

[19] 中华人民共和国国家知识产权局



[12] 发明专利申请公布说明书

[21] 申请号 200880006513.6

[51] Int. Cl.

B01J 19/12 (2006.01)

B01J 19/08 (2006.01)

B01J 8/06 (2006.01)

C01B 3/26 (2006.01)

C01B 3/22 (2006.01)

C10L 3/08 (2006.01)

[43] 公开日 2010 年 2 月 10 日

[11] 公开号 CN 101646488A

[22] 申请日 2008.1.13

[21] 申请号 200880006513.6

[30] 优先权

[32] 2007.1.24 [33] US [31] 11/657,212

[86] 国际申请 PCT/IB2008/000538 2008.1.13

[87] 国际公布 WO2008/090467 英 2008.7.31

[85] 进入国家阶段日期 2009.8.28

[71] 申请人 艾登创新公司

地址 爱尔兰都柏林

共同申请人 昆士兰大学

[72] 发明人 朱中华·约翰 陈久岭

逯高清·马克斯 桂葛瑞·索罗门

[74] 专利代理机构 北京银龙知识产权代理有限公司

代理人 许 静

权利要求书 3 页 说明书 9 页 附图 4 页

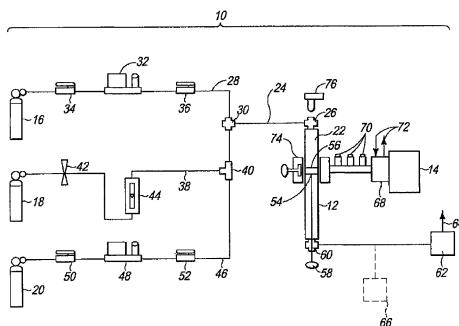
[54] 发明名称

使用微波辅助的催化剂上甲烷分解制造富氢燃料的方法和系统

[57] 摘要

一种制造富氢燃料的方法，其包括以下步骤：

提供甲烷气体流和提供催化剂(56)。所述方法还包括以下步骤：使用微波辐射在选定微波功率下加热所述催化剂(56)而不是反应器器壁和所述甲烷气体，将所述甲烷气体流引导到所述催化剂(56)上，和控制所述微波功率从而产生具有选定组成的产物气体。一种制造富氢燃料的系统(10)，其包括甲烷气体源(16)、含有催化剂(56)的反应器(12)和经配置以加热所述催化剂(56)的微波功率源(14)。



1. 一种制造富氢燃料的方法，其包含：

提供甲烷气体流；

提供催化剂；

使用微波辐射在选定微波功率下加热所述催化剂；

将所述甲烷气体流引导到所述催化剂上；和

控制所述微波功率以产生具有选定组成的产物气体。

2. 根据权利要求 1 所述的方法，其中所述产物气体包含以体积计约 20% 到 30% 的氢气和以体积计约 70% 到 80% 的甲烷。

3. 根据权利要求 1 所述的方法，其中所述催化剂包含 Ni 或 Ni 合金。

4. 根据权利要求 1 所述的方法，其中所述提供步骤提供在约室温下并在约 1 个大气压下的所述甲烷气体。

5. 根据权利要求 1 所述的方法，其进一步包含在所述加热步骤之前用氢气预处理所述催化剂。

6. 根据权利要求 1 所述的方法，其中所述引导步骤在由微波可穿透材料制成的管式反应器中执行。

7. 根据权利要求 1 所述的方法，其中所述引导步骤在放置在微波可穿透支撑物上的所述催化剂下执行，所述微波可穿透支撑物经配置以允许所述甲烷气体流穿过所述催化剂。

8. 根据权利要求 1 所述的方法，其进一步包含处理所述产物气体以回收实质上纯的氢气。

9. 一种制造富氢燃料的方法，其包含：

提供甲烷气体流；

提供催化剂；

使用微波辐射在选定微波功率下加热所述催化剂；

将所述甲烷气体流引导到所述催化剂上以使至少部分所述甲烷气体转化成氢气；和

选择所述催化剂、控制所述甲烷气体流并控制所述微波功率以产生包含选

定体积百分比的甲烷和氢气的产物气体。

10. 根据权利要求 9 所述的方法，其中所述控制步骤经执行产生具有以体积计约 20%到 30%氢气的所述产物气体。

11. 根据权利要求 9 所述的方法，其中所述控制步骤经执行使约 10%到 20%的所述甲烷气体转化成氢气。

12. 根据权利要求 9 所述的方法，其中所述控制步骤经执行产生具有以体积计约 70%-80%甲烷的所述产物气体。

13. 根据权利要求 9 所述的方法，其中所述选定微波功率为约 150 瓦到 300 瓦。

14. 根据权利要求 9 所述的方法，其进一步包含在所述引导步骤之前用氢气预处理所述催化剂。

15. 根据权利要求 9 所述的方法，其中所述引导步骤在管式反应器中执行，并且所述加热步骤在放置在所述管式反应器中的微波可穿透支撑物中执行。

16. 根据权利要求 9 所述的方法，其中所述催化剂包含选自由 Ni81Al、Ni93Al、Ni77Cu16Al、Ni54Cu27Al 和 Ni83Mg6Al 组成的群组的金属。

