

甲醇制汽油关键技术专利分析*

陈伟**¹ 王朔^{1,2} 马廷灿¹

(1. 中国科学院武汉文献情报中心, 武汉 430071; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 利用汤森数据分析器(TDA)、Thomson Innovation 分析平台、中国科学院专利在线分析平台等工具, 从专利年度申请趋势、专利申请整体技术布局、主要国家和专利申请机构竞争态势、在华专利申请情况等方面, 对甲醇制汽油(MTG)技术领域的现状、竞争格局和发展趋势进行分析, 发现我国在 MTG 相关技术研发和专利申请方面起步较晚, 但近年来日益重视自主知识产权的技术开发, 专利的申请和授权大量集中在近几年, 特别是部分能源企业已积极开展技术创新活动和申请专利保护。从专利分析结果来看, 以下问题需要引起重视: 1) 促进核心专利技术的研发与应用, 提高 MTG 经济性; 2) 开展有组织的专利保护策略研究; 3) 合理运用知识产权战略开拓潜在国际新兴市场。

关键词: 煤化工; 甲醇制汽油; 专利分析

中图分类号: G353; TE626 文献标识码: A doi: 10.16507/j.issn.1006-6055.2017.09.007

Patent Analysis on Key Technologies of Methanol to Gasoline*

CHEN Wei**¹ WANG Shuo^{1,2} MA Tingcan¹

(1. Wuhan Documentation and Information Centre, Chinese Academy of Science, Wuhan 430071, China;
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Patents on Methanol to gasoline (MTG) are analyzed with patent analysis tools, such as Thomson Data Analyzer (TDA), Thomson Innovation, Chinese Academy of Sciences Patent Analysis Platform. The annual application trends, technical layout, competitive situation of major countries and institutions and applications in China are revealed. Despite of a late start, China has paid more attention to MTG technology development and intellectual property rights, as evidenced by a boom of patent applications and licensing in recent years. In particular, some energy enterprises have been actively engaged in technological innovation activities and applied for patent protection. From the results of patent analysis, some problems deserve concern: 1) promoting the research, development and patent application of core technologies to improve the economics of MTG; 2) carrying out research on organized patent protection strategy; 3) making use of intellectual property strategy rationally to exploit potential international emerging markets.

Key words: coal-to-chemicals; methanol to gasoline; patent analysis

1 引言

煤经合成气制甲醇、甲醇进一步转化为液体燃料和化学品是煤洁净高效转化的一条主要途径^[1]。在石油资源日益匮乏的背景下, 人们对甲醇制汽油(MTG)进行了大量研究^[2-8]。MTG 技术由煤炭出发, 经甲醇这一中间产物, 最终获得无硫、低苯、低烯烃的高品质汽油, 不仅可以有效缓解当前煤化工产业甲醇产能严重过剩的局面, 更为由煤合成高清洁车用汽油提供了新方法^[9]。MTG 技术分解表如表 1 所示。催化剂是 MTG 技术中的核心部分, 是现今

研究和关注的焦点。经过 40 余年的发展, MTG 催化剂的开发取得了突破性的进展, 由早期的微米 HZSM-5 催化剂到金属改性的 ZSM-5 催化剂以及纳米 ZSM-5 催化剂和复合分子筛催化剂。尤其是纳米 ZSM-5 催化剂在 MTG 反应中的成功应用, 提高了汽油收率, 延长了催化剂的寿命, 从而降低了 MTG 汽油的生产成本, 使 MTG 在经济性方面更加可行。未来 MTG 的主要方向仍然是开发高选择性和高稳定性的催化剂, 同时开发相应的配套工艺, 解决 MTG 反应中反应热难以控制的难题。

本文将主要就国内外在 MTG 关键技术的专利状况进行综合分析, 厘清主要国家和重点机构的技术开发重点和倾向、专利保护力度与布局范围, 以期对 MTG 关键技术方面的研究投入与项目部署提供知识产权战略咨询。文章内容将通过宏观、中观、微观三个层面阐述: 宏观层面分析整体态势, 着眼于

2017-08-10 收稿 2017-09-08 接受 2017-09-30 网络发表

* 中国科学院战略性先导科技专项“低阶煤清洁高效梯级利用关键技术知识产权问题研究”子课题(XDA07080205)资助

** 通讯作者, E-mail: chenw@whlib.ac.cn; Tel: 027-87199180

表1 MTG 技术分解表

技术单元	技术点
固定床	脱水反应器
	转化反应器
	高压分离器
	分馏塔
	再生器
流化床	流化床反应器
	分离器
	脱丁烷塔
催化剂	外来物种改性
	不同工艺改性
	优化合成条件
	控制分子筛粒度
	复合分子筛

