦合,实现尿素的规模化生产。该电解池组装方法简单、成本低廉、反应效率显著,未来在工业生产中有良好的应用前景。

[0007] 为解决以上技术问题,本发明的技术方案为:一种新型高温电化学制尿素电解池装置,包括阴极板(1)、阴极流道(2)、阳极板(3)、阳极流道(4)、阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、普通垫片(7)、阴极电解液室垫片(8)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12)、加热系统(13)、高温压紧螺丝(14)、电解池保温箱(15)。

[0008] 作为一种新型高温电化学制尿素电解池装置,高温电解池的阴极板(1)和阳极板(3)上分别刻有供气液流通的阴极流道(2)和阳极流道(4),阴极板(1)上有阴极流道进口(16)和阴极流道出口(17),阳极板(3)上有阳极流道进口(18)和阳极流道出口(19),每侧极板上均设有一个电源接口(20);阴极板(1)和阳极板(3)之间通过普通垫片(7)分隔,普通垫片(7)与阴极板(1)之间可额外增加一个阴极电解液室垫片(8),用于存放阴极电解液层

(9);阴极电解液室垫片(8)上设有电解液进口(21)和电解液出口(22);阴极板(1)、阳极板(3)、普通垫片(7)及阴极电解液室垫片(8)通过高温压紧螺丝(14)连接固定;阴极板(1)上和阳极板(3)上设有加热系统(13),电解池外部设有电解池保温箱(15);阴极板(1)、阳极板(3)、普通垫片(7)及阴极电解液室垫片(8)之间形成封闭空间,该封闭空间内设有催化层、气体扩散层、电解质及电解液层,其排列顺序由阴极板(1)至阳极板(3)依次为,阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12)。

[0009] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,电解池阴极板(1)和阳极板(3)为圆形、方形或菱形。

[0010] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,电解池的阴极板(1)、阴极流道(2)、阳极板(3)、阳极流道(4)、加热系统(13)、高温压紧螺丝(14)、阴极流道进口(16)、阴极流道出口(17)、阳极流道进口(18)、阳极流道出口(19)、电源接口(20)的材质为石墨、不锈钢、工程塑料中的一种或二种以上。

[0011] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,电解池保温箱(15)用于保证电解池内反应温度,其材质为无机保温材料、有机保温材料中的一种或二种以上。

[0012] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,普通垫片(7)和阴极电解液室垫片(8)用于密封电解池、避免双极板短路,此外,阴极电解液室垫片(8)用于构建一个阴极电解液室;垫片材质为硅胶、聚四氟乙烯、工程塑料中的一种或二种以上。

[0013] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阴极气体扩散层(5)、阳极气体扩散层(12)的材质为碳纸、碳布、多孔金属及合金、多孔金属化合物、多孔不锈钢中的一种或二种以上。

[0014] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阴极催化剂层(6)、阳极催化剂层(11)的材质为非金属、非贵金属、贵金属中的一种或二种以上。

[0015] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阴极板(1)、阳极板(3)、普通垫片(7)及阴极电解液室垫片(8)之间形成封闭空间,该封闭空间内设有催化层、气体扩散层、电解质及电解液层,各层厚度总和与封闭空间厚度一致。

[0016] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,所述阴极流道进口(16)、阴极流道出口(17)设于阴极板(1)外侧,阳极流道进口(18)、阳极流道出口(19)设于阳极板(2)外侧,电解液进口(21)、电解液出口(22)设于阴极电解液室垫片(8)外侧,进口及出口位置可根据实际反应需求互换。

[0017] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阳极反应物为水蒸汽,由阳极流道进口(18)进入阳极流道(4),经阳极气体扩散层(12)分散后到达阳极催化剂层(11)表面,被氧化成氧气,由阳极流道出口(19)流出,同时生成的质子穿过固态电解质层(10)、阴极电解液层(9),到达阴极催化剂层(6)表面。

[0018] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阴极反应物为二氧化碳和氮气,由阴极流道进口(16)进入阴极流道(2),经阴极气体扩散层(5)分散后到达阴极催化剂层(6)表面,与从阳极过来的质子,在阴极催化剂层(6)表面耦合生成尿素,由阴极流道出口(17)流出。

[0019] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阴极电解液层(9)具有离子交换、增强

阴极反应选择性等功能,材质为离子液体、有机溶剂、有机高分子、无机盐复合物中的一种或二种以上,阴极电解液层(9)具有一定流动性,或呈不具有流动性的片状,其厚度与阴极电解液室垫片(8)一致,阴极电解液层(9)可根据实际反应需求使用或撤掉。

