[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl[7]
B01J 7/00
C01G 53/11

[12] 发明专利说明书

[21] ZL 专利号 99808960.5

[45] 授权公告日 2003 年 8 月 27 日

[11] 授权公告号 CN 1119201C

[22] 申请日 1999.6.24 [21] 申请号 99808960.5

[30] 优先权

[32] 1998. 6.24 [33] US [31] 09/104,254

[86] 国际申请 PCT/US99/14319 1999.6.24

[87] 国际公布 WO99/67018 英 1999.12.29

[85] 进入国家阶段日期 2001.1.20

[71] 专利权人 UTC 燃料电池有限公司

地址 美国特拉华州

[72] 发明人 莱昂纳德·J·小邦维尔

查尔斯·L·德乔治

彼得·F·福利 杰伊·加鲁

罗杰·R·勒西厄尔

约翰·L·小普雷斯顿

唐纳德·F·希德沃夫斯基

[56] 参考文献

US4273748A 1981.06.16 B01D53/34

审查员 赵 明

[74] 专利代理机构 永新专利商标代理有限公司

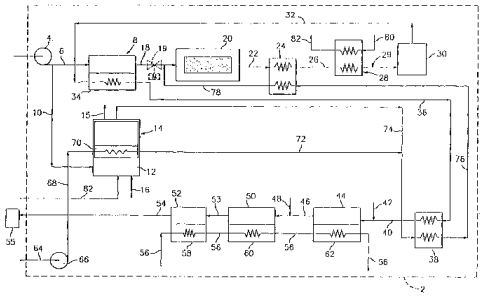
代理人 刘兴鹏

权利要求书 11 页 说明书 12 页 附图 5 页

[54] 发明名称 用于燃料电池动力设备中的燃料脱硫系统

[57] 摘要

本发明涉及一种对未经稀释的燃料进行处理的系统，该系统可以大体除去未经稀释的烃类燃料中所有的硫成分，而该燃料用于向移动使用的燃料电池动力设备提供动力，例如汽车、公共汽车、卡车、船只等，或者也可用于固定式的动力设备中。该动力设备的氢气燃料源可以是汽油、柴油、轻烃类燃料(例如丁烷、丙烷、天然气)以及其它类似的燃料。这种未经稀释的烃类燃料通过一个镍脱硫床，其中有机硫化合物中的所有硫成分均与镍发生反应生成硫化镍，而经过脱硫的有机剩余物继续通过该燃料处理系统的其余部分。该系统在脱硫步骤之前无需向燃料流添加蒸汽或氢气源。该系统工作在相对较低的温度下，并且对于液态或气态燃料流的脱硫均适用。



ISSN1008-4274

知识产权出版社出版

1. 一种用于对未经稀释的烃类燃料流进行脱硫，从而将该烃类燃料流转化为适于在燃料电池动力设备的电池组中使用的高氢气含量的气体的系统，所述系统包括：

a）镍脱硫器，该脱硫器包括一个可将该燃料流中含有的有机硫化合物中的硫转化为硫化镍的镍反应体；

b）用于将未稀释的烃类燃料流引入所述镍脱硫器中的装置；和

c）用于在所述系统的工作过程中使所述镍脱硫器保持处于250℉至525℉的工作温度范围内的装置。

2. 如权利要求 1 所述的系统，其特征在于，其中燃料流是汽油、粗挥发油、柴油或轻烃类燃料，该燃料流在镍脱硫器中保持处于液态。

3. 如权利要求 2 所述的系统，其特征在于，还包括向镍脱硫器加压的加压装置，该装置使镍脱硫器内部具有一定压力，从而保证燃料流处于液态。

4. 如权利要求 3 所述的系统，其特征在于，其中镍脱硫器的工作压力介于环境压力和大约 150 磅/平方英寸之间。

5. 如权利要求 1 所述的系统，其特征在于，其中燃料流是汽油或柴油，该燃料流在镍脱硫器中保持处于汽化状态。

6. 如权利要求 1 所述的系统，其特征在于，其中燃料流是一组烃类燃料中的一种，这组烃类燃料包括汽油、柴油、粗挥发油以及在环境压力下处于气态的轻烃类燃料。

7. 如权利要求 1 所述的系统，其特征在于，其中燃料流是一组烃类燃料中的一种，这组烃类燃料包括汽油、柴油、粗挥发

油、丁烷、丙烷和天然气。

8. 如权利要求 1 所述的系统，其特征在于，还包括一个自供热重整器；用于产生蒸汽的装置；和用于供应空气的装置，由此，该自供热重整器接受一种由来自所述镍脱硫器的脱硫燃料、来自所述蒸汽产生装置的蒸汽和来自空气供应装置的空气所组成的混合物，并且使用这种燃料、蒸汽和空气的混合物生产一种高氢气含量的气体流。

9. 如权利要求 8 所述的系统，其特征在于，还包括一个用于接收和处理来自自供热重整器的高氢气含量的气体流的转换器。

10. 如权利要求 9 所述的系统，其特征在于，还包括一个用于对所述转换器的输出物进行接收和处理的选择性氧化器。

11. 如权利要求 9 所述的系统，其特征在于，其中所述转换器的输出物是一种 CO 含量在约 0.5%至约 1.0%之间的高氢气含量的气流。

12. 如权利要求 10 所述的系统，其特征在于，还包括一个用于对所述选择性氧化器的输出物进行接收和处理的氨涤气器。

13. 如权利要求 12 所述的系统，其特征在于，其中所述氨涤气器是一个接触冷却器。

14. 如权利要求 10 所述的系统，其特征在于，其中所述蒸汽产生装置是一个蒸发器，该蒸发器使用燃料电池的阳极排放气体和所述燃料流中未经处理的燃料联合进行加热。

15. 如权利要求 10 所述的系统，其特征在于，其中所述蒸汽产生装置是一个使用燃料电池的阳极排放气体进行加热的蒸发器。

16. 如权利要求 10 所述的系统，其特征在于，其中所述蒸汽产生装置包括若干处于所述自供热重整器下游的热交换器。

17. 如权利要求 10 所述的系统，其特征在于，其中所述选择性氧化器至少包括两个床，其中第一个的工作温度大约为 300 ℉，而第二个的工作温度大约为 170℉，并且其中从所述选择性氧化器中排出的高氢气含量气体的 CO 含量低于大约 10ppm。

18. 如权利要求 10 所述的系统，其特征在于，其中所述选择性氧化器只包括一个单个的床，该床的工作温度大约为 170℉，并且其中从所述选择性氧化器中排出的高氢气含量气体的 CO 含量低于大约 10ppm。

19. 如权利要求 8 所述的系统，其特征在于，其中所述自供热重整器至少包括两个触媒床，其中一个包括一个附着在用镧作为稳定剂的铝上的氧化铁触媒，另一个包括一个附着在用镧作为稳定剂的铝上的镍触媒。

20. 如权利要求 1 所述的系统，其特征在于，还包括一个蒸汽蒸发器，该蒸发器用于生产所述系统中的自供热重整器工作所需的蒸汽。

21. 如权利要求 20 所述的系统，其特征在于，其中所述蒸汽蒸发器使用从所述未稀释的燃料流中分出的一部分燃料进行加热。

22. 如权利要求 20 所述的系统，其特征在于，其中所述蒸汽蒸发器使用燃料电池的阳极排放气体进行加热。

23. 如权利要求 20 所述的系统，其特征在于，还包括用于将燃烧所需的空气输送至所述蒸汽蒸发器的装置。

24. 如权利要求 20 所述的系统，其特征在于，还包括用于

将阳极排放气体输送至所述蒸汽蒸发器的装置。

25. 如权利要求 11 所述的系统，其特征在于，还包括布置在所述自供热重整器和一个电池组件之间的热交换器装置，用于在高氢气含量的气体进入电池组件之前使该气体的温度达到 170 ℉。