MTG 技术的演进历史、专利申请整体技术布局、主要国家和专利申请机构竞争态势以及专利法律状态分析;中观层面提炼重要专题技术领域(催化剂、工艺过程),从专利申请态势、热点技术布局和机构竞争态势展开多角度分析;微观层面识别重点核心专利,根据多个指标遴选重点专利并进行解读,对核心专利进行追踪和演进分析,揭示技术发展脉络。

2 数据检索策略及方法

为全面了解各国在 MTG 关键技术相关专利方面的发展全貌,本文以德温特创新索引(Derwent Innovations IndexSM,DII)国际专利数据库作为数据来源。在进行相关知识调研和专家咨询的基础上,综合考虑 MTG 技术关键词和国际专利分类号,设定检索策略,并对数据进行清洗和整理,据此构建国际 MTG 技术领域的相关专利分析数据集,包括专利(族)280项(包含同族专利在内,280项专利(族)对

应914件单件专利)。分析工具包括:汤森路透文本挖掘软件——Thomson Data Analyzer(TDA)、Thomson Innovation 分析平台、Innography 专利分析平台、中国科学院专利在线分析平台、EXCEL 等。

3 MTG 专利整体态势分析

3.1 年度申请趋势

从专利分析结果来看,自20世纪70年代 MTG 技术在美国诞生以来,专利申请数量整体呈现上升趋势,并且热点区域出现了从美国到中国的明显转移。20世纪70~80年代,主要由美国主导 MTG 的技术开发应用,而在整个20世纪90年代,由于油价的低迷,MTG 技术研发陷入停滞;中国 MTG 技术专利申请始于1985年,由于 MTG 技术具有产业化商业化成功示范效应、能够生产高品质清洁交通燃料、化解甲醇产能过剩矛盾等特点,提高了中国国内研究机构和企业开发和应用 MTG 技术的热情,从2006年起开始专利数量有大幅度增长,2014~2016年的绝大部分专利申请量都来自中国(图1)。

3.2 热点技术主题

整体来看,MTG 技术相关专利的热点技术主题可分为三个方面(图2):1)分子筛催化剂制备和再生等,包括碱处理改性 ZSM-5 催化剂、浸渍金属改性 ZSM-5 催化剂、纳米级 ZSM-5 催化剂、复合分子筛基催化剂等;2)反应工艺与装置研究,包括固定床、流化床、多管式反应器、控制反应热等;3)联产或用于其他工艺,如甲醇制烯烃、合成天然气等。其中 ZSM-5 型分子筛催化剂合成方法、MTG 工艺过程、联产合成天然气等方向约50%以上专利是近三

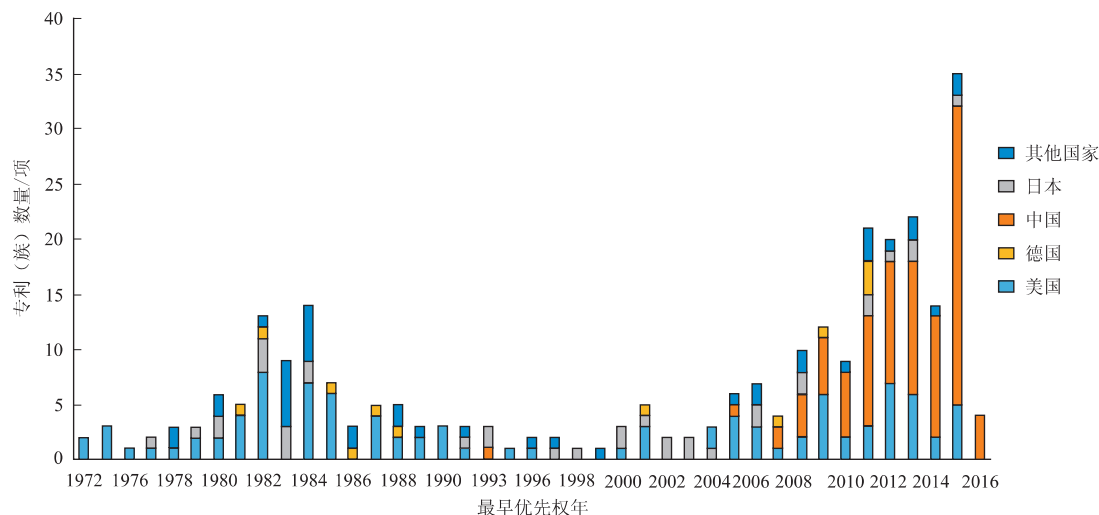


图1 MTG 技术相关专利数量年度变化态势

年间申请的,说明近年来这些技术方向的创新活动受到更多的重视(表 2)。

3.3 近五年申请趋势

近年来,大量的新发明人进入 MTG 技术相关领域。MTG 专利技术种类和数量的变化趋势基本相同,总体呈增长态势。这些现象反映出 MTG 相关

专利涉及的技术领域不断扩大,已有技术更趋成熟。新技术条目占到相当比例,说明 MTG 技术正处于快速发展阶段。从近 5 年 MTG 技术专利申请新出现的技术领域来看,(碱处理、掺杂金属及化合物)改性 ZSM-5 催化剂、复合分子筛催化剂、烃油精制等成为人们关注较多的研究方向(表 3)。



