



(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 105764843 B

(45)授权公告日 2019.03.05

(21)申请号 201480056148.5

(22)申请日 2014.08.06

(65)同一申请的已公布的文献号
申请公布号 CN 105764843 A

(43)申请公布日 2016.07.13

(30)优先权数据
102013108832.5 2013.08.15 DE

(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2016.04.12

(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/EP2014/002156 2014.08.06

(87)PCT国际申请的公布数据
W02015/022062 DE 2015.02.19

(73)专利权人 卡尔斯鲁厄技术研究所
地址 德国卡尔斯鲁厄

(72)发明人 M.克劳特 R.迪特迈尔
B.范卡亚拉

(74)专利代理机构 中国专利代理(香港)有限公司 72001
代理人 刘维升 石克虎

(51)Int.Cl.
C01B 15/029(2006.01)
B01J 19/00(2006.01)

(56)对比文件
US 2009/0004074 A1,2009.01.01,说明书
0002,0003,0182段,图13D.
WO 2007028375 A1,2007.03.15,说明书摘
要,图5.

审查员 孔令国

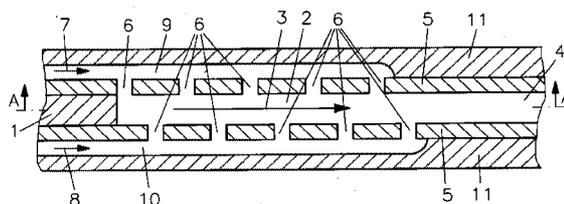
权利要求书1页 说明书7页 附图5页

(54)发明名称

用于实施至少两种反应物之间的反应的方法和设备

(57)摘要

本发明涉及在反应区中实施至少两种反应物之间的反应以生成反应产物的方法。目的在于使该方法更安全和更快速。该目的通过如下方式实现:沿反应区(2)的延伸段朝向反应产物出口(4)方向在反应流(3)中连续进行该反应,反应物(7、8)在该反应区延伸段引入到反应流中,以及经敞口的通道末端排出该反应产物,其中所述反应物在该反应区延伸段的各至少两个位置处交替地引入到反应流中。



1. 在至少一个反应区(2)中在液态反应溶液中实施至少两种反应物之间的反应以生成反应产物的方法,其中

a) 沿至少一个反应区(2)的延伸段朝向各至少一个反应产物出口(4)方向,在每个反应区(2)各一个反应流(3)中连续进行所述反应,

b) 将反应物(7、8)分别在至少一个反应区的延伸段经入口(6)引入到所述反应流中,以及

c) 将所述反应产物经至少一个反应产物出口(4)排出,
其特征在于,

d) 反应物(7、8)分别呈气态,

e) 入口(6)由筛元件(14、15)或膜(17)覆盖,以及

f) 将所述反应物连续交替地在所述至少一个反应区的延伸段各至少两个入口(6)处分别引入到所述反应流中,直至在所述反应溶液中找到饱和,由此在反应流中产生各反应物的锯齿状浓度分布并且所述引入在反应流中的锯齿状浓度分布分别具有最低值的位置处进行。

2. 根据权利要求1的方法,其特征在于,设定两种反应物,其中一种反应物是氢气且一种反应物是氧气以及所述反应产物是过氧化氢。

3. 根据前述权利要求之一的方法,其特征在于,至少一种催化剂材料溶于或悬浮于所述反应物的至少一种中。

4. 用于在反应流中在液态反应溶液中实施至少两种反应物(7、8)之间的连续反应以生成反应产物的设备,其包含至少一个具有反应产物出口(4)的反应区(2)以容纳沿反应器轴的反应流(3),其特征在于,反应物(7、8)分别呈气态,入口(6)由筛元件(14、15)或膜(17)覆盖,以及所述至少一个反应区在沿所述反应流的至少一个壁上具有相对于反应器轴连续交替的用于反应物的入口(6)。

5. 根据权利要求4的设备,其特征在于,所述至少一个反应区(2)通过具有各至少一个作为反应产物出口(4)的敞口末端的微型通道形成。

6. 根据权利要求4或5的设备,其特征在于,为每种反应物提供各至少一个流向多个入口的分配通道。

7. 根据权利要求4-6之一的设备,其特征在于,在所述设备中设置呈平面层或薄片形式的筛元件或膜,所述筛元件或膜至少完全覆盖所述反应区的延伸方向。

8. 根据权利要求5-7之一的设备,其特征在于,所述设备通过具有单薄片(1、5、11)的薄片叠形成,其中反应区和用于反应物的其它流体导路通过各个薄片的槽和/或缺口形成。

用于实施至少两种反应物之间的反应的方法和设备

[0001] 本发明涉及根据第一和第四权利要求的实施至少两种反应物之间的反应的方法和设备。其涉及优选借助于催化方法连续合成化学基础产物和中间产物,特别是由气态反应料氧气 O_2 和氢气 H_2 直接合成过氧化氢 H_2O_2 。

[0002] 在众多的化学反应中,特别是在放热反应例如由气态反应料即氧气 O_2 和氢气 H_2 直接合成过氧化氢 H_2O_2 中,基本上出现在工艺实现方面应顾及或限制的问题。特别是应预料到不希望的副反应,这些副反应由于反应料和反应产物不利和尤其不均匀的浓度比造成。在 H_2O_2 的直接合成中,所述不均匀性促使形成在装置中导致危险运行状态的爆炸性气体混合物。另一问题在于料流中的物质传递阻力,尤其在应向液体中计量加入气体时。视体系而言,该影响随用于反应的相关反应体积的尺寸而增大。

[0003] 由于这类限制和危险,例如在[1]中描述了一种反应体系,其中将混合和随后的反应分配在多个并联的微型混合器或微型反应器中。因此将该反应体系中的过程分配在更易控制的较小单元中,由此不仅可实现反应时的温度控制,并且该并联可提高可达到的反应转化率,而且还可降低上述形成不均匀性和爆炸性气体混合物的风险。

