公告本

申請日期	99. 10. 18
案號	99121752
類別	C01C 1/04, B01J 23/46

A4
C4

（以上各欄由本局填註）

發明 新型 專利說明書 I225035

一、發明 新型 名稱	中文	用於製備氨及氨合成氣體的方法
	英文	Process for the preparation of ammonia and ammonia synthesis gas
二、發明 創作 人	姓名	克勞斯 J.H. 賈可巴森
	國籍	丹麥
	住、居所	丹麥,傑格皮瑞斯 DK-3630, 魯內斯汀 9 號
三、申請人	姓名（名稱）	哈爾德杜薩公司
	國籍	丹麥
	住、居所（事務所）	丹麥,寧格拜 DK-2800,尼摩爾伊維傑 55 號
	代表人姓名	喬吉歐 吉羅拉

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

裝 訂 線

（由本局填寫）

承辦人代碼：	A6 B6
大　　類：	
ＩＰＣ分類：	

本案已向：

國（地區）	申請專利，申請日期：	案號：	，□有 ☑無主張優先權
美	1999.10.29.	60/162,151	

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（ ）

本發明關於氨的合成，其係藉由使氨合成氣接觸氨觸媒，該觸媒具有支撐在金屬氮化物載體上之當作活性催化材料的釕。

技藝中已知道以釕爲基礎的觸媒用於由氨合成氣來合成氨(美國專利第 4,600,571 號、日本專利公開第 9168739 號及英國專利 2,033,766 號)。

爲了使昂貴的釕之必需量達成最小程度，該觸媒通常被支撐在一載體材料上以使得活性釕粒子之可接近的表面積達到最大程度。

已有人提出數種撐體適用於催化氨合成中，它們爲 MgO、Al_2O_3 和 $MgAl_2O_4$。目前，最活性的釕觸媒係那些被支撐在以石墨化碳當作載體材料上者。

然而，使用以碳爲基礎的撐體之一嚴重缺點爲在工業條件下容易被氫化。碳撐體慢慢地轉變成爲甲烷而導致撐體的逐漸損失，最後造成操作困難。

本發明之一般目的在於提供以釕爲基礎的氨合成觸媒，其以改良的氮化硼及/或氮化矽載體當作支撐材料。氮化物係與碳等電子的。氮化硼和氮化矽與碳同樣地以數種同素異形體存在著。這些同素異形體之一爲石墨形式，通常稱爲白石墨。與碳相反的是，氮化硼及氮化矽在工業氨合成條件下爲熱力學上安定。

BN 和 Si_3N_4 皆可獲得爲高表面積材料(>25m^2/g)且藉由技藝中所知的方法形成形爲適當的載體。

經促進的釕觸媒(被 BN 和 Si_3N_4 所支撐)在催化氨合成

（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
本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

五、發明說明（ ）

期間係完全安定的。

因此，本發明利用氮化硼及/或氮化矽當作氨觸媒的觸媒載體，該觸媒以釕當作氨合成中的活性催化材料。

BN 或 Si_3N_4 可由商業製法獲得或可依技藝中已知的方法製備得。氮化物撐體的表面積較佳爲在 25m^2/g 以上。另可選擇地，可由 Si 和 B 先質獲得氮化物撐體，該先質在以氨處理期間會轉變成爲氮化物。

藉由習知方法將釕導引到撐體上，例如藉由用一適當的含釕之化合物如氯化物或醋酸鹽作浸漬。

在促進之前，可用還原氣如氫或合成氣作處理以將觸媒還原。

可用促進劑之鹽作浸漬以進行促進。促進劑係選自於已知的氨合成觸媒促進劑，即鹼金屬或鹼土金屬或來自稀土金屬者。

可依序或一起地導入促進劑。

實例

實例 1

觸媒之製備

用亞硝基硝酸釕浸漬氮化硼撐體(六角形，表面積 85m^2/g，X 射線繞射所測得的晶體大小 7.5nm)，以獲得 5 重量%的釕濃度。浸過的樣品在 80℃乾燥，及在 450℃的二氫流中被還原。此樣品被標記爲 5RuBN。

