

公告本

90.8.-1修正
年 月 日 補充

申請日期	88.12.1
案 號	88120953
類 別	B01J 23/52, H01M 4/90, 8/06

A4
C4

487599

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書		
一、發明 名稱	中 文	用於轉化燃料及氧化劑為反應產物之燃料電池及用於該燃料電池之催化劑
	英 文	A fuel cell for conversion of a fuel and an oxidant into a reaction product and a catalyst for use in said fuel cell
二、發明 創作人	姓 名	1.波吉達拉.葛瑞喬洛華 2.約翰.美樂 3.詹姆斯.安東尼.猶大.圖米堤
	國 籍	1.南非 2.南非 3.英國
	住、居所	1.南非,山德頓,海德公園,墨辛姆路 52 號 2.南非,約翰尼斯堡,克拉哈爾公園,貝德福德大道 22 號 3.南非,山德頓,瑞芳尼亞,第一大道 7B
三、申請人	姓 名 (名稱)	盎格羅亞美利堅研究室公司
	國 籍	南 非
	住、居所 (事務所)	南非,約翰尼斯堡,緬街 44 號
	代 表 人 姓 名	1.艾倫.葛拉漢.萊姆莎 2.歐貝肯.亞貝爾.馬頓康永

裝 訂 線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
I P C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
南非 1998.09.07 98/5243

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

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

五、發明說明 (/)

本發明之背景

本發明乃關於燃料電池。

燃料電池係用以將化學能連續轉化成直流電之裝置。該電池係由二個藉離子傳導性電解質所分開之導電電極以及用於燃料、氧化劑與反應產物之連續移進與移出電池之供應裝置所構成。該燃料可以是氣態或液態；電解質可以是液態或固態；且氧化劑為氣態。該電極為固體，但亦可以是多孔性且含有催化劑。燃料電池與電池不同，因為電力係從必須飼入其中之化學燃料所製造。

燃料電池的技術已落後熱燃燒引擎的發展，但在小規模之發電領域中仍是一競爭者。對此點有許多原因。例如，燃料電池天生上係零排放之動力來源且有廣範圍之可能燃料(potential fuel)與可能之氧化劑(potential oxidant)。再者，當燃料電池驅動之車輛靜止時，無燃料被使用。但限制燃料電池發展之問題亦存在。例如，適當之燃料必須可以在具競爭力之價格下得到。再者，適當且價格實在的催化劑仍然不可得。已嘗試將賤金屬(base metal)作為催化劑，但通常會發生催化劑的退化。亦曾使用鉑族金屬，但在低負載下足夠高之活性仍未達到。

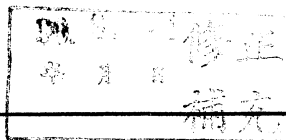
本發明之概述

根據本發明之第一方面，其係提供一含有二個電極之燃料電池，該電極被用於將燃料與氧化劑轉化成反應產物之電解質所分開，該燃料電池的特色為該電極包括一催化劑，其含有具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上之氧化

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線



五、發明說明 ()

物載體，且燃料為甲醇或甲烷。

根據本發明之第二方面，其係提供一催化劑，其含有具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上之氧化物載體，以使用於含有二個電極之燃料電池上，該電極被用以轉化選自甲醇或甲烷之燃料與氧化劑成為反應產物之電解質所分開。

根據本發明之第三方面，其係提供一種氧化燃料電池中作為燃料之甲醇或甲烷之方法，其特色為氧化作用係在含有氧化物載體之催化劑的存在下發生，該氧化物載體具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上。

圖式簡單說明

圖 1A 與 1B 係在各種溫度下之甲烷氧化圖，圖 1B 係說明重複測試之結果；

圖 2A 與 2B 係在各種溫度下之甲烷氧化圖，圖 2B 係說明催化劑 K5(3)之重複測試之結果；且

圖 3 對甲醇重組，本發明之催化劑之活性與白金催化劑之活性之比較圖。

具體實施例之描述

使用於燃料電池中之以黃金為基礎之較佳催化劑之實例係揭示於美國專利第 5,759,949 號、EP 0789621 與 WO 97/45192、其係收錄於此以作為參考之用。

以黃金為基礎之催化劑之一較佳形式係含有氧化物載體、較佳係氧化鈾與氧化鋯之混合物、較佳係氧化鈷之過渡金屬氧化物，黃金係複合至其上且可選擇性地亦含有氧

五、發明說明 (3)