26. 如权利要求 12 所述的系统，其特征在于，还包括用于在高氢气含量的气体进入电池组件之前对该气体中的氨进行清除的装置。

27. 一种用于对未经稀释的烃类燃料流进行脱硫，从而将该烃类燃料流转化为适于在燃料电池动力设备的电池组中使用的高氢气含量的气体的方法，所述方法包括以下步骤：

a）提供一种未经稀释的烃类燃料流；

b）提供镍脱硫器，该脱硫器包括一个可将该燃料流中含有的有机硫化合物中的硫转化为硫化镍的镍反应体；

c）将未稀释的烃类燃料流引入所述镍脱硫器中；和

d）在所述系统的工作过程中使所述镍脱硫器保持处于 250℉至 525℉的工作温度范围内。

28. 如权利要求 27 所述的方法，其特征在于，其中燃料流是一组烃类燃料中的一种，这组烃类燃料包括汽油、柴油、粗挥发油以及在环境压力下处于气态的轻烃类燃料。

29. 如权利要求 27 所述的方法，其特征在于，还包括向镍脱硫器加压的加压步骤，该步骤使镍脱硫器内部具有一定压力，从而保证燃料流处于液态。

30. 如权利要求 29 所述的方法，其特征在于，其中所述烃类燃料流是汽油。

31. 如权利要求 29 所述的方法，其特征在于，其中所述烃类燃料流是柴油。

32. 如权利要求 27 所述的方法，其特征在于，还包括为实施该方法而提供自供热重整器工作所需的蒸汽的步骤。

33. 一种轮式陆地车辆装置，包括：

a）车载电动机，该电动机至少向该车辆装置提供一部分驱动力；和

b）车载燃料电池组件，该组件至少提供一部分电动机运转所需的电力；和

c）车载燃料处理系统，该系统用于对未稀释的烃类燃料流进行脱硫，从而将该烃类燃料流转化为适于在燃料电池动力设备的电池组中使用的高氢气含量的气体，所述燃料处理系统包括：

i）镍脱硫器，该脱硫器包括一个可将该燃料流中含有的有机硫化合物中的硫转化为硫化镍的镍反应体；

ii）用于将未稀释的烃类燃料流引入所述镍脱硫器中的装置；和

iii）用于在所述系统的工作过程中使所述镍脱硫器保持处于250℉至525℉的工作温度范围内的装置。

34. 一种使用一种未经稀释的烃类燃料流进行发电的装置，所述装置包括：

a）燃料电池组件；

b）镍脱硫器，该脱硫器包括一个可将该燃料流中含有的有机硫化合物中的硫转化为硫化镍的镍反应体；

c）用于将未稀释的烃类燃料流引入所述镍脱硫器中的装置；和

d）用于在所述装置的工作过程中使所述镍脱硫器保持处于250℉至525℉的工作温度范围内的装置。

35. 如权利要求 34 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是汽油、粗挥发油、柴油或轻烃类燃料，该燃料流在镍脱硫器中保持处于液态。

36. 如权利要求 35 所述的装置，其特征在于，还包括向镍脱硫器加压的加压装置，该装置使镍脱硫器内部具有一定压力，从而保证燃料流处于液态。

37. 如权利要求 36 所述的装置，其特征在于，其中镍脱硫器的工作压力介于环境压力和大约 150 磅/平方英寸之间。

38. 如权利要求 34 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是汽油或柴油，该燃料流在镍脱硫器中保持处于汽化状态。

39. 如权利要求 34 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是一组烃类燃料中的一种，这组烃类燃料包括汽油、柴油、粗挥发油以及在环境压力下处于气态的轻烃类燃料。

40. 如权利要求 34 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是一组烃类燃料中的一种，这组烃类燃料包括汽油、柴油、粗挥发油、丁烷、丙烷和天然气。

41. 如权利要求 34 所述的装置，其特征在于，还包括一个自供热重整器；用于产生蒸汽的装置；和用于供应空气的装置，由此，该自供热重整器接受一种由来自所述镍脱硫器的脱硫燃料、来自所述蒸汽产生装置的蒸汽和来自空气供应装置的空气所组成的混合物，并且使用这种燃料、蒸汽和空气的混合物生产一种高氢气含量的气体流。

42. 如权利要求 41 所述的装置，其特征在于，还包括一个

用于接收和处理来自自供热重整器的高氢气含量的气体流的转换器。

43. 如权利要求 42 所述的装置，其特征在于，还包括一个用于对所述转换器的输出物进行接收和处理的选择性氧化器。

44. 如权利要求 42 所述的装置，其特征在于，其中所述转换器的输出物是一种 CO 含量在约 0.5%至约 1.0%之间的高氢气含量的气流。

45. 如权利要求 43 所述的装置，其特征在于，还包括一个用于对所述选择性氧化器的输出物进行接收和处理的氨涤气器。

46. 如权利要求 45 所述的装置，其特征在于，其中所述氨涤气器是一个接触冷却器。

47. 如权利要求 43 所述的装置，其特征在于，其中所述蒸汽产生装置是蒸发器，该蒸发器由燃料电池的阳极排放气体和所述燃料流中未经处理的燃料联合进行加热，或由燃料电池的阳极排放气体单独进行加热。

48. 如权利要求 43 所述的装置，其特征在于，其中所述蒸汽产生装置包括若干处于所述自供热重整器下游的热交换器。

49. 如权利要求 43 所述的装置，其特征在于，其中所述选择性氧化器至少包括两个床，其中第一个的工作温度大约为 300 ℉，而第二个的工作温度大约为 170℉，并且其中该高氢气含量气体的 CO 含量低于大约 10ppm。

50. 如权利要求 43 所述的装置，其特征在于，其中所述选择性氧化器只包括一个单个的床，该床的工作温度大约为 170℉，并且其中从所述选择性氧化器中排出的高氢气含量气体的 CO 含量低于大约 10ppm。

51. 如权利要求 41 所述的装置，其特征在于，其中所述自供热重整器至少包括两个触媒床，其中一个包括一个附着在用镧作为稳定剂的铝上的氧化铁触媒，另一个包括一个附着在用镧作为稳定剂的铝上的镍触媒。

52. 如权利要求 34 所述的装置，其特征在于，还包括一个蒸汽蒸发器，该蒸发器用于生产所述系统中的自供热重整器工作所需的蒸汽。

53. 如权利要求 52 所述的装置，其特征在于，其中所述蒸汽蒸发器使用从所述未稀释的燃料流中分出的一部分燃料进行加热。

54. 如权利要求 52 所述的装置，其特征在于，还包括用于将燃烧所需的空气输送至所述蒸汽蒸发器的装置。

55. 如权利要求 52 所述的装置，其特征在于，还包括用于将阳极排放气体输送至所述蒸汽蒸发器的装置。

56. 如权利要求 44 所述的装置，其特征在于，还包括布置在所述自供热重整器和一个电池组件之间的热交换器装置，用于在高氢气含量的气体进入电池组件之前使该气体的温度达到 170℉。

57. 如权利要求 34 所述的装置，其特征在于，其中所述燃料电池组件包括质子交换薄膜电解质。

58. 一种由电动机驱动的轮式陆地车辆装置，所述装置包括：

a）燃料电池组件；

b）镍脱硫器，该脱硫器包括一个可将该燃料流中含有的有机硫化合物中的硫转化为硫化镍的镍反应体；

c）用于将未稀释的烃类燃料流引入所述镍脱硫器中的装置；

和

d）用于在所述装置的工作过程中使所述镍脱硫器保持处于250℉至525℉的工作温度范围内的装置。

59. 如权利要求 58 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是汽油、粗挥发油、柴油或轻烃类燃料，该燃料流在镍脱硫器中保持处于液态。

60. 如权利要求 59 所述的装置，其特征在于，还包括向镍脱硫器加压的加压装置，该装置使镍脱硫器内部具有一定压力，从而保证燃料流处于液态。

61. 如权利要求 60 所述的装置，其特征在于，其中镍脱硫器的工作压力介于环境压力和大约 150 磅/平方英寸之间。

62. 如权利要求 58 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是汽油或柴油，该燃料流在镍脱硫器中保持处于汽化状态。

