



NORGE

[NO]

**STYRET
FOR DET INDUSTRIELLE
RETTSVERN**

[B] (II) UTLEGNINGSSKRIFT Nr. 143256

(51) Int. Cl.³ **B 01 J 23/74**

(21) Patentsøknad nr. 744272

(22) Inngitt 27.11.74

(23) Løpedag 27.11.74

(41) Alment tilgjengelig fra 29.05.75

(44) Søknaden utlagt, utlegningsskrift utgitt 29.09.80

(30) Prioritet begjært 28.11.73, Nederland, nr. 7316234

(54) Oppfinnelsens benevnelse Fremgangsmåte ved fremstilling av en nikkeltkatalysator på en siliciumdioksydbærer.

(71)(73) Søker/Patenthaver
STAMICARBON B.V.,
P.O. Box 10,
Geleen,
Nederland.

(72) Oppfinner
JOHANNES HENDRICUS TEBBEN, Maastricht,
CORNELIS ANTONIUS MARIA WETERINGS, Stein,
Nederland.

(74) Fullmektig A/S Oslo Patentkontor Dr. ing. K. O. Berg, Oslo.

(56) Anførte publikasjoner Britisk (GB) patent nr. 1220105 (B 01 J 11/06)

Foreliggende oppfinnelse vedrører en fremgangsmåte av den art som er angitt i kravets ingress.

Fra engelsk patent nr. 1.220.105 er det kjent å fremstille en nikkelbasert katalysator ved utfelling av nikkel på et bæremateriale såsom siliciumoksyd ved å tilsette urea til en suspensjon av finfordelt siliciumdioksyd i vann inneholdende et oppløselig nikkelsalt, hvorved en uoppløselig nikkelforbindelse avsettes på bærematerialet. Nikkelkatalysatoren erholdes ved å underkaste bærematerialet med den avsatte uoppløselige nikkelforbindelse en reduksjon, hvorved nikkelforbindelsen omdannes til metallisk nikkel.

Ved hjelp av en slik ovennevnt fremgangsmåte kan man fremstille en nikkelkatalysator, hvis spesifikke nikkeloverflate etter reduksjonen av den uoppløselige nikkelforbindelse er meget høy, størrelsen av nikkelpartiklene kan utgjøre omkring 1 nm. Det viser seg at størrelsen på nikkeloverflaten er avhengig av arten av anvendt siliciumdioksyd. Mengden av det for den ønskede nikkeloverflatestørrelse nødvendige urea må bestemmes empirisk.

Ved foreliggende fremgangsmåte oppnåes optimale resultater, dvs. at ved anvendelse av et bestemt siliciumdioksyd og en minimal ureamengde erholdes de minst mulige nikkelpartikler på bæreroverflaten.

Ifølge foreliggende oppfinnelse er dette tilfellet når man tilsetter en ureamengde som tilsvarer den nedenfor angitte ligning:

$$U = f \sqrt{Ni} \quad (1)$$

hvor:

U = konsentrasjonen av urea i gram pr. liter vann,

Ni = konsentrasjonen av nikkellioner i gram pr. liter vann,

f = en faktor som varierer mellom $\frac{75}{pH}$ og $\frac{175}{pH}$, og
hvor pH = pH-verdien av suspensjonen av siliciumdioksyd i vann,

slik som angitt i kravets karakteriserende del.

Som bekjent kan pH-verdien for en suspensjon av siliciumdioksyd i vann variere. Således er denne verdien for "AEROSIL" (varemerke for utfelt siliciumdioksyd ved flammehydrolyse av siliciumklorid) 3,5, for "KETJENSIL" (varemerke for siliciumdioksyd, fremstilt ved nøytralisasjon av vannglass med svovelsyre og deretter sprøytetørket) 6,5, for "kiselgur" alt etter arten mellom 3,8 og 8,5.

Foreliggende oppfinnelse belyses ved hjelp av et eksempel.

Til 3 l vann ble det tilsatt "AEROSIL". Suspensjonens pH var 3,5. Det ble anvendt forskjellige konsentrasjoner av nikkeler og urea og den uoppløselige nikkelforbindelsen ble deretter utfelt ved konstant omrøring og oppvarming av suspensjonen/oppløsningen til 100°C. Forholdet mellom Ni(II) og SiO₂ ble variert mellom 1:2 og 2:1. Etter at nikkelforbindelsen var blitt utfelt på bæreren, ble det belagte bærermaterialet separert, vasket, tørket og redusert i en hydrogenstrøm ved 450°C i 16 timer. Deretter ble nikkeloverflaten bestemt som m²/g Ni.

Resultatene fremgår av det vedlagte diagram. På abscissen er faktoren f oppført. Verdien av denne faktor går frem av formel (1) og tilsvarende $\frac{U^2}{Ni}$. På ordinaten er nikkeloverflaten i m²/g oppført. Diagrammet viser en maksimal nikkeloverflate på ca. 140 m²/g ved f = ca. 36. Det går også frem av diagrammet at nikkeloverflaten erholdt ved anvendelse av en "AEROSIL"-bærer hvor f varierer mellom $21,5 = \frac{75}{pH}$ og $50 = \frac{175}{pH}$ ikke blir vesentlig mindre.

Det kan erholdes tilsvarende diagrammer for andre siliciumdioksydbærere, som vil vise at en optimal nikkeloverflate alltid erholdes når faktoren f ligger innen de nevnte grenser.

P a t e n t k r a v

Fremgangsmåte ved fremstilling av en nikkelkatalysator på en siliciumdioksydbærer, hvilken katalysator blir fremstilt ved at man tilsetter så mye oppløselig nikkelsalt som er nødvendig for å erholde det ønskede belegg på siliciumdioksydet til en finfordelt siliciumdioksyd som er suspendert i vann, tilsetter urea, oppvarmer suspensjonen/oppløsningen til over 50°C ved konstant omrøring og fraskiller siliciumdioksydet, som er belagt med en uoppløselig nikkelforbindelse, fra væsken, hvilken nikkelforbindelse deretter blir redusert til nikkelmetall, k a r a k t e r i s e r t v e d a t man tilsetter en ureamengde, som tilsvarer ligningen:

$$U = f \sqrt{Ni},$$

hvori

U = konsentrasjonen av urea i gram pr. liter vann,

Ni = konsentrasjonen av nikkelionene i gram pr. liter vann,

f = er en faktor som varierer mellom $\frac{75}{pH}$ og $\frac{175}{pH}$,
hvor pH = pH-verdien av suspensjonen av siliciumdioksyd i vann.

143256