化鈦或氧化鋁。

氧化物載體存在於催化劑中之量較佳係佔催化劑重量之至少 50%、且通常係佔催化劑重量之至少 60%。氧化鈾通常係佔氧化鋁與氧化鈾混合物之重量之至少 50%。氧化鈾對氧化鋁之較佳重量比係在 5 : 1 至 2 : 1、典型上係約 3 : 1 之範圍。

催化劑係以有效催化之形式含有黃金，此形式將根據催化劑之性質而改變。

黃金之濃度通常係低的，即佔催化劑重量之 2%或更低。

如前述所提，催化劑較佳係亦含有形式為氧化物之過渡金屬，其例如為氧化鐵、或較佳係氧化鈷。

在實施本發明時，已發現特別有效且可使用之燃料是甲烷與甲醇。

以黃金為基礎之催化劑可同時應用於發生在燃料電池中之電化學與化學氧化反應。

可使用以黃金為基礎之催化劑之燃料電池之實例係包括作為燃料之甲烷之完全與部份氧化。在甲烷之氧化中，測試描述於 WO 97/45192 中以黃金為基礎之催化劑之型號之能力。所使用之組成係揭示於表 1 中。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (4)

表 1：用於甲烷完全氧化測試之催化劑之組成

規 則	K1	K2	K5(2)	K5(3)
活 性 成 份	1.0% Au	1.0% Au	1.0% Au	1.0% Au
	1.0% Co	1.0% Co	1.0% Co	1.0% Co
載 體				
CeO ₂	38%	49%	44%	42%
CeO ₂ /ZrO ₂	47.5%	40%	38%	40%
TiO ₂	9.5%	10%	15%	15%
用於平衡之其他 氧化物	5.0%	1.0%	3.0%	3.0%

該測試係以 0.25%之甲烷(見圖 1)與 2.5%之甲烷(見圖 2)以及平衡之空氣進行。氣體混合物之每小時空間速率係 12000 小時⁻¹。

樣品 K1 與 K2 係在 0.25%之甲烷、平衡之空氣中測試至 500℃，且樣品 K5(2)與 K5(3)係在 600℃下測試。在每一個測試後，將樣品在空氣中冷卻至室溫且再重新測試。

已發現 K5(3)在 600℃之溫度下可得到最高之甲烷轉化率且係穩定的。

樣品 K1、K2、K5(2)與 K5(3)亦在 2.5%之甲烷、平衡之空氣中測試至 600℃。

將 K5(3)在空氣中從 600℃冷卻至室溫且在反應混合物中再重新測試至 600℃以評估在甲烷測試氣體之最高濃度下之催化劑穩定性。

已發現催化劑在甲烷之最高濃度下表現良好且顯示良

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

檢

五、發明說明(5)

好之持久性。

以黃金為基礎之催化劑亦可以使用於直接甲醇燃料電池中。甲醇被考慮可作為燃料之選擇係因為其與現存之分配網路之相容性。所進行之測試之結果顯示以黃金為基礎之催化劑在低溫下對甲醇氧化係非常地活化。此係有意義的，因為甲醇燃料電池商業化之主要限制為缺乏在低於 100°C 之溫度下用於甲醇氧化之催化劑。

揭示於 WO 97/45192 中之各種以黃金為基礎之催化劑之類型係測試其對催化甲醇氧化之穩定性。催化劑 K2 與 K5(2)係用於測試甲醇氧化。

樣品 K2 係在含有 6.5%甲醇、平衡空氣之反應混合物中評估，而樣品 K5(2)係含有 6.5%與 11%之甲醇、平衡空氣之混合物中測試。

實驗 1 與 2 係藉泵送所需之液態甲醇至蒸發器中以進行。在實驗 3 中，係使用一擴散器(bubbler)以如所提供之方法般將甲醇飼入，以得到在操作條件下更一致且均勻之反應混合物。每一個樣品測試下之操作條件係列於結果中。反應物與產物分析係藉使用氣相色層分析儀以得到。

結果

對實驗 1 與 2，液態甲醇係以適當之泵量飼入蒸發器中，在開始反應之前，先將樣品冷卻至 50°C。

實驗 1

樣品：K2

反應物組成：6.5%CH₃OH、平衡空氣

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

像

五、發明說明 (6)

空間速率：20000 小時⁻¹

流速：200 毫升/分鐘

樣品重量：0.6 克

表 1：為溫度函數之樣品 K2 對甲醇氧化之活性

溫度 (°C)	CH ₃ OH 轉化率 %	殘留之產物 CO(%)
50	18.8	0
100	65.6	0

實驗 2

樣品：K5(2)

