(19)中华人民共和国国家知识产权局

(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 105228949 A
(43)申请公布日 2016.01.06

(21)申请号 201480027350.5
(22)申请日 2014.03.13
(30)优先权数据
61/787,587 2013.03.15 US
61/787,697 2013.03.15 US
61/787,879 2013.03.15 US
61/788,628 2013.03.15 US
61/884,376 2013.09.30 US
61/884,545 2013.09.30 US
61/884,565 2013.09.30 US
61/884,586 2013.09.30 US
61/884,605 2013.09.30 US
61/884,635 2013.09.30 US
61/889,757 2013.10.11 US
(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2015.11.13
(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/US2014/025219 2014.03.13
(87)PCT国际申请的公布数据
WO2014/151215 EN 2014.09.25
(71)申请人 埃克森美孚研究工程公司
地址 美国新泽西州
(72)发明人 P·J·贝洛维茨
T·A·巴尔克霍尔兹 A·S·李
(74)专利代理机构 北京市中咨律师事务所 11247
代理人 徐国栋 林柏楠
(51)Int.Cl.
C01B 3/50(2006.01)
H01M 8/06(2006.01)

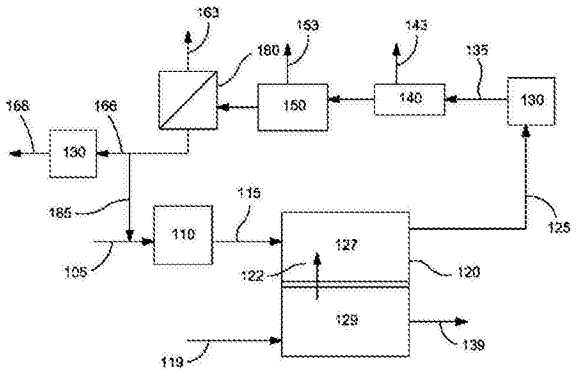
权利要求书3页 说明书103页 附图26页

(54)发明名称

熔融碳酸盐燃料电池与发酵工艺的集成

(57)摘要

在各种方面中，提供了在提高的功率密度下运行熔融碳酸盐燃料电池组件的系统和方法。这部分可通过以集成方式进行燃料电池堆内的有效量的吸热反应实现。这可以在仍保持燃料电池组件内的所需温差的同时实现提高的功率密度。



CN 105228949 A

1. 一种生产发酵产物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含CO_2和O_2的阴极入口料流引入燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；从阳极排气中分离含H_2的料流、含合成气的料流或其组合；加工生物质以产生至少一种发酵产物和发酵废气；和蒸馏所述至少一种发酵产物，通过与所述阳极排气的热交换、所述含合成气的料流的燃烧、所述含H_2的料流的燃烧、利用在熔融碳酸盐燃料电池内生成的电力的电加热或其组合提供至少一部分蒸馏热，其中所述方法进一步包括下列一项或多项：a) 所述阴极入口料流包含至少一部分发酵废气；b) 所述加工步骤在从所述阳极排气中分离的H_2O、从所述含合成气的料流中分离的H_2O、从所述含H_2的料流中分离H_2O或其组合存在下进行；c) 所述可重整燃料包含一部分发酵产物，所述可重整燃料任选含有至少 50 体积％的发酵产物（例如至少 60 体积％或至少 70 体积％），所述发酵产物部分任选是具有大约 1.5:1 至大约 3.0:1（例如大约 1.5:1 至大约 2.5:1）的水碳比的发酵产物的蒸馏部分；d) 所述加工步骤包括将基本可发酵的生物质部分与基本不可发酵的生物质部分分离，所述基本不可发酵的生物质部分在一个或多个热、化学和/或热化学工艺中在至少一部分含H_2的气流、至少一部分含合成气的料流或其组合存在下加工；e) 引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的量提供至少大约 2.0 的可重整燃料过剩率；f) 引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而氧化的氢气量高至少大约 50％（例如高至少大约 75％或高至少大约 100％）；g) 所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％（例如大约 10％至大约 35％，大约 10％至大约 30％，或大约 10％至大约 25％），且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 55％（例如至少大约 65％、至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）；h) 所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.3，大约 0.25 至大约 1.15，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.85，或大约 0.25 至大约 0.75）的热比率下运行；i) 阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的CO_2摩尔数的比率为至少大约 2.0（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0 或至少大约 20.0），和任选大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）；j) 熔融碳酸盐燃料电池的阳极中的燃料利用率为大约 50％或更低（例如大约 40％或更低，大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的CO_2利用率为至少大约 60％（例如至少大约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）；k) 在第一运行条件下运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成电力和至少 100mW/cm^2的废热，第一运行条件提供至少大约 150mA/cm^2的电流密度并进行有效量的吸热反应以保持大约 80℃或更低（例如大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差；l) 所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.60 伏特至大约 0.67 伏特（例如大约 0.60 伏特至大约 0.65 伏特，大约 0.62 伏特至大约 0.67 伏特，或大约 0.62 伏特至大约 0.65 伏特）的电压V_A下运行，所述熔融碳酸盐燃料电池任选在大约 65％或更低的燃料利用率下运行；m) 所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，将至少一部分阳极排气再循环到阳极；n) 所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，至少一部分阳极排气用作燃气轮机的燃烧区的阳极再循环燃料，燃气轮机的燃烧区的任选第二燃料料流任选包含至少大约 30 体积％ CO_2和/或至少大约 35 体积％的CO_2和惰性物的组合（例如至少大约 40 体积％的CO_2和惰性物

的组合、至少大约 45 体积％的 CO_2和惰性物的组合，或至少大约 50 体积％的 CO_2和惰性物的组合）；o）所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，至少第一部分的所述阳极排气用作燃气轮机的燃烧区的阳极再循环燃料，且至少第二部分的阳极排气再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极中；p）所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，所述阴极入口料流包含至少大约 20vppm 的 NOx，且阴极排气包含所述阴极入口料流的 NOx 含量的不到大约一半；q）所述方法进一步包括燃烧至少一部分所述含 H_2气流以发电，所述燃烧任选在第二涡轮机的燃烧区中进行，且所述阴极入口料流任选包含至少一部分由含碳燃料的燃烧生成的燃气轮机排气；r）所述方法进一步包括在甲醇合成催化剂存在下在用于形成甲醇的有效条件下使至少一部分所述含合成气的料流反应以产生至少一个含甲醇料流和一个或多个含气体产物或液体产物的料流，和任选将至少一部分所述一个或多个含气体产物或液体产物的料流再循环以形成至少一部分阴极入口料流；s）所述方法进一步包括任选将衍生自一个或多个第一炼油厂工艺的一个或多个含 CO_2的料流送往阴极入口，从至少一部分阳极排气中分离 CO_2以形成 CO_2含量高于阳极排气的 CO_2含量的富 CO_2气流和 CO_2含量小于阳极排气的 CO_2含量的贫 CO_2气流，并将所述贫 CO_2气流送往一个或多个第二炼油厂工艺；t）所述方法进一步包括从至少一部分阳极排气中分离 CO_2以产生 CO_2含量高于阳极排气的 CO_2含量的富 CO_2料流和 H_2含量高于阳极排气的 H_2含量的贫 CO_2气流，和在氨合成工艺中、在有机含氮化合物合成工艺中或在两者中使用至少一部分所述贫 CO_2气流；u）所述方法进一步包括从阳极排气中取出包含 CO 的第一气流，所述阳极排气具有大约 500kPag 或更低的压力，将从阳极排气中取出的第一气流引入铁和／或钢生产工艺，和任选从阳极排气中取出包含 H_2的第二气流，并且如果取出，利用第二气流作为用于铁和／或钢生产工艺中的加热的燃料；v）所述方法进一步包括生成包含 H_2、CO、H_2O 和至少大约 20 体积％ CO_2的阳极排气，使至少一部分阳极排气在有效费托条件下在变换费托催化剂存在下反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物，其中所述至少一部分阳极排气中的 CO_2浓度为所述阳极排气中的 CO_2浓度的至少 80％，和将至少一部分所述至少一种气体产物再循环到阴极入口；w）所述方法进一步包括生成包含 H_2、CO、CO_2和 H_2O 并具有至少大约 2.5:1 的 H_2/CO 比率的阳极排气，将至少一部分阳极排气中的 H_2/CO 比率降至大约 1.7:1 至大约 2.3:1 的比率以形成经典合成气料流，其还具有阳极排气中的 CO_2浓度的至少 60％的 CO_2浓度，在有效费托条件下在非变换费托催化剂存在下使所述经典合成气料流反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物，和任选将至少一部分所述至少一种气体产物再循环到阴极入口；和 x）所述方法进一步包括生成包含 H_2、CO 和 CO_2、具有至少大约 2.5:1 的 H_2/CO 比率并具有至少大约 20 体积％的 CO_2含量的阳极排气，从至少一部分阳极排气中除去水和 CO_2以产生阳极流出物气流，所述阳极流出物气流具有小于阳极排气中的水浓度的一半的水浓度、具有小于阳极排气中的 CO_2浓度的一半的 CO_2浓度、或其组合，所述阳极流出物气流还具有大约 2.3:1 或更小的 H_2/CO 比率，和使至少一部分阳极流出物气流在非变换费托催化剂上反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物。

2. 根据权利要求 1 的方法，其中所述阴极入口料流包含至少一部分阳极排气、至少一部分取自阳极排气的任何气流或其组合。

3. 根据权利要求 1 或 2 的方法，其中所述阴极入口料流包含至少一部分来自燃烧反应的排气、来自燃气轮机的排气或其组合。

4. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中从阳极排气、取自阳极排气的任何气流或其组合中分离 CO_2，至少一部分分离的 CO_2 任选与至少一部分发酵废气合并。

5. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中从阳极排气、取自阳极排气的任何气流或其组合中分离 H_2O。

6. 根据上述权利要求中任一项的方法，其进一步包括从所述阳极排气中分离 H_2O 并在生物质加工过程中使用所述分离的 H_2O 以生产所述至少一种发酵产物。

7. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电包括在一定的燃料利用率下运行所述燃料电池，基于生物质加工的电需求、生物质加工的热需求和发酵产物蒸馏的热需求的至少一项选择燃料利用率。

8. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中所述可重整燃料衍生自生物质——通过由生物质加工产生的生物质残渣的厌氧消化。

9. 根据权利要求 8 的方法，其中至少一些可重整燃料衍生自生物质——通过由生物质加工产生的生物质残渣的部分氧化和 / 或气化。

10. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中所述至少一种发酵产物包含乙醇。

11. 根据上述权利要求中任一项的方法，其进一步包括从阳极排气中分离富 CO_2 料流并使用所述富 CO_2 料流作为光合藻类生长工艺的一部分。

12. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中所述可重整燃料衍生自藻类生长池塘中生成的藻类生物质。