17. 一种制造富氢燃料的方法，其包含：

提供具有与甲烷源流通的具有微波可穿透器壁的反应室的管式反应器；

将催化剂放置在所述反应室中；

提供微波发生器；

使用微波辐射在所述微波发生器的选定微波功率下辐射所述催化剂；

引导甲烷气体流穿过所述反应室与所述催化剂接触； 和

控制所述微波功率以产生包含选定体积百分比的氢气和甲烷的产物气体。

18. 根据权利要求 17 所述的方法，其中将所述催化剂加热到约 600°C 到 700°C 的温度。

19. 根据权利要求 17 所述的方法，其中所述微波功率为约 150-300 W。

20. 根据权利要求 17 所述的方法，其中所述引导步骤使所述甲烷气体中约 10%到 20%的 CH<sub>4</sub> 转化成 H<sub>2</sub>。

21. 根据权利要求 17 所述的方法，其中所述引导步骤和所述控制步骤经

执行产生呈碳纤维形式的固体碳，所述固体碳作为有用的副产物从所述产物气体中脱离。

22. 根据权利要求 17 所述的方法，其进一步包含处理所述产物气体以回收实质上纯的氢气。

23. 根据权利要求 22 所述的方法，其中所述处理步骤包含使所述产物气体在真空压力下流经 Pd/Ag 膜。

24. 一种制造富氢燃料的系统，其包含：

甲烷气体源，其经配置以提供甲烷气体流；

反应器，其具有与所述甲烷气体源流通的具有微波可穿透器壁的反应室，所述反应室经配置以含有催化剂并使所述甲烷气体循环与所述催化剂接触；和

微波功率源，其经配置以加热所述反应室中的所述催化剂以形成具有选定体积百分比的氢气和甲烷的产物气体。

25. 根据权利要求 24 所述的系统，其中所述反应器包括微波可穿透支撑物，所述微波可穿透支撑物经配置以支撑所述催化剂与所述甲烷气体流接触。

26. 根据权利要求 24 所述的系统，其中所述反应器包含管式反应器。

27. 根据权利要求 24 所述的系统，其进一步包含与所述反应器流通的氢气源，所述氢气源经配置以提供用于预处理所述催化剂的氢气流。

28. 根据权利要求 24 所述的系统，其进一步包含与所述反应器流通的惰性气体源，所述惰性气体源经配置以提供用于冲洗所述反应室的惰性气体流。

29. 根据权利要求 24 所述的系统，其中所述催化剂包含 Ni 或 Ni 合金。

30. 根据权利要求 24 所述的系统，其中所述产物气体包含以体积计约 20% 到 30% 的氢气和以体积计约 70% 到 80% 的甲烷。

31. 根据权利要求 24 所述的系统，其进一步包含红外传感器，所述红外传感器经配置以测量所述催化剂的温度。

32. 根据权利要求 24 所述的系统，其进一步包含气相色谱仪，所述气相色谱仪经配置以分析所述产物气体的化学组成。

## 使用微波辅助的催化剂上甲烷分解制造富氢燃料的方法和系统

### 技术领域

本发明总体来说涉及氢燃料的制造，并且具体来说涉及制造适合用作替代燃料的富氢燃料的方法和系统。

### 背景技术

例如氢气和天然气等气体替代燃料，因其在汽车发动机中清洁燃烧的特征而具有价值。已开发出多种用于制造氢气的方法。这些方法包括电解、外来水裂解（exotic water splitting）和从工业废水流中分离。

也可以通过天然气重整来制造氢气。通常使用多步法将例如甲烷、丙烷或天然气等烃燃料转化成高纯度氢气流。这一方法的步骤通常包括（1）合成气的产生，（2）水煤气变换反应，和（3）气体净化（例如，CO 和 CO<sub>2</sub> 的去除）。氢气流随后可用于多种用途，包括与其它气体混合制造替代燃料。

例如，一种称为 HYTHANE 的特别清洁燃烧的气体替代燃料包含氢气与天然气的混合物。HYTHANE 中的前缀“Hy”取自氢气（hydrogen）。HYTHANE 中的后缀“thane”取自甲烷（methane），甲烷是天然气的主要成分。HYTHANE 是 Brehon Energy PLC 的注册商标。HYTHANE 通常含有以能量计约 5% 到 7% 的氢气，对应于以体积计 15% 至 20% 的氢气。

为制造氢气，一类称为“蒸汽重整器（steam reformer）”的重整器使用烃燃料和蒸汽（H<sub>2</sub>O）。在蒸汽重整器中，烃燃料在含有蒸汽（H<sub>2</sub>O）和一种或多种催化剂的加热反应管中反应。通过重整制造高纯度氢气通常需要高温（800-900 °C）。蒸汽重整同时产生杂质，特别是 CO 和 CO<sub>2</sub>，如果不加以去除，那么最终会释放到大气中。