[0004] 此外,[2]中描述了一种微型结构反应器,其中将两种反应料导入相互并行设置的微型通道组中。在此,将一种反应料经多个相继设置的溢流口在位置上和由此也在时间上交错地导入另一反应料的料流中,由此在该微型通道的料流中发生逐步反应以生成反应产物流。这两种反应物之一的浓度沿该反应产物流的长度而增加,而该另一种反应物的浓度却减小。在位置上和由此也在时间上交错地将一种反应料计量加入到另一反应料流中还可更好地控制该两种反应料之间的反应。

[0005] 由反应料 H_2 和 O_2 制备过氧化氢的直接合成对试验运行提出了特别的要求。

[0006] 在[3]中示例性公开了一种制备过氧化氢的直接合成,其中使用催化剂将气态反应料 H_2 和 O_2 转化成液态 H_2O_2 。该反应始终在悬浮有至少一种贵金属,特别是钯作为催化剂的溶剂的存在下进行。通过将气相中的 H_2 浓度限制为最大5%,缓和爆炸危险。所述反应器包含滴流床,其中固体催化剂上方的液体薄层通过与气相的敞口接触而达到饱和。

[0007] 对于过氧化氢的直接合成,推荐膜反应器,其中将反应料分散地加入反应中并提高该方法的安全性和选择性。

[0008] 因此在[4]中报导了使用钯合金制成的致密膜层,通过该膜层将反应所需的 H_2 计量加入到用氧气饱和的液体中。在此,该反应在液体侧的钯膜表面上进行,在该膜上还施加不同的层以提高反应的选择性。

[0009] 此外,[5]中示例性地描述了用于直接合成 H_2O_2 的多孔膜,其中将钯以金属纳米颗粒的形式引入该多孔膜中作为催化剂。在该构思中,将 H_2 或 O_2 经多孔膜无气泡地计量加入到分别用另一反应料饱和的反应溶液中。该反应在多孔膜的含催化剂的覆盖层内进行。

[0010] [5]中所述的经由沿反应区的管状膜计量加入氢气或氧气的方案遭受由于工艺上常用膜的相对大内径所致的相对高的物质传递阻力(气体/液体物质转移和在液相中的扩散)。此外在所推荐的方法中,经过反应器时可达到的转化率受限于前置饱和器的条件下的气体溶解度,以致在合理的体系压力下必需引回,以达到工艺上有利的过氧化氢浓度范围

(> 3重量%)。由此,一方面与相对高的工艺支出相关联。另一方面仅转化计量加入的氧气的一部分。剩余氧气在将液相引回到饱和器之前在减压时损失或必须通过巨大支出从气体流中得以回收。

[0011] [6]和[7]也公开了通过逐步添加 H_2 直接合成过氧化氢的催化反应器。该逐步添加的目的是将沿该反应器的 O_2/H_2 浓度比受控地保持在最佳范围,并同时必须从反应中再次分离并引回的未反应 O_2 保持最少。在反应器级联的反应器部分前分别逐步添加 H_2 的情况下存在如下缺点,即在添加位置及其料流下游处不能排除爆炸性气体混合物。

[0012] 此外,[8]和[9]描述了这样的反应器构思,其利用不同的膜以将两种不同的反应料分配地计量加入到微型通道中,以使其沿反应轴的浓度比对于在催化活性表面上的反应而言最佳化。在相同的反应器段中通过相互对置的可透壁实现这两种反应料的分配计量加入。但在这种构思中不分离气态反应料。通过使用微型结构降低了爆炸危险。但特别在直接合成过氧化氢的相对高的体系压力下,不能认为是固有安全的。

[0013] 由此,本发明的目的在于,提供在反应区中实施至少两种反应物特别是 H_2 和 O_2 之间的反应以生成反应产物特别是 H_2O_2 的方法和设备,其至少明显进一步减少前述缺点和限制。特别是应减小不希望的副反应的风险并在此提高反应速度。

[0014] 该目的通过具有独立权利要求1和4的特征的方法和设备实现。基于它们的从属权利要求给出有利的实施方案。

[0015] 为实现该目的,提出在至少一个反应区中实施至少两种反应物(反应料)之间的反应以生成反应产物的方法和设备。在多个反应区的情况下,它们优选相似并互相并行地联接。该反应在反应区中连续进行并形成朝向用于反应产物的至少一个,优选刚好一个出口的反应流。在此,反应区由通道,优选具有最大横截面尺寸(直径、边缘长等)小于5 mm,优选小于1 mm的微型通道形成,其中至少一个敞口的通道末端充当出口。在此,反应区在沿反应流的通道壁上具有用于反应物的交替的入口;这些反应物经由反应区延伸段的入口引入到反应流中。该反应流在反应区中优选沿将该反应区横截面中心点相连的反应器轴流动。

[0016] 该反应流由连续流动的液态反应溶液形成,即其包括其中至少两种,优选刚好两种反应物或中间产物发生反应以生成反应产物的反应区区域。例如通过反应区中的反应物反应形成中间产物作为反应产物的前体。这些反应物呈液态或气态。反应流中的反应产物同样呈液态或气态。

[0017] 优选将呈颗粒、气体或液体形式的催化剂悬浮或溶解在可用反应参与物饱和的反应溶液中。除位置固定的催化剂(通道壁涂层、微型固定床)外,还可使用通过该体系输送的悬浮式催化剂颗粒或均匀溶解的催化剂,由此在整个反应流中有利地实现催化剂的存在体积(Volumenpräsenz)。作为催化剂,尤其使用在各种载体上的贵金属,特别是金和钯以及两者(bieder)的合金。优选使用载于C上的Pd、硅酸盐载体上的Pd,优选载于沸石类载体上,更优选载于钛硅沸石上的。

[0018] 一个可选的实施方案提供用于催化剂的单独入口。优选地,按反应流方向至少在参与生成反应产物或反应中间产物的催化反应的最后加入的反应物的添加之前,添加该催化剂。由此有利地确保在参与反应的所有反应物刚相互接触时,即在用于将最后加入的反应物加入到反应中的入口处,该催化剂就已溶解和/或悬浮即均匀分布在反应流中,并同时已直接对该反应起作用。