63. 如权利要求 58 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是一组烃类燃料中的一种，这组烃类燃料包括汽油、柴油、粗挥发油以及在环境压力下处于气态的轻烃类燃料。

64. 如权利要求 58 所述的装置，其特征在于，其中燃料流是一组烃类燃料中的一种，这组烃类燃料包括汽油、柴油、粗挥发油、丁烷、丙烷和天然气。

65. 如权利要求 58 所述的装置，其特征在于，还包括一个自供热重整器；用于产生蒸汽的装置；和用于供应空气的装置，由此，该自供热重整器接受一种由来自所述镍脱硫器的脱硫燃料、来自所述蒸汽产生装置的蒸汽和来自空气供应装置的空气所组成的混合物，并且使用这种燃料、蒸汽和空气的混合物生产一种高氢气含量的气体流。

66. 如权利要求 65 所述的装置，其特征在于，还包括一个用于接收和处理来自自供热重整器的高氢气含量的气体流的转换器。

67. 如权利要求 66 所述的装置，其特征在于，还包括一个用于对所述转换器的输出物进行接收和处理的选择性氧化器。

68. 如权利要求 66 所述的装置，其特征在于，其中所述转换器的输出物是一种 CO 含量在约 0.5%至约 1.0%之间的高氢气含量的气流。

69. 如权利要求 67 所述的装置，其特征在于，还包括一个用于对所述选择性氧化器的输出物进行接收和处理的氨涤气器。

70. 如权利要求 69 所述的装置，其特征在于，其中所述氨涤气器是一个接触冷却器。

71. 如权利要求 67 所述的装置，其特征在于，其中所述蒸汽产生装置是一个蒸发器，该蒸发器由燃料电池的阳极排放气体和所述燃料流中未经处理的燃料联合进行加热。

72. 如权利要求 67 所述的装置，其特征在于，其中所述蒸汽产生装置包括若干处于所述自供热重整器下游的热交换器。

73. 如权利要求 67 所述的装置，其特征在于，其中所述选择性氧化器至少包括两个床，其中第一个的工作温度大约为 300 °F，而第二个的工作温度大约为 170°F，并且其中从所述选择性氧化器中排出的高氢气含量气体的 CO 含量低于大约 10ppm。

74. 如权利要求 67 所述的装置，其特征在于，其中所述选择性氧化器只包括一个单个的床，该床的工作温度大约为 170°F，并且其中从所述选择性氧化器中排出的高氢气含量气体的 CO 含量低于大约 10ppm。

75. 如权利要求 61 所述的装置，其特征在于，其中所述自供热重整器至少包括两个触媒床，其中一个包括一个附着在用镧作为稳定剂的铝上的氧化铁触媒，另一个包括一个附着在用镧作为稳定剂的铝上的镍触媒。

76. 如权利要求 58 所述的装置，其特征在于，还包括一个蒸汽蒸发器，该蒸发器用于生产所述系统中的自供热重整器工作所需的蒸汽。

77. 如权利要求 71 所述的装置，其特征在于，其中所述蒸汽蒸发器使用从所述未稀释的燃料流中分出的一部分燃料进行加热。

78. 如权利要求 71 所述的装置，其特征在于，还包括用于将燃烧所需的空气输送至所述蒸汽蒸发器的装置。

79. 如权利要求 71 所述的装置，其特征在于，还包括用于将阳极排放气体输送至所述蒸汽蒸发器的装置。

80. 如权利要求 67 所述的装置，其特征在于，还包括布置在所述自供热重整器和一个电池组件之间的热交换器装置，用于在高氢气含量的气体进入电池组件之前使该气体的温度达到 170 ℉。

81. 如权利要求 58 所述的装置，其特征在于，其中所述燃料电池组件至少包括一种质子交换薄膜电解质。

用于燃料电池动力设备中的燃料脱硫系统

技术领域

本发明涉及一种改进的脱硫系统，该脱硫系统用于对原始烃类燃料流进行脱硫，从而使该燃料适于在移动的车用燃料电池动力设备组件中使用。更具体地讲，根据本发明的脱硫系统可用于将原燃料蒸汽中的有机硫化合物清除至一定程度，从而避免燃料电池动力设备组件中燃料处理部分的触媒发生中毒。

发明背景

原燃料，如天然气、汽油、柴油、粗挥发油、重油等烃类燃料可能不适于作为燃料电池动力设备的处理燃料，这是因为这些燃料具有较高含量的天然存在的复杂有机硫化合物或作为芳香剂添加的硫化合物，如硫醇和硫茂。在有硫存在的情况下生产氢气会导致对该氢气产生系统中的所有触媒产生毒化作用，通常包括燃料电池的阳极触媒。固定式燃料电池动力设备中使用的传统燃料处理系统包括一个如美国专利 No. 5,516,344 所描述的热蒸汽重整器。在这种燃料处理系统中，通过采用传统的加氢脱硫技术进行脱硫，该技术一般需要依靠在处理过程中进行一定程度的氢气再循环。再循环的氢气与有机硫化合物相结合，从而在触媒床上生成硫化氢。然后生成的硫化氢通过与一个氧化锌床发生反应生成硫化锌而被除去。美国专利 No. 5,292,428 对一般的加氢脱硫处理过程进行了详细说明。尽管这种系统可以有效地在大型固定式应用设备中使用，但由于系统的尺寸、成本以及复杂程度

的原因，该系统不适用于移动的运输设备。另外如上所述，被处理的气体必须使用处理再循环，从而向气体流中提供氢气。

其它的燃料处理系统，如一种传统的自供热重整器（该系统与传统的热蒸汽重整器相比，使用较高的工作温度），能够在有前述复杂有机硫化合物存在的情况下生产出氢气含量高的气体，而不需要预先脱硫。但是当使用一个自供热重整器对含有复杂有机硫化合物的原燃料进行处理时，会降低自供热重整器触媒的效率，同时会缩短该燃料处理系统中其它触媒的寿命。作为重整处理的一部分，有机硫化合物被转变为硫化氢。然后可通过使用一个固体吸收涤气器（如氧化铁床或氧化锌床），使硫化氢生成硫化铁或硫化锌，从而除去该硫化氢。对于将硫在处理组件中的集中程度降低至不会对处于重整器下游的处理组件（如转换器等）中的触媒产生不良影响的水平的能力而言，前述固体涤气器系统受到热动力条件的限制。

或者，也可以使气体流通过一个液体涤气器（例如氢氧化钠、氢氧化钾或氨），从而除去该气体蒸汽中的硫化氢。液体涤气器体积和重量都较大，因此仅仅主要用于固定式燃料电池动力设备中。如前所述，目前用于对燃料电池动力设备中使用的原燃料蒸汽中含有的复杂有机硫化合物进行处理的方法会明显增加燃料处理系统的复杂程度、体积和重量，因此该方法不适合在移动的运输系统中使用。

1967 年 5 月 16-18 日召开的“21 世纪动力能源会议”的会刊中（第 21-26 页）有一篇 H. J. Setzer 等人所写的题为“烃类-空气系统的脱硫”的文章，该文章涉及燃料电池动力设备在广泛的军事领域内的各种不同应用。该文描述了使用高镍含量的氢化触媒对一种被称为 JP-4 的军用燃料进行脱硫的方法，这种军用燃料是一种