[0020] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,固态电解质层(10)具有离子交换功能,其材质为有机高分子、硅氧化物、磷氧化物、硼氧化物、金属及合金、金属化合物中的一种或二种以上,固态电解质层(10)呈片状。

[0021] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阳极流道(4)为环形、蛇形、平行形、交叉形、折线形中的一种或二种以上,阳极气体扩散层(12)、阳极催化剂层(11)呈片状。

[0022] 作为一种新型的高温电化学制尿素电解池,阴极流道(2)为环形、蛇形、平行形、交叉形、折线形中的一种或二种以上,阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)呈片状。

[0023] 该装置组装过程简单、尺寸易控、材质成本低,反应强化效果显著,在工业生产中有良好的应用前景。

### 附图说明

[0024] 图1为实施例1高温电化学制尿素电解池装置结构示意图。

[0025] 图中:阴极板(1)、阴极流道(2)、阳极板(3)、阳极流道(4)、阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、普通垫片(7)、阴极电解液室垫片(8)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12)、加热系统(13)、高温压紧螺丝(14)、电解池保温箱(15),阴极流道进口(16)、阴极流道出口(17)、阳极流道进口(18)、阳极流道出口(19)、电源接口(20)、电解液进口(21)、电解液出口(22)。

[0026] 图2为实施例1高温电化学制尿素电解池高温电化学制尿素电解池装置主体块材(不包含气体扩散层、催化剂层、电解液层、固态电解质层、电解池保温箱)结构示意图。

[0027] 图3为实施例1高温电化学制尿素电解池装置的阴极板(1)及阴极流道(2)结构示意图。

[0028] 图4为实施例1高温电化学制尿素电解池装置的阳极板(3)及阳极流道(4)结构示意图。

[0029] 图5为实施例1高温电化学制尿素电解池装置的高温压紧螺丝(14)结构示意图。

[0030] 图6为实施例1高温电化学制尿素电解池装置的普通垫片(7)结构示意图。

[0031] 图7为实施例1高温电化学制尿素电解池装置的阴极电解液室垫片(8)结构示意图。

[0032] 图8为实施例1高温电化学制尿素电解池装置的气体扩散层、催化剂层、电解质层、电解液层结构示意图。

[0033] 图中:阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12)。

[0034] 图9为实施例1高温电化学制尿素电解池装置的电解池保温箱(15)结构示意图。

### 具体实施方式

[0035] 下面通过具体实施方式来进一步说明本发明的技术方案。本领域技术人员应该明了,所述实施例仅是帮助理解本发明,不应视为对本发明的具体限制。可在不脱离由所附权

利要求限定的本发明的范围的情况下进行各种修改和变型,如果存在任何这样的修改和变型,那么它们都将落入在此描述的本发明的范围内。此外,背景技术旨在为了说明本发明的研发现状和意义,并不旨在限制本发明或本申请的应用领域。

#### [0036] 实施例1

[0037] 本发明实施例1提供一种新型高温制尿素电解池装置,其核心单元结构示意图如图1和图2所示,本发明实施例提供的核心单元结构包括阴极板(1)、阴极流道(2)、阳极板(3)、阳极流道(4)、阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、普通垫片(7)、阴极电解液室垫片(8)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12)、加热系统(13)、压紧螺丝(14)、电解池保温箱(15),阴极流道进口(16)、阴极流道出口(17)、阳极流道进口(18)、阳极流道出口(19)、电源接口(20)、电解液进口(21)、电解液出口(22)。

[0038] 本发明实施例1中,电解池阴极板(1)和阳极板(3)为圆形,阳极流道(4)、阴极流道(2)为环形,其中阴极板(1)和阴极流道(2)结构示意图如图3所示,阳极板(3)和阳极流道(4)结构示意图如图4所示。

[0039] 本发明实施例1中,电解池的阴极板(1)、阴极流道(2)、阳极板(3)、阳极流道(4)、加热系统(13)、阴极流道进口(16)、阴极流道出口(17)、阳极流道进口(18)、阳极流道出口(19)、电源接口(20)的材质为不锈钢,压紧螺丝(14)的材质为工程塑料,压紧螺丝的结构示意图如图5所示。