[0019] 重要的是通过交替的入口在反应流中定向交错地混入反应物,从而在整个反应流延伸段保持连续的反应。由此将所述至少两种,优选刚好两种不同气态反应物在微观结构化的密集型装置的连续段中优选经由多孔膜或微型筛交错分配地计量加入到反应流中。所述反复交错分配的计量加入和反应的结果是实现溶于该反应区液相中的反应物浓度的锯齿分布。

[0020] 所述入口优选由筛元件、膜或其它流动阻件形成,其防止不受控流入以有利于反应物扩散。由此,特别是在将气态反应物添加到液态反应中时,不仅有效抑制反应中形成气体部分,而且也通过该反应的容纳能力有利地限制反应物的流入。邻接反应的化学计量得以保持。

[0021] 特别是在合成过氧化氢 H_2O_2 时,两种反应物 H_2 和 O_2 在混入前呈气态,在入口处与液态反应产物接触并自发扩散到其中。在合成 H_2O_2 中,催化剂优选悬浮在反应溶液中。

[0022] 特别通过以预定间距交错加入仅一种反应物以及随后直接在反应流中消耗该反应物,在该反应的连续进行中,沿通道轴以特别有利的窄浓度范围形成未反应的反应物的锯齿状浓度分布,这有利于呈化学计量和因此最佳的反应。所述浓度范围优选围绕化学计量的浓度值延伸,并根据计量加入,这些反应物之一低于或高于该浓度范围。两个入口之间的间距、通过入口的反应物和反应流的各体积流量以及反应流中的反应速度影响该浓度分布,并因此影响前述浓度范围的宽度。

[0023] 在此,在反应流中,在这些反应物的锯齿状浓度分布分别具有最低值并在反应中出现该反应物的周期反复性低浓度(不足)的位置处添加这两种反应物之一。在加入次要(unterrepräsentiert)反应物时,与反应化学计量相比的低浓度有利地造成反应加速,并接近化学计量比。但因为通过反应进行,另一组分不足量存在,必须再次计量补加该组分。

[0024] 特别有利的是,在沿反应区的反应流的壁上交替计量加入至少两种反应物。在此,计量加入和由于这些反应物的反应溶液饱和是交替地经同侧实现的,以致始终在入口处(优选在膜处或筛元件处)达到该起饱和作用的气体的所谓的亨利浓度(气态反应物的分压与该反应物在该液态产物中的浓度成正比),并且该浓度作为补充料(Nachlauf)进入反应流中。反应速度依赖于反应物浓度,因此通过在入口处直接混入,即优选在饱和情况下是最大的,并且随着反应而减小。当反应速度达到下限,即变得太小时,则总是优选转换反应物的加入。

[0025] 通过上述措施,在直接合成时提高对于反应产物如过氧化氢的选择性并同时达到高转化度。此外,由此不仅实现安全的工艺流程,而且也达到了高的时空产率。高的时空产率还有利于优选使用密集型建造形式、微型通道作为反应体积和实现模块化装置。

[0026] 所述反应区设计成微型通道或多个微型通道。在入口旁通过流动通道的小的横向(lateral)尺寸以及每液体体积(微型通道)的大的壁面积,保持体系中的物质传递阻力呈低值。根据膜接触器的原理,所述大的壁面积允许甚至以无气泡的形式有效地供入反应物。

[0027] 除用于在反应区中实施至少两种反应物之间的反应以生成反应产物并具有所有或部分前述特征的设备和方法外,本发明还包括该设备和方法特别用于由氢气和氧气制备过氧化氢的用途。

[0028] 下面借助带有附图的实施方案详述本发明。

[0029] 图1a至c示出用于在反应区中实施至少两种反应物之间的反应以生成反应产物并

具有交错对置的入口的实施方案的原理图,其呈薄片叠形式,其中(a、c)为截面视图,(b)为截面俯视图,

[0030] 图2a和b示出入口的可能的方案,

[0031] 图3a至e示出具有交替设置在朝向反应区的侧面上的入口的实施方案的原理图,

[0032] 图4示出在该反应区延伸段沿反应流的反应产物A和B的浓度以及反应速度的示意图。

[0033] 在图1a和b中示出的设备实施方案示例性地展示该设备呈薄片叠的结构,其中这两种反应物的入口位于反应区的对置壁上。在第一薄片1中,在每一缺口中存在反应区2,在该反应区中分别用箭头3示出反应流的方向。在此,箭头随反应区的反应轴(基于反应区横截面的反应区对称轴)。该反应区在反应产物出口4的方向上是敞开的。如图1a所示,该反应区两侧与中间层5相邻,该中间层具有用于来自各分配通道9和10的两种反应物流7和8并加工成缺口的入口6。这些分配通道又在第二薄片11中加工成槽。第一薄片1和/或中间层5直接与反应区相邻,并优选由催化剂材料制成。

[0034] 这些薄片的优选厚度分别为0.2-3 mm,更优选为0.3-1.0 mm,再优选为0.4-0.8 mm。因为通过缺口在第一薄片中将反应区设计成微型通道,该薄片厚度对应于反应区的横截面尺寸。

[0035] 图1a所示的装置示出反应模块面,其具有反应体积和各仅一个用于反应物的分配通道。根据图1c的方案提供前述薄片叠形式的多个反应模块面的整合。优选将两个反应体积1之间用于反应物的分配通道联合成共用的分配通道12,由该共用的分配通道使入口从两侧流入到各一个反应体积中。

[0036] 图2b示出在反应体积1的高度处的俯视截面图A-A(参见图1a)。在此,多个图1a中所示的反应体积呈并列设置,其中在这些反应体积之间设置流体通道13以对反应流调温。调温流体,优选冷却流体优选以与图平面呈直角地穿过图2b中所示的流体通道,即与反应流呈交叉流。其另一优点是对于调温流体的连接。根据图2b的装置也基本适用于如图1c示出的多个反应模块面。