反應物組成：6.5%CH₃OH、平衡空氣

空間速率：62600 小時⁻¹

流速：313 毫升/分鐘

樣品重量：0.3 克

表 1：為溫度函數之樣品 K5(2)對甲醇氧化之活性

溫度 (°C)	CH ₃ OH 轉化率 %	殘留之產物 CO(%)
50	99.7	0
100	99.8	0

對實驗 3，樣品在開始反應之前係先冷卻至室溫，甲醇係在室溫下藉噴入之空氣經由液態甲醇擴散器以飼入。

實驗 3

樣品：K5(2)

反應物組成：11%CH₃OH、平衡空氣

五、發明說明 (7)

空間速率：57600 小時⁻¹

流速：96 毫升/分鐘

樣品重量：0.1 克

表 1：為溫度函數之樣品 K5(2)對甲醇氧化之活性

溫 度 (°C)	CH ₃ OH轉 化 率 %	殘 留 之 產 物 CO(%)
44	99.4	0
50	100	0
100	100	0

本發明之黃金催化劑用於甲醇重組之活性係與白金催化劑者相比，且係如圖 3 所顯示為較佳。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

像

90. 8月 A5 B5 修正 補充

四、中文發明摘要（發明之名稱：

用於轉化燃料及氧化劑為反應產物之燃料電池及用於該燃料電池之催化劑電池

一種含有二個電極之燃料電池，該電極被用於將燃料與氧化劑轉化成為反應產物之電解質分開。該電極包括一含有較佳係氧化鋯與氧化鈾之混合物且具有黃金被以有效催化之形式捕捉於其上之氧化物載體之催化劑。該燃料為甲醇或甲烷。

英文發明摘要（發明之名稱：A fuel cell for conversion of a fuel and an oxidant into a reaction product and a catalyst for use in said fuel cell

A fuel cell comprises two electrodes separated by an electrolyte for conversion of a fuel and an oxidant to a reaction product. The electrode or electrodes include a catalyst comprising an oxide support preferably being a mixture of zirconium oxide and cerium oxide, having gold captured thereon in catalytically effective form. The fuel is methanol or methane.

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄）

裝訂線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

公告本

修正 1
補充 本 年 月 日

六、申請專利範圍

- 1.一種燃料電池，其含有二個電極，該電極被用於將燃料與氧化劑轉化成反應產物之電解質所分開，其特徵在於該電極包括一催化劑，其含有具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上之氧化物載體，且其特徵在於該燃料為甲醇或甲烷。
- 2.根據申請專利範圍第 1 項之燃料電池，其中該催化劑係含有為氧化鋯與氧化鈾混合物之氧化物載體，其具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上，氧化物載體存在於催化劑中之量係佔催化劑重量之至少 50%。
- 3.根據申請專利範圍第 2 項之燃料電池，其中該氧化物載體存在於催化劑中之量係佔催化劑重量之至少 60%。
- 4.根據申請專利範圍第 2 項之燃料電池，其中該氧化鈾對氧化鋯之重量比係在 5：1 至 2：1。
- 5.根據申請專利範圍第 1 項之燃料電池，其中該催化劑亦含有形式為氧化物之過渡金屬。
- 6.根據申請專利範圍第 5 項之燃料電池，其中該過渡金屬氧化物係選自氧化鈷與氧化鐵。
- 7.根據申請專利範圍第 6 項之燃料電池，其中該黃金係與過渡金屬氧化物錯合。
- 8.根據申請專利範圍第 1 項之燃料電池，其中該催化劑係包括氧化鈦或氧化鉬。
- 9.一種催化劑，其含有具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上之氧化物載體，其係使用於含有二個電極之燃料電池上，該電極被用以轉化選自甲醇或甲烷之燃料與氧化

(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

劑成爲反應產物之電解質所分開，其中該催化劑係含有爲氧化鋯與氧化鈾混合物之氧化物載體，其具有黃金被以有效催化之形式捕捉於其上，氧化物載體存在於催化劑中之量係佔催化劑重量之至少 50%。

