

(19)



**Евразийское  
патентное  
ведомство**

(11) **045817**

(13) **B1**

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

(45) Дата публикации и выдачи патента  
**2023.12.28**

(21) Номер заявки  
**202191639**

(22) Дата подачи заявки  
**2019.11.19**

(51) Int. Cl. **B01J 21/00** (2006.01)  
**B01J 23/00** (2006.01)  
**B01J 23/04** (2006.01)  
**B01J 23/42** (2006.01)  
**B01J 23/44** (2006.01)  
**B01J 23/46** (2006.01)  
**B01J 23/54** (2006.01)  
**B01J 23/58** (2006.01)  
**B01J 8/06** (2006.01)  
**B01J 35/02** (2006.01)  
**B01J 8/02** (2006.01)

---

(54) **ФОРМА ЧАСТИЦ КАТАЛИЗАТОРА**

---

(31) **РА 2018 00993**

(32) **2018.12.12**

(33) **DK**

(43) **2021.09.23**

(86) **РСТ/EP2019/081780**

(87) **WO 2020/120078 2020.06.18**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:  
**ХАЛЬДОР ТОПСЕЭ А/С (DK)**

(72) Изобретатель:  
**Белstrup Моритц Бо, Рабек Петер,  
Эстберг Мартин (DK)**

(74) Представитель:  
**Квашнин В.П. (RU)**

(56) EP-A1-0678331  
EP-A1-2323762  
EP-A1-0593646  
EP-A1-2342014  
US-B2-7246795  
US-A-5371277  
US-A1-2016279587  
EP-A1-0206535

---

(57) Представляется каталитическая система, которая включает трубчатый реактор и, по меньшей мере, одну частицу катализатора, расположенную внутри трубчатого реактора. Частицы катализатора имеют особую геометрическую форму, которая способствует теплопередаче в трубчатом реакторе. Также представляются некоторые определенные частицы катализатора.

---

**B1**

**045817**

**045817**  
**B1**

### Область техники

Представляется каталитическая система, которая включает трубчатый реактор и, по меньшей мере, одну частицу катализатора, расположенную внутри трубчатого реактора. Частицы катализатора имеют особую геометрическую форму, которая способствует теплопередаче в трубчатом реакторе. Также представляются некоторые определенные частицы катализатора.

### Уровень техники настоящего изобретения

Трубчатые реакторы, содержащие частицы катализатора, используются во многих промышленных химических процессах, включая паровой риформинг. Ключевые параметры эффективного функционирования таких трубчатых реакторов включают, например, укладку частиц катализатора в реакторе, эффективность переноса материала через реактор и передача тепла от поверхности трубчатого реактора к частицам катализатора в процессе эндотермической реакции, такой как паровой риформинг и передача тепла от частиц катализатора к поверхности трубчатого реактора в процессе экзотермической реакции, такой как синтез метанола или селективное окисление.

Настоящая технология относится к каталитическим реакторам, в которых передача тепла является важной частью, определяющей общие характеристики, как в случае сильно эндотермических реакций или экзотермических реакций. По своей природе продукт данных реакций максимально образуется при высокой температуре для эндотермических реакций и при низких температурах для экзотермических реакций, что означает, что эффективная передача тепла имеет решающее значение для общей производительности процесса.

Некоторые технологии (например, WO2004/014549) сосредоточены на повышении эффективности химических процессов за счет использования определенного соотношения между диаметром и высотой каталитических частиц. Другие технологии, например US7799730 включают канавки на теле катализатора, в то время как другие технологии (например, US3911070) описывают определенные материалы, подходящие для процесса экструзии.

Дополнительно, частицы катализатора часто производят посредством экструзии. Это придает им в основном постоянную форму поперечного сечения по длине и в основном плоские торцевые поверхности. Однако наличие плоских поверхностей может позволить частицам катализатора плотно упаковываться и потенциально блокировать поток газа на указанных плоских поверхностях; особенно, если указанные плоские торцевые поверхности содержат газовые каналы.

Другой потенциальной проблемой, характерной для трубчатых реакторов, содержащих каталитические частицы, является то, что каталитические частицы могут образовывать "своды" во внутреннем пространстве трубчатого реактора от одной внутренней поверхности к другой. Данное явление может вызвать плохую упаковку реакторов, когда такие реакторы заполнены частицами. В реакторах с несколькими параллельными трубчатыми реакторами это также может привести к неравномерному распределению потока между реакторами и тем самым серьезно повлиять на общую производительность. Настоящая технология направлена на решение вышеупомянутых проблем.

### Сущность изобретения

Было обнаружено, что конкретное соотношение между формой каталитических частиц и формой трубчатого реактора может улучшить передачу тепла из указанного реактора. Настоящая технология, таким образом, относится к каталитической системе, включающей трубчатый реактор и по меньшей мере одну частицу катализатора согласно прилагаемой формуле изобретения.

Кроме того, предоставляются каталитические частицы новой формы в соответствии с прилагаемой формулой изобретения.

Пояснения к фигурам

На фиг. 1 показана частица катализатора согласно первому варианту осуществления изобретения.

Фиг. 2 представляет собой проекцию по методу третьего угла (многовидовую) частицы с фиг. 1, с видами на торцевую поверхность, первую боковую поверхность и третью боковую поверхность.

На фиг. 3 показана частица катализатора согласно первому варианту осуществления изобретения, имеющая выпуклые торцевые поверхности.

Фиг. 4 представляет собой проекцию по методу третьего угла (многовидовую) частицы с фиг. 3, с видами на торцевую поверхность, первую боковую поверхность и третью боковую поверхность.