[0037] 在未明确示出的方案中,第一薄片和中间薄片联合成共用的结构化薄片。

[0038] 图1a所示的中间薄片中的缺口是敞口的,但任选可用膜(参见图3b)或栅板14(参见图2a)或还可用开孔元件15(图2b)覆盖,以避免液态物质从反应流回流到用于优选气态反应物的分配通道9和10中。优选通过气相和液相之间存在的表面张力进一步减小该回流危险。如图2a所示,栅板14优选呈平面施加到中间层5上,并用接合法(如扩散粘结)接合成双材料,然后将其整合到包含该设备的薄片叠中。相反,根据图2b的方案在入口中设置贯通式开孔元件15,其作为元件压入中间层的缺口中,或作为开孔区域是中间层的部件。膜、栅板或开孔元件优选由催化剂材料制备。

[0039] 相反,图3a至e代表如下方案,其中用于两种反应物的入口连续和交替地设置在反应区的至少一个共用壁上。

[0040] 图3a和b示出具有中心的方案的两个截面原理图。代表了如下方案,其中分配通道9和10(用于第一和第二反应物流7和8)设置在反应区2(不位于截平面中,并且由虚线表示)的两侧。从该分配通道分支出分配指(Verteilerfinger)16,其沿反应体积1经多个入口6延伸。图3b以横截面示例性示出分别在第一薄片1中的两个反应区2的层式装置,以及在上述

反应区的两侧上分别设置在第二薄片11中的分配指16,该分配指分别流入两个分配通道9或10之一中。图2b示出通过与分配通道9相连的分配指的截平面,而设置在后面的与分配通道10相连的分配指由虚线表示。在反应区和分配指之间存在入口,这些入口由膜17完全覆盖并抑制或至少阻碍反应物的气体成分不受阻地流入液态反应流中。在图3b中,分配通道9和10沿第一和第二薄片延伸,其中如示例性示出那样,在多个具有各一个反应区的设备相互叠置的装置中,各反应物的分配通道经转移口18相互流体相通。

[0041] 图3c示出具有直线型分配通道9和10(用于第一和第二反应物流7和8,不位于截平面中,并由虚线表示)的实施方案的截面的截面俯视图,该分配通道沿呈蛇形形成的反应区2(在截平面中)延伸。在分配通道和反应区之间的截面区域形成入口6,其优选具有插在中间的栅板或膜平面。

[0042] 图3c中示出的呈蛇形形成的反应区2的实施方案可在薄片叠中优选并联,以提高产量,而且与截平面或薄片平面呈水平或垂直。

[0043] 图3d和e示出相应的方案。在此,图3d示例性公开在截平面中呈蛇形形成的反应区2相互(水平)并行的装置,而图3e示例性代表如下实施方案,其中呈蛇形形成的反应区2和24设置在分配通道9和10的两侧,即垂直于截平面和薄片平面并行设置。未设置在截平面中的第二反应区24在图3e中由虚线示出。根据图3d和e的两种实施方案还示出在分配通道上交错设置的入口6的有利装置,其中各相邻的反应区,即充当反应物倾泄口(Reaktandensenken)的分配通道的入口不同时流向两个方向,即不同时流入两个反应区中。

[0044] 在所有前述附图中所示的入口6示例性地不仅是相同间距的,而且对于两种反应物是同样大小的。但该入口的相互间距和横截面均由反应区中的反应动力学确定。在确定前述几何尺寸的大小时,优选追求的是形成锯齿状的浓度分布,以使反应区中的反应物浓度尽可能快速地拥有沿通道轴的代表化学计量反应的有利的窄浓度范围。

[0045] 如前所述,借助于在反应区中将反应物A和B交替混入反应流中,反应流中的反应物浓度为锯齿分布。图4公开了在反应区的延伸段沿反应流,即沿反应轴22(单位为mm)的反应物A和B浓度的交错分布(19和20)以及反应速度21和反应产物C(23)的含量。A和B的浓度以反应混合物中各饱和浓度的%为单位给出,而产物C的浓度相对于反应物A给出(图的左边垂直轴),反应速度以 $\text{mol} / \text{l} \cdot \text{s}$ 给出(图的右边垂直轴)。

[0046] 下面借助由反应物 H_2 和 O_2 (反应物A和B)示例性直接合成 H_2O_2 (反应产物C)来详述下面提及的本发明优点:

[0047] 1. 避免不希望的副反应,其由反应室中不利的浓度比促成:

[0048] 在直接合成 H_2O_2 中,气态反应料 H_2 和 O_2 在优选固态的催化剂上转化成液态的 H_2O_2 。该反应在溶剂存在下进行,优选甲醇或任选含有其它醇和提高选择性的各种添加物如溴化物的含水体系。该反应的选择性问题源于,除如希望地形成 H_2O_2 外还并行地形成热力学上有利的 H_2O 。此外, H_2O_2 不仅在催化剂上形成,而且在后继反应中也发生主动分解,由此不仅观察到纯分解成 H_2 和 $1/2 \text{O}_2$,还观测到借助于氢气发生还原。后者是相对快的,因此对整体选择性而言特别重要。各个反应的速度不同程度地取决于反应料 H_2 和 O_2 的分压(不同的子反应级数)。此外, H_2/O_2 的分压比还影响催化剂表面的氧化状态,并由此也影响活性和选择性。由此宏观上发现,活性和选择性极其依赖于 H_2 和 O_2 的浓度或分压以及整个反应室中两种反应

料的比例,因此,通过前述反应区中所追求的锯齿状浓度分布使浓度比最佳化就导致选择性、产率和反应器效率的明显改进。

[0049] 2. 避免由于在装置内特定几何区域中存在或形成爆炸性气体混合物的危险的运行状态:

[0050] 由元素直接合成被视为制备 H_2O_2 的有吸引力的方法。但至今未实现工业规模的技术转化,因为 H_2 和 O_2 的混合物实际上在整个组成范围内均是爆炸性的。在1 bar下的爆炸性范围为空气中4-75体积% H_2 和 O_2 中4-94体积%(参见例如[10])。通过将反应物即氧气和氢气交错地添加到反应混合物中, H_2 和 O_2 明显更少地呈类似的相互浓度。甚至在反应物相互混合之前和可能形成爆炸性气体混合物之前,实现将反应物优先引入反应产物 H_2O_2 的合成中。

[0051] 3. 减少由于物质传递阻力,特别是在液相中和任选在向固体催化剂转移时的物质传递阻力以及由于沿反应器轴的浓度下降所致的低时空产率。

[0052] 在直接合成的反应条件下,产物 H_2O_2 是液态的并由溶剂吸纳。通常使用含醇溶液或水溶液。由于这些溶剂相对的低的气体溶解度和在液相中小的扩散系数,出现巨大的物质传递阻力。特别是在入口区域中气态反应物转移到反应的液相中时,甚至在液相中转移时,从液相或气相向固体催化剂和任选还在催化剂(多孔型)内部转移时,明显出现这类阻力。溶解和/或悬浮在反应物中,但优选在液态反应产物中的催化剂明显减小必需的扩散路径。微型通道的使用由于在界面层中的低物质传递阻力而提高时空产率,因为总通道体积实际上由界面层构成。

[0053] 参考文献:

[0054] [1] DE 10 2005 015 433 A1

[0055] [2] DE 100 44 526 A1

[0056] [3] DE 196 42 770 A1

[0057] [4] Choudhary等人: *Angew. Chem. Int. Ed.* 40 (2001) 1776-1779

[0058] [5] WO 2007/028375 A1

[0059] [6] US 7.067.103 B2

[0060] [7] US 7.105.143 B2

[0061] [8] Bortolotto等人: *Sep. Purif. Sci.* 73 (2010) 51

[0062] [9] Dittmeyer等人: *Appl. Catal. A: General* 391 (2011) 311

[0063] [10] Pashkova等人: *Chem. Eng. J.* 139 (2008) 165-171。

[0064] 附图标记列表:

[0065] 1 第一薄片

[0066] 2 反应区

[0067] 3 箭头(具有流动方向反应混合物)

[0068] 4 反应产物出口

[0069] 5 中间层

[0070] 6 入口

[0071] 7 第一反应物的反应流

[0072] 8 第二反应物的反应流

[0073] 9 第一反应物的分配通道

- [0074] 10 第二反应物的分配通道
- [0075] 11 第二薄片
- [0076] 12 共用的分配通道
- [0077] 13 流体通道
- [0078] 14 栅板
- [0079] 15 贯通式开孔元件
- [0080] 16 分配指
- [0081] 17 膜
- [0082] 18 转移口
- [0083] 19 反应物A的浓度
- [0084] 20 反应物B的浓度
- [0085] 21 反应速度
- [0086] 22 反应轴
- [0087] 23 反应产物的浓度
- [0088] 24 第二反应区。

