

1109805423

公告本

申請日期	86.08.08
案 號	86111378
類 別	C01B3/40

A4
C4Int. Cl⁶

425371

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	觸媒撐體及其使用方法
	英 文	"CATALYST SUPPORT AND PROCESS USING THE SAME"
二、發明 人	姓 名	1. 瑞尼爾 瓊安尼斯 瑪利亞 凡 達姆 2. 皮吐斯 約瑟夫 瑪利亞 凡 隆
	國 籍	均荷蘭
三、申請人	住、居所	1. 荷蘭阿姆斯特丹市貝得惠斯路3號 2. 荷蘭阿姆斯特丹市貝得惠斯路3號
	姓 名 (名稱)	荷蘭商規殼國際研究所
	國 籍	荷蘭
	住、居所 (事務所)	荷蘭海牙市卡爾文拜蘭特倫30號
	代 表 人 姓 名	瓊安尼斯 亞特 凡 朱帝芬

裝

訂

線

425371,

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6

B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ，☐有 ☐無主張優先權
EPC 1996.08.05 96202197.8

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

五、發明說明(1)

本發明係為一種觸媒撐體及其使用方法，特別指一種觸媒撐體其包含採用多孔塊體結構接合於裝載架上，以及使用該觸媒撐體將流體受質於提高的空間速度、溫度與壓力下進行催化轉化作用的方法，更特指一種對烴類供料行催化性部份氧化作用之方法。

無論是使用塊體觸媒或觸媒撐體結構，以對在軸向氣態或液態流體受質轉化的催化轉化方式，都需要一種將觸媒或觸媒撐體在受質流固定方式。通常這種固定方式不應影響到或甚至妨礙到製程方法。

對於操作方法為高空間速度、溫度與壓力，尤其是在觸媒或觸媒撐體有承受壓差狀況時，此一需要更形複雜。將明顯可見的是，此固定方式必須經設計使其能夠耐高壓差，不能有對溫度過於敏感成份，並且不能造成受質流不正常變化或其它現象。

歐洲專利申請書 No. 0 656 317 (EP-A-0 656 317) 說明書敘述一種對烴類供料進行催化性部份氧化作用方法，其烴類與含氧氣體混合並接觸觸媒。該觸媒係停留在固定的高彎曲度座(彎曲度定義為氣體流過結構路徑長度對通過結構最短路徑長度比率)，其值至少為 1.1，且每平方公分至少 750 個小孔。該觸媒以載體上含催化性活性金屬為較佳。文中亦敘述適合之載體材料，包括耐火性氧化物，如矽氧、鋁氧、鈦氧、鉍氧及其等混合物。特別提出之範例為含鉍氧耐火材料海棉體為載體的觸媒。

應用於符合商業規模的一種利益催化性部份氧化作用方

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

泉

五、發明說明(2)

法係在高壓操作，通常超過10 bar，例如30 bar，且在高氣體空間每小時速度(每小時每公斤觸媒的常壓氣體公升數)，通常大小範圍在20,000到100,000,000 NI/kg/hr。因為部份氧化作用墊動力活動狀態之故，故為能於高壓得到一氧化碳與氫高產出，有必要在高溫下進行反應。溫度在1000℃範圍或更高才能符合商業性方法要求高產出的需求。

此外，國際專利申請書WO95/03090說明書述及在此類方法高溫條件下，耐火性塊體結構受到的一種熱衝擊，也就是當觸媒受到溫度迅速變化，造成結構內溫度梯度升高產生的衝擊，並指出如何使用具高耐熱衝擊的含鋁材料塊體結構。

為有效避免所需產品，不致因為氧化作用不足或過度，而減低轉化作用程度，這些方法在操作上，對其操作條件與觸媒對供料接觸的操作控制並不足夠。

因此，便產生了對於在此類方法上一種固定觸媒撐體方式的需要，其不僅需能承受高空間速度、溫度與熱衝擊狀況，更必須不會對反應路徑造成影響或妨礙。

吾人現今發現，觸媒撐體含有一具特定形狀供接合多孔塊體結構的裝載架，且其以特定方式在受體或反應物流體流定位者，能夠利用流體空間速度提供與塊體結構的密封接合，並且不會顯著影響到製程方法。

基於以上，本發明之最廣泛範圍係關於一種觸媒撐體，其包含(1)具有流體入口，流體出口及與多孔塊體結構接

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

泉

五、發明說明 (3)

合表面的裝載架，與(2)具有第一上游端、第二下游端與接合裝載架表面的多孔塊體結構，並且以其上游端施於塊體結構密封力方式提供密封流體的接合，從而產生過多且相近與上下游端間壓差成比例的密封壓力，該密封力以由含反應成份或受質流的流體流動壓力產生較佳。在此所指流體係指氣態或液態流體，而以氣態流體或其組合為較佳。此處所指軸向流流向的力係指一種同流力的沿軸流方向力或相同的成份。在此所指的流體密封接合係指接合密封方式使任何流體僅能經進出口通過裝載架，例如以含裝載架或塊體結構接合表面或聯合兩者的流體密封中間層方式密封。

裝載架進出口的安排方式為與塊體結構上下游相對稱位置較適當。

本發明之觸媒撐體提供一種良好方式以密封接合固定塊體結構，然密封壓力需大於其上下游端間壓差。

此點所增加的優點，在於流體受質流施於塊體結構上游端壓力可使該結構體停留於裝載架內。

本發明之較佳觀點，在於塊體結構包含一截去頂角的實體錐，以及裝載架包含一截去頂角的中空兩端開口錐，其特徵在於結構體與裝載架的錐半角定義近於相同，且錐形近於相同，由此，裝載架可以接合塊體結構，使兩錐體表面成密封接合，更佳者是塊體結構與裝載架可為任何彎曲或多角形錐體形狀或其組合。