[0040] 本发明实施例中,普通垫片(7)和阴极电解液室垫片(8)用于密封电解池、避免双极板短路,此外,阴极电解液室垫片(8)用于构建一个阴极电解液室;垫片材质为膨体聚四氟乙烯,普通垫片(7)结构示意图如图6所示,阴极电解液室垫片(8)结构示意图如图7所示。

[0041] 本发明实施例1中,阴极气体扩散层(5)材质为多孔钛,阳极气体扩散层(12)的材质为不锈钢网。

[0042] 本发明实施例1中,阴极催化剂层(6)材质为金属合金,阳极催化剂层(11)的材质为贵金属。

[0043] 本发明实施例1中,阴极板(1)、阳极板(3)、普通垫片(7)及阴极电解液室垫片(8)之间形成封闭空间,该封闭空间内设有阴极气体扩散层(5)、阴极催化剂层(6)、阴极电解液层(9)、固态电解质层(10)、阳极催化剂层(11)、阳极气体扩散层(12),各层厚度及结构示意图如图8所示。

[0044] 本发明实施例1中,阳极反应物为水蒸汽,由阳极流道进口(18)进入阳极流道(4),经阳极气体扩散层(12)分散后到达阳极催化剂层(11)表面,被氧化成氧气,由阳极流道出口(19)流出,同时生成的质子穿过固态电解质层(10)和阴极电解液层(9),到达阴极催化剂层(6)表面。

[0045] 本发明实施例1中,阴极反应物为二氧化碳和氮气,由阴极流道进口(16)进入阴极流道(2),经阴极气体扩散层(5)分散后到达阴极催化剂层(6)表面,与从阳极过来的质子,在阴极催化剂层(6)表面耦合生成尿素,由阴极流道出口(17)流出。

[0046] 本发明实施例1中,阴极电解液层(9)具有离子交换、增强阴极反应选择性等功能,材质为离子液体。阴极电解液层(9)具有一定流动性,其厚度与阴极电解液室垫片(8)一致。