На фиг. 5 показана частица катализатора согласно второму варианту осуществления изобретения, имеющая эллиптическое поперечное сечение и выпуклые торцевые поверхности.

Фиг. 6 представляет собой проекцию по методу третьего угла (многовидовую) частицы с фиг. 5, с видами на торцевую поверхность, первую боковую поверхность и третью боковую поверхность.

На фиг. 7 показана частица катализатора согласно дополнительному варианту осуществления изобретения, имеющая поперечное сечение "закругленный треугольник".

Фиг. 8 представляет собой проекцию по методу третьего угла (многовидовую) частицы с фиг. 7.

На фиг. 9 показана каталитическая система по изобретению, в которой частицы катализатора расположены в трубчатом реакторе.

Фиг. 10 представляет собой схематическое поперечное сечение трубчатого реактора с фиг. 9, сделанное перпендикулярно оси А-А, показывающее взаимосвязь между частицей катализатора и внутрен-

ней поверхностью трубчатого реактора.

Фиг. 11 представляет собой увеличенный вид части фиг. 10, показывающий частицу катализатора, расположенную напротив внутренней поверхности трубчатого реактора.

Фиг. 12 и 13 представляют собой увеличенные виды поперечного сечения частицы согласно первому варианту осуществления, показывающие, как определяется радиус кривизны R1, R2, R3 и R4.

#### **Подробное раскрытие настоящего изобретения**

##### **Определения**

При использовании в отношении различных торцевых поверхностей или боковых стенок в данном документе термин "противолежащие" используется для обозначения двух торцевых поверхностей или боковых стенок, которые расположены на противоположных концах линии, идущей от одной из указанных торцевых поверхностей или боковых стенок через центр частицы к "противолежащей" торцевой поверхности или боковой стенке в плоскости, сформированной перпендикулярно центральной оси L.

Когда поверхность или элемент настоящей технологии имеет конкретный "радиус кривизны", он определяется как радиус круга, который лучше всего подходит к его нормальному сечению. Радиус кривизны в данном случае используется для обозначения того, что указанная поверхность или элемент имеет правильный круглый профиль, по меньшей мере на его части. На фиг. 12 и 13 показано, как можно определить радиус кривизны.

##### **Каталитическая система**

В первом варианте осуществления предоставляется каталитическая система 100. Каталитическая система 100 подходящим образом представляет собой установку парового риформинга, но может быть и другой системой, имеющей трубчатый реактор и частицы катализатора, в которых важна теплопередача между реактором и частицами. Передача тепла может происходить от трубчатого реактора к частицам катализатора или наоборот.

Каталитическая система включает трубчатый реактор 20, в основном показанный на фиг. 9. Трубчатый реактор имеет цилиндрическую форму вокруг оси A-A; и изготовлен из подходящего металла или металлического сплава. Поскольку трубчатый реактор 20 имеет "цилиндрическую форму", он имеет постоянное круглое поперечное сечение вдоль значительной части своей длины с центром вокруг оси A-A.

Трубчатый реактор 20 в настоящей технологии имеет длину вдоль оси A-A, а также внутренний диаметр D и внутренний радиус кривизны R, определенные в плоскости, перпендикулярной оси A-A. Обычно длина реактора составляет между 3 и 15 м, предпочтительно между 10 и 13 м. Обычно внутренний диаметр D составляет между 5 и 25 см, предпочтительно между 7,5 и 15 см, в то время как радиус кривизны составляет  $1/2 \times D$ . D и R показаны на фиг. 10.

Обычно имеется несколько трубчатых реакторов, помещаемых либо в пламенную печь для эндотермических реакций, либо в охлаждаемый сосуд для экзотермических реакций. Охлаждающей средой в охлаждаемом сосуде может быть испаряющаяся вода, небольшие псевдооживленные инертные частицы, расплавленные соли или жидкие масла с высокими температурами кипения. Пламенную печь обогревают топливом или отходящим технологическим газом, сжигаемым с окислителем, обычно воздухом, с использованием нескольких горелок.

Трубчатый реактор 20 снабжен одним или несколькими входами и одним или несколькими выходами для газа. В частном варианте осуществления трубчатый реактор 20 представляет собой реактор парового риформинга метана.

В трубчатом реакторе 20 находится по меньшей мере одна частица катализатора 10. В стандартных условиях в трубчатом реакторе находится от 100 до 100000, предпочтительно от 500 до 60000 частиц катализатора 10. Заполнение трубчатого реактора 20 частицами катализатора показано на фиг. 9.

Частицы катализатора могут полностью состоять из каталитически активного материала; в качестве альтернативы частицы катализатора могут содержать материал-носитель, на который нанесен, пропитан или иным образом введен каталитически активный материал. Частица катализатора может быть пористой, и в этом случае она может иметь пористость от 20% до 65%, предпочтительно от 40% до 55%.

Подходящие каталитические материалы для настоящей технологии включают алюминаты, алюминаты кальция, алюминаты магния, оксид церия, диоксид циркония и их комбинации с никелем, кобальтом, рутением, палладием, родием, платиной или их комбинациями, в качестве активного металла с использованием промоторов, таких как лантан, титан, калий, цезий. Частицы катализатора могут быть получены экструдированием, но предпочтительно формованием или печатью на 3D-принтере.

В первом аспекте данного варианта осуществления каждая частица катализатора 10 имеет трехмерную форму с центральной осью длины L. Каждая частица катализатора 10 имеет по меньшей мере одну плоскость симметрии, которая включает центральную ось длины L. Предпочтительно каждая частица катализатора 10 имеет две перпендикулярные плоскости симметрии, которые пересекаются на центральной оси длины L.