因此，塊體結構與裝載架密封接合後的整體性不會受到

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明 (4)

塊體結構承受密封力而往下游方向位移影響，相反的，反而更加緊密。

本觸媒撐體可應用於任何所要方向，例如在垂直或水平受質流。觸媒撐體亦可如前所述為各種尺寸，尤其可以是任何大小，密封機構部份幾乎與規模比例無關，而是作業窗口與塊體結構上下游端所產生壓差的變數。

在此即將可以見到，塊體結構下游端，例如是截去錐角的平面，與其上游端可以依任何所需性質，如受質流的控制，塊體結構總重，觸媒/受質交會角度或其它，而形成。較佳是下游端與上游端為垂直，成角度或等曲平面。塊體結構亦可由截角下游延伸如傳統方式，如此則截角平面用於作其接合表面下游。例如，塊體結構可含一彎曲或成角度的柱狀延伸體。任何此類延伸體均能容耐如前所述由密封力往下游方向的位移。此延伸體亦可以適當方式與一相當的裝載架延伸體互相接合。

塊體結構與裝載架亦可包括不連續或連續的旋轉狀對稱截頂錐體，其定義為對中央縱軸成一角度旋轉的直線所成，其裝載架與結構體定義於至少部份對中央縱軸的旋轉直線所成，較佳情況之不連續旋轉定義為至少6個對中央縱軸的對稱旋轉位置。此種狀況下，較佳的塊體結構為對中央縱軸之不連續或連續旋轉直線，與由兩條由直線與中央縱軸的連續所定義，此兩連接線可為直線，成角度、彎曲或其組合。由此可得知，不連續旋轉對稱的觸媒撐體，亦即包含多邊形結構與裝載架錐體表面，在柱狀流體受質

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明 (5)

流模式操作方法中，可與連續旋轉對稱錐體近似。例如，六-、七-或八邊形等其它類似結構均可適用於此目的。

如前所述之定義，可以瞭解到本發明塊體結構在裝載架停留方式，能使施加之流體受質壓力足夠確使各表面接合，正如前面所述錐體表面情況。本發明之特別優點，在於錐體表面密封接合是例如在任何錐半角塊體結構壓差，高與直徑比率，結構多孔性等等的變數。在審慎對這些參數選擇之下，可以確保所需錐表面的密封接合可以達到，無論是在任何賦予的空間速度。

適合的塊體結構與裝載架錐半角在對軸成 3° 到 20° 範圍，較佳範圍在 4° 到 18° ，更佳範圍為 5° 到 15° ，例如 6° 到 10° 範圍。

當對軸所形成錐半角範圍在 3° 到 20° ，而且其它參數依前所述，則可確知密封壓力不致過大到對塊體結構造成損傷，壓碎或變形，同時該錐半角仍足使結構體保持在裝載架，不會沿軸向下游脫離接合面。

此外錐半角係指錐中央縱軸與任何"定義產生者"，即錐表面含的線，所形成的角度。

裝載架與塊體結構以具有相同或不同的平均軸向長度對平均寬度比率為適合，其範圍由1:10到1:1.1，以1:8到1:1.5較佳，而以1:5到1:2為更佳。而相對的或特定的尺寸則可例如依反應性質與塊體結構與/或裝載架機械強度而訂。

觸媒撐體可以包含額外接合方式，其包含一或多種在裝

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明(6)

載架與/或塊體結構的浮凸裝置。這些裝置能夠提供輔助密封力量，避免塊體結構的逆壓差或其它對密封力的干擾可能造成的脫離。

此一或多種浮凸裝置以呈環狀設計較佳，例如，以一種和塊體結構或裝載架為一體或分開的環狀突出物，與塊體結構與裝載架接合表面上相對環形凹槽配合使用。

浮凸裝置亦可是含如在塊體結構或裝載架的固定索，配合在一或兩者接合面環狀凹槽使用。例如在接合表面上有環狀沿，凹槽或突出以容納或固定索。使用具彈性或伸縮性可變形索材料，例如編織索，具有自我調整密封接合與壓力的優點。

索能以適當方式固定於位置較適當，例如以同材料縫住或以迴紋針、大頭針、訂書針等，由任何適合耐熱性材料如合金或類似者等等方式固定。

適當的密封或墊片方式，包含以彈性或伸縮性可變材料作為各接合面間介面。可以為一或多個連續完整片，以無機纖維、片等等的編織結構為佳，而位置在接合表面整個或部份上。此種密封或墊片方式有助於增加有效密封接合範圍，且更可以針對因錐體組成在製造時產生的錐半角差異導致接合表面的不規則性得以補償，或是在塊體結構與裝載架錐半角小等原因時，能夠有較高的自我調整定位。密封或墊片方式適合與一或兩者接合表面成一體或分開，在對表面自我調整定位時不致損害密封或墊片方式。

觸媒撐體適合採取適當方式將裝載架在觸媒反應器內固

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明(7)

定住。裝載架可以有任何不在接合表面的外形使其在觸媒反應器內以適當方式固定。由於裝載架為固定於流體形式，故其外型不會影響到反應器內受質流，更可設計為不會影響塊體結構或反應器內任一點的局部溫度。

觸媒撐體組成部份，即塊體結構、裝載架、外加接合方式與密封或墊片方式，適合採用抗高溫無機材料，由元素周期表IIa、IIIa、IVa、IIb、IVb與鏷系族等元素化合物，或其組合選擇使用，而以銻氧、鏷氧、鋁氧的氧化物，碳化物、氮化物等，以及任何前所定義化合物組合方式選擇使用為佳。

塊體結構可由為任何前述定義之結構而經過其會產生壓差。如前述定義之塊體結構以有通過結構體之管道為佳，其定義為高彎曲度。高彎曲度以大於1.1較佳，以在1.1到約10.0範圍更佳，更佳情況為塊體結構是海棉體形式。