通过重整制造高纯度氢气还需要大量设备资金成本和大量生产成本，特别是电力成本。除这些缺点外，还很难制造蒸汽重整器的小型实施方案。氢气制造系统具有相对较小的体积将会很有利，如此替代燃料可在加油站规模的设施

中而不是在炼油厂规模的设施中制造。

另一种从天然气制造氢气的方法包括甲烷热分解。例如，甲烷通过如下反应分解成氢气：



例如，产生碳黑和氢气的“热炭黑法”中已使用天然气的热分解。使用热分解，产生每摩尔氢气的能量需求 (37.8 kJ/mol H<sub>2</sub>) 显着小于蒸汽重整法的能量需求 (63.3 kJ/mol H<sub>2</sub>)。然而，这一方法仍需要高温 (例如，1400°C)、高设备成本和高能耗。

最近，已结合各种催化剂研究了天然气的热分解，这些催化剂允许反应在较低温度下进行。例如，Wang 等人的美国专利第 7,001,586 B2 号揭示一种热分解方法，其中使用两种分别具有式 NixMgyO 和式 NixMgyCuzO 的催化剂将甲烷分解成碳和氢气。前者需要约 425°C 到 625°C 的较低温度，但寿命较短且活性较低。后者的寿命较长且活性较高，但所需的反应温度高得多，约 600°C 到 775°C。不过更重要的是，这些方法需要高能耗来加热反应器的器壁、气体和催化剂。

对氢气制造系统来说将有利的是，能够在较低温度下和较低能耗下执行、多种催化剂长时间内具有活性，以及极低的碳排放 (例如，CO、CO<sub>2</sub>)。另外，氢气制造系统具有适合制造含有氢气的替代燃料的体积和结构将会很有利。本发明针对一种制造富氢燃料的方法和系统，这种系统克服现有技术的氢气制造系统的许多缺点。

相关技术的上述实例和与此相关的局限性打算为说明性的而非排他性的。在阅读说明书和研究图式后，相关技术的其它局限性对所属领域的技术人员来说将变得显而易见。类似地，结合一种系统和方法描述和说明下列实施方案和其各方面，这些实施方案和方面打算为例证性的和说明性的，而不限制范围。

## 发明内容

一种制造富氢燃料的方法，其包括以下步骤：提供甲烷气体流，提供催化剂，使用微波辐射在选定微波功率下选择性加热催化剂而不是反应器器壁和甲烷气体，将甲烷气体流引导到催化剂上，和控制微波功率从而产生具有选定组

成的产物气体。

所述方法可在具有具微波可穿透器壁的反应室的反应器中执行。另外，催化剂可包含金属，例如通过共沉淀制备的以 Ni 为主的化合物。在催化剂的表面上，发生甲烷 ( $\text{CH}_4$ ) 分解成氢气 ( $\text{H}_2$ ) 和呈碳纤维形式的固体碳 (C) 的反应。另外，一些甲烷气体未能反应 (甲烷逃逸 (methane slip)) 以致产物气体包含甲烷和氢气。选择和调配催化剂以在操作条件 (例如，气体流速、微波功率、催化剂量) 下保持稳定，如此使成本最小。另外，催化剂经若干小时的反应维持活性特征。

可控制甲烷气体流和微波功率以使产物气体的组成近似于 HYTHANE 的化学组成。例如，产物气体可包含以体积计约 20% 到 30% 的氢气和以体积计约 70% 到 80% 的甲烷。有利地，产物气体几乎不含碳杂质 (例如， $\text{CO}$ 、 $\text{CO}_2$ )，因为碳被转化为固体碳纤维，所述固体碳纤维作为有用的副产物从产物气体中脱离。另外，产物气体仅含有微量的高级烃 (例如， $\text{C}_2\text{H}_4$ 、 $\text{C}_2\text{H}_2$ 、 $\text{C}_3\text{H}_6$ 、 $\text{C}_3\text{H}_8$ 、 $\text{C}_3\text{H}_4$ )。

一种制造富氢燃料的系统，其包括甲烷气体源，其经配置以提供甲烷气体流。系统还包括反应器，其具有与甲烷气体源流通的经配置以含有催化剂并使甲烷气体循环与催化剂接触的反应室。系统还包括微波功率源，其经配置以加热反应室中的催化剂从而形成具有选定体积百分比的氢气和甲烷的产物气体。

在方法的一个替代实施方案中，进一步处理产物气体以回收呈实质上纯形式的氢气。为回收实质上纯的氢气，使产物气体在真空下流经涂在多孔金属或陶瓷板上的 Pd/Ag 膜。

#### 附图说明

在图式中提及的图中说明例证性实施方案。希望将本文中所揭示的实施方案和图视为说明性的而非限制性的。

图 1 是说明制造富氢燃料的方法的步骤流程图；

图 2 是制造富氢燃料的系统的示意图；

图 3 是说明使用 Ni54Cu27Al 催化剂的实施例 1 的  $\text{CH}_4$  转化率、 $\text{H}_2$  含量和碳形成与反应时间之间关系的叠置图；和