Обычно длина частицы катализатора 10 по оси длины L составляет между 6 и 50 мм, предпочтительно между 11 и 25 мм.

Каждая частица катализатора 10 содержит первую торцевую поверхность 18 и вторую торцевую поверхность 19. Как показано на фиг. 1-4, указанные торцевые поверхности 18, 19 определяют границы

частицы катализатора 10 в направлении центральной оси длины L. Торцевые поверхности 18, 19 расположены перпендикулярно указанной центральной оси L, по меньшей мере в области, в которой они встречаются с указанной центральной осью L.

В одном варианте осуществления, показанном на фиг. 1-2, торцевые поверхности 18, 19 являются плоскими. Этот вариант осуществления имеет преимущество, заключающееся в том, что он может быть легко произведен.

В другом варианте осуществления по меньшей мере одна из указанной первой торцевой поверхности 18 и указанной второй торцевой поверхности 19 указанной частицы катализатора 10 имеет выпуклую форму, так что образует изогнутую первую и вторую торцевые поверхности 18', 19' указанной частицы катализатора 10. Таким образом, уменьшается количество плоских (планарных) поверхностей, что, в свою очередь, снижает возможность для соседних частиц катализатора блокировать поток газа на указанных плоских поверхностях.

Предпочтительно как первая торцевая поверхность 18, так и указанная вторая торцевая поверхность 19 имеют выпуклую форму, как в варианте осуществления, показанном на фиг. 3-4.

Каждая частица катализатора 10 в данном аспекте изобретения содержит первую 11 и вторую 12 боковые стенки, проходящие между первой и второй торцевыми поверхностями 18, 19. Соответственно, первая 11 и вторая 12 боковые стенки являются противоположащими. Каждая боковая стенка 11, 12 имеет изогнутый профиль (то есть форму правильного кругового сегмента) в поперечном сечении, перпендикулярном центральной оси L. Первая боковая стенка 11 имеет внешний радиус кривизны R1, а вторая боковая стенка 12 имеет внешний радиус кривизны R2. Определение R1 и R2 показано на фиг. 13.

Радиус кривизны R1 может быть таким же, как и радиус кривизны R2, или отличаться от него. В предпочтительном варианте осуществления внешние радиусы кривизны R1, R2 каждой из первой и второй боковых стенок 11, 12 одинаковы, что упрощает упаковку трубчатого реактора и упрощает производство частиц. Радиус кривизны R1 обычно составляет между 15 и 75 мм. Радиус кривизны R2 обычно составляет между 15 и 75 мм.

Было обнаружено, что улучшенная теплопередача между трубчатым реактором и частицами катализатора может быть достигнута, если оптимизирована их относительная геометрия. Желательно, чтобы кривизна частиц катализатора соответствовала кривизне трубчатого реактора на определенной длине дуги. Однако нежелательно, чтобы кривизна частиц катализатора была точно такой же, как кривизна трубчатого реактора.

Поэтому, согласно данному аспекту каждая первая и вторая боковые стенки 11, 12 частицы катализатора 10 независимо имеют внешний радиус кривизны R1, R2 в указанной плоскости, составляющий 0,4-0,99 от внутреннего радиуса кривизны R трубчатого реактора.

Кроме того, чтобы уменьшить возникновение "сводообразования", описанного выше, максимальная ширина D1 частицы катализатора 10, измеренная в плоскости, определенной перпендикулярно основной оси L, должна быть менее 0,25 внутреннего диаметра D трубчатого реактора 20.

Частицы катализатора согласно данному первому аспекту имеют линзовидную форму поперечного сечения в направлении, перпендикулярном центральной оси длины L, как показано на фиг. 1-4.

"Центры" каждого радиуса кривизны R1, R2 лежат вне формы частицы катализатора 10, как показано на фиг. 13. Чтобы обеспечить линзовидную форму, каждый радиус кривизны R1, R2 меньше, чем размер частицы катализатора в плоскости, перпендикулярной центральной оси длины L. Другими словами,  $2 \times R1$  больше, чем D1; и  $2 \times R2$  больше, чем D1.

Первая и вторая боковые стенки 11, 12 могут образовывать резкую границу вдоль линии, где они встречаются друг с другом. Однако такая резкая граница имеет тенденцию быть точкой или линией ослабления частицы, вдоль которой она может расколоться или сломаться. Соответственно, частица катализатора 10 состоит из противоположащих первой 11 и второй 12 боковых стенок, проходящих между первой и второй торцевыми поверхностями 18, 19, и противоположащих третьей 13 и четвертой 14 боковых стенок, проходящих между первой и второй боковыми стенками 11, 12 и указанными первой и второй торцевыми поверхностями 18, 19.

Каждая третья и четвертая боковые стенки 13, 14 могут иметь изогнутый профиль в плоскости, определенной перпендикулярно центральной оси L. Такое расположение показано на фиг. 1-4.

Каждая из указанных третьей и четвертой боковых стенок 13, 14 независимо имеет относительно небольшой внешний радиус кривизны R3, R4, составляющий 0,05-0,30 от внутреннего радиуса кривизны R трубчатого реактора. Соответственно внешние радиусы кривизны R3, R4 каждой из третьей и четвертой боковых стенок 13, 14 являются одинаковыми. Определение R3 и R4 показано на фигуре 12.

В качестве альтернативы каждая из указанных третьей и четвертой боковых стенок 13, 14 независимо имеет эллиптический профиль в поперечном сечении, перпендикулярном центральной оси L. Эллиптический профиль плавно изменяется с градиентом по своей кривизне.