图 2 MTG 技术相关专利热点技术主题分布

表 2 MTG 技术相关专利主要技术领域(基于 IPC 小组)

技术领域	出现频次	时间范围	近 3 年受理量占总量比例
C10G-0003/00 从含氧的有机物制备液态烃混合物	60	1974 ~ 2016	33%
C07C-0001/20 从只含氧杂原子的有机化合物开始制备烃	58	1974 ~ 2016	16%
B01J-0029/40 Pentasil 型结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂,例如 ZSM-5, ZSM-8 或 ZSM-11	35	1979 ~ 2016	31%
C10L-0001/02 基于仅由碳、氢及氧组成的成分为主的液体含碳燃料	23	1972 ~ 2016	13%
C07C-0067/00 羧酸酯的制备	21	1977 ~ 2012	0%
C07C-0001/00 从一种或几种非烃化合物制备烃	20	1978 ~ 2012	0%
C07B-0061/00 有机化学的一般方法 - 其他方法	18	1981 ~ 2012	0%
C10L-0001/185 醚、缩醛、缩酮、醛、酮类液体含碳燃料	17	2008 ~ 2016	18%
C01B-0039/38 ZSM-5 型结晶硅铝酸盐沸石; 其制备方法; 后处理	15	1978 ~ 2015	20%
C01B-0003/38 使用催化剂通过烃与气化剂的反应制备氢	15	1976 ~ 2015	13%
C07C-0029/151 用氢气或含氢气体还原碳制备具有与不属于六元芳环的碳原子结合的羟基或 O-金属基团的化合物	14	1976 ~ 2015	7%
C10L-0001/182 含有羟基的液体含碳燃料	14	1991 ~ 2016	7%
C07C-0031/04 甲醇	13	1977 ~ 2015	38%
C10L-0001/16 含碳氢化合物的液体含碳燃料	13	2008 ~ 2014	8%
C10G-0002/00 从碳氧化物生产未定义组合物的液态烃混合物	12	1976 ~ 2015	8%
C10L-0001/04 基于碳氢化合物的混合物的液体含碳燃料	12	1972 ~ 2015	17%
B01J-0029/70 不包含 B01J 29/80-B01J29/65 中的结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂	11	1980 ~ 2013	0%
C07C-0011/02 烯烃	10	1980 ~ 2014	10%
C07C-0001/24 从只含氧杂原子的有机化合物脱水制备烃	10	1980 ~ 2010	0%
B01J-0029/06 结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂	10	1978 ~ 2007	0%

4 MTG 专利地域分布分析

MTG 相关专利的受理国家/地区主要集中在美国和中国。美国的研究积累较为深厚,但近来这方面的专利申请较少。相比而言,中国自 2010 年以后主导了该领域的研究活动。从主要受理国家/地区的主要技术方向分布来看,普遍关注两个方向: 1)

从含氧的有机物制备液态烃混合物,从只含氧杂原子的有机化合物开始制备烃; 2) Pentasil 型结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂。除此之外,中国侧重的技术方向包括: 从低碳烃制备液态烃混合物、联产合成天然气、不同沸石的混合物分子筛催化剂等。目前,中国在这五个技术方向上的专利数量大幅领先各国(图 3、4)。