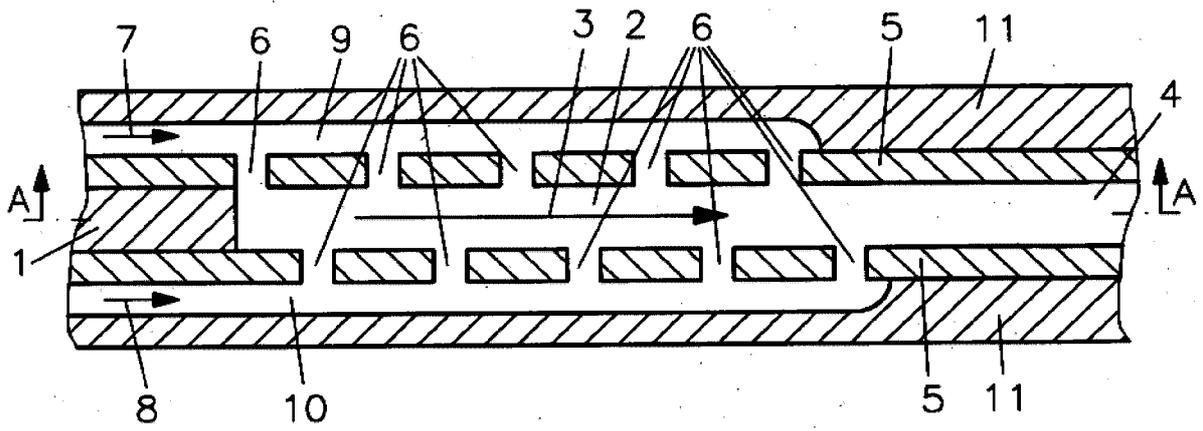


图 1a

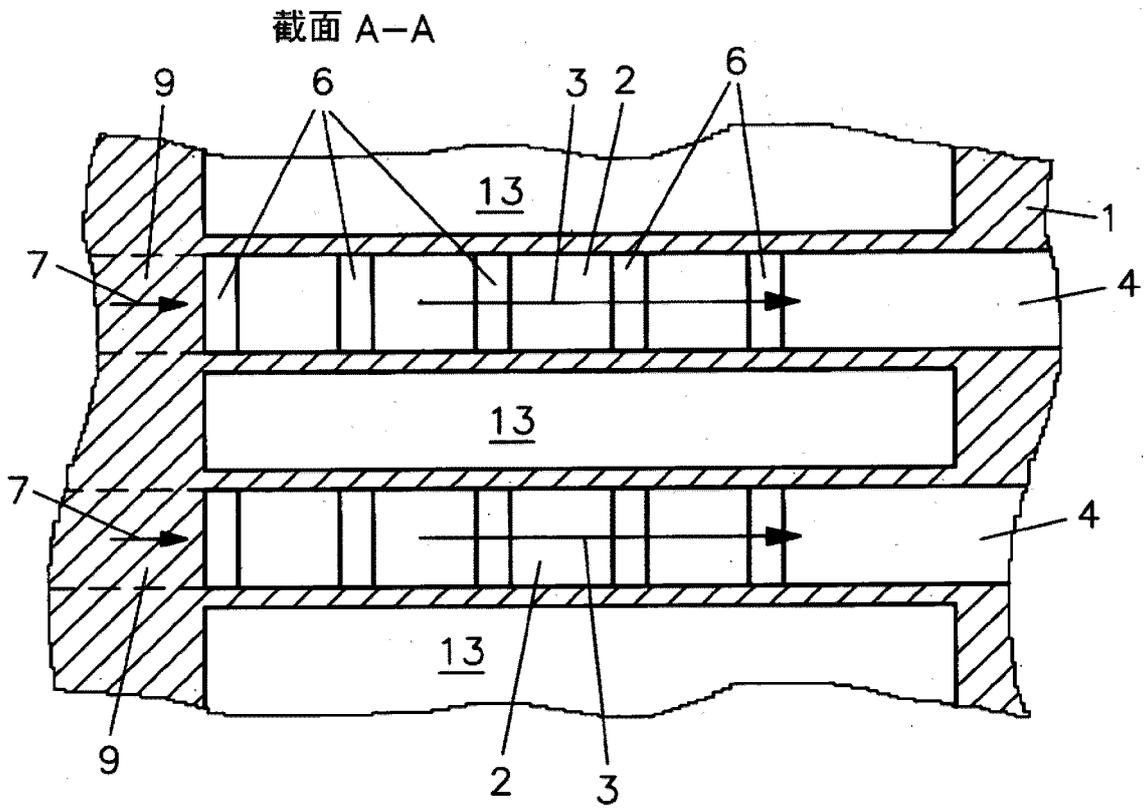


图 1b

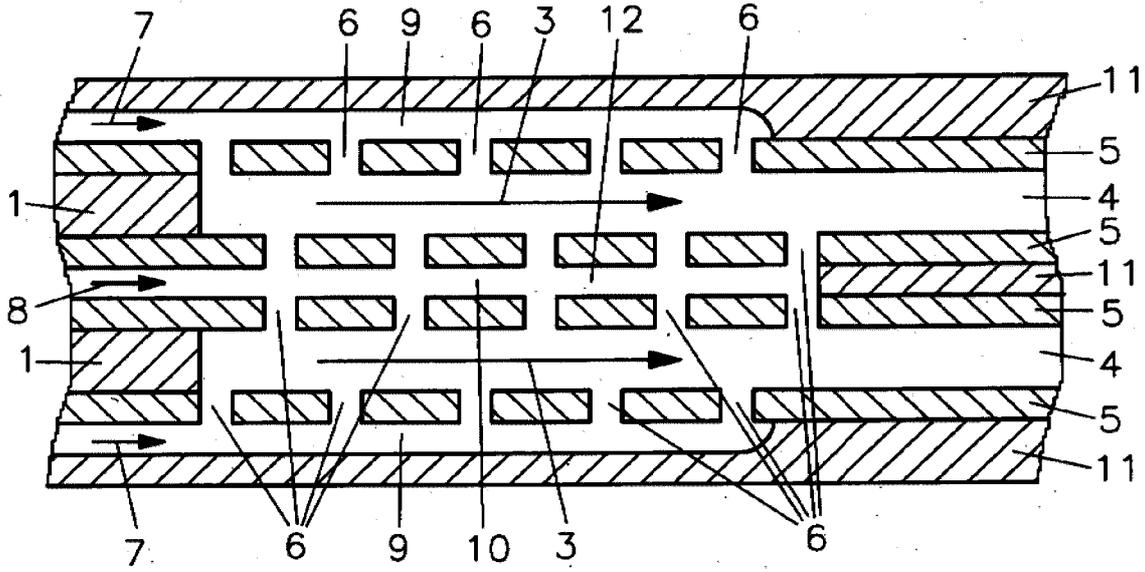


图 1c