如前定義，塊體結構在上下游端間壓差，以小於結構體與裝載架接合表面間產生的密封壓力為佳，壓差對密封壓力比率以小於1為較佳，以在1:1.2到1:10範圍較適宜，更佳是1:1.5到1:8，如1:3到1:6。

結構體亦適合包含一或多個塊體部份，例如，根據本發明可以使用數個部份在一個如前所述裝載架內接合，例如，以錐盤段形式組合成如前所述之截頂錐體。此種型式組合可以增加抗熱衝擊，因在各單體段溫度梯度長度降低。

裝載架以含其它材料供機械強度、耐熱衝擊等為佳，而

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明(8)

以強化纖維更佳，更適合者為含連續無機強化纖維的無機基質。

觸媒撐體可包含任何符合前述操作條件，而能對流體進行轉化作用的觸媒。適當觸媒以已知方法灌入，例如，已知的充填方式，如以均勻，或成梯度分佈試等。

從上面所敘述內容，可知本發明觸媒撐體極適於前面對本發明目的敘述方式之方法使用。尤其顯見的是，此種觸媒撐體使操作此種製程方法時，不會產生明顯的干擾或扭曲。

根據以上，本發明另一觀點是一種流體受質的催化轉化作用方法，其包含在高氣體每小時空間速度與高溫下，將受質與含催化性活性物質在如前述定義多孔單體結構的觸媒接觸，其塊體結構以密封型式與如前述定義裝載架靠作用於如前定義塊體結構上游端密封力接合，此接合力以含流動壓力為佳。

在本發明方法中，觸媒撐體以此方法特性方式固定，而這通常在使用一般觸媒撐體作業時會是問題所在，特別是高空間速度、溫度與壓力條件下。如此使採用本發明方法的觸媒撐體具有極佳相容性。

特別的是，塊體結構可以在適當選擇如前所定義觸媒撐體尺寸與性質，參考所用製程操作條件，而得到極接密封，而同時如前定義之塊體結構壓差對密封壓力比率範圍可以維持。塊體結構與壓力比率是由製程方法狀況要求程度與可承受密封程度而定。在某些製程方法必須有100%

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明(9)

轉化作用，亦即流體受質或中間產物不可越過觸媒撐體或其部份，而其它例子這點則不很重要。此外，密封的程度可確使受質流動方式維持沿反應器軸向線性，可以適合觸媒撐體周圍洩漏使流動改變影響反應情況。

本發明方法以作為煙供料部份催化氧化作用方法為較佳，其包含將含煙供料與含氧氣體與一位於前所定義觸媒撐體之觸媒接觸，溫度在590-1400℃範圍，以750-1400℃較佳，更佳為850-1300℃，特別是在1000到1300℃而且氣體每小時空間速度在20,000到100,000,000 NI/kg/hr範圍，尤其在50,000-50,000,000。較佳製程方式適用於由任何煙供料製備所需比率的一氧化碳與氫氣混合物。此方法是一種在此技藝用處甚大合成氣產物放熱反應方法，其產物中一氧化碳對氫氣莫耳比率，可經控制供料選擇與操作條件得到所需產品一氧化碳對氫氣的莫耳比率。

煙在接觸觸媒時為氣相。此方法特別適於對甲烷、天然氣、混合氣體或其它輕煙源的部份氧化作用。此處"輕煙"一詞指含1到5碳原子煙。此法可利用在含相當量二氧化碳的天然甲烷貯存源氣體轉化作用。供料以含至少50%容積的甲烷較佳，以含至少70%容積更佳，而以至少80%容積更為適合。

煙供料係與含氧氣體形成混合物後接觸觸媒。空氣適合作為該含氧氣體。然而以使用近純氧為含氧氣體更適合。如此可避免對大量惰性氣體，如以空氣為含氧氣體時的氮氣，處理需要。供料亦可含蒸汽。

五、發明說明 (10)

煙供料與含氧氣體在進料的量，以能提供氧對碳比率在 0.3 到 0.8 範圍為佳，以在 0.45 到 0.75 範圍更佳。此處所指氧對碳比率係指分子型態氧 (O_2) 對煙供料中碳原子比率。氧對碳比率較佳範圍在 0.45 到 0.65。而以包含在 0.45 到 0.65 範圍的化學計量比率 0.5，為特別適合。如供料包括蒸汽，則蒸汽對碳比率較佳範圍在 0.0 到 3.0 以上，更佳在 0.0 到 2.0。煙供料與含氧氣體，與蒸汽，如有加入情況，以在接觸觸媒前先充分混合為佳。

本發明方法可在任何適當壓力操作。商業規模應用時，大多數以高於大氣壓力的高壓操作。方法操作壓力範圍在 150 bar 的絕對壓力以下均可。以 2 到 125 bar 的絕對壓力範圍為較佳製程方法操作壓力，特別在 5 到 100 bar 的絕對壓力。

本發明方法可在任何適當溫度操作。商業規模的高操作壓力狀況下，供料以在高溫下接觸觸媒為佳。這是在高壓達到高轉化作用程度所需要的。根據所述，混合物供料接觸觸媒溫度超過 950°C 較佳，更佳在 750 到 1400°C 範圍，而以由 1000 到 1300°C 尤佳。供料混合物在接觸觸媒之前先接受預熱為較佳。

供料可以任何適當空間速度送入方法之操作過程。本發明方法之一優點亦在於其氣體空間速度可到達相當高程度。由此，本方法氣體空間速度 (以每小時每公斤觸媒之常壓氣體公升數表示) 範圍在 20,000 到 100,000,000 NI/kg/hr ，更佳範圍為 50,000 到 50,000,000 NI/kg/hr 。特別適

