



РЕСПУБЛИКА КАЗАХСТАН

(19) KZ (13) B (11) 36605

(51) C01B 3/00 (2006.01)

C01B 3/24 (2006.01)

C01B 32/00 (2006.01)

МИНИСТЕРСТВО ЮСТИЦИИ РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН

ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21) 2022/0518.1

(22) 25.08.2022

(45) 16.02.2024, бюл. №7

(72) Скаков Мажын Канапинович; Миниязов Арман Жанарбекович; Бакланов Виктор Владимирович; Коянбаев Ерболат Тайтолеуович; Туленбергенов Тимур Рымбекович; Соколов Игорь Андреевич; Жанболатова Гайния Кайырдықызы; Бейсенов Ержан Серікұлы

(73) Республиканское государственное предприятие на праве хозяйственного ведения «Национальный ядерный центр Республики Казахстан» Министерства энергетики Республики Казахстан

(56) Д.В. Чигодаева, В.П. Шиян, Н.А. Цыбенкова. Плазмохимическая установка для конверсии природного газа в углерод и водород // Вестник науки Сибири. 2012. № 4 (5). С. 60-65.

RU 2349545 C2, 20.03.2009.

А.И. Бабарицкий и др. Импульсно-периодический СВЧ разряд как катализатор химической реакции // Журнал технической физики. - 2000. - Т. 70. - Вып. 11. - С. 36-41

US7452514B2, 18.11.2008

(54) **УСТРОЙСТВО ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ВОДОРОДА И ТВЕРДОГО УГЛЕРОДА НА ОСНОВЕ ПЛАЗМЕННОГО ПИРОЛИЗА МЕТАНА В СВЧ-РАЗРЯДЕ**

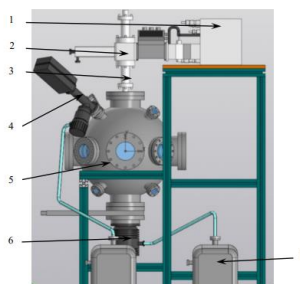
(57) Предлагаемое устройство предназначено для получения водорода и твердого углерода с применением технологии плазменного пиролиза метана в СВЧ-разряде.

Задача, решаемая изобретением, состоит в получении водорода и твердого углерода, и накоплении данных элементов отдельно в специальных объемах в процессе плазменного пиролиза.

Технический результат от использования изобретения заключается в повышении конверсии метана до 90-95% при производстве водорода и углерода из метана с предотвращением использования дополнительных примесей и катализаторов.

Сущность предлагаемого изобретения заключается в получении водорода и твердого углерода методом плазменного пиролиза в проточной реакционной камере при воздействии направленного электромагнитного сверхвысокочастотного (СВЧ) излучения мощностью до 6 кВт и с частотой 2450 МГц в стационарном режиме. Представленное устройство дает возможность исключить дополнительные расходы энергии на предварительный подогрев (ионизацию) инертного газа и этап по его отделению от получаемого водорода.

(19) KZ (13) B (11) 36605



1 – генератор СВЧ-излучения; 2 – волновод; 3 – реакционная камера; 4 – газоанализатор; 5 – аналитическая камера; 6 – вакуумная система откачки; 7 – накопитель водорода.

Фигура I. – Установка для получения водорода и углерода

Изобретение относится к технике переработки углеводородного газа и производства чистых продуктов – водорода и углерода.

В настоящее время существуют аналогичные установки, позволяющие получать водород и углерод с применением плазменного пиролиза.

Известно устройство [Патент РФ №2064889, МПК C01B 3/26, C01B 31/02, публ. 1996.08.10], в котором реализовано получение водорода и углерода из углеводородного газа путем диссоциации молекул газа в отсутствии воздуха. Основой устройства служит реактор, состоящий из корпуса с катализатором, узла подачи реагента, выхлопного патрубка и нагревателя. Слой катализатора в реакторе перемешивается вращением реактора. Смесь водорода и непрореагировавшего углеводородного газа выводятся из реактора через выхлопной патрубок. Образовавшийся углерод остается на катализаторе и полностью удерживается в реакторе. Устройство малопродуктивное, поэтому процесс стимулируют катализаторами, а для сокращения непроизводительного расхода тепла рабочую смесь газа и катализатора ворошат вращением реактора, воздействуют ультразвуком, коротко- или микроволновым электромагнитным излучением.