13. 根据上述权利要求中任一项的方法，其进一步包括从阳极排气中分离富 CO_2 料流和将至少一部分富 CO_2 料流送往阴极入口。

14. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中基于发酵产物的燃烧提供至少一部分蒸馏热。

15. 根据上述权利要求中任一项的方法，其中所述阳极排气具有至少大约 3.0:1 的 H_2:CO 摩尔比。

熔融碳酸盐燃料电池与发酵工艺的集成

发明领域

[0001] 在各种方面中，本发明涉及使用熔融碳酸盐燃料电池集成的化学生产和/或发电工艺。

[0002] 发明背景

[0003] 熔融碳酸盐燃料电池利用氢气和/或其它燃料发电。可通过在燃料电池上游或燃料电池内的蒸汽重整器中重整甲烷或其它可重整燃料来提供氢气。可重整燃料可包括可以在升高的温度和/或压力下与蒸汽和/或氧反应产生含氢气的气态产物的烃质材料。替换地或附加地，燃料可以在熔融碳酸盐燃料电池的阳极池中重整，可运行所述燃料电池以创造适合在阳极中重整燃料的条件。替换地或附加地，可以在燃料电池的外部和内部进行重整。

[0004] 传统上，运行熔融碳酸盐燃料电池以使每单位燃料输入的发电量最大化，这可以被称作燃料电池的电效率。这种最大化可基于独自的燃料电池或与另一发电系统结合的燃料电池。为了实现提高的发电量和管理热的产生，燃料电池内的燃料利用率通常保持在70％至75％。

[0005] 美国公开专利申请2011/0111315描述了一种在阳极入口料流中存在显著氢气含量的运行燃料电池系统的系统和方法。’315公开中的技术涉及在阳极入口中提供足够的燃料以在燃料接近阳极出口时仍有足够的燃料用于氧化反应。为了确保足够的燃料，’315公开提供了具有高H_2浓度的燃料。氧化反应中未用到的H_2再循环到阳极以用于下一循环。按单程计，H_2利用率可以为10％至30％。文献’315没有描述阳极内的显著重整，而是主要依靠外部重整。

[0006] 美国公开专利申请2005/0123810描述了一种用于氢气和电能联产的系统和方法。该联产系统包含燃料电池和构造成接收阳极排气料流并分离氢气的分离单元。一部分阳极排气也再循环到阳极入口。’810公开中给出的运行范围看起来基于固体氧化物燃料电池。熔融碳酸盐燃料电池被描述为替代物。

[0007] 美国公开专利申请2003/0008183描述了一种用于氢气和电力联产的系统和方法。作为用于将烃型燃料转化成氢气的化学转化器的通用类型提到燃料电池。该燃料电池系统还包括外部重整器和高温燃料电池。描述了该燃料电池系统的一个实施方案，其具有大约45％的电效率和大约25％的化学生产率，导致系统联产效率为大约70％。’183公开看起来没有描述独立于该系统的燃料电池的电效率。

[0008] 美国专利5,084,362描述了一种将燃料电池与气化系统集成从而可使用煤气作为燃料电池阳极的燃料源的系统。使用燃料电池生成的氢气作为用于由煤气（或其它煤）进料生成甲烷的气化器的进料。然后使用来自气化器的甲烷作为燃料电池的至少一部分输入燃料。由此，燃料电池生成的至少一部分氢气以气化器生成的甲烷的形式间接再循环到燃料电池阳极入口。

[0009] Journal of Fuel Cell Science and Technology中的一篇文章(G.Manzolini等人，J.Fuel Cell Sci.and Tech.，第9卷，2012年2月）描述了一种将燃烧发电机与熔融

碳酸盐燃料电池组合的发电系统。描述了燃料电池的各种布置和运行参数。来自燃烧发电机的燃烧输出部分用作燃料电池阴极的输入。Manzolini 文章中的模拟的一个目标是使用 MCFC 从发电机的废气中分离 CO_2。Manzolini 文章中描述的模拟确立了 660℃的最大出口温度并指出入口温度必须足够更冷以虑及经过燃料电池的升温。基础模型实例中 MCFC 燃料电池的电效率（即发电量 / 燃料输入）为 50％。针对 CO_2封存 (sequestration) 优化的试验模型实例中的电效率也是 50％。

[0010] Desideri 等人的文章 (Intl. J. of Hydrogen Energy, Vol. 37, 2012) 描述了使用燃料电池分离 CO_2的发电系统的性能的建模方法。利用阳极排气再循环到阳极入口和阴极排气再循环到阴极入口来改进燃料电池的性能。模型参数描述了 50.3％的 MCFC 电效率。

[0011] 美国专利 5,169,717 描述了一种将熔融碳酸盐燃料电池与制氨系统集成的方法。该集成系统使用不同于熔融碳酸盐燃料电池的前端加工输入的氢气和氮气流以制造氨。

[0012] 发明概述

[0013] 熔融碳酸盐燃料电池的运行可以与各种用于制造能量、制造氢气、合成气或其它燃料和 / 或制造商业上有用的化合物的方法集成。

[0014] 本申请与另外 21 个共同未决的 PCT 申请有关，它们在同一日期与其一起提交并通过下列代理人案号和名称标识：名称为“Integrated Power Generation and Carbon Capture using Fuel Cells”的 2013EM104-WO；名称为“Integrated Power Generation and Carbon Capture using Fuel Cells” 的 2013EM107-WO；名称为“Integrated Power Generation and Carbon Capture using Fuel Cells” 的 2013EM108-WO；名称为“Integrated Power Generation and Carbon Capture using Fuel Cells” 的 2013EM109-WO；名称为“Integrated Power Generation and Chemical Production using Fuel Cells”的 2013EM272-WO；名称为“Integrated Power Generation and Chemical Production using Fuel Cells at a Reduced Electrical Efficiency”的 2013EM273-WO；名称为“Integrated Power Generation and Chemical Production using Fuel Cells” 的 2013EM274-WO；名称为“Integrated Power Generation and Chemical Production using Fuel Cells”的 2013EM277-WO；名称为“Integrated Carbon Capture and Chemical Production using Fuel Cells”的 2013EM278-WO；名称为“Integrated Power Generation and Chemical Production using Fuel Cells”的 2013EM279-WO；名称为“Integrated Operation of Molten Carbonate Fuel Cells”的 2013EM285-WO；名称为“Mitigation of NOx in Integrated Power Production”的 2014EM047-WO；名称为“Integrated Power Generation using Molten Carbonate Fuel Cells”的 2014EM048-WO；名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells in Fischer-Tropsch Synthesis”的 2014EM049-WO；名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells in Fischer-Tropsch Synthesis”的 2014EM050-WO；名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells in Fischer-Tropsch Synthesis” 的 2014EM051-WO；名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells in Methanol Synthesis”的 2014EM052-WO；名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells in a Refinery Setting”的 2014EM053-WO；名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells for Synthesis of Nitrogen Compounds”的 2014EM054-WO；名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells in Iron and

Steel Processing”的 2014EM056-WO ;和名称为“Integrated of Molten Carbonate Fuel Cells in Cement Processing”的 2014EM057-WO。这些共同未决的 PCT 申请中的每一个全文经引用并入本文。

[0015] 附图简述

[0016] 图 1 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池和相关重整和分离段的配置的一个实例。

[0017] 图 2 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池和相关重整和分离段的配置的另一实例。

[0018] 图 3 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池的运行的一个实例。

[0019] 图 4 示意性显示基于碳基燃料燃烧的发电的联合循环系统的一个实例。

[0020] 图 5 示意性显示基于碳基燃料燃烧的发电的联合循环系统的一个实例。

[0021] 图 6-8 示意性显示用于将熔融碳酸盐燃料电池与生成烃质化合物的工艺集成的配置的实例。

[0022] 图 9 和 10 显示集成 MCFC 和费托系统的模拟结果。

[0023] 图 11 和 12 示意性显示用于将熔融碳酸盐燃料电池与甲醇合成工艺集成的配置的实例。

[0024] 图 13 显示集成的 MCFC 和甲醇合成工艺的工艺流计算值。

[0025] 图 14-15 示意性显示用于将熔融碳酸盐燃料电池与发酵工艺集成的配置的实例。

[0026] 图 16 示意性显示用于将熔融碳酸盐燃料电池与含氮化合物合成工艺集成的配置的一个实例。

[0027] 图 17 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池与水泥生产工艺的集成的一个实例。

[0028] 图 18 显示熔融碳酸盐燃料电池与水泥生产工艺的集成的一个实例的工艺流。

[0029] 图 19 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池与生产铁或钢的工艺的集成的一个实例。

[0030] 图 20 显示熔融碳酸盐燃料电池与生产铁或钢的工艺的集成的一个实例的工艺流。

[0031] 图 21 示意性显示在炼油厂装置中生成氢气和电力的系统的一个实例。

[0032] 图 22 显示在炼油厂装置中生成氢气和电力的系统中的工艺流的一个实例。

[0033] 图 23 示意性显示在炼油厂装置中生成氢气和电力的系统的一个实例。

[0034] 图 24 显示在炼油厂装置中生成氢气和电力的系统中的工艺流的一个实例。

[0035] 图 25 示意性显示发电配置的一个实例。

[0036] 图 26 显示发电系统的模拟结果。

[0037] 实施方案详述

[0038] 综述

[0039] 在各种方面中，熔融碳酸盐燃料电池的运行可以与各种化学和 / 或材料生产工艺集成。生产工艺可对应于来自熔融碳酸盐燃料电池的输出的生产，和 / 或生产工艺可消耗或提供一个或多个燃料电池料流。

[0040] 与费托合成的集成

[0041] 在各种方面中，提供了基于由 MCFC 系统制成的合成气的反应由费托合成生产高品质产品的系统和方法。该系统和方法可任选但有时优选使用非变换费托催化剂，如钴基催化剂，以产生具有高平均分子量的基本饱和的链烷烃。这有时被称作“低温”费托合成。或者，该系统和方法可任选但有时优选使用变换费托催化剂，如铁基催化剂。这有时被称作

“高温”费托合成。尽管可使用其它催化剂体系和工艺条件，但典型的商业运行可使用基于钴或铁的催化剂。在一些优选方面中，可以将通常在费托产物料流中形成的基本饱和的链烷烃加工成高价值产品，如柴油燃料、喷气发动机燃料和润滑剂和/或可用作这些产品的调和原料。在一些方面中，该系统和方法可以更有效生产这些产品，同时还产生相当大量的电力（例如用于费托工艺和/或用于输出），同时还有效利用整个工艺的碳输入。该系统可以就相对于输入的电和化学输出总和而言提供高的总效率。附加地或作为选择地，该系统可产生适合碳捕集/封存的 CO_2 料流（或一个或多个 CO_2 料流）。