[0047] 本发明实施例1中,固态电解质层(10)具有离子交换功能,其材质为硅氧化物、金属磷酸化物、金属合金的复合物,固态电解质层(10)呈片状。

[0048] 本发明实施例1中,电解池保温箱(15),用于保证电解池内反应温度,其材质为保温棉,其结构示意图如图9所示。

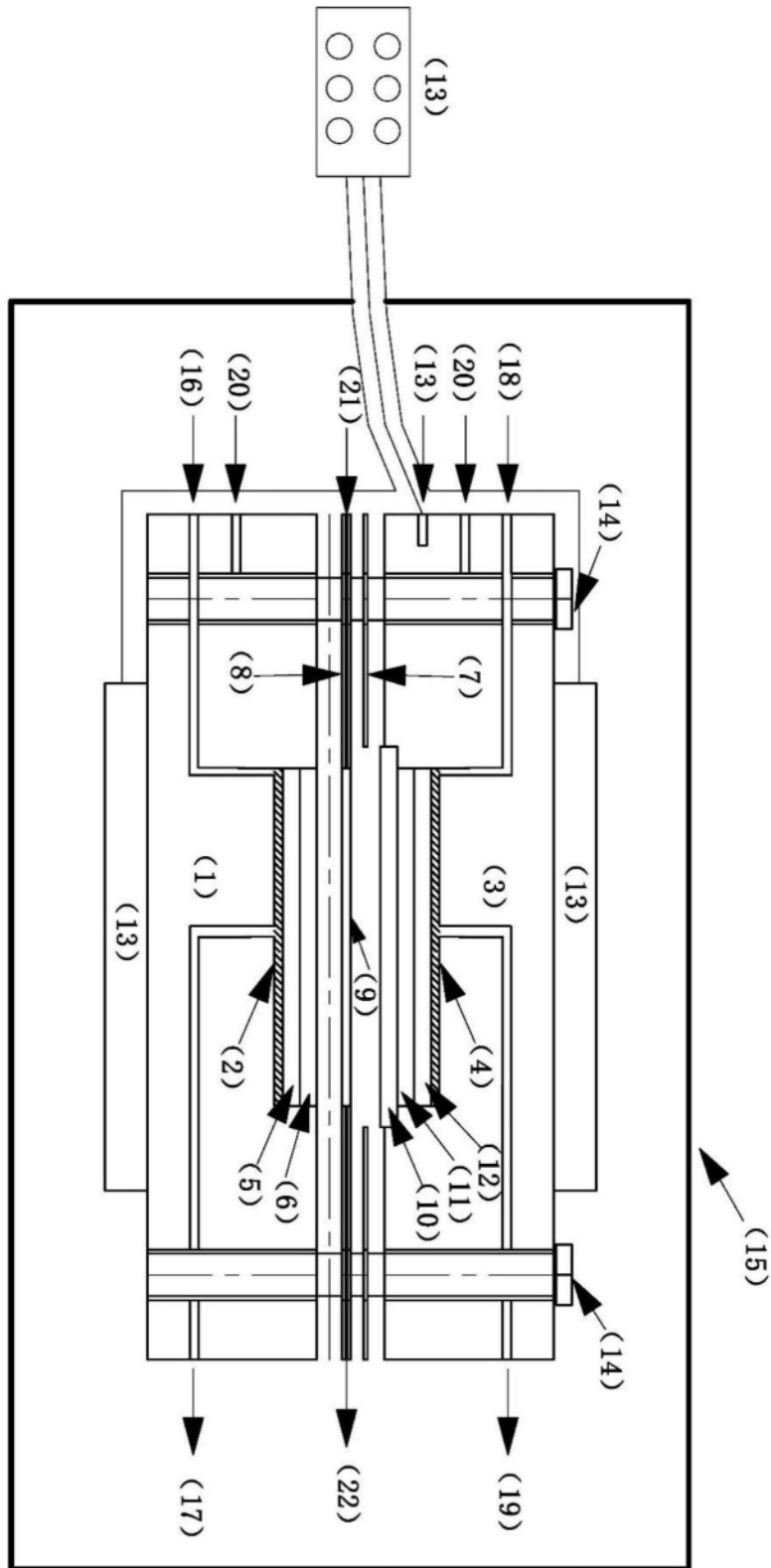


图1

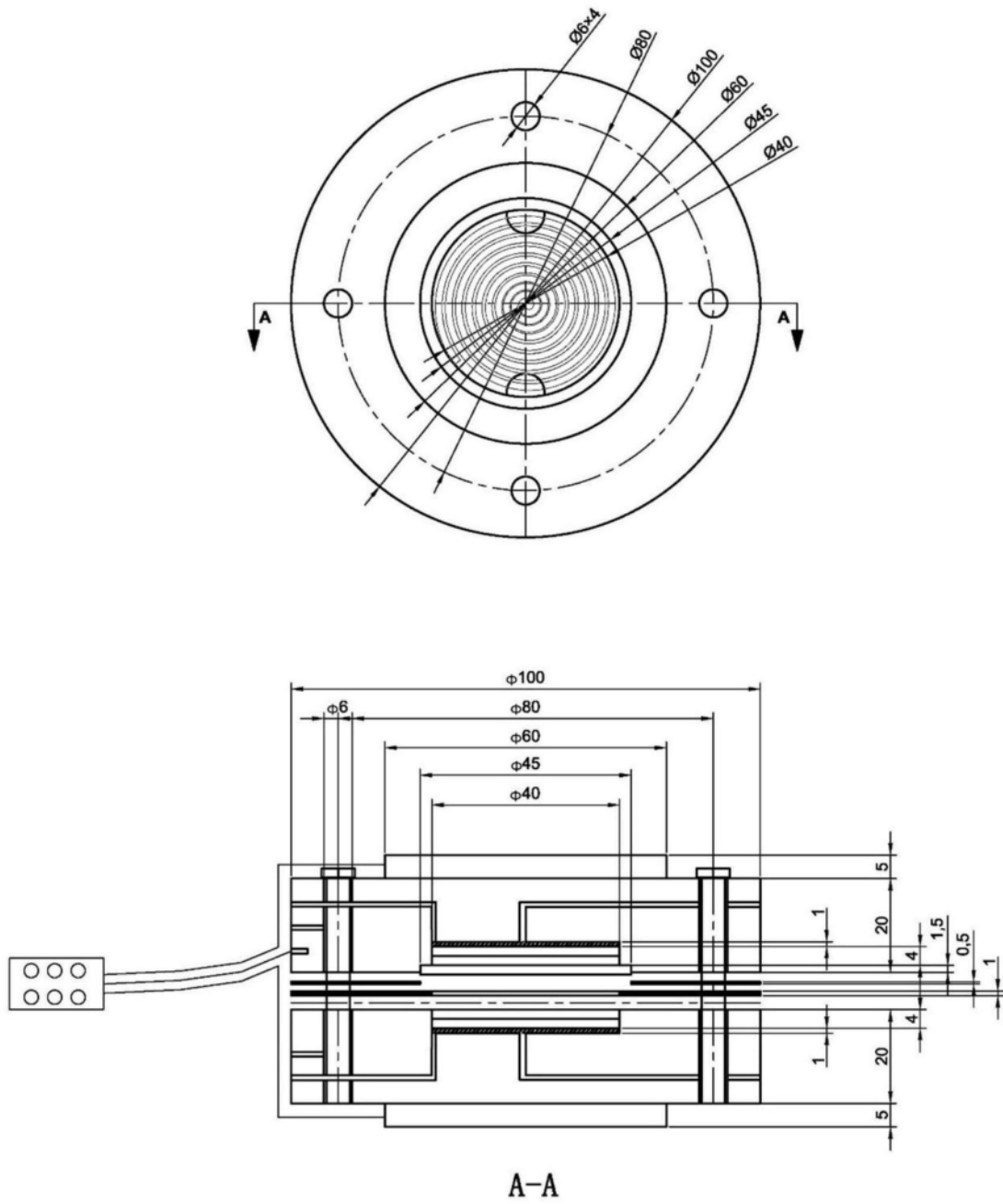


图2

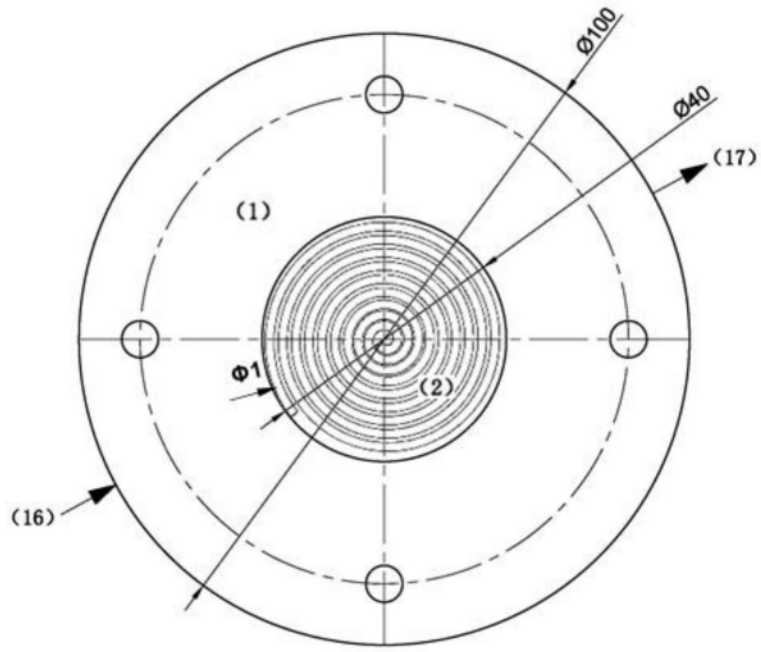