图 4 是说明使用 Ni81Al 催化剂的实施例 2 的 CH<sub>4</sub> 转化率、H<sub>2</sub> 含量和碳形成与反应时间之间关系的叠置图。

### 具体实施方式

本发明中使用下列定义。HYTHANE 意指由氢气和甲烷以及氢气和天然气中所包括的杂质构成的富氢替代燃料。

甲烷逃逸意指穿过系统而未反应的未反应甲烷。

微波辐射意指 0.3 GHz 到 300 GHz 范围内的电磁辐射。

### 方法

参看图 1，说明制造富氢燃料的方法的步骤。第一步包含“提供选定流速的甲烷气体流”。例如，甲烷气体可呈纯甲烷气体形式。或者，甲烷气体可呈从“化石燃料”沉积物中获得的天然气形式。天然气通常是约 90% 的甲烷，连同少量的乙烷、丙烷、高级烃和如二氧化碳或氮气的“惰性气体”。另外，甲烷气体可在选定温度和压力下从储槽（或管道）中供应。甲烷气体优选在约室温（20°C 到 25°C）下和在约大气压（1 大气压）下提供。另外，甲烷气体可在选定流速下提供。在后续实施例中，甲烷气体的选定流速为约 120 毫升/分钟（STP）。

如图 1 中还显示，方法包括“提供催化剂”的步骤。催化剂优选以直径为 74 μm 到 140 μm 的粒子形式提供。另外，催化剂优选含于支撑物上，支撑物使得甲烷气体沿催化剂粒子表面自由流动。另外，可使用 H<sub>2</sub> 预处理呈金属氧化物形式的催化剂以将金属氧化物还原成金属。

催化剂的优选金属包含 Ni 或含 Ni 合金。例如，金属可包含 NiAl 或掺杂有 Cu、Pd、Fe、Co 或例如 MgO、ZnO、MnO<sub>2</sub> 或 SiO<sub>2</sub> 等氧化物的 Ni。特定催化剂包括 Ni81Al、Ni93Al、Ni77Cu16Al、Ni54Cu27Al 和 Ni83Mg6Al。另外，可通过从硝酸盐与碳酸钠的混合水溶液共沉淀而制备以镍为主的催化剂前体。

下表 I 提供关于用于以上催化剂的以镍为主的前体的催化剂制备的信息。这些催化剂是通过从硝酸盐与碳酸钠的混合水溶液共沉淀而制备。

### 表 1：催化剂制备

#### 催化剂组成

---

1 Ni81Al	81 wt. %Ni0-19 wt. %Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
2 Ni93Al	93 wt. %Ni0-7 wt. %Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
3 Ni77Cu16Al	77 wt. %Ni0-16 wt. %Cu0-7 wt. %Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
4 Ni54Cu27Al	54 wt. %Ni0-27 wt. %Cu0-9 wt. %Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
5 Ni83Mg6Al	83 wt. %Ni0-6 Wt. %Mg0-11 wt. %Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>

---

然而，催化剂可包含另一金属而非 Ni 或其合金，例如选自周期表第 VIII 族的金属，包括 Fe、Co、Ru、Pd 和 Pt。在任何状况下，选择和调配催化剂以在反应条件下长时间保持稳定。在后续实施例中，即使在 16 小时的反应时间后也无迹象表明催化剂将失活。

如图 1 中还显示，方法包括“使用微波辐射在选定的微波功率下加热催化剂”的步骤。这一步骤可使用经配置以用微波辐射来辐射催化剂的常规微波发生器和微波循环器执行。一般而言，催化剂将通过松弛机理（例如，偶极、离子跃迁、欧姆损耗）吸收微波能，其选择性加热金属催化剂，而不是加热反应器器壁和甲烷气体，从而显着节省催化剂/微波加热法的能量消耗。

通过微波辐射加热催化剂提供下列优点：

- a.) 体积加热，快速，
- b.) 选择性加热催化剂而不是反应器器壁和甲烷气体，高效，
- c.) 低温度梯度，
- d.) 热点以防产物连续反应，
- e.) 还可能通过改变催化剂在微波电磁场中的电子性质来影响催化反应。

在后续实施例中，微波发生器在约 250 瓦的功率下操作，并将催化剂加热到约 600°C 到 700°C 的温度。然而，应了解所述方法可在经选择以获得期望的产物气体组成的微波功率下实施。例如，微波功率的代表性范围可为 150 瓦到 300 瓦。同样在后续实施例中，微波发生器在 2.45 GHz 的频率下操作。对于执行微波辐射来说，反应器和催化剂的支撑物必须由能够经得起高温的微波可穿透材料制成。一种适合反应器和支撑物的材料包含石英。