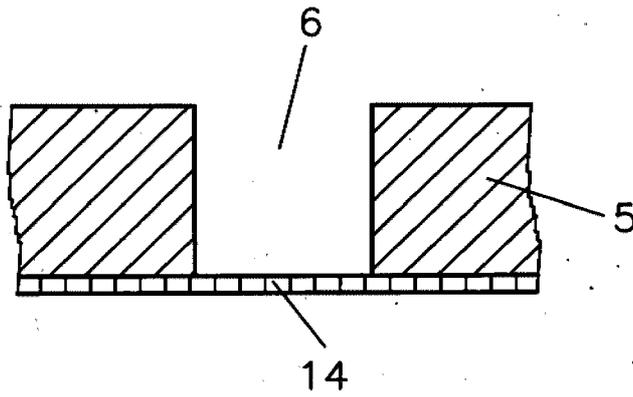


图 2a

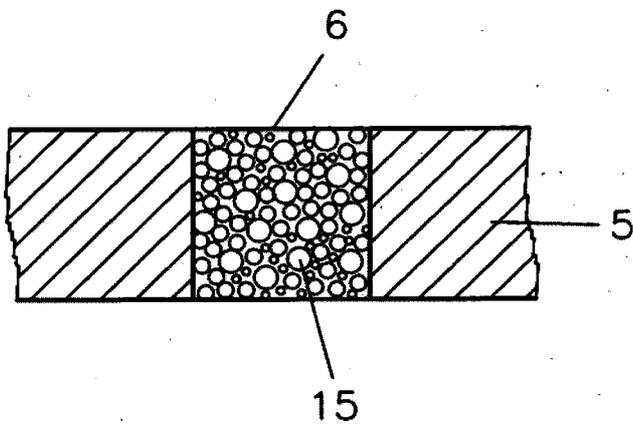


图 2b

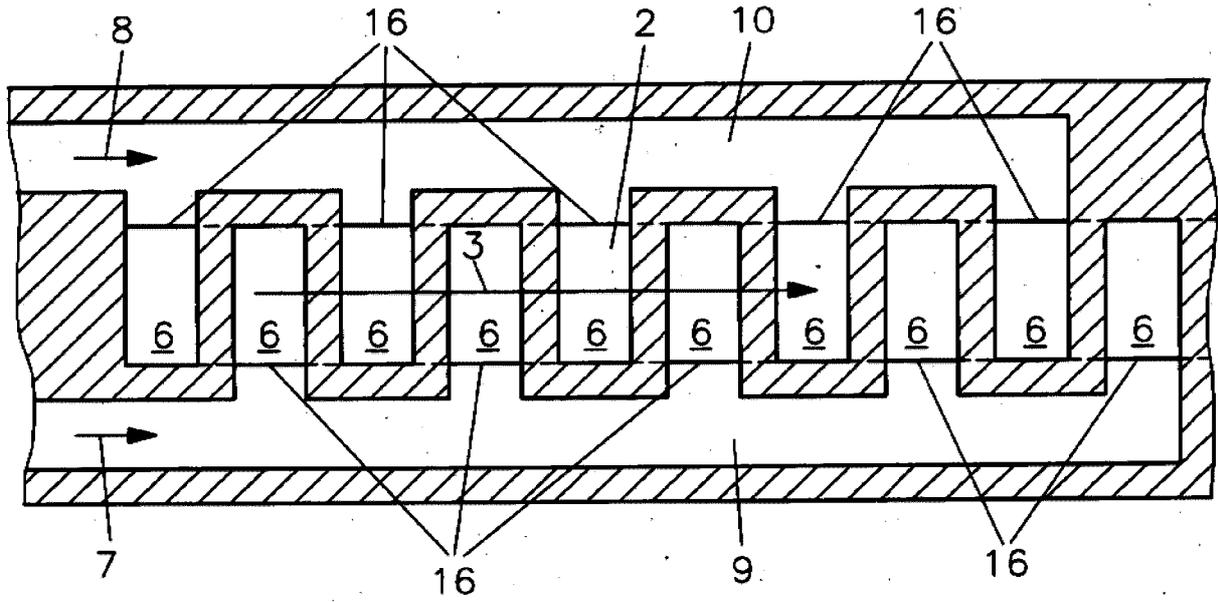


图 3a

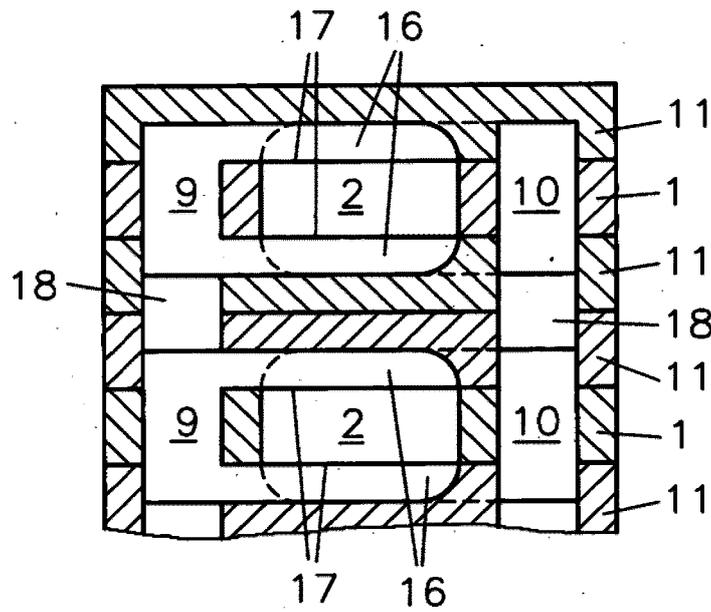