同樣地製備另一樣品，但是其含有 7 重量%Ru。此樣品被標記爲 7RuBN。觸媒密度大約 1.5 克/毫升。

（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
本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

五、發明說明（7）

實例 2

觸媒的銫促進

用硝酸銫水溶液浸漬 5RuBN 和 7RuBN，以獲得 3 重量%的銫濃度。樣品分別被標記爲 3Cs5RuBN 和 3Cs7RuBN。

實例 3

觸媒的鋇促進

用硝酸鋇水溶液浸漬 5RuBN 和 7RuBN，以獲得 3 重量%的鋇濃度。樣品分別被標記爲 3Ba5RuBN 和 3Ba7RuBN。

實例 4

觸媒的試驗

在 100 巴和 400℃操作的等溫塞流反應器中試驗觸媒。入口氣體含有 4.5%氨在 3:1 的二氫/二氮混合物中。調整流量以在出口處獲得 12%氨。在這些條件下，觸媒以不同速率製造氨，以每小時每克觸媒製造的毫升氨表示：

觸媒	毫升 NH_3(克•小時)
5RuBN	140
7RuBN	190
3Cs5RuBN	1150
3Cs7RuBN	1320
3Ba5RuBN	4600
3Ba7RuBN	4930

實例 5

觸媒的熱安定性

爲了測量觸媒的熱安定性，所以在反應器內將

（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
本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

五、發明說明（4）

3Ba5RuBN 和 3Ba5RuBN 加熱至 550℃歷 1000 小時。在這些條件下，氨的出口濃度係約 7.0%。在此處理後，再度試驗觸媒：

觸媒	毫升 NH_3(克•小時)
3Ba5RuBN	4580
3Ba7RuBN	4960

實例 6

觸媒的鈍化及再活化

爲了判斷在鈍化後觸媒是否可被再活化，所以用在 N_2 中的 1000 ppm O_2 於室溫處理實例 5(3Ba5RuBN)之觸媒歷 10 小時，而然後再曝於環境溫度下。然後，將其裝入反應器中，在同等條件下再度試驗：

觸媒	毫升 NH_3(克•小時)
3Ba5RuBN	4610

（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

本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

A5
B5

四、中文發明摘要（發明之名稱：　　）

用於製備氨及氨合成氣體的方法

一種由氨合成氣製備氨之方法，其係藉由使合成氣在氨形成條件下接觸一種觸媒，此觸媒包括以釕當作活性催化材料被支撐在氮化硼及/或氮化矽載體上。

英文發明摘要（發明之名稱：Process for the preparation of ammonia and ammonia synthesis gas）

Process for the preparation of ammonia from ammonia synthesis gas by contacting the synthesis gas with ammonia forming conditions with a catalyst comprising ruthenium as the active catalytic material supported on a carrier of boron nitride and/or silicon nitride.

（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

本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

修正 93.3.1

公 告 本

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

1.一種由氨合成氣製備氨之方法，其包括使合成氣在氨形成條件下接觸一種觸媒，此觸媒包括以釩當作活性催化材料被支撐在氮化硼及/或氮化矽載體上，其中載體被形成爲具有大於 $25m^2/g$ 之表面積。

2.如申請專利範圍第 1 項之方法，其中釩被浸漬於載體中。

3.如申請專利範圍第 1 項之方法，其中載體爲選自由氮化硼及氮化矽所組成之族群中。

4.如申請專利範圍第 1 項之方法，其中觸媒已經使用選自包含鹼金屬，鹼土金屬及烯土金屬之金屬的金屬鹽浸漬來進行促進。

5.如申請專利範圍第 4 項之方法，其中觸媒係使用銫促進。

6.如申請專利範圍第 4 項之方法，其中觸媒係使用鋇促進。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
線

本紙張尺度適用中國國家標準(CNS)A4規格(210×297公釐)