如图 1 中还显示，方法包括“将甲烷气体流引导到催化剂上”的步骤。这

一步骤可通过将催化剂放置在具有反应室的微波可穿透反应器中来执行，所述反应室经配置以含有催化剂并将甲烷气体流引导到催化剂上。

如图 1 中还显示，方法包括“在选定流速下控制微波功率以产生具有选定组成的产物气体”的步骤。这一步骤可使用具有可变功率控制的微波发生器执行。

### 系统

参看图 2，说明根据先前描述的方法制造富氢燃料的系统 10。系统 10 包括反应器 12 和微波发生器 14。系统还包括与反应器 12 流通的甲烷供应 16、氢气供应 18 和惰性气体供应 20。

反应器 12 (图 2) 可包含由例如石英等微波可穿透材料制成的常规管式反应器。另外，反应器 12 包括具有与供应管道 24 流通的入口 26 的密封工艺室 22。

供应管道 24 (图 2) 通过接头 30 与甲烷管道 28 流通，甲烷管道 28 又与甲烷供应 16 流通。另外，甲烷管道 28 包括经配置以远程控制进入反应室 22 的甲烷气体流的甲烷质量流量控制器 32，和甲烷质量流量控制器 32 两侧的断流阀 34、36。在所述说明性实施方案中，甲烷供应 16 经配置以提供纯甲烷。然而，应了解系统 10 可包括例如天然气等另一甲烷源，并且所述方法可使用例如天然气等另一甲烷源实施。

供应管道 24 (图 2) 还通过接头 40 与氢气管道 38 流通，氢气管道 38 又与氢气供应 18 流通。氢气管道 38 包括经配置以手动调节进入反应室 22 的氢气流的针形阀 42，和经配置以测量氢气流的转子流量计 44。

供应管道 24 (图 2) 还与惰性气体管道 46 流通，惰性气体管道 46 又与惰性气体供应 20 流通。惰性气体可包含氩气或例如氦气或氖气等另一惰性气体。惰性气体管道 46 还包括经配置以远程控制进入反应室 22 的惰性气体流的惰性气体质量流量控制器 48，和惰性气体质量流量控制器 48 两侧的断流阀 50、52。惰性气体管道 46 可用于冲洗反应室 22。

除反应室 22 (图 2) 外，反应器 12 还包括经配置以在反应室 22 中支撑催化剂 56 的支撑物 54。如同反应器 12 和反应室 22 的器壁一样，支撑物 54 由微波可穿透材料制成。另外，支撑物 54 具有杯形结构，其具有开口允许气体

穿过支撑物 54 和围绕催化剂 56 流动。支撑物 54 还包括经配置以允许从反应室 22 移出支撑物 54 和催化剂 56 的手柄 58。

反应器 12 (图 2) 还包括与反应室 22 流通的出口 60。反应器 12 的出口 60 经配置以排放反应室 22 中形成的产物气体。出口 60 与经配置以分析离开反应室 22 的产物气体的化学组成的气相色谱仪 62 流通。另外，气相色谱仪 62 与经配置以将经过分析的产物气体排放到大气中的排风口 64 流通。反应器 12 的出口 60 还可与经配置以贮存产物气体以备将来使用的产物气体贮存容器 66 流通。

系统 10 的微波发生器 14 (图 2) 经配置以引导微波辐射穿过微波循环器 68 并穿过三短截线调谐器 70，到达反应室 22 中支撑于支撑物 54 上的催化剂 56。微波循环器 68 还包括冷却系统 72。另外，微波调整旋塞 74 经配置以远程调整微波发生器 14 的反射功率。

系统 10 (图 2) 还包括经配置以测量催化剂 56 的温度的红外温度传感器 76。

### 实施例 1

使用先前描述的方法 (图 1) 和先前描述的系统 10 (图 2)，在下列条件下制造包含 CH<sub>4</sub> 和 H<sub>2</sub> 的富氢燃料。

- A. 经由甲烷供应管道 28 将纯甲烷气体 (纯度 99.7%) 供应给反应器 12 (图 I2)。
- B. 甲烷流速 (即，图 1 中的选定流速): 120 毫升/分钟。
- C. 催化剂 56 (图 2): Ni54Cu27Al。
- D. 最初在 160 W 的微波功率下在 H<sub>2</sub> 等离子体中还原催化剂 56 (图 2) 数分钟的时间。为还原催化剂 56 (图 2)，经由氢气供应管道 38 (图 2) 将氢气流供应给反应室 22 (图 2)，并用微波发生器 14 (图 2) 的微波能辐射以形成等离子体。
- E. 反应压力: 大气压 (1 atm)。
- F. 产物 (富氢燃料): 经由如下反应的 H<sub>2</sub>、固体碳 C 和未反应 CH<sub>4</sub>: CH<sub>4</sub> = C + 2H<sub>2</sub>。固体碳的 SEM (扫描电子显微镜法) 图片证明碳呈碳纤维形式而非碳黑形式。另外，碳纤维是可用于其它应用的有用副产物。

- G. 施加于催化剂的微波功率: 250 W。
- H. 甲烷转化率: 约 20%。
- I: 未反应甲烷: 约 80%。
- J. 产生速率: 在稳定条件下每分钟约 48 兆升 (Ml) H<sub>2</sub>。
- K. 在实施例 1 中, 所消耗的唯一能量是在加热催化剂中。因此, 所述方法是能量有效的。