Чтобы избежать резких границ, переход между первой 11, второй 12, третьей 13 и четвертой 14 боковыми стенками предпочтительно должен быть плавным. "Плавный" переход между двумя поверхностями (например, боковыми стенками) достигается, когда нет резких изменений ориентации указанных поверхностей. В математических терминах это означает, что производная (= градиент) первой поверхно-

сти такая же, как и производная второй поверхности в точке или линии, где поверхности встречаются. Обычно поверхности двух смежных боковых стенок частицы, описанной здесь, являются "плавными" в направлении, параллельном центральной оси частицы.

В одном варианте данного первого аспекта частица катализатора 10 может иметь поперечное сечение в форме "закругленного треугольника" (также известного как треугольник Рело). В этом аспекте частица катализатора 10 содержит первую 11, вторую 12 и третью 15 боковые стенки, проходящие между первой и второй торцевыми поверхностями 18, 19. Каждая из упомянутых боковых стенок 11, 12, 15 имеет изогнутый профиль в поперечном сечении, перпендикулярном центральной оси L. Каждая первая, вторая и третья боковые стенки 11, 12, 15 независимо друг от друга имеют внешний радиус кривизны R1, R2, R3 в указанной плоскости, составляющий 0,5-0,99 от внутреннего радиуса кривизны R трубчатого реактора 10. Такая частица катализатора показана на фигурах 7-8.

Также, согласно данному аспекту, первая 11, вторая 12 и третья 15 боковые стенки могут встречаться с резкой границей. Однако предпочтительно, чтобы переход между первой 11, второй 12 и третьей 15 боковыми стенками был плавным.

Также в данном аспекте "закругленного треугольника" по меньшей мере одна из указанной первой торцевой поверхности 18 и указанной второй торцевой поверхности 19 может иметь выпуклую форму, так что образует изогнутые первую и/или вторую торцевые поверхности 18', 19' частицы катализатора 10.

Во втором аспекте данного варианта осуществления предоставляется каталитическая система 100, которая включает трубчатый реактор 20, как описано выше, имеющий цилиндрическую форму вокруг оси А-А; внутреннюю поверхность указанного трубчатого реактора, имеющую внутренний диаметр D и внутренний радиус кривизны R, определенные в плоскости, перпендикулярной оси А-А.

В указанном трубчатом реакторе 20 находится по меньшей мере одна частица катализатора 30. Частица катализатора данного второго аспекта показана на фиг. 5-6. Частица катализатора 30 имеет трехмерную форму, содержащую основную часть 31. Основная часть 31 имеет форму эллиптического цилиндра и содержит боковую стенку 32, проходящую параллельно центральной оси L между первой торцевой поверхностью 33 и второй торцевой поверхностью 34. Другими словами, основная часть 31 ограничена на концах первой и второй торцевыми поверхностями 33, 34 и единственной боковой стенкой 32, которая проходит полностью вокруг основной части 31.

Что касается первого аспекта, то первая торцевая поверхность 33 и вторая торцевая поверхность 34 расположены перпендикулярно указанной центральной оси L, по меньшей мере в области, в которой они пересекают указанную центральную ось L. Соответственно, торцевые поверхности 33, 34 могут быть плоскими. Этот вариант осуществления имеет преимущество, заключающееся в том, что он может быть легко произведен. Альтернативно по меньшей мере одна из указанной первой торцевой поверхности 33 и указанной второй торцевой поверхности 34 указанной частицы катализатора 30 имеет выпуклую форму, так что образует изогнутую первую и вторую торцевые поверхности 33', 34' указанной частицы катализатора 30. Таким образом уменьшается количество плоских (планарных) поверхностей, что, в свою очередь, снижает возможность для соседних частиц катализатора блокировать поток газа на указанных плоских поверхностях.

Предпочтительно, как первая торцевая поверхность 33', так и указанная вторая торцевая поверхность 34' имеют выпуклую форму, как в варианте осуществления, показанном на фиг. 5-6.

Этот аспект отличается от первого аспекта, приведенного выше, тем, что основная часть 31 частицы катализатора 30 имеет форму эллиптического цилиндра. Используя стандартное математическое определение эллипса, это означает, что кривизна плавно меняет градиент вдоль его кривизны. Эллипс указанного эллиптического цилиндра имеет большую ось 2a и малую ось 2b, а также радиус кривизны R5, определяемый как:

$$R5 = \frac{a^2}{b}$$

Подобно первому аспекту выше, улучшенная теплопередача между трубчатым реактором и частицами катализатора может быть достигнута, если оптимизирована их относительная геометрия. В данном аспекте радиус кривизны R5 эллипса, как определено выше, составляет 0,8-1,10, предпочтительно 0,90-1,05, от внутреннего радиуса кривизны R трубчатого реактора.

Также в данном аспекте максимальная ширина D1 частицы катализатора 30, измеренная в плоскости, определенной перпендикулярно указанной центральной оси L, составляет менее 0,25 внутреннего диаметра D1 трубчатого реактора 20. Соответственно, данную максимальную ширину D1 частицы катализатора 30 измеряют по большой полуоси a указанного эллипса в плоскости, перпендикулярной указанной центральной оси L.

Подобно первому аспекту выше, по меньшей мере одна из указанной первой торцевой поверхности 33 и указанной второй торцевой поверхности 34 частицы катализатора 30 может иметь выпуклую форму, так что образует изогнутую первую и вторую торцевые поверхности 33', 34' указанной частицы катализатора 30.

Все другие особенности каталитической системы, трубчатого реактора и частиц катализатора во

втором аспекте изобретения такие же, как и в первом аспекте, если не указано иное.