[0042] 合成气可用于制造可用于生产燃料、润滑剂、化学品和/或特种产品的各种产品和组分。将合成气转化成这些产品的一种方法包括费托法，其中合成气可以在催化剂上在升高的温度和压力下反应以产生长链烃（或烃质化合物）和含氧物（oxygenates）。最常用的催化剂可通常包括铁基催化剂（用于所谓的高温费托合成）和钴基催化剂（用于所谓的低温费托合成）。铁基催化剂，与其它相关催化剂一起，也可被称作变换催化剂，因为水煤气变换反应往往在这些催化剂上容易平衡。含钴催化剂和其它相关催化剂可以被称作非变换的，因为它们看起来在标准运行条件下基本不实施和/或催化水煤气变换平衡反应。

[0043] 合适的费托催化剂的实例通常包括负载或未负载的第 VIII 族非贵金属，例如 Fe、Ni、Ru 和/或 Co，含或不含助催化剂，例如钌、铼和/或锆。这些费托工艺通常可包括固定床、流化床和/或淤浆烃合成。在一些方面中，优选的费托工艺可以是使用非变换催化剂的费托工艺，如基于钴和/或钌，优选包含至少钴，优选含助催化剂的钴，该助催化剂包含锆和/或铼，优选是铼，尽管也可以使用其它助催化剂金属。可以通过任选作为催化剂载体的一部分添加各种金属，包括铜、铈、铼、锰、铂、铱、铑、钼、钨、钌或锆来增强这些催化剂的活性。这样的催化剂是公知的，优选催化剂描述在美国专利 No. 4,568,663 以及欧洲专利 No. 0 266 898 中。典型费托工艺中所用的合成气进料可包含 H_2 和 CO 的混合物，其中 H_2:CO 以至少大约 1.7，优选至少大约 1.75，更优选 1.75 至 2.5，如至少大约 2.1 和/或大约 2.1 或更低的比率存在。

[0044] 费托工艺可以在各种系统，如固定床、淤浆床和多通道设计中实施。在各种方面中，费托工艺可以在多种多样的反应器，如小型反应器（例如每天 1+ 桶）或极大反应器（例如每天 10,000-50,000 桶或更大）中使用。产物，通常烃蜡，可以原样使用和/或可通过各种公知化学工艺转化成其它（例如液体）组分。

[0045] 通常，费托工艺可以在大约 150℃至大约 320℃（302-626 ℉）的温度范围内和在大约 100kPaa 至大约 10MPaa 的压力下运行。修改费托工艺内的反应条件可提供对反应产物的收率和/或组成的控制，包括对反应产物的链长的至少一定控制。典型反应产物可包括链烷（主要反应产物）以及含氧物、烯烃、类似于烃但可能含有一个或多个不同于碳和氢的杂原子的其它烃质化合物和各种附加反应副产物和/或未反应的进料组分的一种或多种。这些附加反应产物和进料组分可包括 H_2O、未反应的合成气（CO 和/或 H_2）和 CO_2 等。这些附加反应产物和未反应的进料组分可形成尾气，其可以以气体形式（不同于非气体产物，如由该工艺生成的更典型的（所需）液体和/或烃质化合物）与费托工艺的主要反应产物分离。当费托工艺的目标是合成较长链的分子，如适合用作石脑油进料、柴油进料或其它馏出沸程分子的化合物时，一些小（C1 - C4）链烷、烯烃、含氧物和/或其它烃质化合物可能并入尾气中。来自费托合成的主要产物可以直接使用，和/或可视需要进行进一步加工。例

如，用于形成馏出沸程分子的费托合成工艺可生成一个或多个产物料流，其可随后脱蜡和/或加氢裂化以生成例如具有所需链长、粘度和冷流性质的最终产物。

[0046] 费托工艺与熔融碳酸盐燃料电池的集成可以在该合成工艺和燃料电池之间集成工艺料流。费托工艺的初始合成气进料可以由与燃料电池相关的重整阶段生成。附加地或作为选择地，费托工艺生成的尾气可以再循环以向燃料电池的阳极提供补充的燃料料流，和/或向燃料电池阴极提供 CO_2 源。再附加地或作为选择地，该 MCFC/ 费托系统可以与燃气轮机发电厂和碳捕集的使用集成，以提供生产更大量电力和液体燃料的总装置。

[0047] 在一些方面中，费托工艺生成的尾气可以以改进的方式使用以向阴极入口料流提供至少一部分 CO_2。来自费托合成反应的尾气通常被视为相对低价值的料流。该尾气可包括很大部分的 CO_2 并可能包括至少一些燃料组分，如 CO、H_2、小链烷和/或小含氧物。由于燃料组分的相对较低浓度和/或 CO_2 的相对较高浓度，该尾气通常不可直接用作燃料。可以进行分离以试图从尾气中除去燃料组分，但就源自该分离的燃料量而言，这样的分离通常低效。

[0048] 不试图从尾气料流中分离燃料组分，在各种方面中，可以进行分离以从尾气料流中分离一部分 CO_2。这可导致形成 CO_2 料流和尾气料流的剩余部分。这种分离策略可能提供几个潜在益处。当进行该分离以仅分离出一部分 CO_2 时，该分离可优选用于形成相对高纯度的 CO_2 料流。尽管剩余尾气流中的燃料浓度可能仅适度提高，但可以降低尾气料流的总体积，以使尾气料流的剩余部分更适合用作阴极入口料流的至少一部分，或可能使用该剩余部分作为阴极入口料流。在用作阴极入口料流前，可以将该尾气剩余部分中的燃料燃烧以形成 CO_2 和 H_2O，任选同时还将该尾气剩余部分加热至所需阴极入口温度。要指出，在燃烧后控制该尾气料流的剩余部分的温度的一个选项可包括控制在该分离过程中除去的 CO_2 的量。这种类型的分离策略可有效利用尾气中的燃料而不必进行分离以分离出燃料。另外，当仅对尾气中的 CO_2 进行部分分离时，可以生成相对更纯的 CO_2 料流。这样的相对纯 CO_2 料流可以适合封存或用于涉及高纯 CO_2 的其它用途。

[0049] 在一些方面中，费托工艺与 MCFC 的集成能实现与使用例如蒸汽重整器或自热重整器的传统工艺不同类型的工艺流。来自自热重整器的典型合成气输出可具有小于大约 2:1 的 H_2:CO 比。因此，在传统工艺希望改变 H_2:CO 比的程度上，该改变通常相当于相对于 CO 量提高 H_2 的量，例如提高到大约 2:1。相反，在各种方面中，来自 MCFC 的阳极排气的组成可具有至少大约 2.5:1，如至少大约 3:1 的 H_2:CO 比。在一些方面中，可能希望形成具有大约 2:1 的 H_2:CO 比，如至少大约 1.7，或至少大约 1.8，或至少大约 1.9，和/或大约 2.3 或更低，或大约 2.2 或更低，或大约 2.1 或更低的比率的合成气。在这样的方面中，为了实现所需比率，可以相对于 CO 量降低 H_2 的量。这可以使用反向水煤气变换反应、使用膜分离出（高纯）H_2 流或通过任何其它方便的改变 H_2:CO 比的方法实现。

[0050] 费托合成可获益于 MCFC 系统的许多特征。通常，由甲烷通过费托法制成的合成气可通过涉及使用与来自空气的纯化氧气反应的甲烷的蒸汽重整、自热重整或部分氧化制成。这样的系统需要相当大量的资本设备（空气分离器）并且还必须使用各种预气体净化和后气体净化步骤以产生具有正确的 H_2/CO 比的合成气，其还需要脱除不合意的杂质。对毒物如硫敏感的更高效的 Co 催化剂基（非变换）系统尤其如此。费托系统可需要大量的热管理和/或热交换并可以在相对高温下发生。

[0051] MCFC 系统在发电过程中可进行合成气生产并可由于位于阳极中的大量催化剂（通常 Ni 基）（其可耐受和 / 或除去大多数费托毒物）而产生清洁的合成气。因此，在 MCFC 中可以至少部分进行气体加工、热交换和 / 或净化。此外，相对容易实现所需 H_2/CO 比，因为阳极流出物具有足量的所有四种水煤气变换组分并可通过水和 / 或 CO_2 脱除和 / 或附加 WGS（或反向变换）的组合简单调节。

[0052] 由于该反应的放热性质，费托反应器通常可产生大量蒸汽。根据装置位置，有效利用蒸汽可能是困难的。当与发电的 MCFC 系统结合时，该系统可提供许多区域——在此热集成可使用费托过量蒸汽 / 热。可能的集成实例可包括加热在除去 CO_2 后（如在低温脱除后）的反应物、加热输入的阴极氧化剂（空气）（如果其来自低温 CO_2 源）和 / 或集成到已存在的用于由 MCFC 联合循环发电的热回收蒸汽发生系统中。

[0053] 费托工艺通常可产生一定量的不容易并入液体产物中的 C1 至 C4 烃（可能包括 C1 至 C4 含氧物）。这样的 C1 至 C4 烃和 / 或含氧物可直接或借助预重整器再循环到 MCFC 并可用于制造电力和 / 或再循环合成气。

[0054] 对于 CO_2 的使用具有附加价值的装置，从阳极排气中捕集的 CO_2 的分离可提供另外的集成机会。这样的 CO_2 可用于例如二次采油、用于回注到井中或用于其它工艺，在此其可改变用途而非浪费在大气排气中，同时增强整个系统。

[0055] 综合费托熔融碳酸盐燃料电池 (FT-MCFC) 系统的阳极进料可包含或是新鲜甲烷进料、另一类型的烃或烃质进料、基于一个或多个来自费托反应器和 / 或来自后继加工步骤的含有 CO、CO_2、H_2 和轻质烃的一种或多种的再循环料流的进料，或其组合。优选地，该阳极进料可包含或是天然气和 / 或甲烷。来自 MCFC 系统的阳极输出物可直接使用，或更通常可经过各种工艺以调节 H_2/CO 比和 / 或降低水和 CO_2 含量，以针对费托合成优化。这样的调节工艺可包括分离、水煤气变换反应、冷凝和吸收等，以及它们的组合。

[0056] 阴极进料可含有 CO_2 并可衍生自单独的燃烧工艺（如果存在）（例如来自燃气轮机和 / 或其它 CO_2 流出物）。附加地或作为选择地，该阴极进料可以至少部分由来自 MCFC 阳极的料流的再循环（在分离后）和 / 或由来自费托工艺的再循环生成。再附加地或作为选择地，该阴极入口料流可含有衍生自费托工艺尾气的 CO_2。再附加地或作为选择地，阴极进料可部分衍生自新鲜甲烷或烃进料的燃烧。阴极流出物通常可排放到大气中（任选但优选在热回收以例如向其它工艺料流和 / 或在联合循环发电中供热后），尽管如果需要，阴极流出物可任选但较不优选送往进一步处理。