表 3 MTG 技术相关专利最受关注和新出现的技术领域

年份	专利数量/项	最受关注的技术领域	新出现的技术领域
2016	4	从含氧的有机物制备液态烃混合物	在没有氢气的情况下通过多种精炼方法处理烃油
2015	35	①从含氧的有机物制备液态烃混合物; ②Pentasil 型结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂,例如 ZSM-5, ZSM-8 或 ZSM-41; ③从只含氧杂原子的有机化合物开始制备烃	-
2014	14	①从含氧的有机物制备液态烃混合物; ②从只含氧杂原子的有机化合物开始制备烃; ③ ZSM-5 型结晶硅铝酸盐沸石; 其制备方法; 后处理	①包含碱金属的催化剂; ②包含砷、铈、铋、钒、铌、钽、钼、钨、钽、钨、钼、钨、锰、钨或铈的丝光沸石型分子筛催化剂; ③含砷、铈、铋、钒、铌、钽、钼、钨、钽、钨、锰、钨或铈的结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂; ④以其表面性质或多孔性为特征的固体催化剂; ⑤以分子筛催化剂为特征的去除杂原子而无须改变有关烃的骨架和裂解成低沸点的烃; ⑥加氢精制; ⑦以所用的反应器为特征、用氢气或含氢气体和碳的氧化物制备含羟基或氧-金属基连接碳原子(不属于六元芳环的)的化合物; ⑧邻位稠合系杂环化合物; ⑨多级串联的在不存在氢的情况下,用两步或多步精制工艺过程处理烃油
2013	22	①从含氧的有机物制备液态烃混合物; ②Pentasil 型结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂; ③含铁族金属或铜的 Pentasil 型结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂; ④从只含氧杂原子的有机化合物开始制备烃; ⑤醚、缩醛、缩酮、醛、酮类液体含碳燃料; ⑥含有羟基的液体含碳燃料	①含铁族金属或铜的 Pentasil 型结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂; ②至少有一个生物处理步骤的水、废水或污水的多级处理; ③烃的蒸馏; ④含两个环的稠合烃; 处理使发生化学改良制备有羟基或氧-金属基连接在六元芳环碳原子上的化合物; ⑤焦油的加工得到芳族馏分; ⑥仅多级串联的用至少 1 个加氢处理工艺过程和至少 1 个仅在不存在氢的情况下的精制过程处理烃油
2012	7	①从含氧的有机物制备液态烃混合物; ②Pentasil 型结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂,例如 ZSM-5, ZSM-8 或 ZSM-41; ③丙烯	①丙烯; ②通过还原从一种或多种化合物制备非烃碳氢化合物; ③多个连续阶段在不存在氢气的情况下通过至少一种加氢处理工艺精制过程处理烃油; ④氧化物或氢氧化物结合,或碱土金属或铍的催化剂