Частицы катализатора

Во втором варианте осуществления, который может быть частично включен в первый вариант осуществления, настоящая технология также касается частиц катализатора как таковых.

В первом аспекте данного варианта осуществления предоставляется частица катализатора 10, которая имеет трехмерную форму с центральной осью длины L. С отсылкой на фиг. 1-4, каждая частица катализатора 10 имеет:

первую торцевую поверхность 18 и вторую торцевую поверхность 19, расположенные в основном перпендикулярно указанной центральной оси L,

противолежащие первую 11 и вторую 12 боковые стенки, проходящие между первой и второй торцевыми поверхностями, каждая боковая стенка 11, 12 имеет выпуклый профиль в плоскости, определенной перпендикулярно центральной оси L, при этом каждая из указанных первой и второй боковых стенок 11, 12 независимо друг от друга имеет внешний радиус кривизны R2 в указанной плоскости,

противолежащие третью 13 и четвертую 14 боковые стенки, проходящие между первой и второй боковыми стенками 11, 12 и указанными первой и второй торцевыми поверхностями 18, 19, причем каждая третья и четвертая боковые стенки 13, 14 имеют выпуклый профиль в указанной плоскости, определенной перпендикулярно центральной оси L.

Либо каждая из указанных третьей и четвертой боковых стенок 13, 14 независимо друг от друга имеет внешний радиус кривизны R3; R4 в указанной плоскости, либо каждая третья и четвертая боковые стенки 13, 14 имеют эллиптический профиль в указанной плоскости, определенной перпендикулярно центральной оси L.

Кроме того, радиус кривизны R1, R2 первой и второй боковых стенок больше, чем радиус кривизны R3, R4 третьей и четвертой боковых стенок.

Соответственно, для частицы катализатора 10 согласно данному аспекту радиусы кривизны R1, R2 каждой из первой и второй боковых стенок 11, 12 являются одинаковыми. Дополнительно радиусы кривизны R3, R4 каждой из третьей и четвертой боковых стенок 13, 14 могут быть одинаковыми.

Как показано на фигурах 3-4 первая торцевая поверхность 18 и указанная вторая торцевая поверхность 19 может иметь выпуклую форму, так что образует изогнутые первую и вторую торцевые поверхности 18', 19' указанной частицы катализатора 10.

Как и для первого варианта осуществления ("системы"), переход между первой 11, второй 12, третьей 13 и четвертой 14 боковыми стенками частицы катализатора 10 предпочтительно является плавным.

На фиг. 5-6 показан второй аспект данного второго варианта осуществления. Предоставляется частица катализатора 30, которая имеет трехмерную форму, содержащую основную часть 31. Основная часть 31 имеет форму эллиптического цилиндра и содержит боковую стенку 32, проходящую в направлении параллельном центральной оси L между первой торцевой поверхностью 33 и второй торцевой поверхностью 34. По меньшей мере одна (а предпочтительно обе) из указанной первой торцевой поверхности 33 и указанной второй торцевой поверхности 34 указанной частицы катализатора 30 имеет выпуклую форму, так что образует изогнутую первую и/или изогнутую вторую торцевые поверхности 33', 34' указанной частицы катализатора 30.

Частица катализатора (10, 30) по одному из пп. 15-20, представляющая собой формованную монокристаллическую частицу катализатора.

Во всех вариантах и аспектах частица катализатора 10, 30 может содержать один или несколько сквозных каналов 40. Сквозные каналы 40 увеличивают доступную площадь поверхности частиц 10, 30 и способствуют эффективному потоку газа. В проиллюстрированных вариантах осуществления сквозные каналы 40 проходят от первой торцевой поверхности 18, 33 частицы катализатора 10, 30 до второй торцевой поверхности 19, 34 частицы катализатора 10, 30.

Обычно каждая частица катализатора 10, 30 содержит два или более, например два, три, четыре или пять сквозных каналов 40. Чтобы газовый поток через каждый сквозной канал 40 был равномерным, каждый из указанных сквозных каналов 40 предпочтительно имеет в основном одинаковую площадь поперечного сечения. Каждый сквозной канал 40 может иметь цилиндрическую форму.

Настоящее изобретение также предоставляет применение описанных здесь частиц катализатора 10, 30 в реакторе парового риформинга метана.

Все другие характеристики частиц катализатора в первом и втором аспектах второго варианта осуществления изобретения такие же, как и в первом варианте осуществления, если не указано иное.

#### Примеры

Влияние формы гранул катализатора на получаемую теплопередачу в трубчатом реакторе исследовали на экспериментальной установке, где частицы катализатора загружали в трубу реактора. Труба реактора имела внутренний диаметр 83 мм или 102 мм и нагревалась снаружи с использованием конденсирующегося пара на внешней поверхности трубы реактора по длине слоя катализатора. Использовали пар низкого давления, имеющий температуру конденсации около 157°C. Сжатый воздух используется в качестве сырья для реактора, что гарантирует отсутствие каталитических реакций. Затем при увеличении расхода воздуха выполняются измерения повышения температуры в реакторе вместе с падением давле-

ния по длине реактора.

Измерения были проведены для эталонных частиц катализатора:

Эталон #1

цилиндрические частицы,

керамический материал ( $MgAl_2O_4$ ),

размер частиц 16 мм цилиндрические частицы в высоту, с высотой 11 мм,

7 одинаковых сквозных отверстий, одно в центре и 6 симметрично окружающих центральное отверстие, с местами без отверстий параллельными оси симметрии частиц,

помимо данных частиц на керамической основе, изготавливают частицы из пластика, такого же размера и формы.