图3

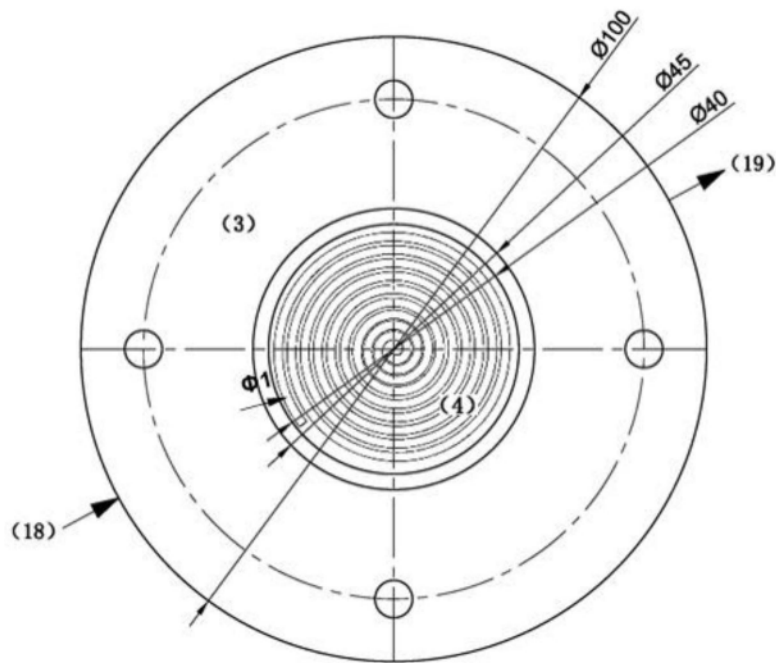


图4

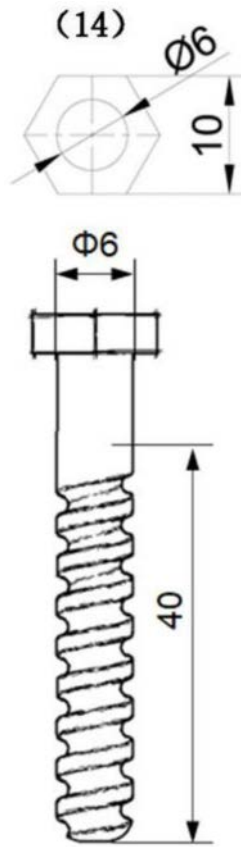


图5