[0057] 可以调节 MCFC 燃料利用条件以相对于合成气输出提供所需量的电能。对于电力需求大的用途（例如在极大型的海上原油平台上的小型气体生产），该 FT-MCFC 系统可成比例地产生更大的电力。基于大规模转化的操作（其中存在大量基础设施）可产生各种电 / 化学混合物并可基于当地需求改变输出。

[0058] 图 6 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池（如熔融碳酸盐燃料电池阵列）与用于实施费托合成的反应系统的集成的一个实例。在图 6 中，熔融碳酸盐燃料电池 610 示意性代表一个或多个燃料电池（如燃料电池堆或燃料电池阵列）以及该燃料电池的相关重整阶段。燃料电池 610 可接收阳极输入料流 605，如可重整燃料料流和含 CO_2 的阴极输入料流 609。来自燃料电池 610 的阴极输出未显示在图 6 中。来自燃料电池 610 的阳极输出 615 然后任选但优选经过一个或多个分离阶段 620，其可以以如下文所述和如图 1 和 2 中进一步例示的

任何所需顺序包括 CO_2、H_2O 和 / 或 H_2 分离阶段和 / 或一个或多个水煤气变换反应阶段。分离阶段可产生一个或多个料流，相当于 CO_2 输出料流 622、H_2O 输出料流 624 和 / 或 H_2 输出料流 626。分离阶段还可产生适合用作费托反应阶段 630 的进料的合成气输出 625。

[0059] 在图 6 中所示的图表中，阳极出口可产生含有相对大量的水和 CO_2 以及表现出高于优选的 2:1 比率的 H_2:CO 比的合成气。在一系列步骤中，可以将该料流冷却以除去水，然后经过 CO_2 分离阶段以除去大部分 CO_2。阳极出口料流和 / 或所得流出物可具有相对较高的 H_2:CO 比（通常大约 2.5 至大约 6:1，例如大约 3:1 至大约 5:1）和足够的 CO_2 以向反向水煤气变换反应提供反应物。然后可以将阳极出口料流和 / 或所得流出物加热到相对较高的温度（通常大约 400℃至大约 550℃），在此 CO_2 可以与 H_2 反应产生 $CO+H_2O$。所得气体可表现出接近传统 2:1 的 H_2:CO 比。然后可以将这种气体送入含有非变换费托催化剂的费托反应器。作为一个选择，从能量管理的角度看，可能希望先进行反向水煤气变换反应，然后以方便的顺序分离出 CO_2 和 H_2O。

[0060] 费托反应阶段 630 可产生费托产物 635，其可以直接使用或可经过进一步处理，如附加加氢处理。如果需要，费托蜡的加氢处理通常可以在氢气存在下在升高的温度和压力下实现以产生可以是有用产物如柴油调和原料和 / 或润滑油基础油料的材料（如至少一种非气体产物）。附加地或作为选择地，费托反应阶段 630 可生成尾气 637，其可任选再循环用作再循环燃料 645，例如用于燃料电池 610 的阳极和 / 或阴极部分。在大多数情况中，优选将这种料流至少再循环到阴极，在此残留燃料组分（CO、H_2 和轻质烃）可以与氧化剂（空气）混合和燃烧以达到适合阴极进料的温度。任选地，来自分离阶段 620 的 CO_2 输出 622 可用作燃料电池 610 的阴极的至少一部分进料（未显示），尽管这通常不优选。

[0061] 在大多数实施方案中，来自 MCFC 系统的合成气输出可用作费托工艺的合成气来源。在变换 FT 催化剂（如 Fe 基催化剂）的情况下，该变换催化剂可以在产生费托产物的反应条件下通过水煤气变换反应（或反向水煤气变换反应）调节 H_2/CO 比，即使不同于传统的 2:1。尽管在某些实施方案中可能需要更低的 H_2:CO 比，独立的系统可选择在暴露在变换催化剂下之前调节或不调节这一比率。在一些方面中，当使用变换催化剂时可以减少或最小化地在引入前除去 CO_2。当使用基于钴的费托合成催化剂（或另一类型的非变换催化剂）时，该合成催化剂通常对在费托反应条件下进行水煤气变换反应没有有意义的活性。因此，暴露在非变换费托催化剂下的合成气料流中存在的 CO_2 可主要充当稀释剂，因此基本不干扰费托反应，尽管其倾向于因稀释而降低反应器生产率。但是，由于该催化剂的非变换性质，该催化剂不能轻易调节进入费托反应器的合成气的 H_2:CO 比。

[0062] 图 7 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池（如熔融碳酸盐燃料电池阵列）与用于实施费托合成的反应系统的集成的一个实例。图 7 中所示的配置例如适用于更大规模的系统。在图 7 中，熔融碳酸盐燃料电池 710 示意性代表一个或多个燃料电池（如燃料电池堆或燃料电池阵列）以及该燃料电池的相关重整阶段。燃料电池 710 可接收阳极输入料流 705，如可重整燃料料流和含 CO_2 的阴极输入料流 709。阴极输入料流 709 可相当于来自燃气轮机的排气、来自集成费托 /MCFC 系统中的另一气流的再循环料流、已燃烧生热的甲烷料流和 / 或可以在燃料电池的所需温度下提供 CO_2 的另一方便的料流。阴极输入料流 709 通常可包括一部分含氧料流。来自燃料电池 710 的阳极输出 715 可以首先经过反向水煤气变换阶段 740 以改变阳极排气中的 H_2:CO 比。改变的阳极排气 745 然后可送入一个或多个分离阶段

720，其可以包括 CO_2和 H_2O 分离阶段。分离阶段可产生一个或多个料流，相当于 CO_2输出料流 722 和 / 或 H_2O 输出料流 724。任选但优选地，要用于费托工艺的来自该分离阶段的输出可具有小于阳极排气的 CO_2浓度的一半的 CO_2浓度、小于阳极排气的 H_2O 浓度的一半的 H_2O 浓度、或其组合。可以在一些或所有分离阶段 720 后使用压缩机（未显示）以实现费托反应过程所需的输入压力。任选地，附加地或作为选择地，可以生成 H_2输出料流（未显示）。分离阶段通常可产生适合用作费托反应阶段 730 的进料的合成气输出 725，如非变换费托合成催化剂。费托反应阶段 730 可产生费托液体产物 735、低沸 C2 - C4 化合物 732 和尾气 737。可以将低沸 C2 - C4 化合物与液体产物分离，然后进一步分离以用作产物和 / 或进一步反应的原材料。附加地或作为选择地，可以使 C2 - C4 化合物与尾气 737 留在一起并可以在燃烧后再循环到例如阴极以向燃料电池阴极提供热和 CO_2。

[0063] 集成用途的实例 - 分布式处理

[0064] 对于一些费托用途，如在分立区域中的那些，联合 FT-MCFC 系统的优点在于尺寸适合提供至少一部分运行该系统的本地电力，并且附加地或作为选择地，提供用于其它设施或地点的额外动力，同时将超过这一需求的附加的烃进料转化成更高价值的产品。提供的动力可以是该系统和 / 或地点所需的一部分动力或全部动力。这样的装置可包括独立的陆上气体源、安装在船舶和 / 或平台上的海上装置等。由于容易基于燃料电池堆或阵列的尺寸和数量调节 MCFC 系统的尺寸，可以集成从极小到世界级规模装置的任何可想到的规模。

[0065] 费托合成传统上在以极大规模实施时最实用。这主要归因于几个核心工艺（包括空气分离、甲烷重整成合成气（例如通过自热重整、催化部分氧化等）和烃合成反应器）的规模经济性。传统上，单个工艺“流程 (trains)”可生产每天多于 10,000 桶产物，并在商业上已实施每天 3 万 -15 万桶的总装置规模。对于这种规模的运行，需要极大气体存量 (gas deposits)，这从经济合理的角度将该技术的应用仅局限于少数气藏。

[0066] 不同于这样的传统大规模运行，在一些方面中，提供可有利地用于较小气体存量的在高效系统中使用费托合成的方法和系统。该方法和系统可使用 MCFC 生产合成气以供给费托反应器并且不必包括传统大规模装置的许多复杂性。该 MCFC 系统能够生产用于各种子系统，如压缩机和泵的至少一部分（和可能全部）电力，同时由合成气极高碳转化成液体产物。其可以在各种配置中与变换或非变换催化剂一起使用并可适用于高温或低温费托工艺。

[0067] 如上所述，合适的费托催化剂的实例通常包括负载或未负载的第 VIII 族非贵金属，例如 Fe、Ni、Ru 和 / 或 Co，含或不含助催化剂，例如钌、铼和 / 或锆。这些费托工艺通常可使用反应器，如固定床、流化床和 / 或淤浆烃合成实施。一些费托工艺可使用非变换催化剂，如基于钴和 / 或钌，优选包含至少钴，优选含助催化剂的钴，该助催化剂包含或是锆和 / 或铼，优选包含或是铼。这样的催化剂是公知的，优选催化剂描述在美国专利 No. 4,568,663 以及欧洲专利 No. 0 266 898 中，两者关于此类催化剂及其物理化学特性的描述都经此引用并入本文。费托工艺中所用的合成气进料可包含 H_2和 CO 的混合物，其中 H_2:CO 以至少大约 1.7，优选至少大约 1.75，更优选 1.75 至 2.5，如至少大约 2.1 和 / 或大约 2.1 或更低的比率存在。对于非变换催化剂，MCFC 产生的合成气通常一开始具有明显高于 2:1 的 H_2:CO 比，并可以使用附加工艺将该合成气混合物“移向”更接近大约 2:1 的传统 H_2:CO 比。

[0068] 或者，可以使用变换催化剂（如 Fe 基催化剂）。尽管变换催化剂的产物分布和总生产率有时被认为不如非变换体系，但基于变换催化剂的系统可具有能够使用更宽范围的合成气混合物（具有更宽范围的 H_2:CO 比）的显著优点。传统上，变换催化剂主要用于适应具有通常大约 0.7 至大约 1.5 的 H_2:CO 比的煤源合成气。相反，本文所用的合成气混合物可含有过量 H_2，还可含有大 CO_2 百分比。包含变换催化剂的系统可以有利地“反向变换”这些混合物，使 H_2 与 CO_2 反应产生用于费托反应器的额外 CO，在一些实施方案中不需要将反应物预变换至大致 2:1 H_2:CO 比。