10.根據申請專利範圍第 9 項之催化劑，其中該氧化物載體存在於催化劑中之量係佔催化劑重量之至少 60%。

11.根據申請專利範圍第 9 項之催化劑，其中該氧化鈾對氧化鋯之重量比係在 5：1 至 2：1。

12.根據申請專利範圍第 9 項之催化劑，其中該催化劑亦含有形式爲氧化物之過渡金屬。

13.根據申請專利範圍第 12 項之催化劑，其中該過渡金屬氧化物係選自氧化鈷與氧化鐵。

14.根據申請專利範圍第 13 項之催化劑，其中該黃金係與過渡金屬氧化物錯合。

15.根據申請專利範圍第 9 項之催化劑，其中催化劑係包括氧化鈦或氧化鉬。

16.根據申請專利範圍第 1 項之燃料電池，其中燃料電池中作爲燃料之甲醇或甲烷之氧化作用係在含有具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上之氧化物載體之催化劑的存在下發生。

17.根據申請專利範圍第 1 或 16 項之燃料電池，其中該催化劑係含有爲氧化鋯與氧化鈾混合物之氧化物載體，其具有黃金以有效催化之形式捕捉於其上，氧化物載體存在於催化劑中之量係佔催化劑重量之至少 50%。

六、申請專利範圍

- 18.根據申請專利範圍第 17 項之燃料電池，其中該氧化物載體存在於催化劑中之量係佔催化劑重量之至少 60%。
- 19.根據申請專利範圍第 17 項之燃料電池，其中該氧化鈾對氧化鋯之重量比係在 5：1 至 2：1。
- 20.根據申請專利範圍第 16 項之燃料電池，其中該催化劑亦含有形式為氧化物之過渡金屬。
- 21.根據申請專利範圍第 20 項之燃料電池，其中該過渡金屬氧化物係選自氧化鈷與氧化鐵。
- 22.根據申請專利範圍第 21 項之燃料電池，其中該黃金係與過渡金屬氧化物錯合。
- 23.根據申請專利範圍第 16 項之燃料電池，其中該催化劑係包括氧化鈦或氧化鉬。