图 3 说明使用 Ni54Cu27Al 作为催化剂 56 (图 2), 通过微波加热辅助的 CH<sub>4</sub>转化的结果。实施例 1 是连续法。在图 3 中, 反应时间 (小时 (h)) 表示方法执行的时间长度。

在图 3 中, 有三个独立的图。下图绘制 y 轴 CH<sub>4</sub>的转化率 “X%” (以体积百分比表示) 对 x 轴反应时间 (小时)。中间图绘制 y 轴 H<sub>2</sub>的含量 “C%” (以体积百分比表示) 对 x 轴反应时间 (小时)。上图绘制 y 轴固体碳的量 (固体碳 (g)) (以克表示) 对 x 轴反应时间 (小时)。

## 实施例 2

使用以上关于实施例 1 所概述的相同条件执行实施例 2, 但催化剂包含 Ni81Al 而不是 Ni54Cu27Al。

图 4 说明使用 Ni81Al 作为催化剂 56 (图 2), 通过微波加热辅助的 CH<sub>4</sub>转化的结果。实施例 2 是连续法。在图 4 中, 反应时间 (小时 (h)) 表示方法执行的时间长度。

在图 4 中, 有三个独立的图。下图绘制 y 轴 CH<sub>4</sub>的转化率 “X%” (以体积百分比表示) 对 x 轴反应时间 (小时)。中间图绘制 y 轴 H<sub>2</sub>的含量 “C%” (以体积百分比表示) 对 x 轴反应时间 (小时)。上图绘制 y 轴固体碳的量 (固体碳 (g)) (以克表示) 对 x 轴反应时间 (小时)。

从这两个实施例确定, 通过微波加热 Ni54Cu27Al 催化剂, 可连续并稳定地制造含有以体积计 30% 的 H<sub>2</sub>的产物气体。通过微波加热 Ni81Al 催化剂, 可连续并稳定地制造含有以体积计 20% 的 H<sub>2</sub>的产物气体。

## 制造纯氢气的替代实施方案

方法的一个替代实施方案包括进一步处理产物气体以回收呈实质上纯形式的氢气的额外步骤。一种回收纯氢气的方法是使产物气体在真空下流经涂在

多孔金属或陶瓷衬底上的 Pd/Ag 膜。Willms 等人的美国专利第 6,165,438 号（以引用的方式并入本文中）揭示从含烃气体中回收氢气的装置和方法。

因此，本发明描述制造富氢燃料的改进方法和系统。虽然已参考某些优选实施例进行描述，但对所属领域的技术人员来说将显而易见，在不脱离附加权利要求书的范围下可进行某些改变和修改。