Эталон #2

цилиндрические частицы,

материал с пластиковым покрытием,

размер частиц 16 мм цилиндрические частицы в высоту, с высотой 11 мм,

7 одинаковых сквозных отверстий, одно в центре и 6 симметрично окружающих центральное отверстие, с местами без отверстий параллельными оси симметрии частиц,

помимо данных частиц на керамической основе, изготавливают частицы из пластика, такого же размера и формы.

Новые частицы катализатора

форма как на фиг. 1,

радиус первой (R1) и второй плоскостей (R2) составляет 19,85 мм, а радиус третьей (R3) и четвертой (R4) плоскостей - 5,7 мм,

также частицы имеют длину 22,8 мм (D1) с расстоянием 13,8 мм между первой и второй плоскостями, измеренным через центральную ось, перпендикулярную длине,

частицы имеют 6 отверстий каждое 4,0 мм в диаметре,

верхняя и нижняя торцевые поверхности скруглены с радиусом 38,5 мм.

Испытания проводятся с использованием как гранул из пластика (эталон #2), так и частиц на керамической основе (эталон #1), и те и другие одинакового размера и формы. В то время как пластиковые гранулы являются имитациями для этого типа испытаний, керамические частицы изготавливаются в качестве материалов-носителей для каталитически активных частиц только без добавления фаз активного металла.

На основании измеренных данных расхода воздуха, температуры на входе и выходе из реактора, перепада давления в реакторе, длины каталитического слоя и размеров испытательной установки можно рассчитать расход воздуха вместе с удельным падением давления (падение давления на метр слоя катализатора) и полученную теплопередачу, приведенную для площади внутренней поверхности трубы, окружающей слой катализатора. Они приведены для трех типов катализаторов в таблице. Таблица показывает, что новая форма катализатора улучшает коэффициент теплопередачи как функцию относительного падения давления.

Константы равновесия и углеродные потенциалы согласно условию III			
Тип гранул	Расход	Падение давления	Теплопередача
	нм <sup>3</sup> /ч	кПа/м	кДж/м <sup>2</sup> /К/ч
<b>Эталон #1 (материал-носитель)</b>	59,98	4,195	20,91
	119,94	11,687	37,19
	179,57	24,481	50,27
	239,80	39,653	62,73
	299,79	56,193	74,33
	359,80	73,852	83,67
	419,81	91,430	92,96
	480,17	111,362	100,70

<b>Эталон #2 (частицы с пластиковым покрытием)</b>	60,01	6,582	27,78
	120,00	20,521	48,57
	180,20	42,229	65,20
	239,99	67,879	80,57
	299,87	93,351	93,67
	360,48	120,359	105,51
	420,99	147,010	115,71
	480,00	174,780	124,76
	420,99	147,010	115,71
	480,00	174,780	124,76
	<b>Новые формы катализатора</b>	59,84	6,304
119,91		19,765	49,91
180,41		40,630	65,93
239,93		64,657	81,34
299,06		90,178	95,85
359,02		116,206	109,38
420,18		143,648	121,53
479,77		168,544	132,79

Из многочисленных экспериментов с различными частицами цилиндрической формы, включая вариации с отверстиями, было показано, что полученная теплопередача данных катализаторов практически всегда идентична в зависимости от измеренного перепада давления, но теплопередача, основанная на скорости потока, может быть разной для разных размеров, хотя также приводит к различным перепадам давления.

Данные, собранные для большого количества катализаторов различной формы и с разнообразием внутренних отверстий (по размеру и количеству), не показали существенной разницы в теплопередаче, и основным наблюдаемым фактором, влияющим на теплопередачу, была относительная кривизна.

Хотя настоящее изобретение было описано со ссылкой на ряд фигур, вариантов осуществления и аспектов, специалист в данной области техники способен скомбинировать признаки из указанных фигур, вариантов осуществления и аспектов, оставаясь в пределах объема прилагаемой формулы изобретения.

#### ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Каталитическая система (100), включающая:

а. трубчатый реактор (20), имеющий цилиндрическую форму вокруг оси А-А; внутреннюю поверхность указанного трубчатого реактора, имеющую внутренний диаметр  $D$  и внутренний радиус кривизны  $R$ , определенные в плоскости, перпендикулярной оси А-А;

б. по меньшей мере, одну частицу катализатора (10), расположенную в указанном трубчатом реакторе (20), причем частица катализатора (10) имеет трехмерную форму с центральной осью длины  $L$ , причем каждая частица катализатора (10) содержит:

первую торцевую поверхность (18) и вторую торцевую поверхность (19), расположенные перпендикулярно указанной центральной оси  $L$ , по меньшей мере в области, в которой они встречают указанную центральную ось  $L$ , и

первую (11) и вторую (12) боковые стенки, проходящие между первой и второй торцевыми поверхностями (18, 19), каждая из указанных боковых стенок (11, 12) имеет выпуклый профиль в поперечном сечении, перпендикулярном центральной оси  $L$ , причем указанные первая и вторая боковые стенки (11, 12) независимо друг от друга имеют внешний радиус кривизны  $R_1$ ,  $R_2$  в указанной плоскости, составляющий 0,4-0,99 от внутреннего радиуса кривизны  $R$  трубчатого реактора, и

причем максимальная ширина  $D_1$  частицы катализатора (10), измеренная в плоскости, определенной перпендикулярно центральной оси  $L$ , составляет менее 0,25 от внутреннего диаметра  $D$  трубчатого реактора (20), и причем  $2 \times R_1$  больше, чем  $D_1$ ; и  $2 \times R_2$  больше, чем  $D_1$ .