喷气式发动机使用的燃料，与煤油类似，经过脱硫后，该燃料就可被用作燃料电池动力设备所需的氢气源。该文中所述的系统工作在600°F（301℃）至700°F（357℃）的相对较高的温度范围内。该文还指出，由于反应器中存在碳堵塞现象，所以被测试的系统不能够对单纯的原燃料进行脱硫，而是必须要加入水或氢气。碳堵塞现象的产生是因为在大约550°F（274℃）至大约750°F（385℃）的温度范围内，碳的生成趋势会急剧上升。如该文所述，工作在600°F（301℃）至700°F（357℃）的温度范围内的系统极易发生碳堵塞现象，这正如在该文所述的系统中所发现的问题。添加氢气或蒸汽能够促使气态碳化物的生成，从而降低碳的生成趋势，因此可以对造成碳堵塞问题的碳的沉积进行限制。

从环境的角度来讲，我们十分希望能够使用燃料电池发出的电对车辆（例如汽车）进行电力驱动；同时希望车用燃料电池动力设备使用汽油、柴油、粗挥发油之类的燃料或丁烷、丙烷、天然气之类的轻烃类燃料以及类似的燃料作为发电所消耗的原料。为了能够提供这种车用动力源，燃料气体中的硫含量必须被降至并保持在低于百万分之0.05的水平。

对本发明的简述

本发明涉及一种未稀释燃料的处理系统，该系统可以大体除去未经稀释的烃类燃料中所有的硫成分，而该燃料用于向移动使用的燃料电池动力设备提供动力。该动力设备燃料可以是汽油、柴油、轻烃类燃料（例如丁烷、丙烷、天然气）以及其它类似的燃料，这些燃料含有较高含量的有机硫化合物，如硫茂、硫醇、二硫化物等。这种未使用蒸汽或再循环气体流进行稀释的烃类燃料首先通过一个

镍脱硫床，其中有机硫化合物中的所有硫成分均与镍发生反应生成硫化镍和脱硫的碳氢化合物，然后这些生成物继续通过该燃料处理系统的其余部分。由于这种脱硫器不需要添加水或再循环成分，所以与其它方法相比，可以更为紧凑和简单，并且它不受到有水存在时的热动力条件的限制（不象其它吸收剂一样，如氧化锌或氧化铁）。例如，经常被用于除硫的氧化锌的除硫过程反应式为：

$$ZnO+H_2S<=>ZnS+H_2O$$

在有水蒸汽存在时，氧化锌的这种反应不能充分降低 H_2S 的含量，从而不能有效地保护产生的氢气触媒，这是因为该反应在热动力的作用下从右向左进行。同样被经常用于除去硫化氢的氧化铁也受到同种限制的干扰。

这种脱硫后的燃料接着以蒸汽状态通过一个重整器，例如自供热重整器，其中该燃料被转化为一种高氢气含量的燃料，这种高氢气含量的燃料适合于用在燃料电池动力设备中的燃料电池组件部分的阳极侧。该燃料可在气体状态或液体状态下被脱硫。用于对已脱硫的燃料流进行处理的蒸汽由一个蒸汽产生器来提供。受热的周围空气和蒸汽被用在燃料气体重整器中。经过重整的气体流通过一个转换器，该转换器可以降低气体流中 CO 的含量，同时提高 H_2 的含量；然后，通过一个或多个可选择使用的氧化步骤，进一步降低气体流中 CO 的含量。最后的处理步骤是除氨步骤，其中被处理的燃料流中的氨在该燃料流被送入燃料电池组件的阳极之前被除去。该燃料处理系统可以在脱硫器和重整器之间安装一个已脱硫的燃料的容器，从而保证汽车在停车后的重新起动时可以有已脱硫的燃料供应。

因此本发明的一个目的是提供一种适于在移动的电动汽车中使用的燃料处理系统。

本发明的另一个目的是提供一种具有上述特征的燃料处理系统，其中一种原始烃类燃料中的硫成分可以被清除至一定程度，从而生成一种适于燃料电池动力设备使用的气态燃料流。

本发明的另一个目的是提供一种具有上述特征的燃料处理系统，其中这种被脱硫的原始烃类燃料可以是汽油、柴油、粗挥发油和/或轻烃类燃料（如丁烷、丙烷、天然气或其它类似的燃料）。

本发明的另一个目的是提供一种具有上述特征的燃料处理系统，其中通过使该原燃料与一个镍反应床发生反应，对该原始烃类燃料进行脱硫，该镍反应床可以将该原燃料中的硫化合物转化为硫化镍，生成的硫化镍沉积在床上，而经过脱硫的烃类燃料继续通过该燃料处理系统的其余部分。

本发明的另一个目的是提供一种具有上述特征的燃料处理系统，其中当该硫化合物为硫茂时，该镍床可以收集的硫的重量为该镍床重量的 2-5%，而当该硫化合物为硫醇时，该镍床可以收集的硫的重量大约为该镍床重量的 15%。

本发明的另一个目的是提供一种硫涤气器单元，该硫涤气器单元在尺寸、重量和复杂程度上适合在运输应用设备中使用，并且能够允许串接在后面的燃料处理设备的尺寸保持在适合在运输应用设备中使用的范围内。

下面将结合附图对本发明进行详细说明，这将使本发明的上述目的和其它目的变得更加明了。

对附图的简要说明

图 1 是一个根据本发明的燃料处理系统的第一个实施例的示意图；

图 2 是一个根据本发明的燃料处理系统的第二个实施例的示意图；

图 3 是一个根据本发明的燃料处理系统的第三个实施例的示意图；

图 4 是一个根据本发明的燃料处理系统的局部示意图，该系统提供了一种用于系统起动的脱硫燃料的储存供应系统；

图 5 是一个根据本发明的与图 4 所示系统类似的燃料处理系统的局部示意图，但该系统表示了另外一种结构的用于系统起动的脱硫燃料的储存供应系统；和

图 6 是一辆汽车的透视图，该汽车装备有一台用于驱动汽车的电动机，和一个用于向该电动机提供电力的燃料电池组件。

优选实施例的详细说明

参看附图，图 1 是一个燃料处理系统的示意图，该系统适合在车辆（如汽车）中使用，在图中用标号 2 进行了概括表示。如上所述，被处理的燃料可以是汽油。一个燃料泵 4 通过管道 6 将汽油泵入该系统 2 中，该管道 6 通向一个镍脱硫床 8。一个分支管道 10 用于分出一部分汽油，并将分出的汽油送入蒸发器 14 中的燃烧室 12 内，而该蒸发器 14 用于生产燃料处理系统 2 所需的蒸汽。蒸发器 14 内装有水，所装的水将在该蒸发器 14 内被转变为蒸汽。空气通过管道 16 进入燃烧室 12。该燃烧室内产生的废气通过一个废气管道 15 被排出系统 2。汽油中的有机硫化合物通过以下两个典型的反应被镍反应体分解：

$$Ni+CH_3SH->NiS+CH_4;\ 和$$

$$Ni+CH_3SCH_3->NiS+C_2H_6$$

脱硫器 8 的工作压力介于环境压力和大约 150psi（磅/平方英寸）之间，而工作温度介于大约 200°F（79℃）和 525°F（260℃）之间，从而使以大约 75°F（10℃）（环境温度）的状态进入脱硫器 8 的汽油能够在脱硫器 8 内被预热和汽化。当被汽化的燃料进入一个通向一个自供热重整器 20 的管道 18 时，已脱硫的汽油的温度将升至大约 375°F（176℃）。该重整器 20 可以带有一个如美国专利 No. 4,451,578 所述的氧化铁触媒部分，而该专利在此处被整体并入本专利。总的来讲，脱硫汽油的汽化燃料气体通过下面的典型反应被转化为高氢气含量的燃料气体，该反应包括一个将 CO 完全转化为 CO_2 的过程：