[0069] 在分布式处理环境中，费托工艺可以在大约 150℃至大约 330℃（大约 302 至大约 626 ℉）的温度范围内和在大约 100kPaa 至大约 10MPaa（大约 1bara 至大约 100bara）的压力下运行。修改费托工艺的反应条件可提供对反应产物的收率和组成的控制，包括对反应产物的链长的至少一定控制。典型反应产物可包括链烷（主要反应产物）以及含氧物、烯烃、类似于烃但可能含有一个或多个不同于碳或氢的杂原子的其它烃质化合物和 / 或各种附加反应副产物和 / 或未反应的进料组分的一种或多种。这些附加反应产物和进料组分，当存在时，可包括 H_2O、未反应的合成气 (CO 和 / 或 H_2)、CO_2 和 N_2 的一种或多种。附加地或作为选择地，这些附加反应产物和未反应的进料组分可形成尾气，其可以与费托工艺的主要反应产物分离。当费托工艺的目标是合成较长链的分子，如适合用作石脑油进料、柴油进料和 / 或其它馏出沸程分子的化合物时，一些小 (C1 - C4) 链烷、烯烃、含氧物和 / 或其它烃质化合物可能并入尾气中。来自费托合成的主要产物可以直接使用，和 / 或可进行进一步加工。例如，用于形成馏出沸程分子的费托合成工艺可生成一个或多个产物料流，其可随后脱蜡和 / 或加氢裂化以生成具有所需链长、粘度和冷流性质的最终产物。

[0070] 在典型运行条件下，MCFC 阳极排气的代表性气体组成可具有可以为大约 2.5:1 至大约 10:1 并在大多数实施方案中可以在大约 3:1 至大约 5:1 范围内的 H_2:CO 比。这种阳极排气组合物还可含有显著量的水和 CO_2。

[0071] 集成的 MCFC-FT 系统可允许可有利使用的几个备选配置的任何一个或多个，免除传统费托法的典型工艺。在与传统配置具有一些相似性的方面中，可以将来自阳极排气的合成气移向更接近 2:1 H_2:CO 比（例如大约 2.5:1 至大约 1.5:1，大约 1.7:1 至大约 2.3:1，大约 1.9:1 至大约 2.1:1，大约 2.1:1 至大约 2.5:1，或大约 2.3:1 至大约 1.9:1）并可以除去大多数（至少一半）的 CO_2 和 H_2O。或者，在另一配置中，来自阳极排气的合成气可以在没有任何组成变化的情况下原样使用，但可将温度和压力简单调节到适当的费托催化剂条件。在再一配置中，来自阳极排气的合成气可以在没有（水煤气）变换的情况下使用，但可以冷却和基本除去水，以产生包含 H_2、CO 和 CO_2 及少量（通常 <5%）其它气体的合成气。在又一配置中，可任选除去水，然后可以使来自阳极排气的合成气在水煤气变换反应器中反应以“反转”该变换过程，由此将更多 CO_2 转化成 CO 并再平衡 H_2:CO 比以更接近大约 2:1（例如大约 2.5:1 至大约 1.5:1，大约 1.7:1 至大约 2.3:1，大约 1.9:1 至大约 2.1:1，大约 2.1:1 至大约 2.5:1，或大约 2.3:1 至大约 1.9:1）。在另一配置中，在该变换过程之后或之前可以分离一些 CO_2 以提供用于碳捕集的 CO_2 和 / 或降低来自阳极排气的合成气中的 CO_2 稀释。

[0072] 在传统费托工艺中，含有未反应的合成气的尾气，与甲烷和其它 C1-C4 气体一起，可代表未使用的反应物和低价值产物。对于极大规模的装置，这些轻质气体可能需要额外加工（例如将 C2 和 C3 分子裂化成用于塑料的烯烃、回收液化丙烷气或丁烷，等）。可以

将未转化的合成气和甲烷再循环到费托合成反应器，这代表效率损失和反应器吞吐量的损失。在分布式系统环境中，一些或所有未转化成产物液体的轻质气体可以更有利地用作燃料电池阳极的进料和 / 或可以更有利地用于向燃料电池阴极提供 CO_2源。

[0073] 在用于分布式环境中的 MCFC-FT 系统的工艺流的一个实例中，来自 MCFC 的阳极排气可以在降低的或最小量的加工后用作费托反应系统的进料。如果费托催化剂是变换催化剂，可以将阳极排气压缩到适合费托反应的压力。压缩工艺可能碰巧和 / 或有意导致一定程度的水分离 / 脱除。如果费托催化剂是非变换催化剂，可以进行附加的反向水煤气变换反应，通常在压缩前，以调节阳极排气中的合成气 H_2:CO 比。任选地，除了或代替反向水煤气变换反应，可以使用透氢膜、其它透气膜或其它分离技术以作为调节阳极排气中的 H_2:CO 比的一部分分离出（高纯）H_2料流。在其它方面，可避免阳极排气的附加分离和 / 或改性，以使阳极排气可在最低加工下用于费托系统。由于该阳极排气可具有显著 CO_2含量，减少或最小化在使用一部分阳极排气作为费托工艺的进料前的分离和 / 或改性数可产生也可含有显著 CO_2含量的费托输入料流。例如，费托输入料流中的 CO_2浓度（如以体积％计）可以为阳极排气中的浓度的至少大约 60％，或至少大约 65％，或至少大约 70％，或至少大约 75％，或至少大约 80％，或至少大约 85％，或至少大约 90％。由于来自 MCFC 的阳极排气的 CO_2含量以及费托系统独立生成大量 CO_2的倾向，在费托产物流出物中可存在相当显著的 CO_2浓度。这种 CO_2可以至少部分与费托系统的其它产物分离以供封存 / 捕集、进一步加工和 / 或用于一个或多个其它工艺。

[0074] 图 8 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池（如熔融碳酸盐燃料电池阵列）与用于实施费托合成的反应系统的集成的一个实例。图 8 中的配置适用于小规模或其它分布式环境设置。在图 8 中，熔融碳酸盐燃料电池 810 示意性代表一个或多个燃料电池（如燃料电池堆或燃料电池阵列）以及该燃料电池的相关重整阶段。燃料电池 810 可接收阳极输入料流 805，如可重整燃料料流和含 CO_2的阴极输入料流 809。阳极输出 815 可经过任选的反向水煤气变换阶段 840。例如，如果费托反应阶段 830 包括变换催化剂，可以省略水煤气变换阶段 840。然后可以将任选变换的阳极排气 845 送入压缩机以实现费托反应阶段 830 所需的输入压力。任选地，可以在压缩 860 之前、之中和 / 或之后除去 864 该任选变换的阳极排气 845 中存在的一部分水。费托反应阶段 830 可产生费托产物 835，其可以直接使用或可经过进一步处理，如附加加氢处理。费托反应阶段 830 还可生成尾气 737，其可再循环用作用于燃料电池 810 的阴极部分的再循环燃料 845。在再循环之前，可以从该尾气中分离尾气 837 中存在的至少一部分 862CO_2。或者，可以在将费托产物 835 与尾气 837 分离之前、之中和 / 或之后进行 CO_2的分离。

[0075] 实例 1 - MCFC 与小规模 FT 加工系统的集成

[0076] 这一实例描述与 MCFC 的运行集成的小规模费托工艺的运行以提供用于费托工艺的合成气进料。这一实例中的费托工艺可生成每天大约 6000 桶的费托液体产物。这一实例中的用于将 MCFC 与费托工艺集成的配置是对图 8 中所示的配置的一种变型。因此，在这一实例中，可以在将阳极排气引入费托工艺之前对阳极排气进行降低量或最小量的分离或改性。在这一实例中，显示从费托尾气中分离 CO_2以供捕集的情况和不进行捕集的情况的模拟结果。在这一实例中，阳极进料包含新鲜甲烷，如来自小的本地资源的甲烷。阴极进料在这一实例中基于利用该尾气的燃烧形成阴极进料，任选在分离 CO_2以供封存后。但是，可

以由任何方便的来源提供阴极进料。

[0077] 图9显示来自在几组不同条件下进行的模拟的结果。在图9中，前两列显示在费托反应中使用Co基（非变换）催化剂的模拟结果，而第三和第四列显示使用Fe基（变换）催化剂的结果。对于Co基催化剂，对阳极输出料流进行附加的“反向”水煤气变换以将H_2:CO比降至接近所需2:1比率的值。当使用Fe基催化剂时，在将该部分的阳极输出料流引入费托系统之前，不对该阳极输出进行这种附加的变换反应。第一和第三列显示来自无CO_2捕集的系统的模拟结果，而第二和第四列显示来自从费托尾气中分离CO_2以供封存的系统的模拟结果。对第二和第四列选择相当的CO_2脱除量，同时仍在阴极中提供足够的CO_2以保持阴极排气中至少～1% CO_2含量。在所有这些模拟中，阳极中的燃料利用率为大约35％。大约40％的甲烷在燃料电池中重整，其余甲烷在更早的集成重整阶段中重整。阳极进料中的汽碳比为大约2。与来自蒸汽轮机的动力对应的行代表通过从阴极排气中回收热生成的额外动力。

[0078] 不同于蒸汽重整器，MCFC可生成电力，同时也重整燃料和辅助从阴极输入料流中分离CO_2。因此，甚至对于小规模费托系统，该集成MCFC-FT系统也可提供相对于输入的碳量合理的净效率。如图9中所示，相对于用于加热该系统和燃料电池阳极的燃烧器的净碳输入，费托液体的总装置生产效率为大约60％至大约70％，如至少大约63％。总装置效率代表相对于总输入，基于该装置的总电和化学（费托液体产物）输出的效率。

[0079] 实例2－MCFC与FT加工系统的集成

[0080] 这一实例描述与MCFC的运行集成的费托工艺的运行以提供用于费托工艺的合成气进料。也通过使用来自燃气轮机的排气作为MCFC的阴极进料来将燃气轮机与这种工艺集成。用于将MCFC与费托工艺集成的配置是对图7中所示的配置的变型。在这一实例中，显示在输入费托工艺前从阳极排气中分离CO_2的第一配置和取而代之地从费托尾气中分离CO_2的第二配置的结果。这两种配置都使用非变换催化剂，因此在这两种模拟中都进行反向水煤气变换以调节H_2:CO比。在这一实例中，阳极进料包含新鲜甲烷。

[0081] 图10显示来自进行的模拟的结果。在图10中所示的模拟中，大约30％的燃料利用率用于燃料电池。就综合电力发生和费托产物生成而言的总效率为大约61％，这类似于来自实例1的模拟的效率。但是，在这一实例中总效率的大约40％相当于电力生成。

[0082] 与甲醇中间和最终产物的生产集成

[0083] 通常由合成气混合物，如包含CO、H_2和任选CO_2的混合物在高压和高温下制造甲醇。传统上，大多数甲醇厂可以使用天然气作为原料并可以通过常见方法，如蒸汽重整、自热重整或部分氧化生成合成气。大多数常见配置使用可产生相对较低的单程转化率并可以涉及显著再循环的催化剂，随之产生各种废气和吹扫料流(purge streams)。