2. Каталитическая система (100) по п.1, причем внешние радиусы кривизны  $R_1$ ,  $R_2$  каждой из первой и второй боковых стенок (11, 12) являются одинаковыми.

3. Каталитическая система (100) по п.1 или 2, причем указанная частица катализатора (10) состоит из противоположащих первой (11) и второй (12) боковых стенок, проходящих между первой и второй торцевыми поверхностями (18, 19), и противоположащих третьей (13) и четвертой (14) боковых стенок, проходящих между первой и второй боковыми стенками (11, 12) и указанными первой и второй торцевыми поверхностями (18, 19), причем каждая третья и четвертая боковая стенка (13, 14) имеет выпуклый профиль в плоскости, определенной перпендикулярно центральной оси  $L$ ; причем каждая из указанных третьей и четвертой боковых стенок (13, 14) независимо друг от друга имеет внешний радиус кривизны  $R_3$ ,

R4, составляющий 0,05-0,30 от внутреннего радиуса кривизны R трубчатого реактора, или  
 причем каждая из указанных третьей и четвертой боковых стенок (13, 14) независимо друг от друга имеет эллиптический профиль в поперечном сечении, перпендикулярном центральной оси L.

4. Каталитическая система (100) по одному из пп.1-3, причем внешние радиусы кривизны R3, R4 каждой из третьей и четвертой боковых стенок (13, 14) являются одинаковыми.

5. Каталитическая система (100) по п.3 или 4, причем переход между первой (11), второй (12), третьей (13) и четвертой (14) боковыми стенками является плавным.

6. Каталитическая система (100) по п.1 или 2, причем указанная частица катализатора содержит первую (11), вторую (12) и третью (15) боковые стенки, проходящие между первой и второй торцевыми поверхностями (18, 19), каждая из указанных боковых стенок (11, 12, 15) имеет выпуклый профиль в поперечном сечении, перпендикулярном центральной оси L, причем указанные первая, вторая и третья боковые стенки (11, 12, 15) независимо друг от друга имеют внешний радиус кривизны R1, R2, R3 в указанной плоскости, составляющий 0,5-0,99 от внутреннего радиуса кривизны R трубчатого реактора (10).

7. Каталитическая система (100) по одному из пп.1-6, причем, по меньшей мере, одна из указанной первой торцевой поверхности (18) и указанной второй торцевой поверхности (19) указанной частицы катализатора (10) имеет выпуклую форму, так что образует изогнутую первую и/или вторую торцевые поверхности (18', 19') указанной частицы катализатора (10).

8. Каталитическая система (100), включающая:

a. трубчатый реактор (20), имеющий цилиндрическую форму вокруг оси А-А; внутреннюю поверхность указанного трубчатого реактора, имеющую внутренний диаметр D и внутренний радиус кривизны R, определенные в плоскости, перпендикулярной оси А-А;

b. по меньшей мере, одну частицу катализатора (30), расположенную в указанном трубчатом реакторе (20),

причем частица катализатора (30) имеет трехмерную форму, включающую основную часть (31); указанная основная часть (31) имеет форму эллиптического цилиндра и содержит боковую стенку (32), проходящую параллельно центральной оси L между первой торцевой поверхностью (33) и второй торцевой поверхностью (34); причем первая торцевая поверхность (33) и вторая торцевая поверхность (34) расположены перпендикулярно указанной центральной оси L, по меньшей мере в области, в которой они пересекают указанную центральную ось L; и

причем эллипс указанного эллиптического цилиндра имеет большую ось 2a и малую ось 2b, а также радиус кривизны R5, определяемый как:

$$R5 = \frac{a^2}{b}$$

составляющий 0,9-1,10, предпочтительно 0,9-1,10, от внутреннего радиуса кривизны R трубчатого реактора, и причем максимальная ширина D1 частицы катализатора (30), измеренная в плоскости, перпендикулярной указанной центральной оси L, составляет менее 0,25 от внутреннего диаметра D1 трубчатого реактора (20).

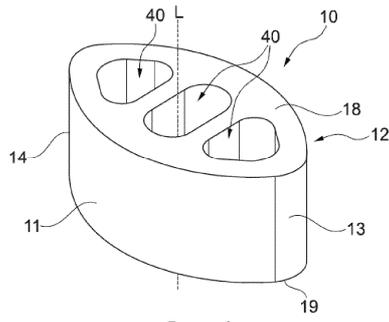
9. Каталитическая система (100) по п.8, причем максимальная ширина D1 частицы катализатора (30), измеренная по большой полуоси a указанного эллипса в плоскости, перпендикулярной указанной центральной оси L, составляет менее 0,25 от внутреннего диаметра D1 трубчатого реактора (20).

10. Каталитическая система (100) по п.8 или 9, причем, по меньшей мере, одна из указанной первой торцевой поверхности (33) и указанной второй торцевой поверхности (34) указанной частицы катализатора (30) имеет выпуклую форму, так что образует изогнутую первую и вторую торцевые поверхности (33', 34') указанной частицы катализатора (30).

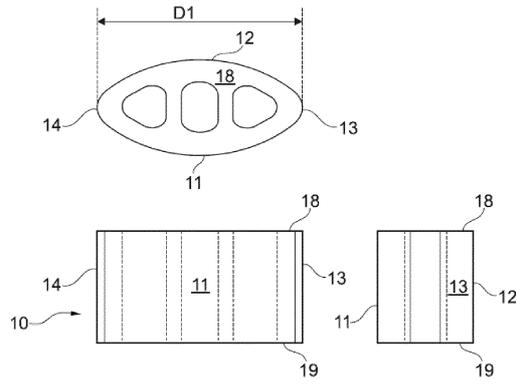
11. Каталитическая система (100) по одному из пп.1-10, причем частица катализатора (10, 30) содержит один или более сквозных каналов (40), проходящих от первой торцевой поверхности (18, 33) частицы катализатора (10, 30) до второй торцевой поверхности (19, 34) частицы катализатора (10, 30).