$$CH_2+2.55H_2O+0.35(O_2+4N_2)->CO_2+2.3H_2+1.4N_2+1.25H_2O$$

在重整器 20 内，该燃料气体在 1,200°F（635℃）达到了一个热动力平衡，此时将产生几乎等量的 CO 和 CO_2 以及少量的甲烷。重整器 20 的进口温度大约为 950°F（496℃），在该进口处，燃料气体蒸汽的一部分被燃烧掉，剩余部分被重整为高 H_2 含量的气体流，从而使经过重整的气体流以大约 1,200°F（635℃）的温度进入管道 22。该高氢气含量的燃料气体经由管道 22 被通入热交换器 24 中，在该热交换器 24 中，燃料气体的温度被降至大约 760°F（390℃）。经过冷却的气体流从热交换器 24 经由一个管道 26 被通入一个燃烧室燃油预热器 28 中，在该预热器 28 中，燃料气体流的温度被降至大约 400°F（190℃）。经过冷却的气体流接着流经一个管道 29 被通入一个转换器 30 中，在该转换器 30 中，气体流中的 CO 含量通过下面的反应被降至大约 0.5%至大约 1.0%的范围内：

$$CO+H_2O->CO_2+H_2+热量;$$

在该反应中，气体流的温度升至大约 525℉（260℃）。然后，经过处理的燃料流流经一个管道 32 和一个用于控制脱硫器 8 的温度的热交换器 34。气体流在热交换器 34 中被冷却至大约 425℉（204℃），然后流过管道 36 到热交换器 38，其中燃气流的温度下降到大约 350℉（194℃）。然后，经过冷却的气体流流经一个管道 40，并在该管道 40 中与经由空气进气管道 42 进入管道 40 的空气相混合。管道 42 中的气流的氧气含量大约为总气流量的 1.0%。然后该充氧的燃料气体流流经一个第一选择性氧化器 44，在该氧化器 44 中，气体流被冷却至大约 300℉（135℃），同时其中的 CO 通过下面的反应被除去：

$$CO+1/2O_2->CO_2$$

然后经过冷却和处理的燃料气体流流经一个管道 46，并在该管道 46 中与经由空气进气管道 48 进入管道 46 的空气相混合。管道 42 中的气流的氧气含量大约为 0.35%或更低。然后该充氧的燃料气体流流经一个第二选择性氧化器 50，在该氧化器 50 中，气体流被冷却至大约 170℉（62℃），同时其中 CO 的体积浓度被降至 10ppm 以下。然后，经过冷却的气体流通过一个管道 53 被通入一个氨涤气器 52 中，该氨涤气器 52 可以是一个浸渍磷酸碳床。作为一个例子，美国专利 No. 4,379,036 对前述过程进行了描述。在某些情况下，也可以单独使用一个工作在 170℉（62℃）左右的需要外加空气和冷却的氧化器。在 170℉（62℃）左右的温度下，涤气器 52 内的气体流中的氨通过下面的反应被除去：

$$3NH_3+H_3PO_4->(NH_4)_3PO_4$$

或者，气体蒸汽中的氨也可以被溶解在水中或与一种酸性聚合物（Nafion®）相反应，生成一种氨盐，如 $(NH_4)_2SO_4$。然后，经过充

分处理的燃料气体流流经一个管道 54 被通入该燃料电池动力设备中的燃料电池组件 55 的阳极侧，在此处，该燃料气体流被用作在该动力设备的动力部分中进行的电化学反应的反应燃料。

氨涤气器 52 和选择性氧化器 50 和 44 的温度由汽车冷却液进行控制，该汽车冷却液流经管道 56 和热交换器 58、60 和 62，而这些热交换器分别与氨涤气器 52 和选择性氧化器 50 和 44 配合使用。汽车冷却液在热交换器 58、60 和 62 中的流向与气体蒸汽的流向相反，从而冷却液流的温度将从进口处的约 160°F（59℃）升至出口处的约 270°F（118℃）。

自供热重整器对经由管道 64 进入系统 2 的空气进行处理，在管道 64 中，空气通过泵 66 被压入系统 2。进入系统 2 的空气处于环境温度，即大约 75°F（10℃）。该空气气流流经一个管道 68 被通入一个蒸发器 14 中的热交换器 70 内，在热交换器 70 中，该空气气流的温度被提升至 225°F（93℃）左右。受热的空气从热交换器 70 流入一个管道 72，接着又流入第二个管道 74 中，在管道 74 中，空气与蒸发器 14 中放出的蒸汽相混合。然后，该空气-蒸汽混合物流经热交换器 38，在热交换器 38 中，该空气-蒸汽混合物的温度被提升至 330°F（151℃）左右。受热的空气-蒸汽混合物接着流经一个管道 76 和热交换器 24，在热交换器 24 中，该空气-蒸汽混合物的温度被提升至 950°F（496℃）左右。然后，受热的空气-蒸汽混合物流经一个管道 78 并流入管道 18，在该管道 18 中，汽油燃料蒸汽和空气-蒸汽混合物发生混合。然后经过混合的燃料-空气-蒸汽混合物进入重整器 20。

被用作一种能量源的阳极排放气体在大约 120°F（67℃）的温度下经由管道 80 进入燃烧室燃料预热器 28 中。该阳极排放气流在

预热器 28 中被预热至 700°F（357℃）左右。受热的阳极排放气流流经一个管道 82 被通入燃烧室 12 中，并在燃烧室 12 中与空气和汽油相混合。

前述系统 2 被设计用于在脱硫器 8 中对供应的汽化燃料进行处理。该系统 2 也可以用于在脱硫器 8 中对供应的液态燃料进行处理。当对供应的液态燃料进行处理时，将在管道 18 中设置一个加压阀 19（如虚线所示），从而保证燃料在脱硫器 8 的较高的工作温度下能够保持处于液态，该脱硫器 8 可在燃料泵 4 的作用下被加压至 150psig 左右。

当需要大幅度增加功率时，处在脱硫器 8 下游的阀 19 可以被增大开度，从而提供较高的燃料流动速率。阀 19 入口处的大部分燃料将在流经该阀时急骤蒸发，其余部分将在蒸汽的作用下蒸发，因此可以迅速地提供气体燃料，以响应重整器 20 的要求。

现在参看图 2，该图表示了系统 2 的另一个实施例。该系统没有使用消耗源燃料的蒸发器生产重整器所需的蒸汽，而是采用了一个第一蒸汽产生器子组件 84，该子组件 84 接受从管道 86 中流入的水并且利用热交换器 58、60 和 62 将从管道 86 中流入的水转化为蒸汽，该蒸汽经由管道 88 从热交换器 62 中流出。环境中的空气经过管道 64 和泵 66 被吸入系统 2，并且经过管道 90 进入管道 88，在该管道 88 中，该空气与管道 88 中的蒸汽相混合。转换器前的热交换器 28 通过使水蒸汽流经一个穿过该热交换器 28 的管道 92，从而被用作一个第二蒸汽产生器。蒸汽经由管道 94 从热交换器 28 中排出，并且与管道 88 中的空气和蒸汽相混合。然后，经过混合的蒸汽流经管道 78 进而流入重整器前的管道 18，之后的处理过程按照前面所述的流程进行。

现在参看图 3，该图表示了系统 2 的又一个实施例。在图 3 所示的实施例中，氨涤气器 52 采用了一种水吸收剂的形式，其中通过使用一个如美国专利 No. 4,816,040 所述的接触冷却器，将燃料气流中的氨溶解在涤气器 52 的水中。水经由管道 96 进入涤气器 52，而溶解有氨的水经由管道 98 被排出涤气器 52，并且流入蒸发器 14 中，在蒸发器 14 中，氨在水中达到一种平衡状态。使用前面所述的装置，就可以控制送入阳极的气体的温度和露点。该系统 2 其余部分的运作模式大体与图 1 所示系统的运作模式相同。

现在参看图 4 和 5，图 4 和 5 分别表示了对系统 2 的一个部分进行的两种改动，其中提供了脱硫燃料的储存供应装置，从而使汽车在前一个运行循环结束后能够顺利地重新起动。在系统 2 的运行循环中，用于重新起动的脱硫燃料被抽入一个重新起动燃料箱 100 内。用于重新起动的储备脱硫燃料在燃料箱 100 内保持处于液态。在两种改动中，阀 19 都被设置在管道 18 中，用于使燃料箱 100 中的燃料保持处于液态，并且储备的液态脱硫燃料经由一个管道 102 被吸入燃料箱 100 中，该管道 102 与阀 19 上游的分支管道 18 相连通。