圖 1A

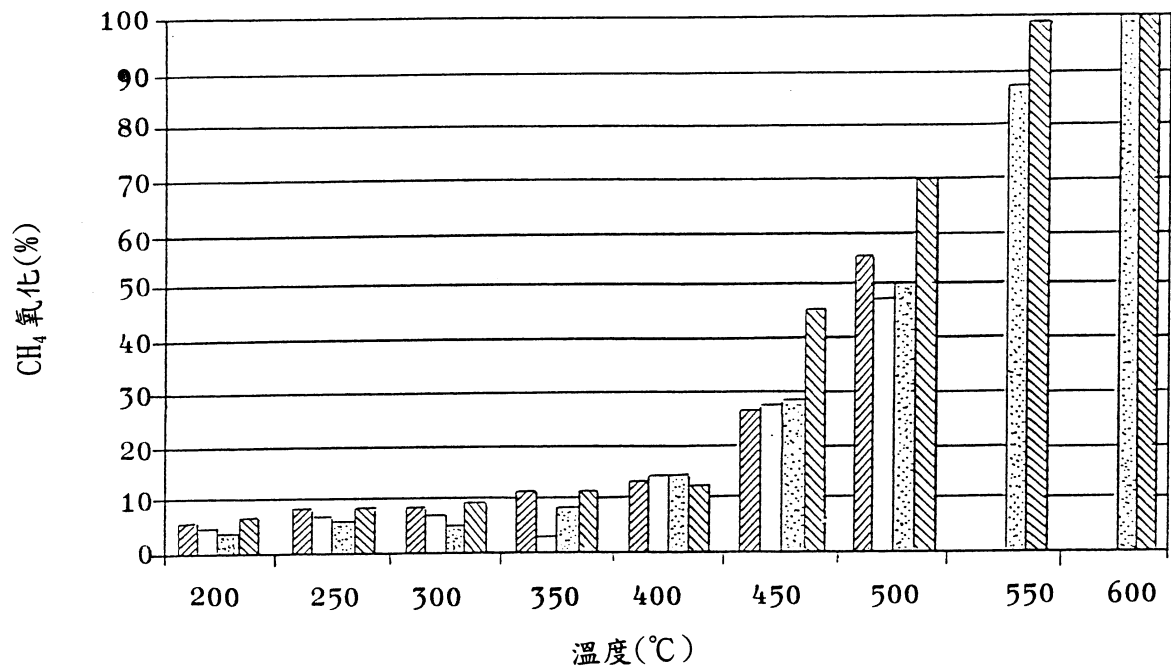


圖 1B

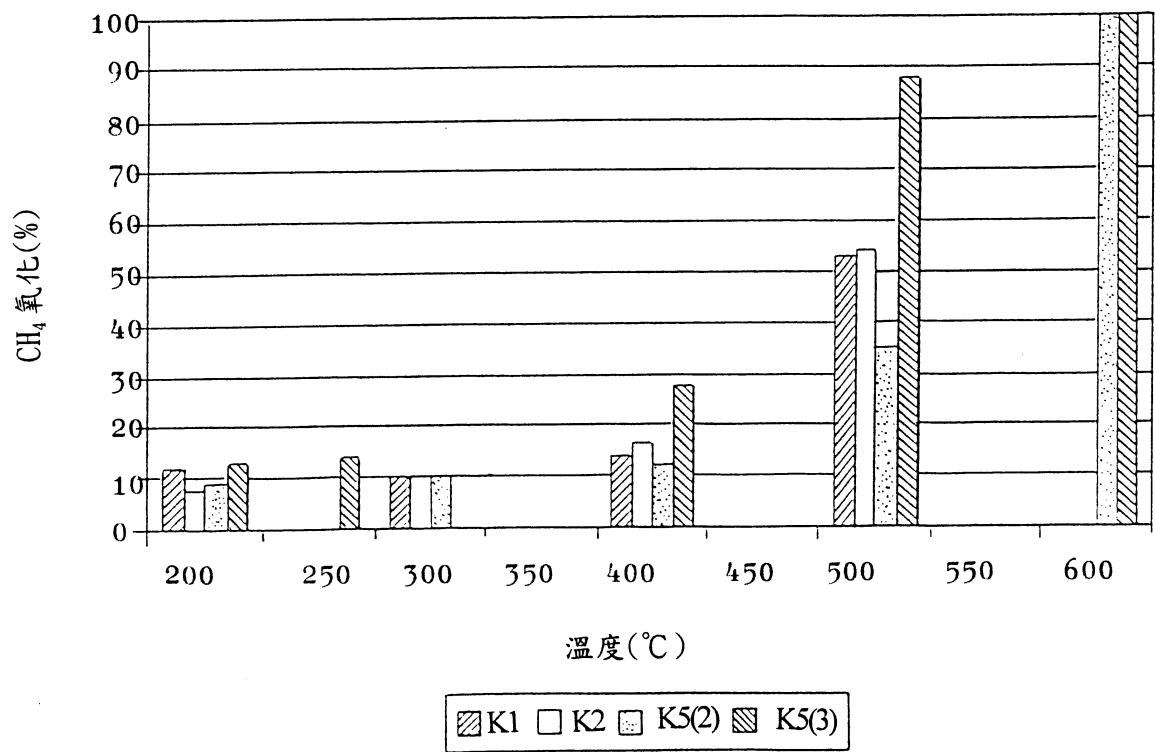