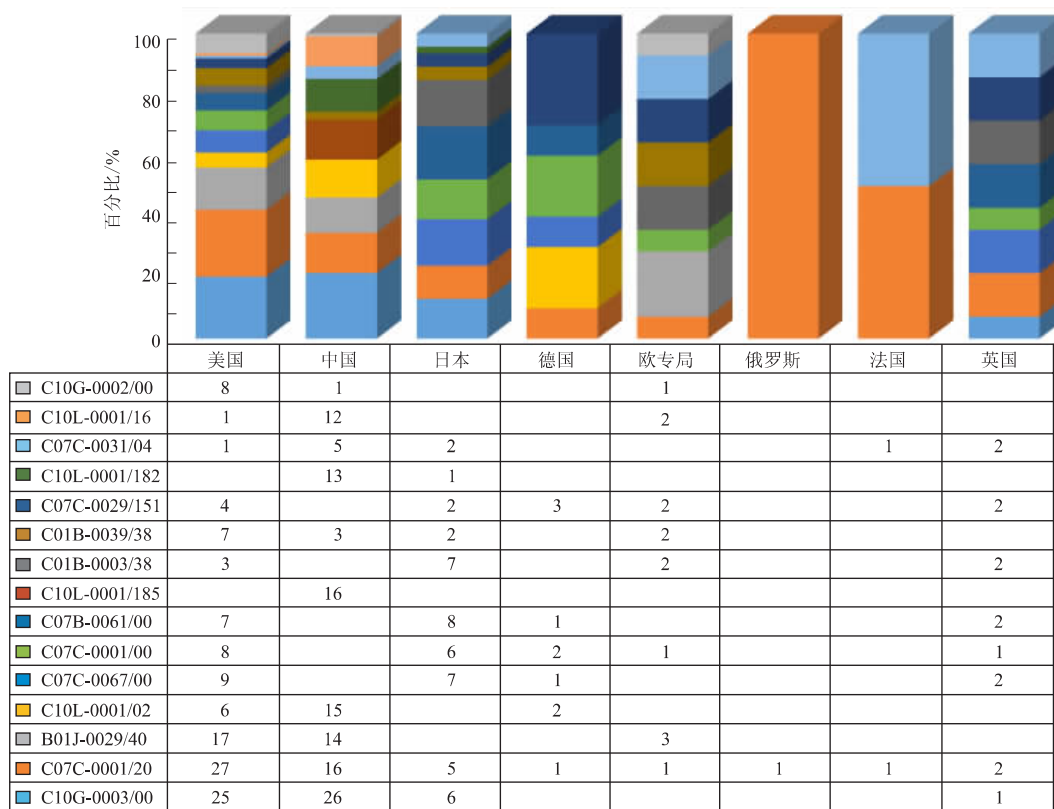


图 3 MTG 技术相关专利主要受理国家技术布局

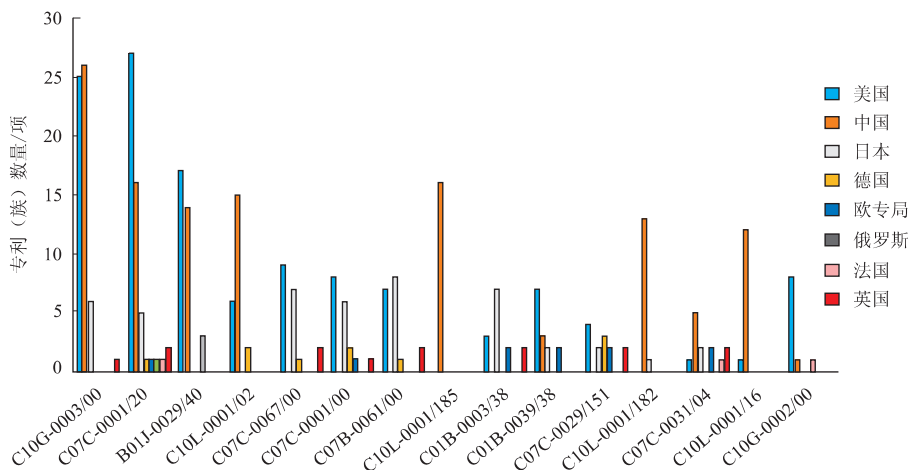


图 4 MTG 技术相关专利前 15 个技术方向的领先国家

5 MTG 专利权人分析

主要专利申请人中除了排在榜首的埃克森美孚外,其他全部是中国机构。这从侧面反映了中国在 MTG 技术上处于主导地位(表 4)。埃克森美孚公司作为 MTG 技术的发明者,掌握着较多的高质量技术专利,并且机构综合实力较强,在 15 个国家/地区均申请有专利保护,其专利技术布局在 MTG 转化工艺与系统配置(固定床、流化床、多管式反应器),分子筛催化剂(改性 ZSM-5、MCM-22)制备方法等。反差鲜明的是,中国机构均没有在外国的专利申请,国外保护力度处于空白,不利于对潜在市场的把握(表 5)。近三年专利申请最活跃的机构包括:中石化、赛鼎工程有限公司、中海油、山西华顿公司、雪佛龙公司等,这与这些机构近年积极开展 MTG 研发和项目建设相关。中海油、中石化等能源巨头也纷纷涉足 MTG 领域。

6 MTG 中国受理专利分析

从中国受理的 MTG 专利统计分析来看,从 2006 年以来,不论是从年度专利申请量还是从年度专利公开量来看,均呈现快速上升势头,MTG 技术在我国已进入市场化加速发展阶段,相关技术创新活动明显增加,市场竞争激烈。我国受理的 MTG 技术专利申请中,国内申请人占到 83%,来自美国、德国和荷兰的国外申请人占 17%。

6.1 专利布局分析

从重要专利申请机构在我国 MTG 技术专利技术研发布局的对比分析来看,从含氧的有机物制备液态烃混合物、分子筛催化剂是大部分申请机构普

表 4 MTG 技术重要专利权人的专利技术布局(基于 IPC 小组)

排名	专利权人	主要技术领域
1	埃克森美孚	C07C-0001/20(24)
		C10G-0003/00(22)
		B01J-0029/40(16)
2	中国石油化工有限公司	C07C-0001/20(5)
		B01J-0029/80(3)
		C07C-0011/06(3)
		C07C-0015/00(3)
3	赛鼎工程有限公司	C10G-0003/00(3)
		C07C-0031/04(3)
		C07C-0001/20(1)
4	壳牌石油公司	C07C-0001/20(2)
		C07C-0001/00(1)
		C10G-0002/00(1)
5	巴斯夫公司	B01J-0029/40(2)
		B01J-0029/70(2)
		C07C-0007/04(2)
6	雪佛龙公司	C07C-0027/00(2)
		C07C-0001/00(1)
		C01B-0039/38(1)
7	中国海洋石油总公司	C10G-0003/00(1)
		C07C-0015/02(1)
		C10G-0050/00(1)
8	Sundrop 燃料公司	C10J-0003/46(2)
		C10J-0003/48(2)
		C10J-0003/84(2)
9	帝国化学工业公司	C01B-0003/38(2)
		C07B-0061/00(2)
		C07CJ-0029/151(2)
10	山西华顿有限公司	C10L-0001/04(2)
		C10L-0001/10(2)
		C10L-0001/02(1)

遍注重布局的技术领域。具体分析如下:

1) 中国石油化工股份有限公司

主要发明人: 罗一斌、付强等。

专利技术布局: 从含氧的有机物制备液态烃混合物, 结晶硅铝酸盐沸石分子筛催化剂, 从碳化物生产未定义组合物的液态烃混合物、ZSM-5/AlPO₄-5 双结构分子筛, 节能型 MTG 工艺, MTG 过程中原

表 5 MTG 技术重要专利权人的专利申请国别分布

专利权人	合计	中国	美国	德国	欧专局	日本	加拿大	澳大利亚	南非	WIPO ¹⁾	俄罗斯	挪威	巴西	英国
埃克森美孚	15	5	42	13	20	19	11	12	16	7	1	3	6	2
中国石油化工有限公司	1	14	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
赛鼎工程有限公司	1	6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
壳牌石油公司	11	1	4	1	2	1	3	3	1	3	-	-	1	-
巴斯夫公司	11	2	3	-	2	2	2	2	-	2	1	-	-	-
雪佛龙公司	4	-	4	-	-	-	-	1	-	2	-	-	-	-
中国海洋石油总公司	1	4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Sundrop 燃料公司	2	-	4	-	-	-	-	-	-	2	-	-	-	-
帝国化学工业公司	12	1	3	1	2	2	1	2	1	1	-	2	-	1
山西华顿有限公司	1	6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

1) WIPO - 世界知识产权组织。

料甲醇的净化工艺及装置等。

2) 赛鼎工程有限公司

主要发明人: 范辉、崔晓曦等。

专利技术布局: 碎煤加压气化合气经甲醇合成汽油、联产液化天然气和用于焦油深加工的综合利用工艺, 焦炉煤气经甲醇合成汽油、联产液化天然气和焦油深加工的综合利用工艺, 节能型 MTG 工艺, MTG 过程中原料甲醇的净化工艺及装置, 焦炉煤气经甲醇合成汽油、联产天然气和氢气的工艺, 固定床绝热反应器甲醇转化制汽油连续反应与再生工艺, 用于甲醇制汽油的油-气-水三相分离器。

3) 中国海洋石油总公司

主要发明人: 于海斌、王银斌等。

专利技术布局: ZSM-5 分子筛催化剂制备方法, 固定床工艺, 低能耗 MTG 方法, 多段冷激法 MTG 工艺方法, 合成油制备均苯四甲酚, 重芳烃的轻质化方法等。

4) 中国科学院山西煤炭化学研究所

主要发明人: 李文怀、胡津仙等。

专利技术布局: 小晶粒含锆 ZSM-5 分子筛催化剂制备方法, 由合成气经甲醇和二甲醚合成汽油的工艺, 催化剂可连续反应与再生的移动床反应器等。

5) 太原理工大学

主要发明人: 李忠、孟凡会等。

专利技术布局: 合成气两步法制备汽油的装置及工艺, 改性 ZSM-5 分子筛及改性方法和应用, HZSM-5 分子筛催化剂及其制备方法和应用, 合成气制汽油一体化工艺及固定床反应器等。

6) 麦森能源科技有限公司

主要发明人: 陈国刚、卢赤杰等。

专利技术布局: 催化剂的再生方法, ZSM-5/NaY 复合分子筛催化剂及其制备方法, 浸渍金属改

性 ZSM-5 分子筛, MTG 反应系统及方法等。

7) 埃克森美孚

主要发明人: 查尔斯·哈里森·莫尔丁等。

专利技术布局: MTG 转化工艺与系统配置(固定床、流化床、多管式反应器), 分子筛催化剂(改性 ZSM-5、MCM-22) 制备方法等。

8) 中国科学院青岛生物能源与过程研究所

主要发明人: 李建青、吴晋沪等。

专利技术布局: ZSM-5/MCM-48 复合分子筛及其制备方法和应用, 纳米级 FeZSM-5 分子筛及其制备方法和应用等。

9) 中国科学院大连化学物理研究所

主要发明人: 安杰、陈福存等。

专利技术布局: 芳构化用共结晶分子筛催化剂、制备方法及其应用, 富含异构烷烃汽油的制备方法, 富烯低低碳烃及含氧化合物利用多级冷激式固定床反应器生产车用燃料的方法等。

10) 武汉科林精细化工有限公司

主要发明人有张先茂、王国兴等。

专利技术布局: 浸渍金属改性 ZSM-5 分子筛, 改性 ZSM-5 分子筛及改性方法和应用等。

6.2 法律状态分析

从法律状态分析结果来看, 我国发明专利有几个特点:

1) 申请和授权大量集中在近几年, 专利授权率较高, 且授权专利的有效率较高(86%), 说明我国对于 MTG 技术重视程度不断加强, 专利寿命较为“年轻”(表 6)。