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

訂

五、發明說明(11)

合本方法之空間速度範圍在500,000到30,000,000 NI/kg/hr。

本發明方法所用觸媒包含一由前述定義之塊體結構撐持之催化性活性金屬。觸媒所包含的催化性活性金屬係由元素周期表VIII族選用。此處周期表係CRC Handbook of Chemistry and Physics 68版的CAS版本。本發明方法適合的觸媒由鈦、銻、鉍、鐵、鉍與鉑等金屬選用。以鈦、銻或鉍為催化性活性金屬的觸媒特別適合。鉍是其中最適合的催化性活性金屬。

含催化性活性金屬的觸媒是以如前述定義之無機，較佳為銻基之塊體結構支撐。任何適合之銻基材料均可採用。適合的銻材料為商用品。適當材料含至少70%重量銻，例如由已知(部份)穩定後銻或其後已純化銻形式。較適用銻基材料為(部份)穩定後銻，且其含有周期表稀土族，IIIB或IIA族的氧化物。最適合的銻基材料含穩定後銻，或以一或多種Mg、Ca、Al、Y、La或Ce氧化物部分穩定者。穩定後或部份穩定銻可以是任何商用品形式，例如以顆粒，纖維或鬚狀而成複合材料。

塊體結構可在含如前所述無機材料上塗佈另一層材料，以增加耐熱衝擊性(例如SiC、SiO₂、Al₂O₃或其等混合物)、增加觸媒穩定性或增加熱穩定性的性質。

塊體結構尺寸可由1公分到最大1米或以上，可以包含單塊或數塊個別塊體結構。數塊組成形式雖較單塊式耐熱衝擊性，但在本發明高空間速度下，支撐與各部份間欲得到較佳介面可能會形成問題。但是結構體仍可以是如前所

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (12)

定義的含有如已知技藝的段式塊體結構。多孔塊體結構可為任何適合形式。塊體結構之一種是擠壓成型蜂巢形狀，適用材料為此技藝熟用之商用品。該擠壓蜂巢所用材料特徵在於結構內有許多直，延伸性、平行通過管道。然較佳塊體結構應具高彎曲度。"彎曲度"一詞為此藝常用術語，如同此處所用，定義為氣體流經結構體通道長度對經結構體可能最短直線通道長度之比率。所以在擠壓成型蜂巢結構的彎曲度為1.0。本發明方法塊體結構以彎曲度較高為佳，即彎曲度大於1.1。較佳塊體結構彎曲度範圍在1.1到約10.0，更佳範圍在1.1到約5.0。塊體結構最適合的彎曲度範圍在1.3到4.0。

本發明方法之塊體結構如前定義是多孔性。較佳塊體結構為高多孔性。這些小孔與可能存在於載體材料的細小孔不同。較佳塊體結構至少每平方公分含500小孔，更佳為至少每平方公分含750小孔。適用的塊體結構每平方公分含1000到15000小孔，更適用者每平方公分由1250到10,000小孔。

較佳塊體結構空洞比率範圍在0.4到0.9較佳，為避免過度壓降以由0.6到0.9更佳。

本發明方法觸媒撐體最適合且特別佳塊體結構為海棉體。適用為本發明方法之海棉體為一般商用品。

本發明方法使用的觸媒可以以此技藝所熟諳方法製備，最適合方法是將催化性活性金屬化合物灌填入該等機材料。

五、發明說明 (13)

供料以在絕熱狀況下接觸觸媒較佳。根據本說明書目的，"絕熱"一詞係指其反應時，所有反應區熱損失與輻射均已避免發生，僅有隨氣態排出流離開反應器時帶走的熱除外。

以另一觀點而言，本發明係關於以前所敘述方法製備一氧化碳或氫。

本發明方法製造的一氧化碳或氫可用在任何需用到這些化合物其中之一或兩者的方法。本方法製造的一氧化碳與氫混合物特別適合作煙類合成製程方法，例如 Fischer-Tropsch 方法方式，或如甲烷的如氧物合成。將一氧化碳與氫行轉化作用成此類產品方法為此技藝所熟諳。此外，此處的一氧化碳與氫產物亦可用於水與氣體轉換反應製造氫所需。此產品其它應用包括水甲醯化與羰基化製程方法。

本發明以下可由圖1到圖5作一說明例，但並不以此為自我限制。

圖1到3為本發明觸媒撐體沿其中央縱軸向平面的剖面。

圖4與5為圖1到3任一撐體之平面圖。

圖1顯示本發明觸媒撐體含一塊體結構(1)，具有上游端(11)，下游端(12)與接合表面(13)，及一裝載架(2)，其具有入口(21)，出口(22)與接合表面(23)。裝載架構造為耐熱衝擊材料，例如無機強化纖維之無機基質，基本上為固定於流體。塊體結構(1)含有如前所述之無機海棉體，具有如前所述之穿透彎曲通道。塊體結構(1)內有一墊片(3)，

五、發明說明 (14)

介於接合表面(13)與(23)之間。錐半角以插圖內中央縱軸A顯示，而由前面所述範圍選出。在圖中的塊體結構(1)為一彎曲等平面截頂角錐體，可以含多個塊體段(以點狀線標示)。裝載架(2)在反應器流動流以適當附屬件，如底部(4)法蘭延伸體或裝載架(2)截去頂(圖上未示)，固定之，其法蘭於適當之縫隙或開口(圖上未示)固定，例如，在反應器壁固定的兩相對段間。反應器壁架可由任何適當材料製造，以具對熱穩定材料如石英、碳、合金等為較佳。在法蘭(4)與金屬反應器壁架間亦可使用隔絕材料。