在图 4 所示的实施例中，一个泵 104 被安装在与燃料箱 100 相邻接处，用于在起动时将脱硫燃料从燃料箱 100 中泵出，并且使该燃料流经管道 106 和选通阀 107 后流回处于阀 19 下游的管道 18 中，该脱硫燃料从此处流入重整器 20。

在图 5 所示的实施例中，泵 4 被用于在阀 21 开启后将脱硫燃料经由管道 106 从燃料箱 100 中泵出。然后，泵 4 使燃料重新流经脱硫器 8，并进而经过阀 19 流入重整器 20。

图 6 示意性地表示了一辆汽车（如图中标号 110 所示），该汽

车经过了改装，从而能够在运行中使用根据本发明的燃料电池电源和燃料处理组件。该汽车 110 由一个驱动横轴 114 的电机 112 提供动力。图中所示的汽车 110 的实施例使用了双模式的电源来驱动电机 112，该双模式的电源包括该燃料电池动力设备组件 116 和一个附加电源 122，该附加电源可以是蓄电池、气体驱动的发电机等。该汽车还可以包括一个起动电池 127，用于起动该动力系统 2 中的各组件。比较理想的情况是，该汽车 110 能够只使用燃料电池动力设备组件 116 向电动机 112 提供电力。汽车 110 包括一个燃料箱 118，该燃料箱 118 具有一个与燃料处理组件 2 相连通的管道 120。图 6 表示了燃料处理组件 2、蒸发器 14、氨涤气器 52、电池组 55、冷却液系统 124 和一个水软化器 126 的布置方案。

我们将发现，通过使用一个初始镍脱硫器，被处理的燃料流中的硫含量可以被降至大约百万分之 0.05 以下，这种含量水平不会对重整器、选择性氧化器以及转换器中的触媒床或该燃料电池组件的活性部分中的触媒床造成严重的影响。其结果是，有机硫化合物含量相对较高的燃料，如汽油、柴油以及丁烷、丙烷、天然气之类的轻烃类燃料或类似的燃料，能够安全地、长期地被用作向汽车提供驱动电力的燃料电池动力设备中的烃类燃料气体反应物。我们还将发现，根据本发明的系统可以作为唯一的电力源用于驱动汽车或固定式的动力设备，或者也可以在混合动力系统中使用，该混合动力系统除包括燃料电池电力源之外，还可以包括动力电池或用于产生驱动电力的发电机。

由于在不脱离本发明的发明思想的前提下可以对上述本发明的实施例进行许多种替换和修改，因此，本发明的范围将在所附权力要求中进行详细说明，除此之外，均不对本发明的范围构成限制。

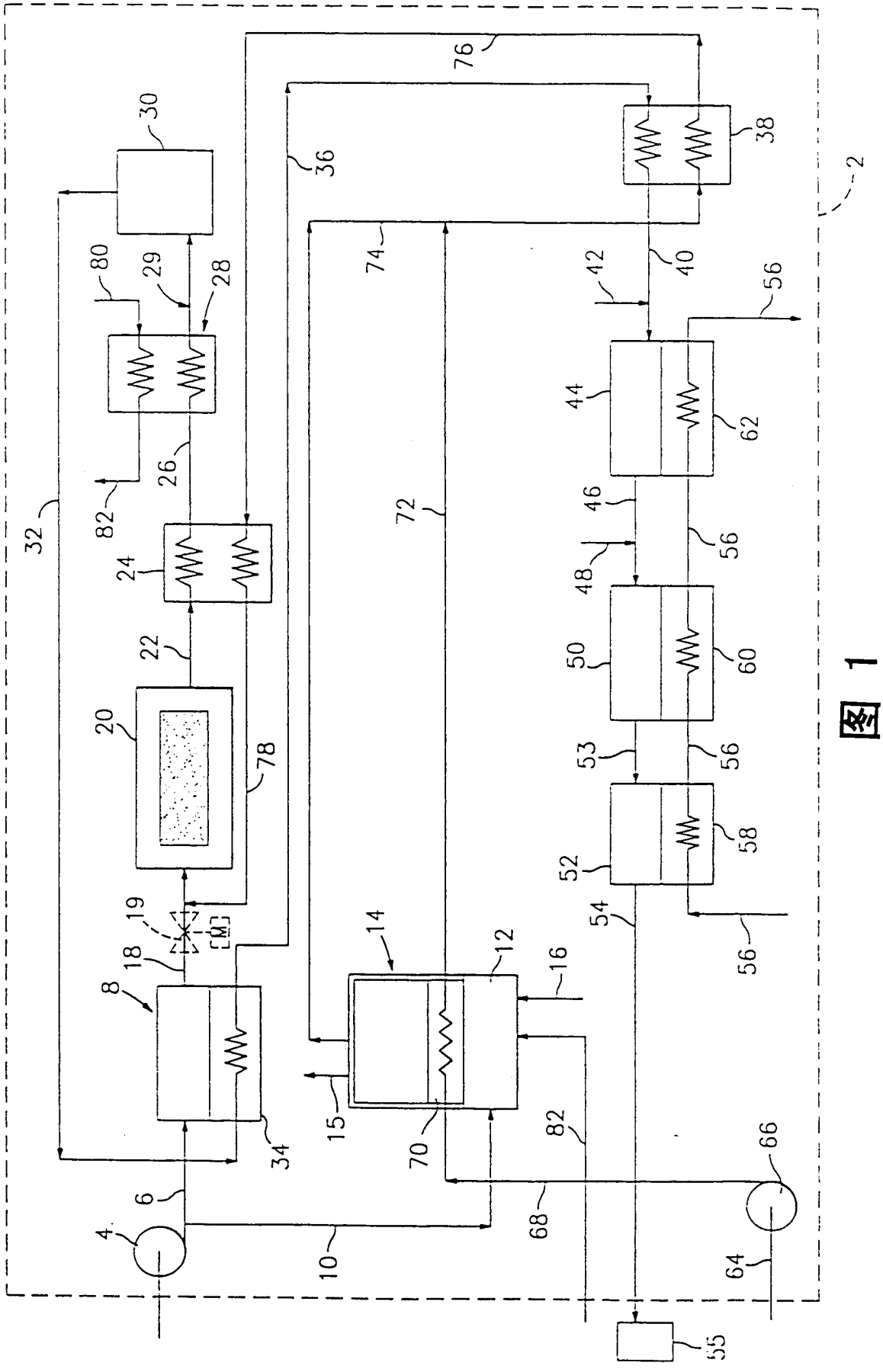

2
4
6
8
10
12
14
15
16
18
19
20
22
24
26
28
29
30
32
34
36
38
40
42
44
46
48
50
52
53
54
55
56
58
60
62
64
66
68
70
72
74
76
78
80
82