圖 2A

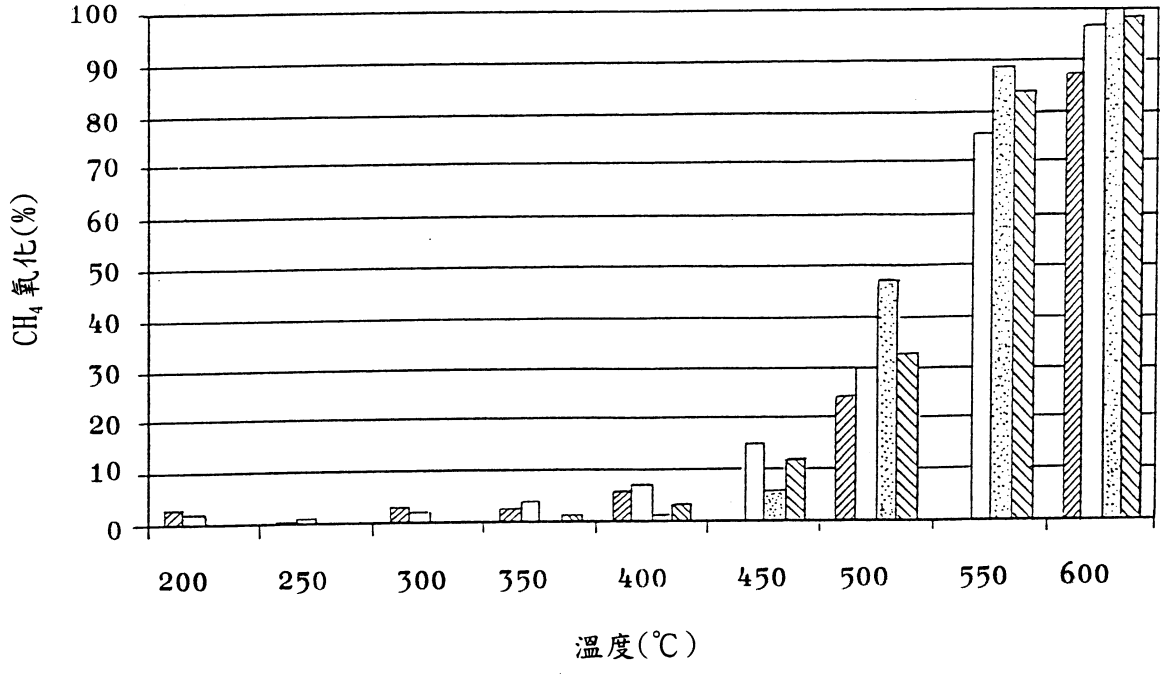


圖 2B

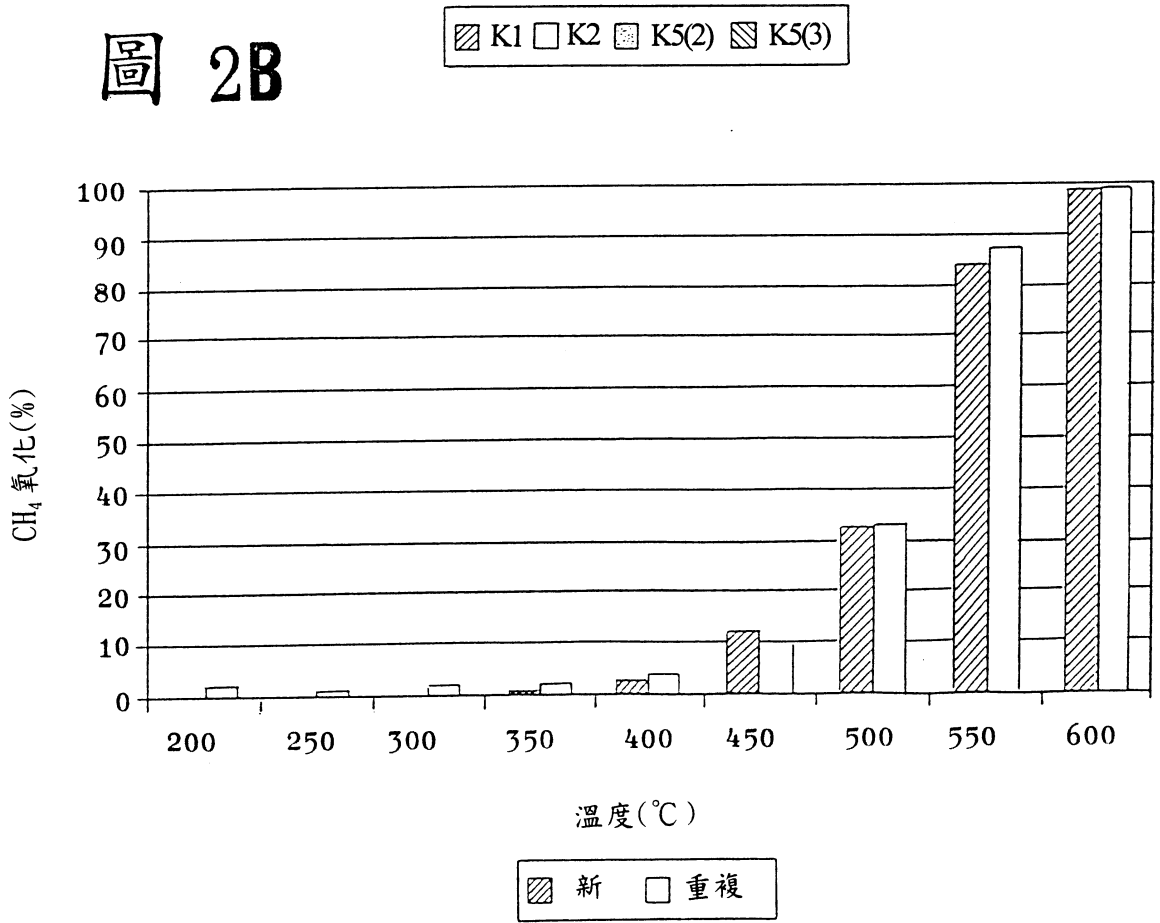


圖 3