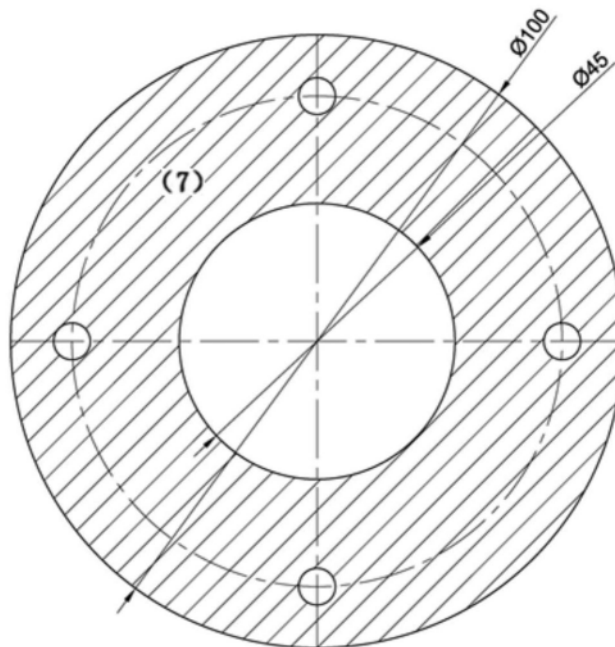


图6



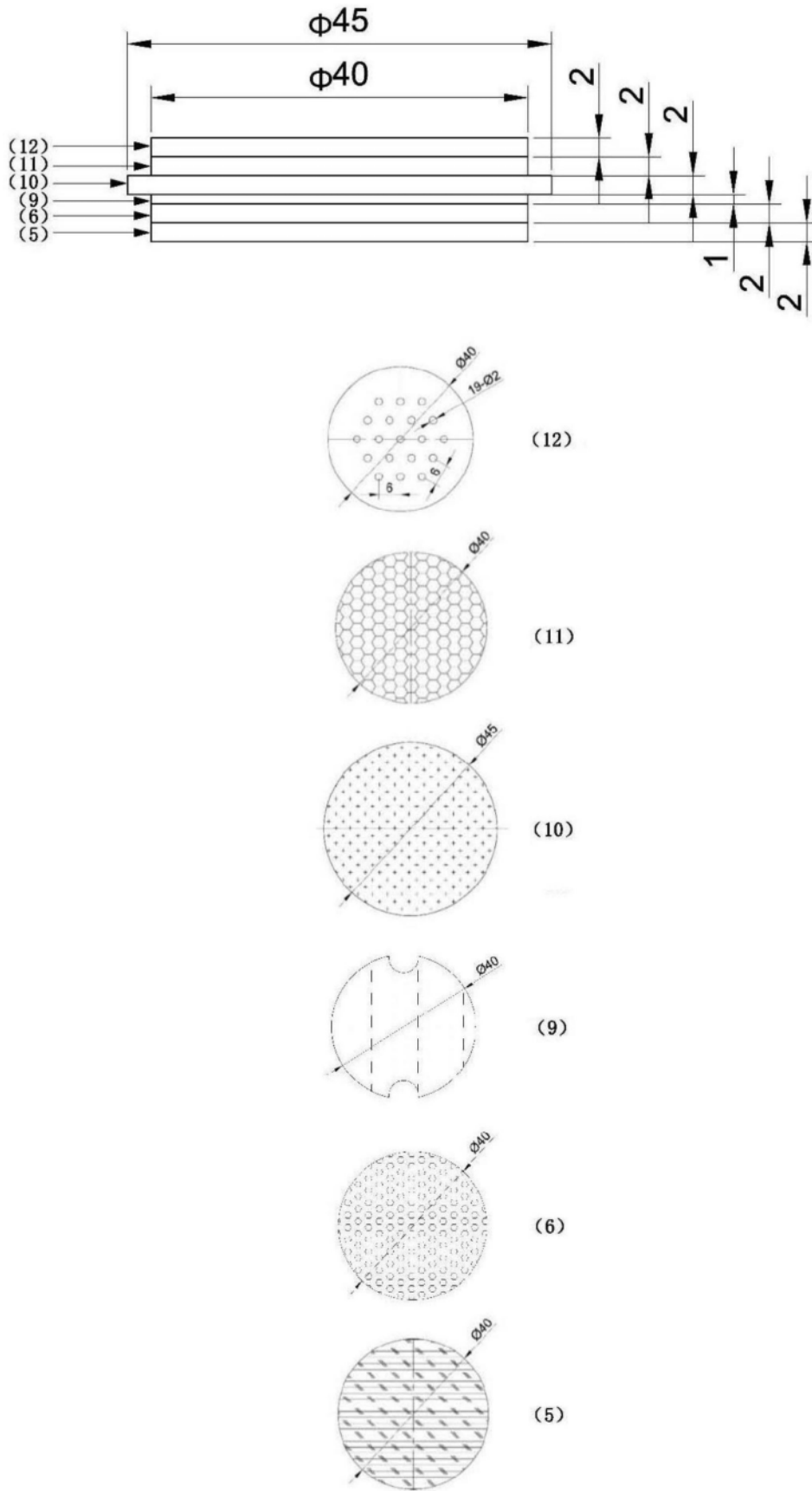


图8

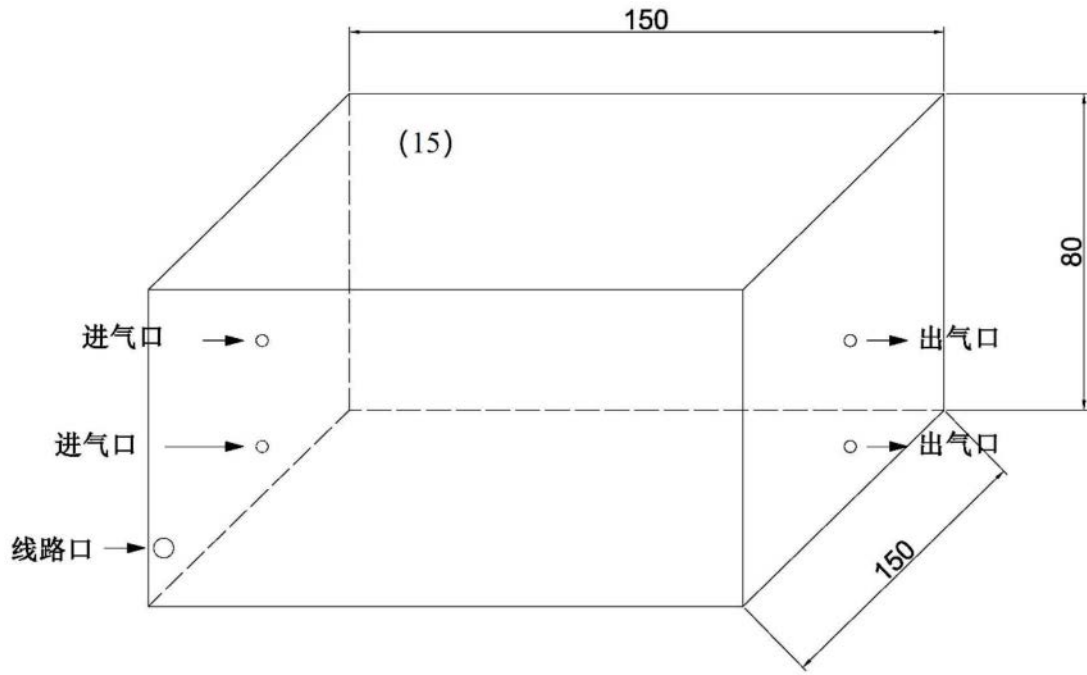


图9