图 1

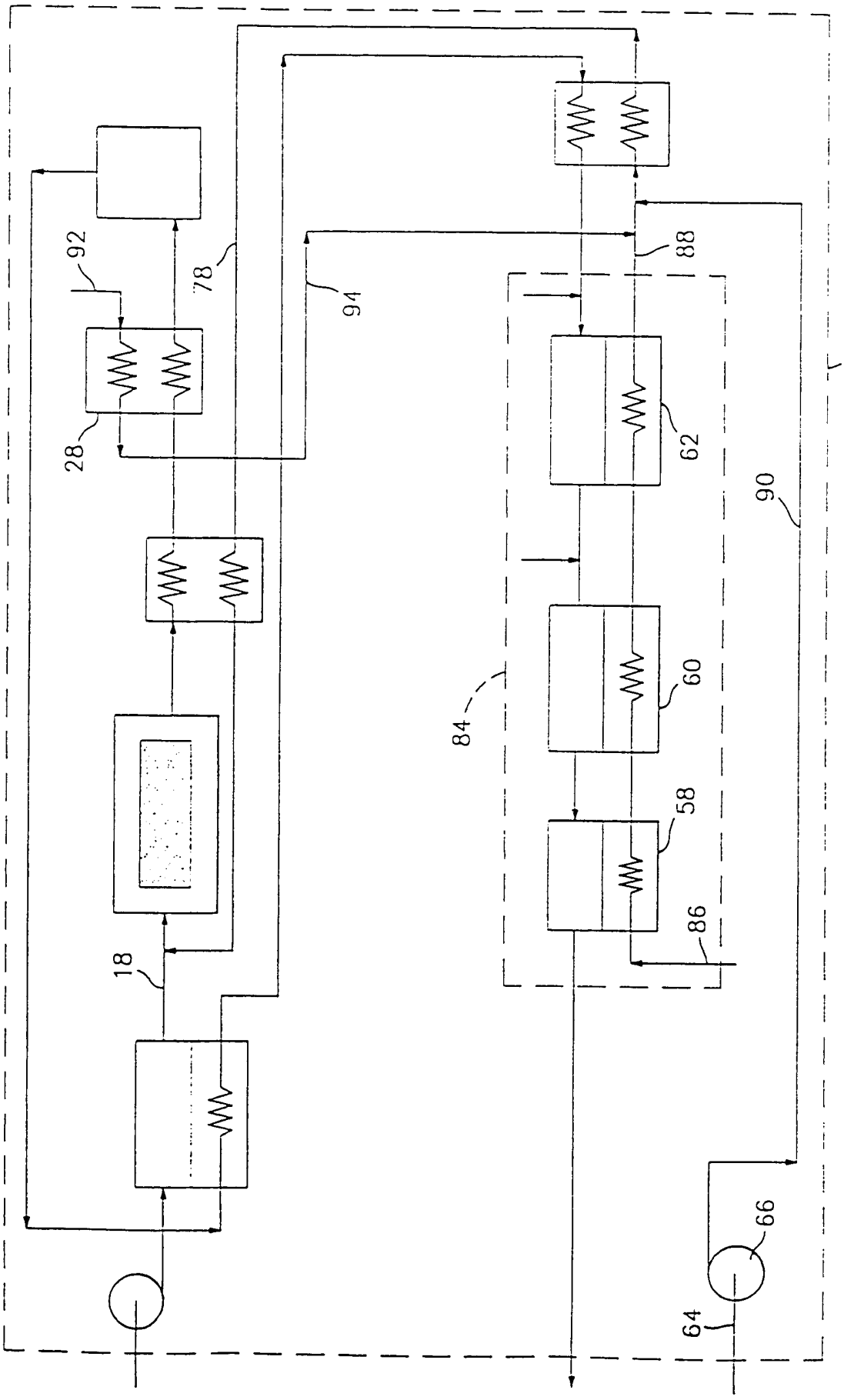


图 2

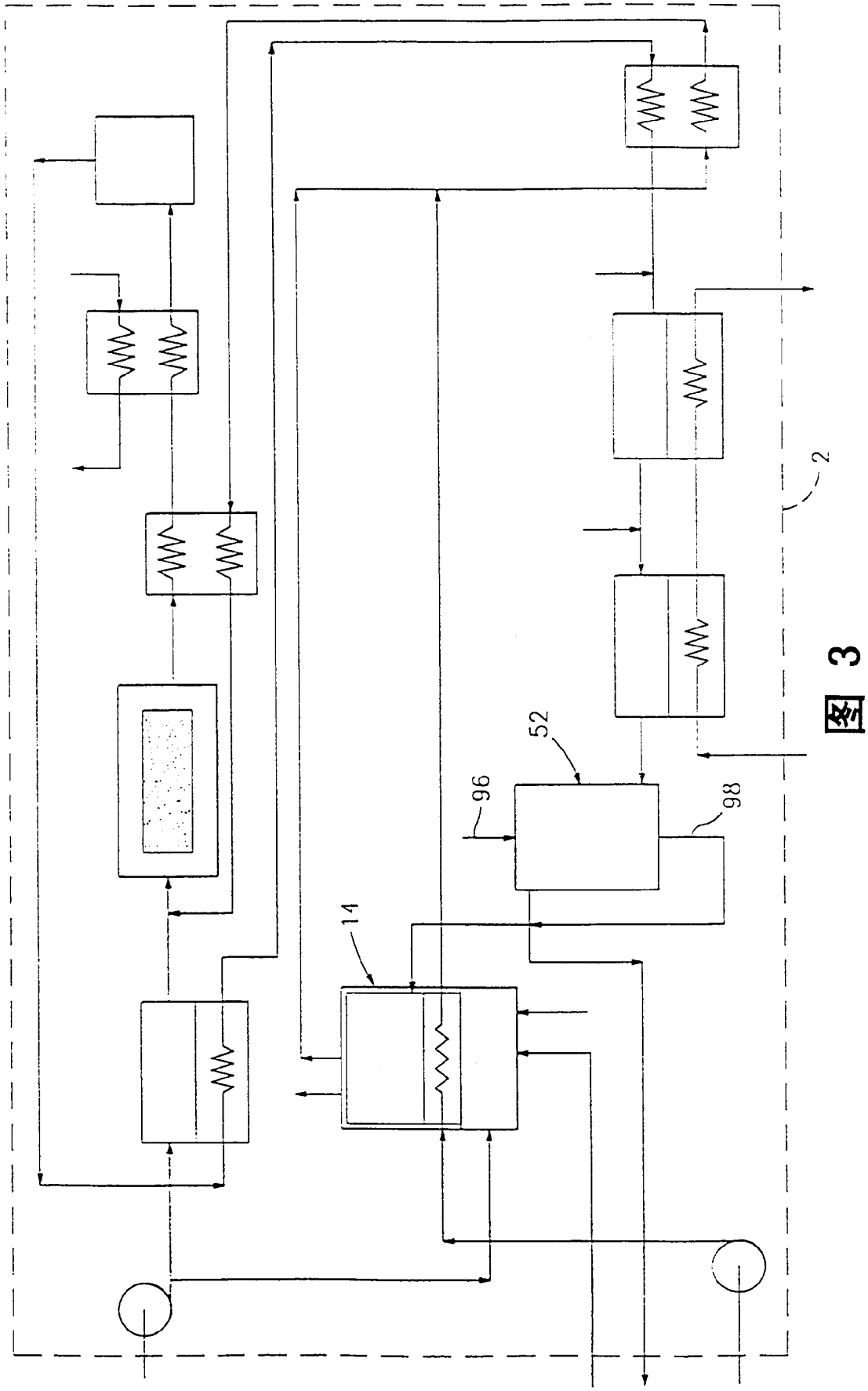


图 3

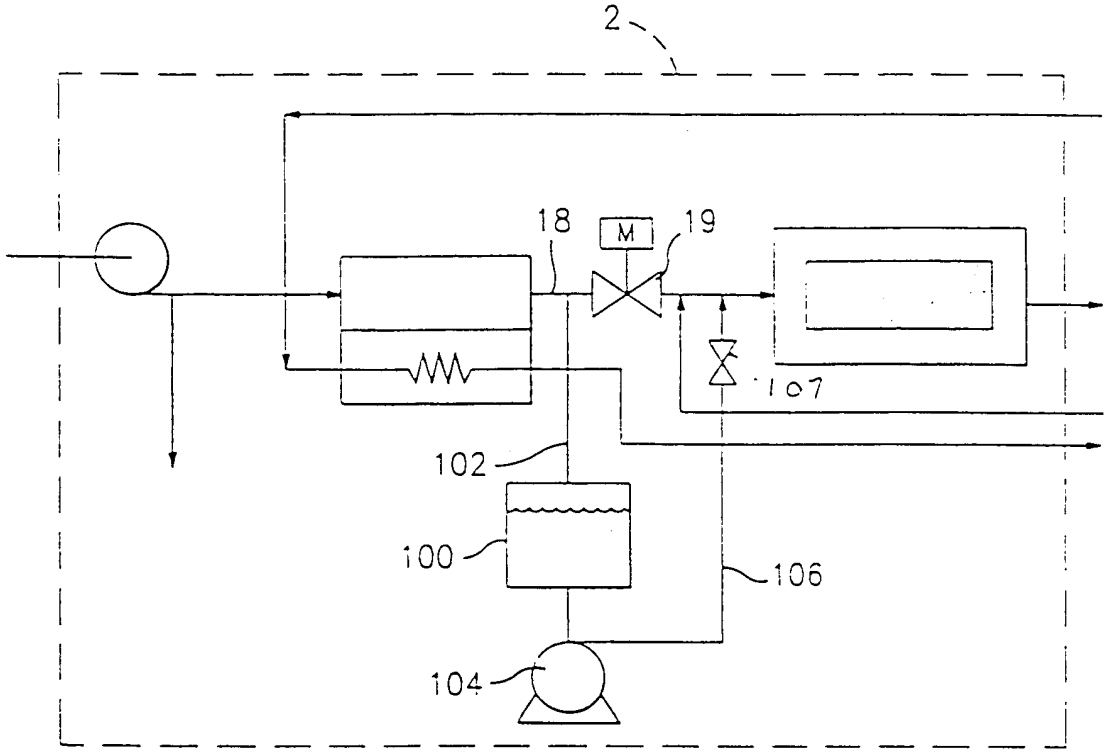