裝載架(2)以在能耐使用條件下壁最薄為佳。如此可使熱衝擊與其它干擾製程項目降到最低。塊體結構(1)軸向長度稍短於或等於裝載架(2)軸向長度。

觸媒撐體(1)具有其它接合部份，包括浮凸裝置(5)，例如非整體編織索(Nextel TM)(51)連接凹槽(52)，環狀突出(53)與/或錐狀邊(54)。

編索(51)附著方式供前述之修剪，不致影響錐表面(13)與(23)的密封接合。

圖2與3所示為圖1觸媒撐體它種具體實例，為垂直等平面截頂錐體，圖3包含下游延伸體(6)。圖4與5顯示觸媒撐體含各別連續與不連續旋轉對稱、或彎曲與多邊錐體結構體(1)。

以下以具體方法實例為參考範例，但不自限其範圍。

範例 1

如圖1所示之一商用多孔塊體結構，其含有具彎曲通道

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (15)

的無機海棉體，並以傳統灌充方式填充活性觸媒，達到所需的最終觸媒填充。

經填充塊體結構在鋼質反應器內與裝載架接合，如圖1所示。天然氣與氧充分混合後得到的混合物作為供料，送入反應器與觸媒依所需氧對碳比率接觸。供料以預定每小時氣體空間速度與溫度送入，在塊體結構(1)上游端(11)產生流動壓力。

觸媒撐體操作溫度，以光學高溫測定在1200°C範圍層次。反應器出來氣體組成以氣體層析測定。由此測知此方法中，對一氧化碳與氫氣的轉化作用與選擇性(以轉化的甲烷為基準)。

塊體結構測得壓差在2.5 bar絕對壓力範圍。觸媒撐體在此提供塊體結構極佳密封接合，測不出對此方法的轉化作用與選擇性的干擾。

依所述，可顯見本發明之觸媒撐體為極適宜前述本發明方法之方式。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

錄

四、中文發明摘要(發明之名稱: 觸媒撐體及其使用方法)

一種觸媒撐體，其包含裝載架，此裝載架具有流體進入開口、流體流出開口及適於接合多孔性塊體結構之接合表面，以及一個多孔性塊體結構，此結構具有第一上游端，第二下游端及接合表面，且利用被施加在塊體結構上游端之密封力，提供其實質上流體密封接合，於是產生超過且實質上與其上下游端間之壓差成正比之壓力，該密封力較佳係包含反應成份或受質流之流體流動壓力，以及一種流體受質於提高的空間速度、溫度及壓力下，經由與如所定義之觸媒撐體上所支撐之觸媒接觸所進行之觸媒轉化方法，以及其觸媒轉化產物。

英文發明摘要(發明之名稱: "CATALYST SUPPORT AND PROCESS USING THE SAME")

A catalyst support comprising a mounting having a fluid inlet opening, a fluid outlet opening and an engaging surface adapted to engage a porous monolithic structure, and a porous monolithic structure having a first upstream end, a second downstream end and an engaging surface, and to provide substantially fluid-tight sealing engagement thereof by means of a sealing force applied to the monolithic structure at its upstream end, thereby generating a pressure in excess of and substantially proportional to a pressure differential between the upstream and downstream ends thereof, preferably the sealing force comprises fluid flow pressure of a stream of reaction component(s) or substrate(s), and a process for the catalytic conversion

四、中文發明摘要(發明之名稱：

)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

英文發明摘要(發明之名稱：

)

of a fluid substrate at elevated space velocity,
temperature and pressure by contact with a catalyst
supported on the catalyst support as defined, and
catalytic conversion products thereof.

第 86111378 號專利申請案
中文補充說明書(八十九年十月)

補充實例

材料

將一塊包含以氧化釔部份安定化之氧化鋯(Y-PSZ)陶瓷多孔發泡體浸漬於包含三氯化鋯與四氯化鋯之水溶液中，以得到以 Y-PSZ 之重量計，具有 2.5 重量%鋯與 2.5 重量%鉍之發泡體。該 Y-PSZ 發泡體每英吋具 65 個孔洞，即每平方公分 650 個孔洞。

此塊發泡體外形為一截角圓錐體(如圖 1 中所示)，長 20 mm 而最大直徑為 50 mm (即上游端之直徑)。錐半角為 10° ，浸漬發泡體的重量 55.4 克。

將該浸漬發泡體接合入一銅製反應管內之觸媒裝載架中。該裝載架外形為中空一端開口之截角錐體，壁厚 3.5 mm，錐半角為 10° ，且係由內含 50 體積%之 α 氧化鋁纖維(Nextel 610)之富鋁紅柱石所構成。該中空錐體長度為 60 mm。

觸媒之部份氧化作用

將一進料混合物(包含天然氣(21.10^3 NI/h)及空氣(68.10^3 NI/h)，溫度 200°C)加入該發泡體的上游端。其量累計至碳對氧比例為 0.65，而氣體每小時空間速度為 1,600,000 NI/kg/h。操作壓力為 25 巴(絕對)，穿過該發泡體結構之微差壓力值為 1.0 巴。

該發泡體上游端的溫度以光學高溫計測量為 1200°C 。甲烷轉換度(即甲烷轉換為一氧化碳的重量%)係以氣體層析儀決定，而其值超過 90% (w/w)。此催化之部份氧化程序已經成功操作 1000 小時，即無觸媒或觸媒裝載架失效。