图 3b

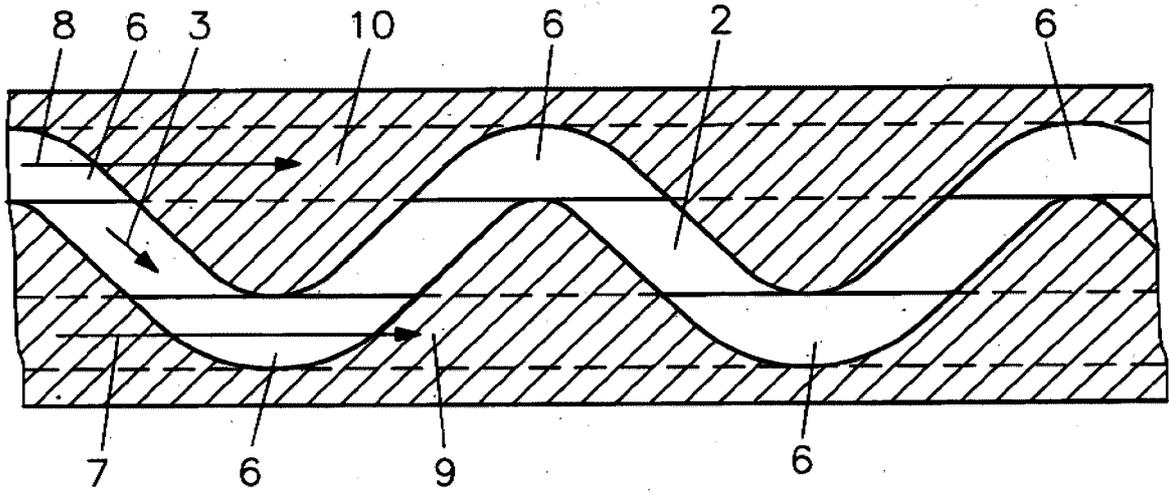


图 3c

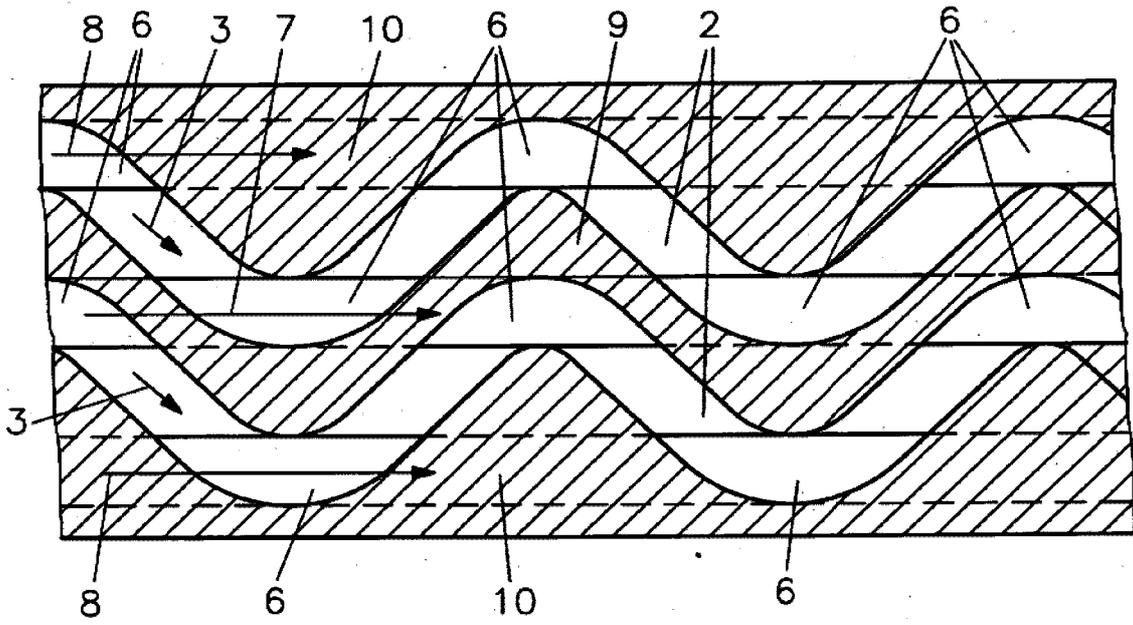


图 3d

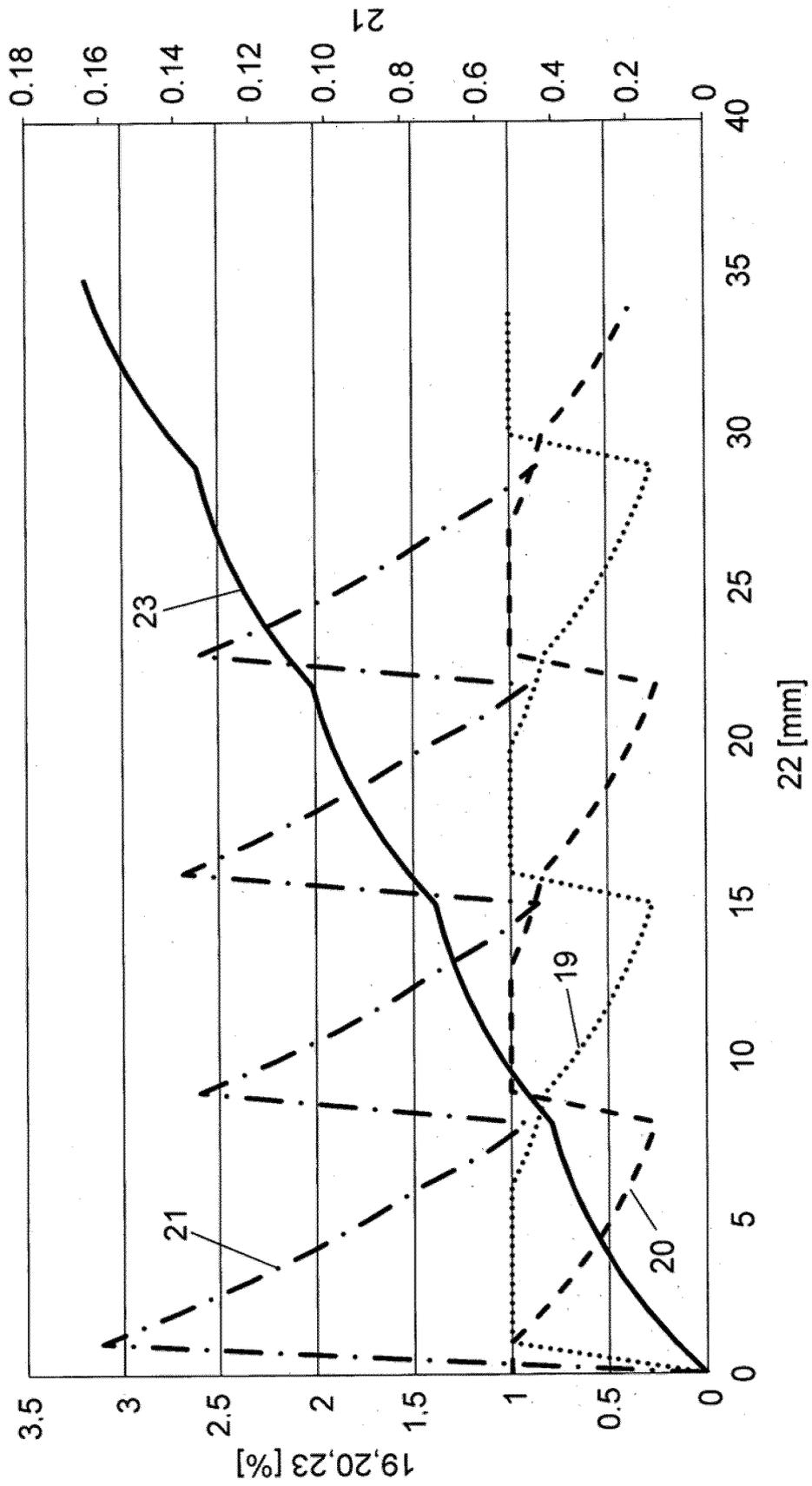


图 4