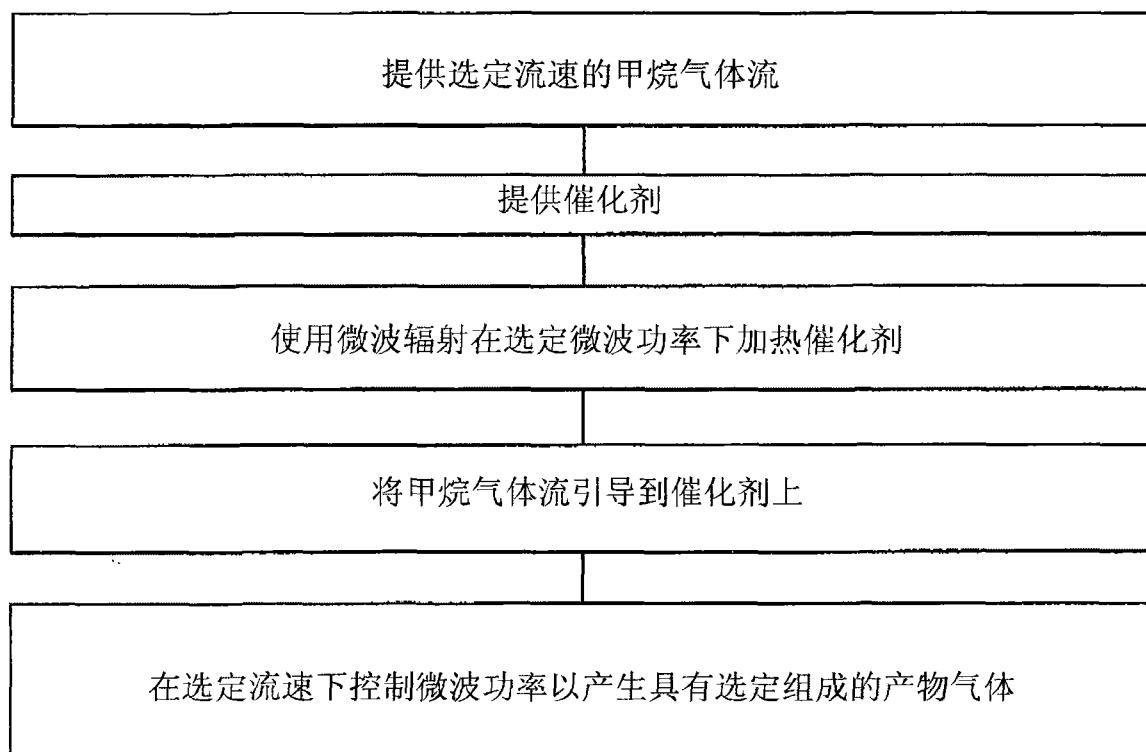


图 1

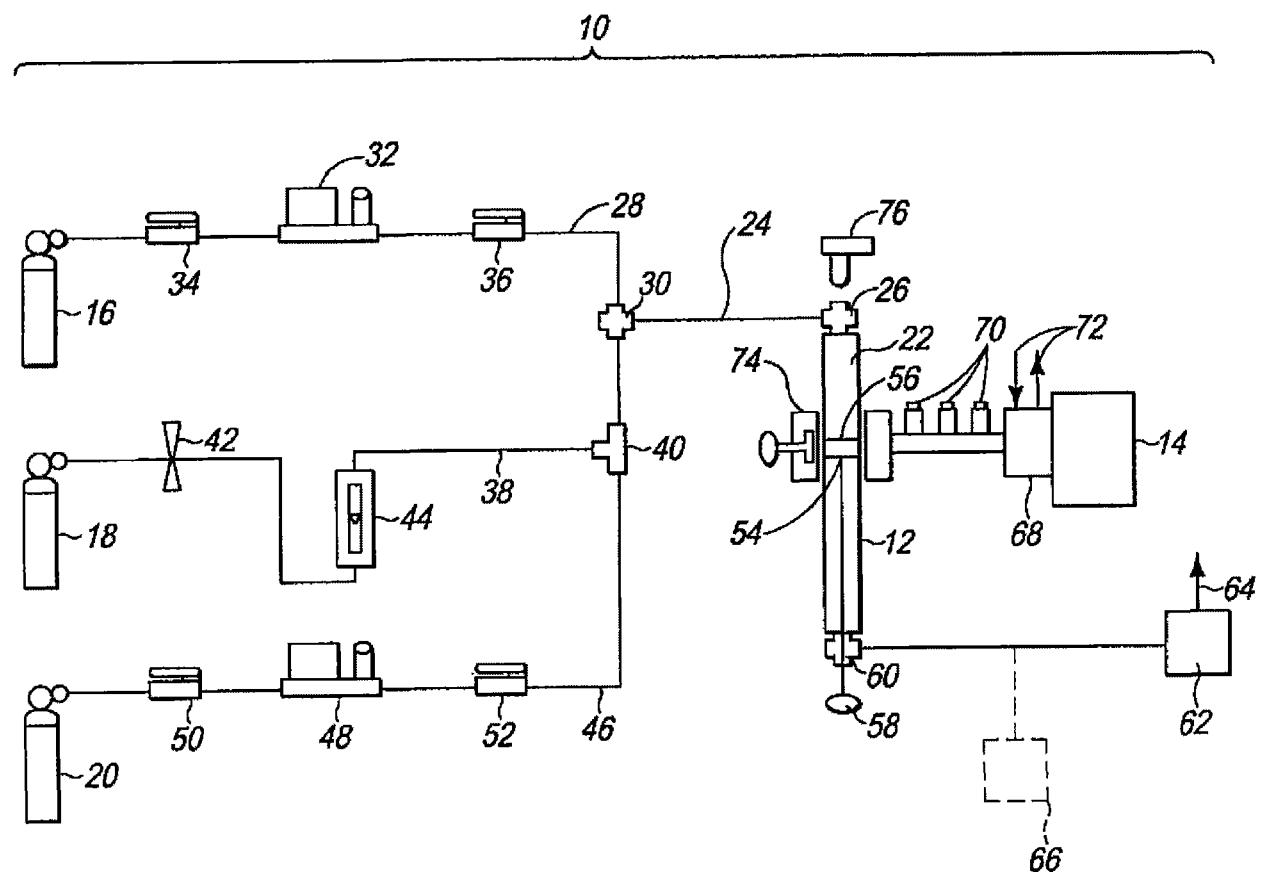


图 2