Недостатками данного изобретения являются низкая производительность водорода, сложность вывода углерода с поверхности катализатора, закоксовывание катализатора и, следовательно, малый срок службы установки.

Существует также устройство для плазмохимической конверсии углеводородного газа в водород и углерод [Патент РФ №2393988, опубл. 10.07.2010. Бюл. №19], в котором предварительный нагрев и дальнейшее разложение углеводородного газа на углерод и водород в плазме СВЧ-разряда осуществляют с применением СВЧ-излучения и катализатора. Данная установка содержит проточный реактор с входом углеводородного газа и выходами углерода и водорода, выполненный из радиопрозрачного, термостойкого материала. Реактор заполнен катализатором с концентратором сверхвысокочастотного электромагнитного поля, который помещен в S-образный волновод прямоугольного сечения.

При воздействии СВЧ-энергии в реакторе происходит разогрев катализатора до температур $400 \div 700^\circ\text{C}$. Далее посредством розжига азотной плазмы тлеющим разрядом разжигается дополнительный СВЧ-разряд. Затем в реактор подается углеводородный газ, отключается подача азота, рабочий газ прогревается, что приводит к образованию непредельных углеводородов. Продукты реакции поступают в зону основного СВЧ-разряда, где происходит их разложение на углерод и водород при расходе углеводородного газа до $1 \text{ м}^3/\text{час}$ и СВЧ-мощности порядка 2 кВт .

Недостатками данного устройства является то, что увеличение расхода углеводородного газа свыше $1 \text{ м}^3/\text{час}$ требует высокой СВЧ-мощности, которое приводит к плавлению коаксиала. Следовательно,

производительность данного изобретения ограничена.

Наиболее близким техническим решением, выбранным в качестве прототипа, является устройство для получения углерода и водорода из углеводородного газа [Патент RU №2317943, C01B 3/26, публ. 2008.02.27]. Установка включает в себя проточный реактор, на входе которого подается углеводородный газ, источник СВЧ-разряда с прямоугольным волноводом. Цилиндрический радиопрозрачный термостойкий реактор частично заполнен газопроницаемым катализатором (титан, никель, никелид титана и т.п.) и снабжен концентратором СВЧ-электромагнитного поля после рабочей области катализатора. Для разложения углеводородного газа сначала осуществляется его предварительный нагрев в тепловой зоне проточного реактора ($400 \div 600^\circ\text{C}$). Получение углерода и водорода происходит на выходе из тепловой зоны реактора в зоне повышенной напряженности сверхвысокочастотного электромагнитного поля.

Недостатком устройства-прототипа является то, что нагрев катализатора и дальнейшее разложение углеводородного газа осуществляется от одного источника СВЧ-излучения, что усложняет настройку и управление процессом получения водорода и углерода. Еще одним недостатком является размещение катализатора в области концентратора СВЧ-электромагнитного поля, что усложняет обслуживание и контроль работы этих узлов.

В качестве изобретения нами предложено устройство для получения водорода и твердого углерода методом плазменного пиролиза метана в СВЧ-разряде.

Задача, решаемая изобретением, состоит в получении водорода и твердого углерода, и накоплении данных элементов отдельно в специальных объемах в процессе плазменного пиролиза.

Технический результат от использования изобретения заключается в повышении конверсии метана до 90-95% при производстве водорода и углерода из метана с предотвращением использования дополнительных примесей и катализаторов.