六、申請專利範圍

修正
補充

本 10-6

1. 一種觸媒撐體，其包含裝載架，此裝載架具有流體進入開口、流體流出開口及適於接合多孔性塊體結構之接合表面，以及一個多孔性塊體結構，此結構具有第一上游端，第二下游端及接合表面，且利用被施加於塊體結構上游端之密封力，提供實質上流體密封接合，於是產生超過大且實質上正比於其上下游端間壓差之壓力，該密封力較佳係包含反應成份或受質流之流體流動壓力其中該塊體結構包含截角固體錐體，且裝載架包含截角中空端部開口錐體，其特徵在於該結構與裝載架係藉由實質上相同錐半角及藉由實質上相同錐形所界定，於是該裝載架適於與塊體結構接合，致使兩錐體表面呈密封接合，以及該錐半角範圍為 3° 到 20° 。
2. 根據申請專利範圍第1項之觸媒撐體，其中該塊體結構與裝載架可包含任何彎曲或多邊錐體形狀或其組合。
3. 根據申請專利範圍第2項之觸媒撐體，其中塊體結構係藉由截頭之垂直、角狀或彎曲平面所界定，此平面較佳係與其上游端共平面。
4. 根據申請專利範圍第2與3項中任一項之觸媒撐體，其中塊體結構與裝載架係藉由錐半角界定，其角度範圍為 4° 到 18° ，更佳範圍為 5° 到 15° ，例如在 6° 到 10° 之範圍內。
5. 根據申請專利範圍第2與3項中任一項之觸媒撐體，其

(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

包含額外的接合裝置，呈一或多個被提供在裝載架與/
或塊體結構上之浮凸特徵形式。

6. 根據申請專利範圍第2與3項中任一項之觸媒撐體，其包含密封或墊片裝置，經排列在個別接合表面間之介面，該密封或墊片裝置包含彈性或伸縮性可變形材料或其類似物。