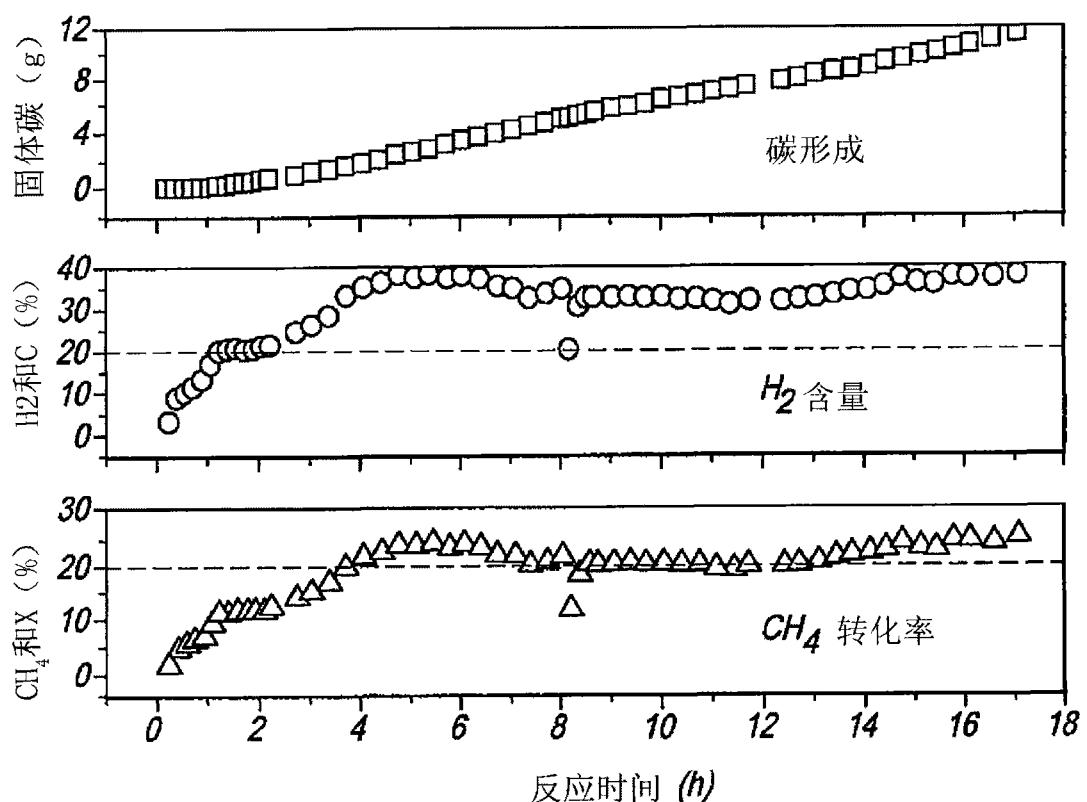


图 3

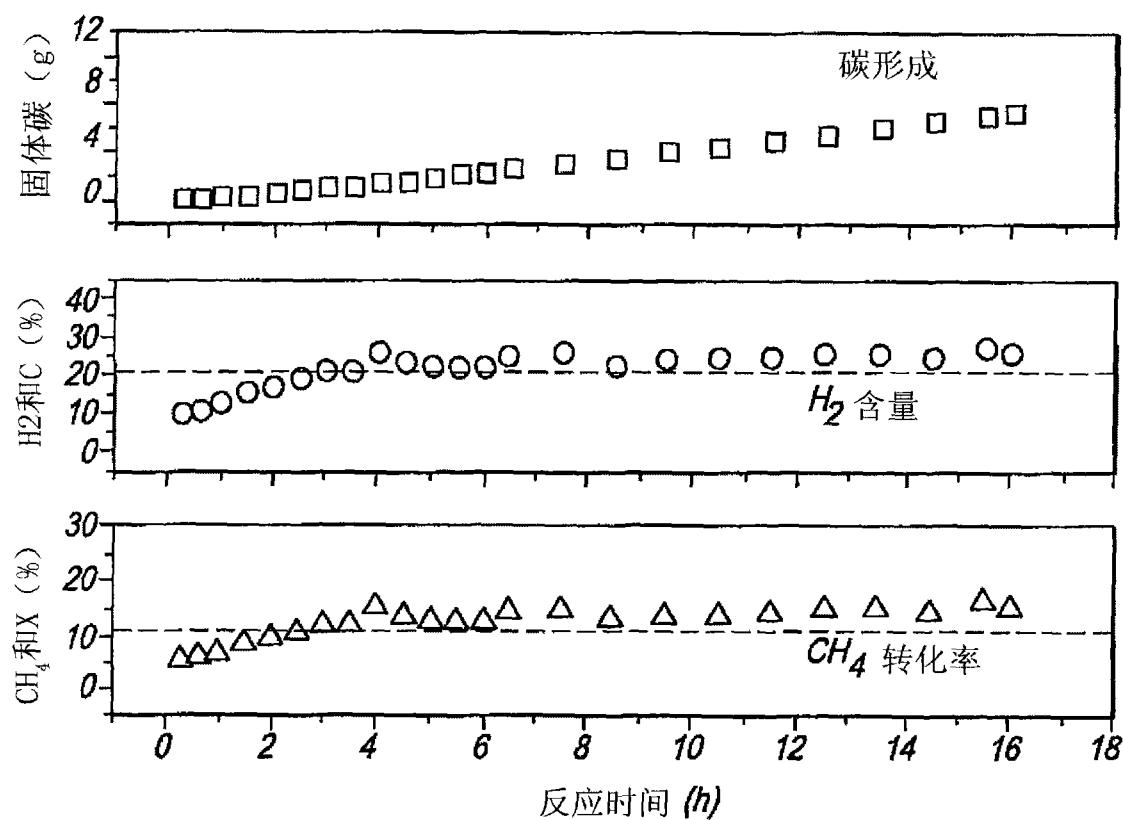


图 4