2) 尽管国外申请者在我国的授权专利数量占比不高, 但美国、德国在我国仍有一定数量的未决申请, 而且重点国家的授权专利平均寿命普遍高于我国, 特别是寿命在 12 年以上的授权专利数量要多于我国, 显示了其专利的高质量和高价值(表 7)。

表6 MTG 技术在华专利法律状态一览

法律状态	数量	所占比例
专利申请未决	26	25.0%
专利申请被驳回	8	7.7%
专利申请撤回或视为撤回	20	19.2%
专利授权	50	48.1%
- 专利权有效	43	41.3%
- 专利权有效期届满	7	6.7%

表7 重点国家在华专利法律状态一览

国家	中国	美国	德国
申请总数	97	8	3
未决申请	24	0	2
授权专利	45	8	1
有效专利	42	4	1
平均寿命	3.8	13.7	7
5	3	-	-
6	3	1	-
7	-	1	1
8	2	-	-
不同寿命授权专利的件数	10	1	-
	11	1	-
	13	1	-
	16	1	-
	20	2	-

3) 美国埃克森美孚公司拥有最长的授权专利平均寿命,表明其很早即进入中国市场布局,但其中已有4件专利保护期满,现仅有1件专利处于有效期,也为我国技术研发提供了空间;中国科学院山西煤炭化学研究所是我国进入MTG技术研发领域最早的研究机构,在该研究领域积累较为深厚,有效专利年龄接近9年,显示较早即开始重视专利保护工作;国内其他机构的专利基本是在2010年以后申请的,且授权专利目前全部有效,反映其开始更加重视自主知识产权的技术开发(表8)。

表8 重点机构在华专利法律状态一览

机构	申请总数	未决申请	授权专利		有效专利	
			件数	平均寿命	件数	平均寿命
中国石油化工股份有限公司	11	4	7	5.8	7	5.8
赛鼎工程有限公司	7	1	6	2.2	6	2.2
中国海洋石油总公司	7	0	7	4.0	5	4.0
中国科学院山西煤炭化学研究所	6	3	3	8.8	3	8.8
太原理工大学	6	1	6	3.0	5	2.8
麦森能源科技有限公司	5	3	2	2.0	2	2.0
埃克森美孚	5	0	5	13.7	1	6.7
中国科学院青岛生物能源与过程研究所	3	0	3	4.0	2	4.0
中国科学院大连化学物理研究所	3	0	3	5.0	3	5.0
武汉科林精细化工有限公司	3	1	2	3.0	2	3.0

7 MTG 关键子技术领域专利分析

1) 催化剂

催化剂是MTG技术的最重要研究领域,年均专利申请活动占到总量的一半以上。中国是最大的专利受理国,占全部专利申请比例超过50%;同时也是催化剂技术相关专利的主要申请国家,远远领先于其他国家。

MTG催化剂技术相关专利主要集中在以下几个技术方向:复合催化剂研究、碱金属/碱土金属改性、X射线衍射表征、浸渍金属改性ZSM-5催化剂、用有机模板定向剂合成ZSM-5分子筛催化剂、催化剂在MTG及其他关联领域如甲醇制烯烃的应用等。近年来ZSM-5分子筛的改性优化和复合分子筛制备技术方向的创新活动受到更多的重视。

MTG催化剂技术领域重点专利主要掌握在埃克森美孚、拜耳等美国、德国、英国等国家专利权人手中,涉及的主要技术领域包括:新型分子筛结构、解决MTG反应热、利用金属元素干法或湿法改性的分子筛催化剂等。

2) 工艺过程反应器

工艺过程反应器研究在MTG技术研究中占有较为重要地位,专利申请活动占到总量的近一半。中国是最大的专利受理国,超过全部专利申请的70%;同时也是工艺过程反应器技术相关专利的主要申请国家,远远领先于其他国家。

MTG工艺过程反应器相关专利主要集中在以下几个技术方向:控制反应温度和压力从含氧有机物制备烃的工艺过程、甲醇制油和制烯烃或合成天然气联产工艺、反应产物的分离、催化剂的失活与再生等。近年来,优化制备工艺、用于联产合成天然气工艺受到更多的重视。

工艺过程反应器领域重点专利主要掌握在埃克森美孚公司手中,主要技术领域包括:两步法甲醇转化制汽油工艺、一步法甲醇制汽油多管反应器、采用反应器分区或高热容吸热材料控制反应热和避免催化剂过早失活、含氧化合物转化烯烃和烯烃转化汽油工艺相结合的反应系统等。