7. 根據申請專利範圍第2與3項中任一項之觸媒撐體，其中塊體結構、裝載架、額外接合裝置及密封或墊片裝置中之任何一個，係包含一種耐高溫無機材料，選自元素周期表第IIa、IIIa、IVa、IIIB、IVb及鑷系元素之化合物及其組合，較佳係選自氧化鋯、氧化釷、氧化鋁及其組合與任何前文所定義化合物之氧化物、碳化物、氮化物或其類似物，且其中該裝載架包含纖維補強物，較佳係包含如前文所定義之連續無機纖維補強無機基質。
8. 一種流體受質催化性轉化之方法，其包括使受質於高氣體每小時空間速度與高溫下與觸媒接觸，此觸媒包含催化活性材料，被支撐在根據上文申請專利範圍第2與3項中任一項所定義之多孔性塊體結構上，其中塊體結構適合以實質上流體緊密方式，藉由上述申請專利範圍第2與3項中任一項所定義之裝載架，利用被施加至如上述申請專利範圍第2與3項中任一項所定義之塊體結構上游端之密封力而密封地接合，此密封力較佳係包含流體流動之壓力，其特徵在於該方法為一種

(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

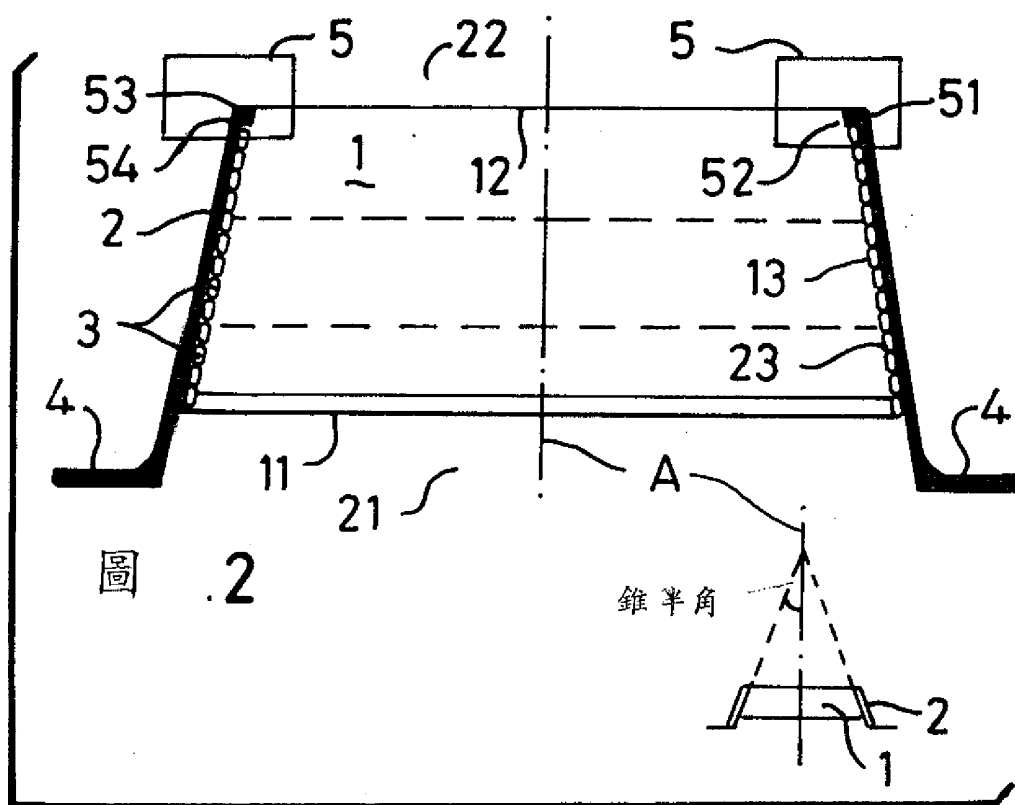
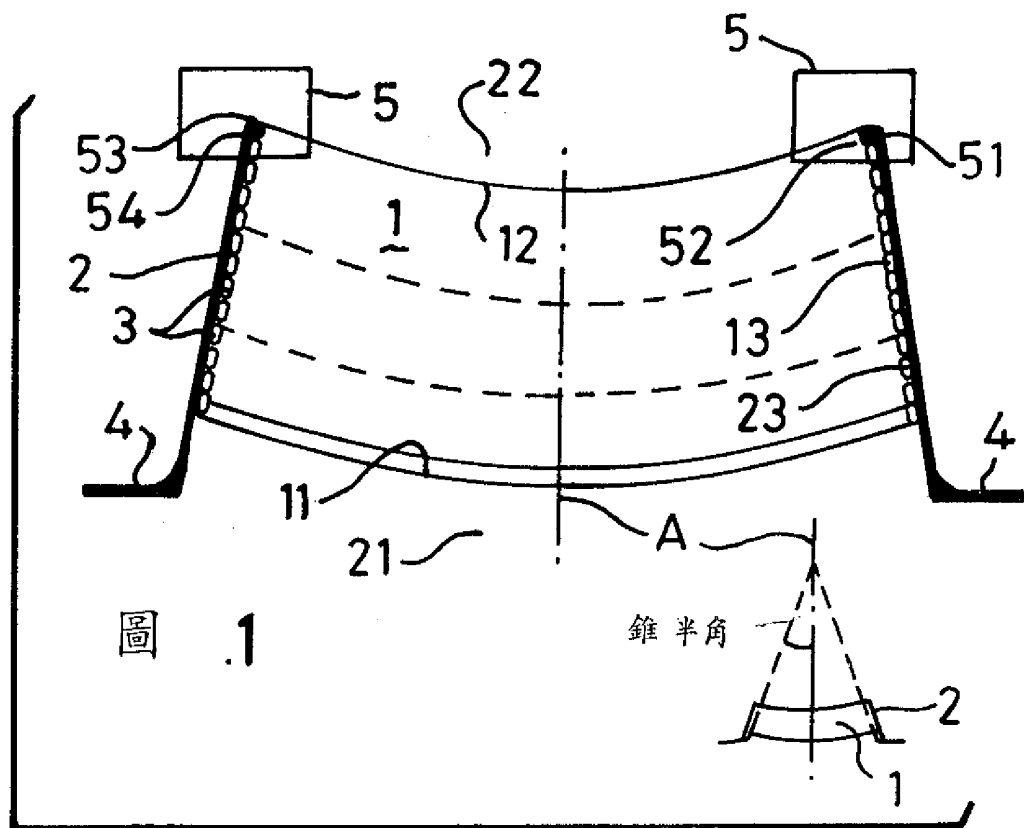
使煙供料催化性部份氧化之方法，且其包括將含煙供料與含氧氣體，與被支撐在如前文所定義之觸媒撐體上之觸媒，在溫度範圍750-1400℃，較佳為850℃到1300℃下，及在氣體每小時空間速度範圍為20,000到100,000,000 NI/kg/hr下接觸，且其中觸媒包含選自元素周期表第VIII族元素之金屬作為催化活性材料，較佳係選自銻、鉑、鈀、鐵、鉍及釩其中該煙供料及含氧氣體存在量係賦予氧對碳比例為0.3到0.8。