12. Каталитическая система (100) по п.10, причем частица катализатора (10, 30) содержит два или более сквозных каналов (40), каждый из указанных сквозных каналов (40) имеет в основном одинаковую площадь поперечного сечения.

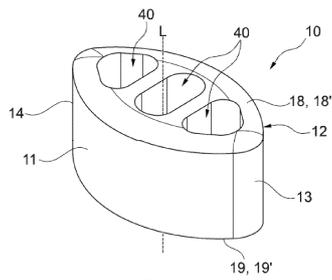
13. Каталитическая система (100) по одному из пп.1-12, причем трубчатый реактор (20) представляет собой реактор парового риформинга метана.



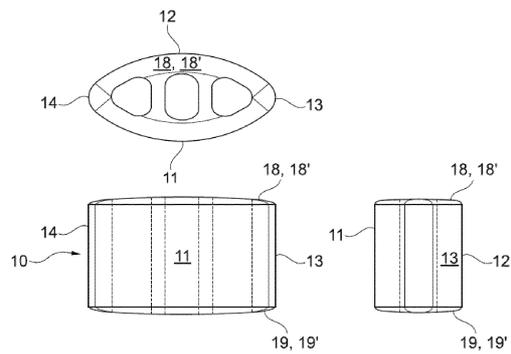
Фиг. 1



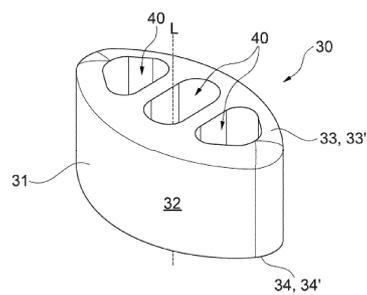
Фиг. 2



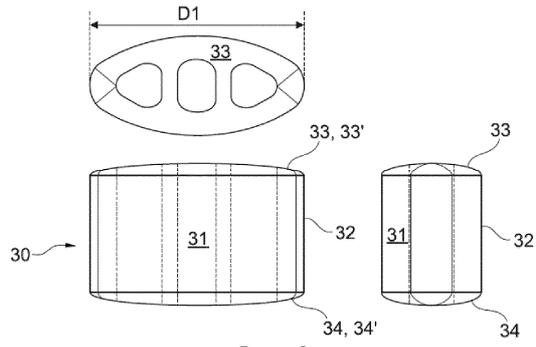
Фиг. 3



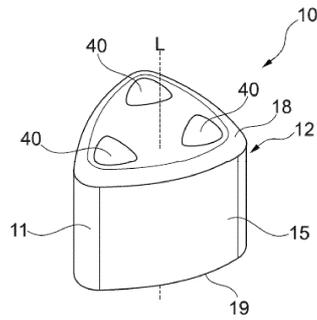
Фиг. 4



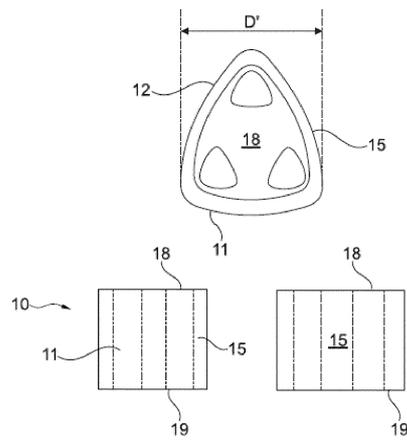
Фиг. 5



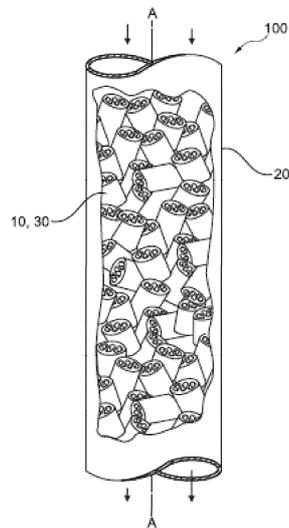
Фиг. 6



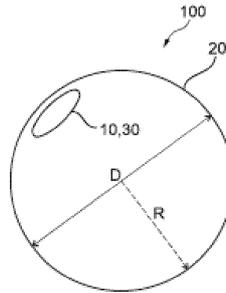
Фиг. 7



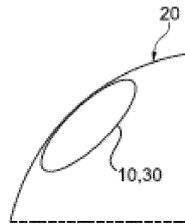
Фиг. 8



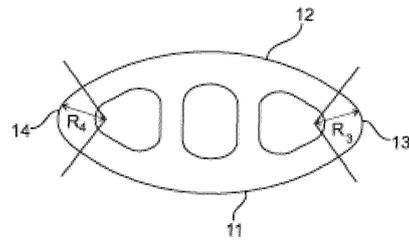
Фиг. 9



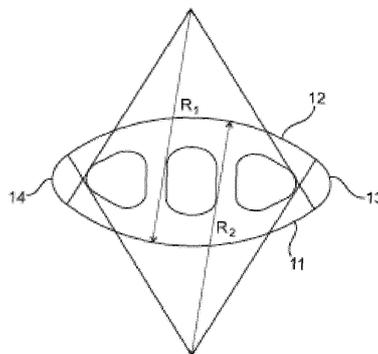
Фиг. 10



Фиг. 11



Фиг. 12



Фиг. 13