8 启示

从整体来看,我国在MTG相关技术研发和专利申请方面起步较晚,但近年来日益受到重视,专利的申请和授权大量集中在近几年,专利授权和审中占

比超过70%,且授权专利的有效率较高,说明近年来我国开始更加重视自主知识产权的技术开发。特别是中海油、中石化等传统能源企业已积极开展技术创新活动和申请专利保护,同时山西煤化所已有部分高质量专利在多地进行技术许可,有多套工程应用业绩。面对具有巨大发展潜力的市场,从专利分析结果来看,有些问题需要引起重视:

1) 促进核心专利技术的研发与应用,提高 MTG 经济性

尽管我国 MTG 技术和产业应用发展呈上升趋势,但在目前严控煤炭消费、油价低迷且预计要持续一段时间的情形下,煤基甲醇制汽油技术从经济性角度而言毫无优势,且面临标准、政策的缺失和市场认可度的限制。

我国研究在对新型 MTG 技术加强自主创新时,要注重从多方面提高 MTG 技术的经济性,包括:开发高选择性和高稳定性的纳米级和复合型催化剂、避免结焦失活、提高汽油收率和催化剂寿命,开发相应的配套工艺、解决 MTG 反应中反应热难以控制的难题、副产物重质汽油的加工处理(如均四甲苯的分离提纯、重质烃的轻质化等)。

2) 开展有组织的专利保护策略研究

通过重点机构在华专利法律状态的统计可以发现:美国、德国等国在我国仍有一定数量的未决申请,而且其授权专利平均寿命普遍高于我国,特别是寿命在12年以上的有效专利数量多于我国,显示了其专利的高质量和高价值。美国埃克森美孚公司拥有最长的授权专利平均寿命,表明很早即进入中国市场布局,但其中大部分专利保护期满,也为我国技术研发提供了空间。山西煤化所的有效专利寿命最长,显示其较早即开始重视专利保护工作。

在取得进一步研发改进成果或衍生应用时及时申请外围专利保护,形成专利保护网并从客观上起到延长核心专利保护期的作用。另外可尝试以高质量专利与主要专利申请人进行专利交叉许可的方式来有效规避专利技术纠纷。

3) 合理运用知识产权战略开拓潜在国际新兴市场

与企业合作形成良好产学研体系,加强对知识

产权的创造、运用、保护和管理,通过专利实施许可与转让的形式做好示范工程的技术支撑,实现经过检验的创新成果市场价值最大化。同时结合各方优势,将高质量专利进行国际同族专利申请,思路不应局限于美、欧、日等传统发达地区,这些地区的能源结构转型使得未来煤炭消费量将不断下滑,而要特别注意覆盖印度、东南亚(国际能源署认为未来数十年这两个地区煤炭消费发展最快)等潜在重点应用市场。这些地区也刚好是“一带一路”战略覆盖的地域,有利于充分利用国内、国外两种资源,发挥国内、国际两个市场的作用,基于完善的知识产权布局为技术走出国门寻找新机遇、开发新项目和发展新事业。

致谢 中国科学院山西煤炭化学研究所赵晓红高级工程师,广东省科技信息与发展战略研究所张军研究员对本文的选题方向、研究思路给予了宝贵的协助和指导,在此一并感谢!

参考文献

- [1] 中国工程院中国能源中长期发展战略研究项目组. 中国能源中长期(2030、2050)发展战略研究: 节能·煤炭卷[M]. 北京: 科学出版社, 2011: 264-267.
- [2] HINDMAN H. Methanol to Gasoline Technology [C]// CHUNG J S, LANGEN I, KOKKINIS T, et al. The Proceedings of The Twenty-third (2013) International Offshore and Polar Engineering Conference. Alaska: International Society of Offshore and Polar Engineers, 2013.
- [3] SRI Consulting, IHS Inc. METHANOL TO GASOLINE [R]. Menlo Park, California: SRI Consulting, 2011.
- [4] 高晓霞, 王晓东, 黄伟. 甲醇制汽油催化剂研究进展[J]. 功能材料, 2013, 44(10): 1369-1374, 1380.
- [5] 庞小文, 孟凡会, 卢建军, 等. 甲醇制汽油工艺及催化剂制备的研究进展[J]. 化工进展, 2013, 32(5): 1014-1019.
- [6] 蒋云峰, 邓蜀平. 甲醇制汽油方案技术经济分析[J]. 化工进展, 2010, 29(S1): 91-95.
- [7] 王银斌, 臧甲忠, 于海斌. 甲醇制汽油技术进展及相关问题探讨[J]. 煤化工, 2011, (3): 16-19.
- [8] 朱伟, 朱建华, 任潇航, 等. 一步法甲醇制汽油工艺的研究[J]. 现代化工, 2014, 34(1): 68-71.
- [9] 王毅. 甲醇制汽油发展现状及前景分析[J]. 洁净煤技术, 2011, 17(6): 39-42.