[0084] 甲醇合成与熔融碳酸盐燃料电池的集成可以提供为更高效率和/或更低排放设计的新型配置。在甲醇合成过程中，一氧化碳和氢可以在催化剂上反应产生甲醇。市售甲醇合成催化剂可以是高选择性的，在最优化的反应条件下可实现大于99.8％的选择性。典型反应条件可包括大约5MPa至大约10MPa的压力和大约250℃至大约300℃的温度。关于用于甲醇合成的合成气输入，优选的H_2/CO比（大约2:1H_2:CO）不匹配通过蒸汽重整生成的典型比率。但是，促进由合成气形成甲醇的催化剂有时另外促进水煤气变换反应。因此，下列反应图式表明CO_2也可用于形成甲醇：

[0085] $2H_2+CO = >CH_3OH$

[0086] $3H_2+CO_2 = >CH_3OH+H_2O$

[0087] 对于甲醇合成反应，可通过模数值 M 表征合成气输入的组成：

[0088] $M = [H_2-CO_2]/[CO+CO_2]$

[0089] 接近 2 的模数值通常可适用于甲醇生产，如至少大约 1.7，或至少大约 1.8，或至少大约 1.9，和 / 或小于大约 2.3，或小于大约 2.2，或小于大约 2.1 的 M 值。由上述模数值方程可以注意到，除 H_2 与 CO 的比率外，合成气中的 CO/CO_2 比也会影响甲醇合成反应的反应速率。

[0090] 在运行过程中，作为能够发电的内部反应的一部分，熔融碳酸盐燃料电池可以将 CO_2 从燃料电池的阴极侧传送到阳极侧。因此，熔融碳酸盐燃料电池可以既提供电能形式的额外功率，又提供可调节以用作甲醇合成的合成气进料的阳极排气。该电力通常可用于以高效率向压缩机、泵和 / 或其它系统供能。在一些方面中，可以设定 MCFC 系统的总体尺寸以提供至少一部分（或可能全部）必需的现场电力或任选可以为电网生成额外电力。由于降低或将传输损耗减至最低，现场发电更有效。附加地或作为选择地，该电力可以容易作为 AC、DC 或两者的混合物提供，任选在许多电压和电流下。这可减轻或可能消除对变换器和 / 或会进一步降低电效率的其它电力电子装置的需求。再附加地或作为选择地，可以由输入燃料材料（可从中捕集 CO_2）生成 MCFC 电力，而非由不同的和场外电源发电。可以以可集成到合成气生产和各种吹扫料流或废气料流的加工中的方式生成这种电力。

[0091] 来自 MCFC 阳极的输出料流可含有相对较高浓度的 H_2、CO_2 和水，以及相对较低浓度的 CO。通过分离、（反向）水煤气变换反应和 / 或其它方便的机制的组合，可以调节阳极排气和 / 或衍生自 / 提取自阳极排气的料流的组成。该组成的调节可包括除去过量水和 / 或 CO_2、调节 H_2:CO 的比率、调节模数值 M 或其组合。例如，当总体燃料利用率为大约 30％至大约 50％时，典型的 MCFC 阳极输出可具有大约 4:1 的 H_2:CO 比。如果使阳极排气经过除去一部分 CO_2 的阶段（例如简单深冷分离），可以下调 CO_2 浓度直至“M”值更接近大约 2。作为一个益处，这种类型的方法可产生纯化 CO_2 料流，其可用于其它工艺和 / 或脱除以降低该装置的总体 CO_2 排放。

[0092] 各种配置和策略可用于将熔融碳酸盐燃料电池与甲醇合成集成。在一种配置中，可以利用 H_2O 和 / 或 CO_2 的分离和 / 或水煤气变换反应调节阳极排气的 M 值，和 / 或可以从阳极排气中提取一部分阳极排气，如气流，以更接近所需 M 值。附加地或作为选择地，可以提高 H_2 产量 / 使燃料电池的 H_2 产量最大化，例如通过降低燃料利用率，例如使得也可从阳极排气和 / 或从取出的合成气料流中分离额外的 H_2 料流。

[0093] 在典型的甲醇厂中，由于单程转化率低，大百分比的反应器排气可以在回收甲醇液体后再循环。对于具有高再循环量的大多数配置，该工艺（例如甲烷）中的惰性物累积会需要大量可以富含非反应性组分的吹扫料流。在最好的情况下，传统配置可能燃烧吹扫料流以供热集成，或更可能仅将吹扫料流排放到环境中。要指出，在这种类型的传统配置中，未并入甲醇中的碳通常被排放到环境中，可能造成高 CO_2 排放。

[0094] 图 11 示意性显示可以将 MCFC 与甲醇合成工艺集成的配置的一个实例。图 11 中所示的配置可以改进传统系统的一个或多个缺陷。例如，在一些配置中，除来自 MCFC 的电输出外，还可以将来自 MCFC 的热输出送入热回收蒸汽发生工艺 (HRSG) 以发电。附加地或

作为选择地，调节合成气的 M 值的工艺可产生富含 CO_2的分离产物，其可用于部分再循环到燃料电池阴极和 / 或可提纯成单独的纯度提高的 CO_2产物。

[0095] 在一些配置中，可以将来自甲醇合成反应的输出物分离成液体醇产物、再循环合成气料流和排出的吹扫气 (vented purge)。排出的吹扫气可含有合成气组分、燃料组分（例如甲烷）和惰性物。至少一部分排出的吹扫气可用作阳极和 / 或阴极进料组分。对于液体醇产物，通常将收集的液体产物送入分离系统，如蒸馏塔，在此可以取出纯化甲醇并可作为废物料流产生塔底产物（例如由更高级的醇构成）。在传统系统中，排出的吹扫气和 / 或废物料流可用于生成用于加热合成气生产的蒸汽。传统系统中的这种应用可以部分基于对料流再循环到甲醇合成工艺时可能的惰性物累积的担忧。相反，在各种方面中，甲醇合成工艺的任何副产物（如排出的吹扫气和 / 或更重的醇，例如含有两个或更多个碳）可以在 MCFC 系统中用于产生更多合成气和 / 或作为碳源（在燃烧后）以产生 CO_2，例如用于阴极。可以排出引入阴极的不可重整的惰性物（例如氮），同时可以将过量燃料分子转化成热和可以容易在阴极内利用的 CO_2。因此，MCFC 与甲醇合成工艺的集成可以改进来自甲醇合成的副产物料流的集成，因为 MCFC 可避免惰性物的过度累积，同时仍能利用燃料组分，以及能将 CO_2分离到更高浓度的输出料流，如阳极排气中。

[0096] 任选但优选地，熔融碳酸盐燃料电池与甲醇合成的集成可包括与涡轮机，如燃气轮机的集成。由于甲醇合成可获益于至少一些 CO_2（如 M 值所示），为燃料电池的阴极入口提供外部 CO_2源可提供额外益处。甲醇合成会需要大量电力，其中至少一部分（或可能全部）可由 MCFC 和 / 或燃气轮机提供。如果由 MCFC 提供电力，则至少一部分设备（泵和压缩机）可以用直流电运行。附加地或作为选择地，如果使用燃气轮机，则该燃气轮机可以生成蒸汽，并可以使用来自该涡轮机的蒸汽驱动压缩机和甲醇再循环。作为集成系统的一个实例，可通过甲烷重整（和 / 或通过另一可重整燃料的重整）生成阳极入口的输入料流。阴极入口的 CO_2可来自同处一地的涡轮机、来自从阳极排气中分离的 CO_2和 / 或来自另一来源。要指出，由燃气轮机之类的来源而非来自阳极排气的 CO_2再循环为阴极入口提供 CO_2可避免对加压 / 减压循环的需求。再附加地或作为选择地，可以使用热集成以使来自甲醇合成反应器的低量热可用于 MCFC 的前端，例如用于加湿。

[0097] 图 12 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池（如熔融碳酸盐燃料电池阵列）与用于实施甲醇合成的反应系统的集成的一个实例。在图 12 中，熔融碳酸盐燃料电池 1210 示意性代表一个或多个燃料电池（如燃料电池堆或燃料电池阵列）以及该燃料电池的相关重整阶段。然后可以使来自燃料电池 1210 的阳极输出 1215 经过一个或多个分离阶段 1220，其可以以如下文所述和如图 1 和 2 中进一步例示的任何所需顺序包括 CO_2、H_2O 和 / 或 H_2分离阶段以及水煤气变换反应阶段。分离阶段可产生一个或多个料流，相当于 CO_2输出料流 1222、H_2O 输出料流 1224 和 / 或 H_2输出料流 1226。要指出，在一些方面中，由于调节燃料电池运行参数以实现合成气输出中的所需 M 值，可能不存在 CO_2输出料流 1222 和 H_2输出料流 1226。分离阶段可产生适合用作甲醇合成阶段 1230 的进料的合成气输出 1225。甲醇合成阶段 1230 可产生甲醇产物 1235，其可以直接使用和 / 或可经过进一步加工，如用作进一步工艺的进料，如甲醇制烯烃和 / 或甲醇制汽油反应系统中的进料。任选地，来自分离阶段 1220 的 CO_2输出 1222 可用作燃料电池 1210 的阴极的至少一部分进料（未显示）。

[0098] 作为由阳极排气生产和 / 或提取合成气料流的一个实例，一方面，可以首先将来

自阳极的流出物或排气冷却，然后加压至 MeOH 合成压力，如大约 700psig（大约 4.8MPag）至大约 1400psig（大约 9.7MPag）的压力。在这样的压力下可以更容易分离 CO_2以实现合成气料流的所需 M 值，如通过深冷分离。附加地或作为选择地，如果 M 比率偏离所需值，可以调节 M 值，例如通过过量合成气经阳极输入回路再循环（吹扫）来调节 M 值。在一些情况中，CO_2可以累积在再循环回路中，这也可以再循环到（深冷）分离回路。

[0099] 图 11 显示包括 MCFC 和甲醇合成工艺的集成系统的另一实例。在图 11 中，作为一个实例，该配置可以适于用集成的 MCFC- 催化反应器系统将天然气 / 甲烷转化成甲醇。在这种类型的配置中，MCFC 可产生中间合成气，可将其送入用于甲醇生产的催化反应器。在典型的天然气制甲醇工艺中，可以在自热反应器 (ATR) 中通过甲烷蒸汽重整生成合成气。可以回收来自 ATR 的热以产生用于该工艺的其余部分的电和蒸汽。在 SRI Process Economics Program Report 49C on Methanol（参见 Apanel, George J., Methanol-Report No. 39C. SRI Consulting, 2000 年 3 月）中记载了三种商业工艺。来自该报告的两段法可用作甲醇合成工艺的代表性实例。这种两段法用作本文所述的模拟的比较基础。