9. 根據申請專利範圍第9項之方法，其中煙供料包含甲烷、天然氣、混合氣體或輕煙類供源，而含氧氣體為實質上純氧，較佳之煙供料與含氧氣體存在量，係賦予氧對碳比例為0.45到0.75。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線



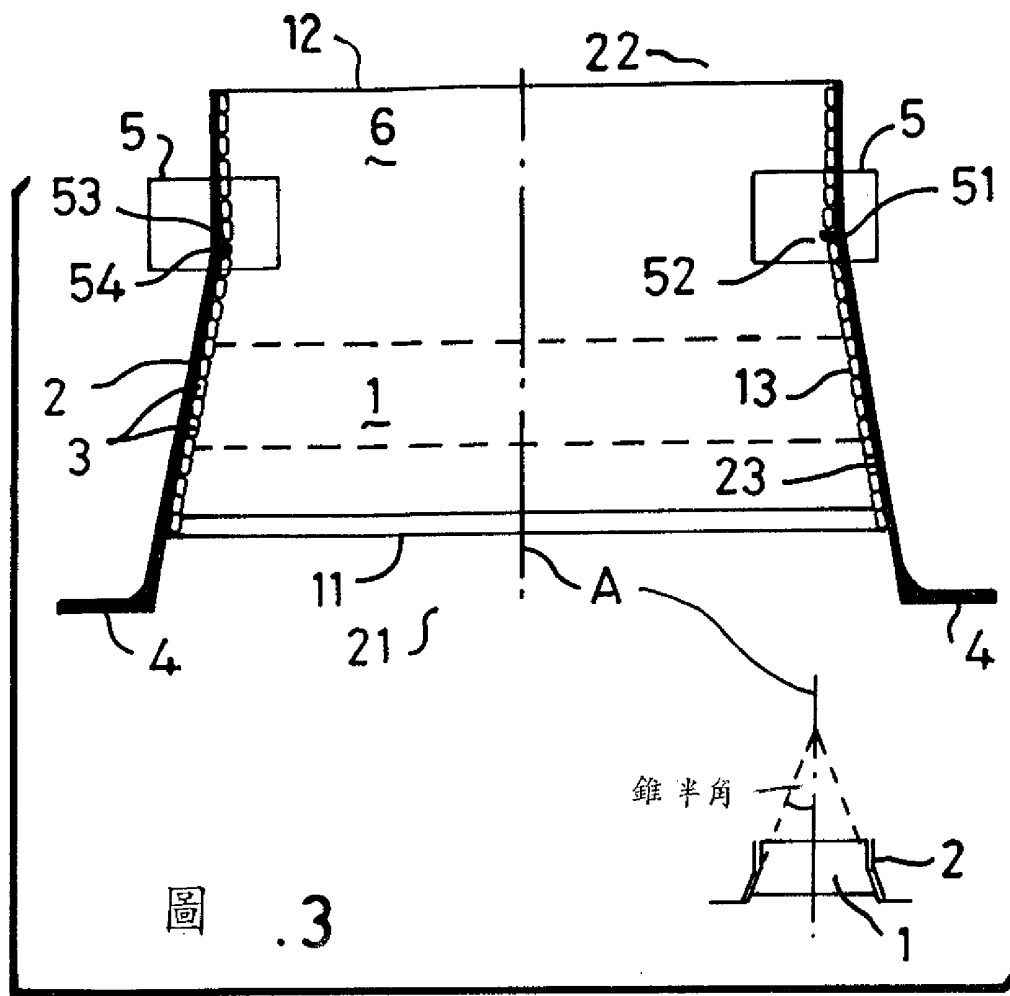


圖 4

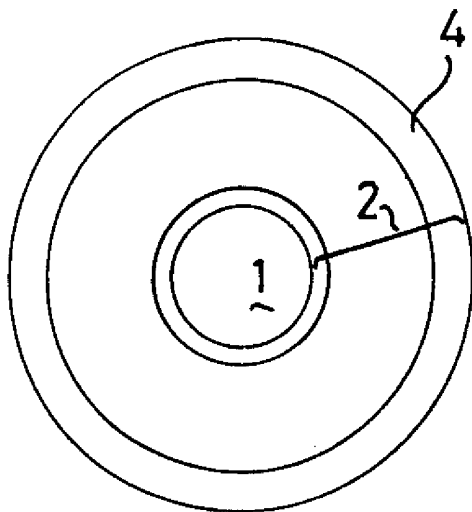
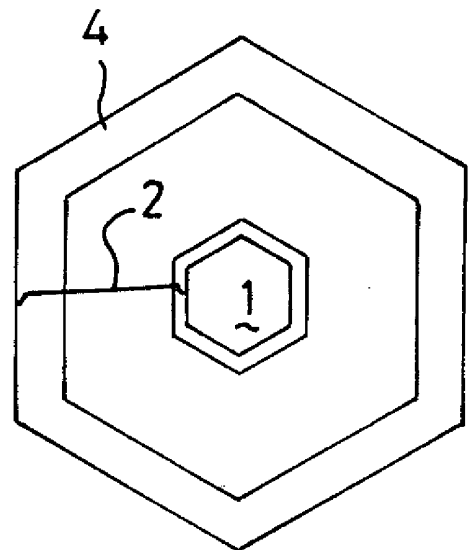


圖 5



第 86111378 號專利申請案
中文補充說明書(八十九年十月)

補充實例

材料

將一塊包含以氧化釷部份安定化之氧化鋯(Y-PSZ)陶瓷多孔發泡體浸漬於包含三氯化鋯與四氯化鋯之水溶液中，以得到以 Y-PSZ 之重量計，具有 2.5 重量%鋯與 2.5 重量%鉍之發泡體。該 Y-PSZ 發泡體每英吋具 65 個孔洞，即每平方公分 650 個孔洞。

此塊發泡體外形為一截角圓錐體(如圖 1 中所示)，長 20 mm 而最大直徑為 50 mm (即上游端之直徑)。錐半角為 10° ，浸漬發泡體的重量 55.4 克。

將該浸漬發泡體接合入一銅製反應管內之觸媒裝載架中。該裝載架外形為中空一端開口之截角錐體，壁厚 3.5 mm，錐半角為 10° ，且係由內含 50 體積%之 α 氧化鋁纖維(Nextel 610)之富鋁紅柱石所構成。該中空錐體長度為 60 mm。

觸媒之部份氧化作用

將一進料混合物(包含天然氣(21.10^3 NI/h)及空氣(68.10^3 NI/h)，溫度 200°C)加入該發泡體的上游端。其量累計至碳對氧比例為 0.65，而氣體每小時空間速度為 1,600,000 NI/kg/h。操作壓力為 25 巴(絕對)，穿過該發泡體結構之微差壓力值為 1.0 巴。

該發泡體上游端的溫度以光學高溫計測量為 1200°C 。甲烷轉換度(即甲烷轉換為一氧化碳的重量%)係以氣體層析儀決定，而其值超過 90% (w/w)。此催化之部份氧化程序已經成功操作 1000 小時，即無觸媒或觸媒裝載架失效。

六、申請專利範圍

修正
補充

本 10-6

1. 一種觸媒撐體，其包含裝載架，此裝載架具有流體進入開口、流體流出開口及適於接合多孔性塊體結構之接合表面，以及一個多孔性塊體結構，此結構具有第一上游端，第二下游端及接合表面，且利用被施加於塊體結構上游端之密封力，提供實質上流體密封接合，於是產生超過大且實質上正比於其上下游端間壓差之壓力，該密封力較佳係包含反應成份或受質流之流體流動壓力其中該塊體結構包含截角固體錐體，且裝載架包含截角中空端部開口錐體，其特徵在於該結構與裝載架係藉由實質上相同錐半角及藉由實質上相同錐形所界定，於是該裝載架適於與塊體結構接合，致使兩錐體表面呈密封接合，以及該錐半角範圍為 3° 到 20° 。
2. 根據申請專利範圍第1項之觸媒撐體，其中該塊體結構與裝載架可包含任何彎曲或多邊錐體形狀或其組合。
3. 根據申請專利範圍第2項之觸媒撐體，其中塊體結構係藉由截頭之垂直、角狀或彎曲平面所界定，此平面較佳係與其上游端共平面。
4. 根據申請專利範圍第2與3項中任一項之觸媒撐體，其中塊體結構與裝載架係藉由錐半角界定，其角度範圍為 4° 到 18° ，更佳範圍為 5° 到 15° ，例如在 6° 到 10° 之範圍內。
5. 根據申請專利範圍第2與3項中任一項之觸媒撐體，其

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線