图 4

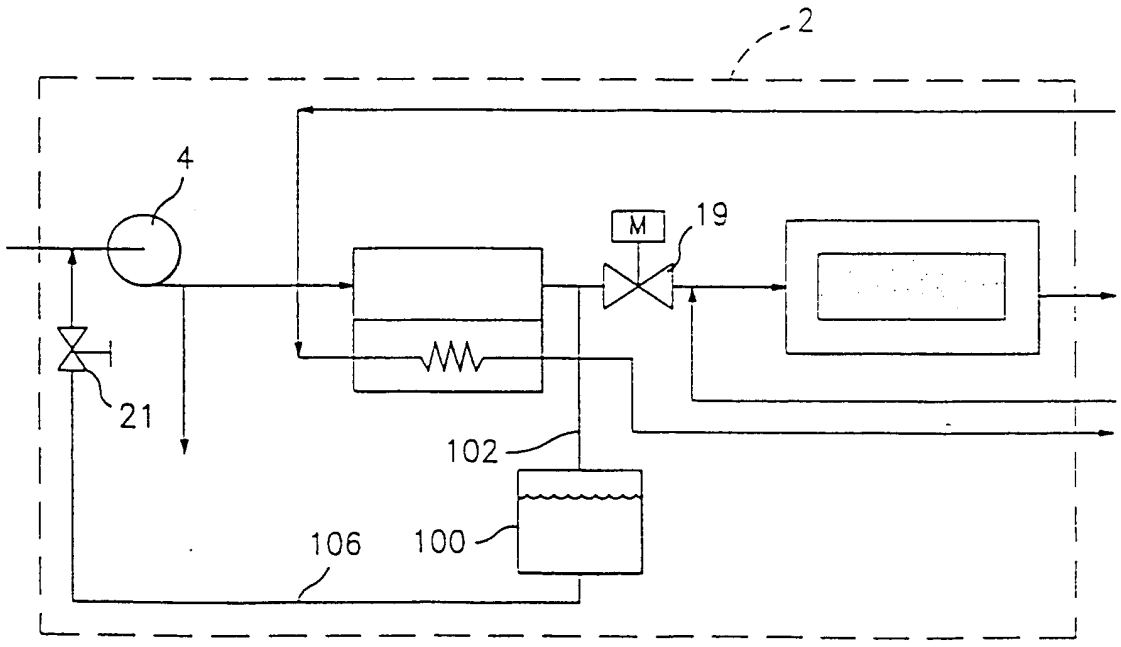


图 5

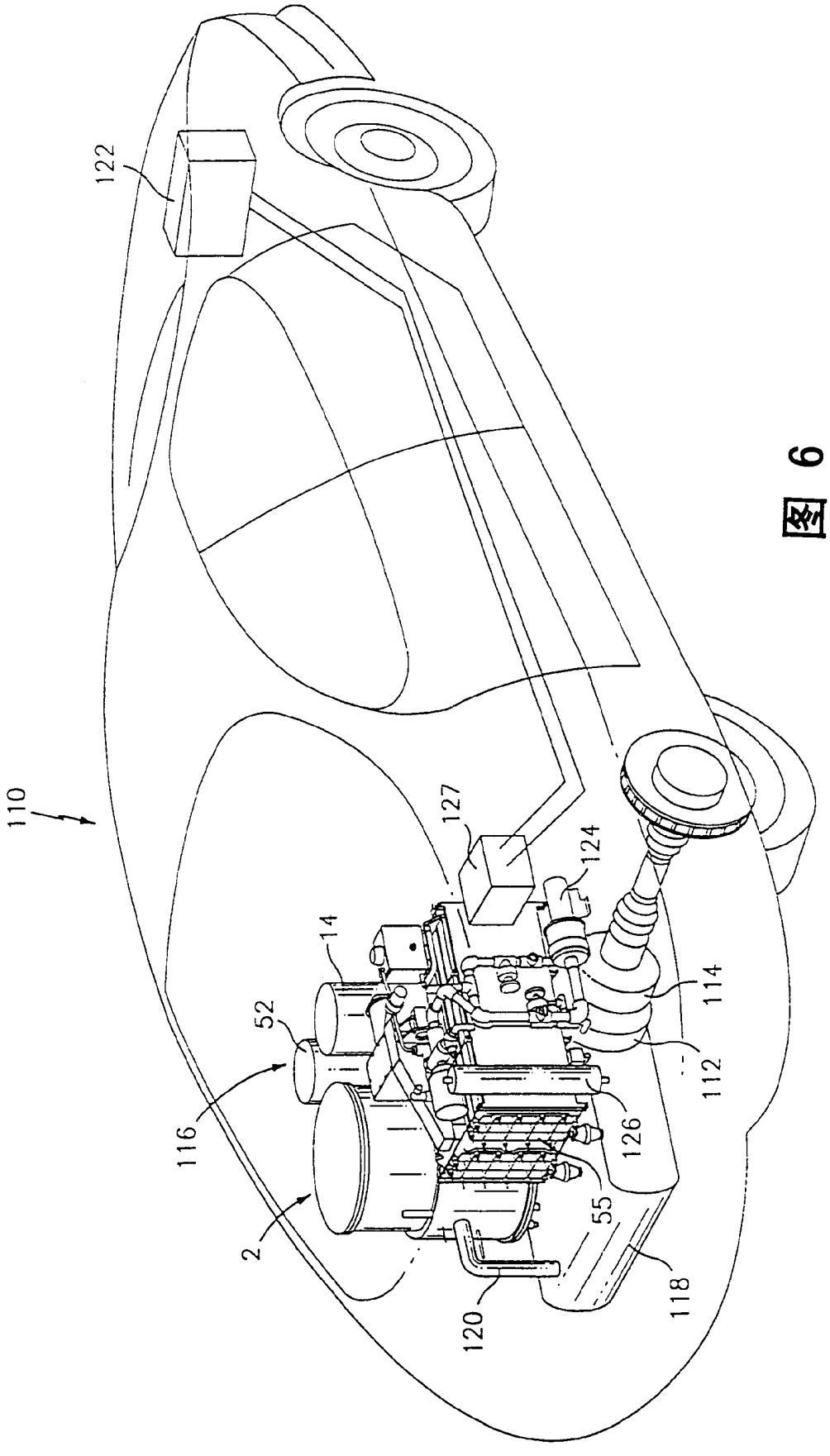


图 6