Сущность предлагаемого изобретения заключается в получении водорода и твердого углерода методом плазменного пиролиза в проточной реакционной камере при воздействии направленного электромагнитного сверхвысокочастотного (СВЧ) излучения мощностью до 6 кВт и с частотой 2450 МГц в импульсном или стационарном режиме. Представленное устройство дает возможность исключить дополнительные расходы энергии на предварительный подогрев (ионизацию) инертного газа и этап по его отделению от получаемого водорода. Устройство приведено на фиг. I и состоит из следующих компонентов:

- генератор СВЧ-излучения – 1;
- волновод – 2;
- реакционная камера – 3;

- газоанализатор – 4;
- аналитическая камера – 5;
- вакуумная система откачки – 6;
- накопитель водорода – 7;
- регулятор расхода газа (не показан);
- оптический спектрометр (не показан);
- накопитель углерода (не показан).

СВЧ-энергия поступает от генератора 1, в прямоугольный волновод 2 сечением 138×95 мм. Реакционной камерой 3 служит кварцевая трубка диаметром 30 мм, пересекающая волновод перпендикулярно. Аналитическая камера 5 и смежные объемы откачиваются до форвакуума или высокого вакуума с использованием системы вакуумной откачки 6. Затем происходит подача метана через регулятор расхода газа в реакционную камеру 3 с расходом газа 100-150 л/мин, где происходит пиролиз метана под действием плазмы СВЧ-разряда. Образовавшиеся продукты конверсии метана (водород и углерод) газовым потоком выносятся из реакционной камеры в аналитическую сферическую вакуумную камеру 5. В аналитической камере 5 происходит осаждение углерода в специальном фильтре-накопителе (сажеуловитель). В этой же камере водород отделяется от смеси радикалов метана при помощи мембранных технологий, селективной адсорбции и низкотемпературного разделения. Неотработанный метан попадает во вторичный плазменный пиролиз, а отфильтрованный водород закачивается в накопитель водорода 7 вакуумно-нагнетательным насосом.

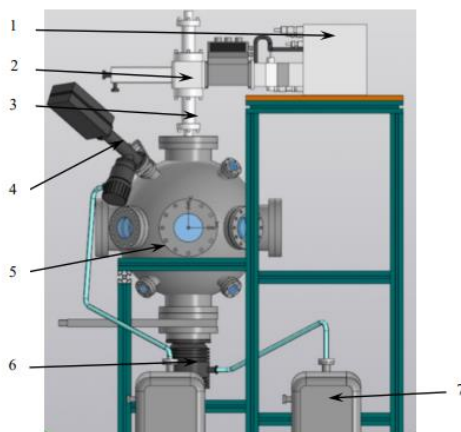
Аналитическая камера оснащена газоанализатором 4, смотровыми окнами, электрическими вводами. В реакционной камере 3 в режиме онлайн мониторинга ведется контроль состава плазмы СВЧ-

разряда методом оптической спектрометрии. С применением газоанализатора 4 осуществляется контроль состава продуктов реакции в аналитической камере 5. Смотровые окна используются для визуального контроля процесса. Электрические вводы применяются для технологических систем, задействованных в разделении продуктов реакции на компоненты.

Совокупность отличительных признаков обеспечивает более высокую производительность и эффективность заявляемого устройства с целью получения водорода и твердого углерода в процессе плазменного пиролиза с высокой мощностью СВЧ-разряда до 6 кВт на частоте 2450 МГц. Таким образом, предлагаемое изобретение позволяет накапливать водород и углерод с направлением на непрерывное промышленное производство с конверсией по водороду до 95%.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

Устройство для получения водорода и твердого углерода на основе плазменного пиролиза метана в СВЧ-разряде, содержащее микроволновый источник, реакционную камеру и систему анализа продуктов реакции, *отличающееся* тем, что в СВЧ-источник мощностью 6 кВт с частотой волны 2450 МГц содержит реакционную камеру из кварцевой трубки, также под реакционной камерой расположена аналитическая камера для реакции и осаждения водорода, кроме того емкость накопления водорода расположена после мембранной сборки.



1 – генератор СВЧ-излучения; 2 – волновод; 3 – реакционная камера;
4 – газоанализатор; 5 – аналитическая камера; 6 – вакуумная система откачки; 7 – накопитель водорода.

Фигура I. – Установка для получения водорода и углерода

Верстка Д. Женысова
Корректор Г. Косанова