[0100] 图 11 显示该集成工艺的图。可以将来自转化反应器的排出气体 1101 和重质 (C_{2+}) 醇副产物 1102 和一部分阴极排气 1103 送回 MCFC 阴极进料燃烧器 1190。可以燃烧空气 1104、甲烷 1105、排出气体 1101、醇副产物 1102 和阴极排气 1103 以产生热阴极进料 1106。通过预热阳极甲烷进料 1107，可以将阴极进料 1106 冷却到入口工作温度，然后送入阴极。可以将阳极（甲烷）进料 1107 和蒸汽 1108 送入阳极。MCFC 1130 可产生脱 CO_2的热阴极排气 1109 和可主要含有 $H_2/CO_2/CO$ 和水的热阳极排气 1110。可以在各种条件，包括具有降低的燃料利用率，如大约 50％或更低的燃料利用率的条件下运行 MCFC 1130。可以通过部分预热阳极甲烷和 / 或其它燃料进料 1107 来冷却阴极排气 1109，然后可以送往热回收蒸汽发生系统 (HRSG) 1162 以回收更多热和 / 或生成用于该工艺的蒸汽。可以将冷却的阴极排气 1124 分成可再循环到阴极进料燃烧器的料流 1103 和可排放到大气中和 / 或视需要进一步处理（未显示）的料流 1121。可以在 HRSG 1164 中回收 1121 中的余热。可以将阳极排气 1110 送往 HRSG，如 HRSG 1162。可以将冷却的阳极排气分流成或分隔成料流 1111 和 1112，将料流 1111 送入水煤气变换反应器 1140 以产生变换的分流 1113。可以将变换的分流 1113 与第二分流 1112 合并，并送往分离器 1150，在此可以将其脱水 1114 并分离成 M = 大约 2 的合成气料流 1115 和主要含有 CO_2的剩余料流 1116。可以将含 CO_2料流 1116 压缩并销售使用和 / 或送往封存设施。可以确定料流 1111 和 1112 之间的分流比以使合成气 1115 可以具有甲醇转化反应器进料所需的 M 值。可以将合成气 1115 与反应器再循环料流 1117 合并。可以将合并的料流压缩、加热并送入转化反应器 1170 以产生流出物 1118。流出物 1118 可以例如闪蒸以回收反应器再循环料流 1117 和产物料流 1119。可以从产物料流 1119 中回收甲醇 1123，同时也作为副产物生成排出气体 1101 和重质醇副产物（含有 2 个或更多碳）1102。

[0101] 可以确定 MCFC 工艺的规模以产生甲醇转化反应器所需的合成气进料。在此实例中提供的计算中，确定 MCFC 的规模以基于所选的代表性工艺产生用于每天～ 2500 吨 (tpd) 的甲醇转化反应器的合成气。基于使用质量和热平衡考量进行的计算，计算出该 MCFC 生产大约 176MW。关于工艺流的另一些细节显示在图 13 中，其显示图 11 配置内的流的组成。各列顶部的数字对应于图 11 中的标识符。由 MCFC 生成的一部分电力可用于合成气分离和压

缩，而其余部分可用于该工艺的其它部分和 / 或输出。另外，基于该计算，从 MCFC 阳极和阴极流出物料流中回收的热生成至少～ 3146tpd 的高压蒸汽，其足以满足该计算中建模的代表性甲醇合成工艺的蒸汽和加热需求。要指出，对于涉及 MCFC 的计算，在确定 MCFC 是否可以向合成工艺提供进料时不考虑与自热重整相关的任何设施 (utilities)。假设分离出的含 CO_2 料流 1116 可销售使用和 / 或封存，则图 11 中所示的集成工艺可提供与传统工艺相比具有降低的 CO_2 排放的由天然气（甲烷）生产甲醇的方法。表 B 显示所选的文献对比配置排放出的 CO_2 计算量，以及基于图 11 中配置计算出的降低的 CO_2 排放。对于表 A 中的基础情况计算，假设来自自热重整器的排气和来自天然气锅炉的废气是最大的排放源。

[0102] 表 B

[0103]

	kg CO_2/生产的 kg MeOH
两段法（基础情况）	0.318
MCFC + 两段法转化反应器	0.025

[0104] 要指出，在甲醇合成工艺的过程中可生成一些二甲醚 (DME) 和丁醇 (C_4H_9OH)。二甲醚可以是可用甲醇合成工艺中生成的甲醇制造的后续产品的一个实例。更通常，甲醇可用于生成各种附加产品，如二甲醚、烯烃、燃料如石脑油和 / 或柴油、芳族化合物和其它工业上有用的产品及其组合。附加地或作为选择地，MCFC 可以集成到将甲醇合成装置的输出物送入用于生产另一产品的附加反应系统的合成工艺中。如上文对与甲醇合成工艺的集成所述，这样的集成可包括提供合成气输入、为该系统供电、处理价值较低的输出料流和 / 或分离出具有提高的 CO_2 浓度的料流。

[0105] 与含氮中间和最终产物的生产集成

[0106] 通常由 H_2 和 N_2 通过 Haber-Bosch 工艺在升高的温度和压力下制造氨。传统上，进料可以是 a) 可由通常需要蒸汽甲烷重整、水煤气变换、除水和痕量碳氧化物经甲烷化转化成甲烷的多步工艺制成的纯化 H_2；和 b) 可由空气通过变压吸附生成的纯化 N_2。该工艺可以是复杂和能量密集的，且该工艺设备可极大获益于规模经济。使用熔融碳酸盐燃料电池的氨合成工艺可提供相对于传统工艺的一个或多个优点，包括但不限于额外发电、降低的复杂性和 / 或更好的可扩展性。附加地或作为选择地，使用熔融碳酸盐燃料电池的氨合成工艺可提供降低 CO_2 产量和 / 或生成用于其它工艺的 CO_2 的机制。

[0107] 在各种方面中，该 MCFC 系统可生成合成气作为输出。该合成气可以基本不含任何需要脱除的杂质，如硫，且该合成气可提供用于氨合成的 H_2 源。阳极排气可以首先在水煤气变换反应器中反应以使 H_2 相对于 CO 的量最大化。水煤气变换是公知反应并通常可以在“高”温（大约 300℃至大约 500℃）和“低”温（大约 100℃至大约 300℃）下用产生较快反应速率但具有较高出口 CO 含量的较高温催化剂进行，接着使用低温反应器以进一步将合成气变换至更高的 H_2 浓度。此后，该气体可通过一个或多个工艺分离以纯化 H_2。这可涉及例如水的冷凝、CO_2 的脱除、H_2 的提纯，然后在升高的压力（通常大约 15barg 至大约 30barg，或大约 1.5MPag 至大约 3MPag）下的最终甲烷化步骤以确保可清除尽可能多的碳氧

化物。在传统的氨工艺中，在H_2料流的提纯过程中生成的水、CO_2和甲烷料流以及来自氨合成工艺的附加废气可代表极低价值的废物料流。相反，在一些方面中，各种“废”气可构成可用于该 MCFC- 氨系统的其它部分的料流，同时仍可能生成可用于其它工艺的其它料流。最后，可以将该H_2料流压缩到大约 60barg（大约 6MPag）至大约 180barg（大约 18MPag）的氨合成条件。典型的氨工艺可以在大约 350℃至大约 500℃下，如在大约 450℃或更低温度下进行，并可产生低的单程转化率（通常小于大约 20％）和大的再循环料流。

[0108] 作为熔融碳酸盐燃料电池与氨合成的集成的一个实例，送往阳极入口的燃料料流可相当于可重整燃料和 / 或H_2的新鲜来源以及（任选但优选）来自氨合成工艺的再循环废气，其可含有H_2、CH_4（或其它可重整烃）和 / 或 CO。由于大的再循环比和稀释剂（例如：通过甲烷化以除去所有二氧化碳而制成的甲烷）的存在，氨加工可产生大量的吹扫 (purge) 料流和废物料流。这些料流大多与燃料电池阳极入口相容，只要它们不含反应性氧化剂，如氧气。附加地或作为选择地，阳极入口可包含来自氢气提纯的分离气体，因为这些气体通常可含有包含H_2、CO、CO_2、H_2O 和可能与阳极相容的其它气体的混合物。阳极排气然后可利用水煤气变换反应和H_2分离加工以形成高纯H_2料流。至少一部分这样的H_2料流然后可用作氨合成工艺的进料。任选地，除对高纯H_2料流实施分离外，该H_2料流在用于氨合成前可经过甲烷化。所述一个或多个分离和 / 或提纯的目标可以是提高该H_2料流的纯度，以使至少一部分具有提高的纯度的H_2料流可用作氨合成的进料。

[0109] 对于阴极入口料流，CO_2和O_2可以由任何方便的来源提供，如同处一地的外部CO_2源（例如燃气轮机和 / 或锅炉排气料流）、从阳极排气中分离的再循环CO_2、从阴极排气中再循环的CO_2和 / 或O_2、作为氢气提纯的一部分分离的含碳料流和 / 或从氨合成装置的输出物中分离的CO_2。通常，可以有利地使用这些料流的混合物，并且料流中的任何残余燃料值可用于例如供热以将阴极入口料流温度提高到 MCFC 入口温度。例如，来自分离和 / 或氨工艺的废气形式的燃料料流可以与足够的氧化剂（空气）混合以燃烧基本所有残余燃料组分，同时也提供足够的氧以与阴极中的CO_2反应形成碳酸根离子。阴极排气料流可具有降低的CO_2和O_2浓度，因为这些气体可以反应形成可传输到阳极料流中的碳酸盐。由于 MCFC 可降低阴极入口料流的CO_2和O_2含量，阴极排气可具有折干计算时与空气相比提高的氮含量。对于设计成有效分离CO_2的系统，阴极排气可具有低于大约 10％或低于大约 5％或低于大约 1％的折干计算的CO_2浓度。附加地或作为选择地，折干计算的氧含量可低于大约 15％或低于大约 10％或低于大约 5％。折干计算的N_2浓度通常可超过大约 80％或大约 85％或可大于大约 90％。在捕集这种料流的热值（如通过蒸汽发生供热、与其它工艺料流热交换和 / 或额外电力），该阴极排气可任选但有利地用于形成用于氨合成的高纯N_2料流。可以更有效地对这种料流进行用于生成纯氮的任何典型分离方法。任选地，可以对该N_2料流进行一个或多个分离工艺或提纯工艺以生成具有提高的纯度的N_2料流。至少一部分该具有提高的纯度的N_2然后可任选但有利地用作氨合成的进料。在运行过程中，可以运行该燃料电池以匹配氨合成的需求，如所选的更低或更高的发电量（相对于氢气（和 / 或合成气）产量）。

[0110] 相对于传统系统（如美国专利 5,169,717 中所述），上述集成方法可以降低或消除对用于生成纯化的H_2和N_2输入料流的单独前端系统的需要。例如，代替专用的蒸汽重整器和随后的净化阶段，可以运行 MCFC 以在生成电力的同时重整足量的可重整燃料以提供纯

化 H_2。这通常可通过在比典型值低的燃料利用率下运行该燃料电池进行。例如，燃料利用率可低于大约 70％，如低于大约 60％或低于大约 50％或低于大约 40％。在传统 MCFC 运行中，大约 70-80％的燃料利用率是典型的，并且阳极产生的剩余合成气可用作燃料以加热输入阴极和 / 或阳极的料流。在传统运行中，也必须使用阳极排气料流在其与空气反应后向阴极提供 CO_2。相反，在一些方面中，不必将来自阳极排气的合成气用于简单燃烧和再循环。该氨合成工艺可提供许多可利用的废物或吹扫料流，以使可用于氨合成的合成气的量最大化。类似地，如上所述，来自 MCFC 的阴极排气可提供用于形成纯化 N_2料流的更高纯度的初始料流。将用于氨合成的输入料流的生成集中在 MCFC 和相关分离阶段中可降低设备占用空间以及提供用于各种工艺的改进的热集成。

[0111] 尿素是可通过氨与 CO_2的反应制成的另一大型化学产品。1922 年开发的基础工艺也以其发现者的名字命名为 Bosch - Meiser 尿素工艺。各种尿素工艺可通过尿素形成的进行条件和未转化的反应物的进一步加工方式表征。在反应物不完全转化的情况下，该工艺可以由两个主要的平衡反应构成。该反应的净热平衡可以是放热的。第一平衡反应可以是液氨与干冰（固体 CO_2）的放热反应以形成氨基甲酸铵（$H_2N\text{-}COONH_4$）：

[0112]

$$2\,NH_3 + CO_2 \rightleftharpoons H_2N\text{-}COONH_4$$

[0113] 第二平衡反应可以是氨基甲酸铵吸热分解成尿素和水：

[0114]

$$H_2N\text{-}COONH_4 \rightleftharpoons (NH_2)_2CO + H_2O$$

[0115] 该尿素工艺可以使用在高压下的液氨和 CO_2作为工艺输入。在现有技术的方法中，通常由外部资源提供二氧化碳，其中必须将其压缩至高压。相反，如图 6 中所示的本方法可产生适合与来自氨合成反应的液氨产物反应的高压液化二氧化碳料流。

[0116] 在各种方面中，可通过在不需要大量单独系统的同时提供来自 MCFC 的一个或多个输入（例如电、热、CO_2、NH_3、H_2O）和 / 或接收来自 MCFC 的一个或多个输出（例如 H_2O、热）来改进尿素生产。另外，对于涉及显著产物移除和再循环的大多数平衡工艺，可生成吹扫料流或废物料流。这些吹扫料流或废物料流可源自再循环回路内的副反应和杂质积聚。在典型的独立装置中，这些料流通常具有低价值，并可能需要进一步提纯（借助附加工艺和设备）以再循环。相反，在各种方面中，可以有利地和以简单得多的方式利用该吹扫料流或废物料流。阳极入口可消耗任何可重整燃料和 / 或合成气组合物。用可燃烧的材料，例如氮化合物如氨稀释的料流可以与空气反应产生 N_2、水和热，其可以与含有残余 CO_2、CO 和 H_2的任何料流一起用作阴极进料的一部分。由于 MCFC 系统通常在低压（低于大约 10barg 或大约 1MPag 和通常近大气压条件）下运行，再压缩任何吹扫料流或废物料流的需要可以降低或最小化，因为这些工艺料流的压力足够用于 MCFC 用途。

[0117] 另外，可以将尿素工艺集成到与氨合成工艺的联合系统中。这种集成方法可以减少和 / 或消除传统方法中的许多工艺，传统方法需要氨装置（蒸汽重整器、水煤气变换、变压吸附产生 H_2+ 空气分离装置）以及单独供应通常远程制成并随后输往该装置的冷 CO_2（干冰）。本系统可以消除许多这些工艺，并因为其可以分离在高压下的 CO_2料流，可提供在有利条件下的必要反应物。具体而言，可以由衍生自 MCFC 阳极排气的料流的分离提供液化形

式的二氧化碳，而非输送干冰形式的 CO_2 以用于远端尿素装置，因此容易压缩到适当反应压力。这可避免 CO_2 的冷却、运输和再压缩中的显著能量浪费 (inefficiencies)。

[0118] 如上所述，MCFC 可以与用于制氨的氨装置集成，同时减少附加设备量或使附加设备量最小化。附加地或作为选择地，可以对来自 MCFC 系统的阳极排气进行分离以提供 CO_2 源。这种 CO_2 源然后可以进一步分离和 / 或提纯以使至少一部分 CO_2 可用于尿素合成工艺。例如，可以使用包含低温分离的工艺进行 CO_2 分离。这可以降低或消除对单独生产和 / 或运输冷 CO_2 的需求。再附加地或作为选择地，该 MCFC 系统可提供电力和 / 或可通过与 MCFC 输入 / 输出料流热交换和 / 或通过与分离系统热交换而提供或消耗热。

[0119] 图 16 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池（如熔融碳酸盐燃料电池阵列）与用于实施氨合成和 / 或尿素合成的反应系统的集成的一个实例。在图 16 中，熔融碳酸盐燃料电池 1610 可以示意性代表一个或多个燃料电池（如燃料电池堆或燃料电池阵列）以及该燃料电池的相关重整阶段。燃料电池 1610 可接收阳极输入料流 1605，如可重整燃料料流和含 CO_2 的阴极输入料流 1609。在图 16 中，阳极输入料流 1605 可包括由氨合成工艺 1640 产生的废气的任选再循环部分 1647。在图 16 中，阴极输入料流 1609 可包括在分离阶段 1620 中从燃料电池 1610 的阳极和 / 或阴极输出中分离的 CO_2 的任选再循环部分 1629。来自燃料电池 1610 的阳极输出 1615 然后可经过一个或多个分离阶段 1620，其可以以如下文所述和如图 1 和 2 中进一步例示的任何所需顺序包括 CO_2、H_2O 和 / 或 H_2 分离阶段，任选以及水煤气变换反应阶段。分离阶段可产生一个或多个料流，相当于 CO_2 输出料流 1622、H_2O 输出料流 1624 和高纯 H_2 输出料流 1626。该分离阶段还可产生任选合成气输出 1625。可以将阴极输出 816 送入一个或多个分离阶段 1620。通常，用于阴极输出的分离阶段可以不同于用于阳极输出的分离阶段，但可任选如图 16 中所示合并由该分离产生的料流。例如，可以从阴极输出 1616 中分离 CO_2 并添加到一个或多个 CO_2 输出料流 1622 中。从阴极输出 1616 中分离的最大产物可以是高纯 N_2 料流 1641。高纯 H_2 输出料流 626 和高纯 N_2 料流 1641 可用作氨合成阶段 1640 的反应物以生成氨输出料流 1645。任选地，一部分氨输出料流可以与来自分离阶段 620 的 CO_2 料流 622 一起用作尿素生产 1650 的进料 1651，以生成尿素输出 1655。任选地，用于尿素生产 1650 的输入氨料流 1651 可来自不同来源。任选地，可从该配置中省去氨生产阶段 1640 或尿素生产阶段 1650。

[0120] 与通过发酵生产生物燃料和化学品集成

[0121] 通常可以通过源自作物如玉米、糖或木质纤维素材料如能源草的碳水化合物的发酵工艺生产生物燃料或生物化学品。这种工艺的最常见实例包括乙醇制造，如由玉米制造。这种工艺通常需要输入热（用于蒸馏）、电（用于一般的装置运行）和水（用于加工原材料、清洁和其它工艺），并可产生 - 除标准产物外 -CO_2。可通过发酵反应产生 CO_2，其中可以将糖 ($C_6H_{12}O_6$) 转化成 $2C_2H_5OH$（乙醇）$+2CO_2$。发酵成其它产物，如丁醇、更高级的醇、其它含氧物等可产生类似产物并需要类似的输入。装置的温室气体排放和总体经济性都可受生产和 / 或提供这些输入和输出的效率影响。碳水化合物或糖的其它来源可经过类似工艺以产生所需生物产品并可导致原始碳水化合物在一定程度上转化成糖。

[0122] 在各种方面中，MCFC 系统，如使用天然气作为可重整燃料的 MCFC 系统与乙醇制造的组合可提供各种优点。这可部分归因于 MCFC 系统可以在消耗来自乙醇厂的 CO_2 输出的同时提供基本所有的所需输入的事实。这可降低温室气体排放，降低水需求和 / 或提高总

体效率。

[0123] 乙醇厂可使用来自MCFC的电力驱动操作和使用来自MCFC的余热向蒸馏之类的工艺供热。可通过调节MCFC装置的总体燃料利用率，如通过产生额外氢气/合成气作为相对于电输出提供更多或更少热的媒介来管理该装置的确切要求（热电混合）。作为选择地或附加地，可以调节供给MCFC的燃料源以在给定的装置配置和给定的进料组下平衡输入和输出，如通过使用一些发酵产物作为阳极进料，和/或通过使用来自相关进料，如不可发酵生物质的热和/或产物作为进料。该电化学工艺通常可利用碳酸根离子与氢的反应产生水；可以从阳极出口冷凝所述水。可以在过量合成气的生产中产生额外的水，例如通过水煤气变换反应。该水然后可用作该装置中的工艺用水，因为其往往非常纯净并相当不含杂质。示例性的水用途包括但不限于干磨工艺，其中可以将水添加到已磨碎的玉米中，和/或湿磨工艺，其中可以将玉米浸泡在酸和水的溶液中。发酵CO_2输出可用作阴极进料，并且如果需要，可以通过阳极出口CO_2再循环和/或通过新鲜燃料（甲烷和/或天然气）的燃烧（生成额外的热）补充。由于乙醇厂中的所有热工艺可通常在相对较低温度（例如蒸馏<100℃）下，可以有效消耗MCFC系统的几乎所有废热。

[0124] 根据具体装置配置和原料，一组不同配置可用于MCFC输入和输出。对于一些配置，该工艺可以使用与水混合的乙醇产物作为阳极输入燃料，并因此可避免或降低所需天然气的量。发酵中制成的乙醇可以部分蒸馏、分离或提取，例如至大约$1H_2O$:1EtOH至大约4:1，如大约1.5:1至大约3:1，或大约2:1的摩尔比。这种混合物随后可以在燃料电池内和/或外用热重整以产生包含氢气的混合物，其随后可输入阳极。尽管可能降低乙醇的总体装置输出，但可以减少或消除来自该工艺的非生物基进料的量，以造成较低的生命周期CO_2排放。

[0125] 对于一些配置，燃烧木质素来源，如玉米秸秆、木材和/或甘蔗渣可补充和/或替代传统烃燃料如甲烷的输入。这可以使该装置在能量上自给自足并可降低集成到可能引起生命周期排放债务(emissions debits)的供给链上的需要。对于这些配置，木质素来源可产生热，并且如果部分氧化成包含合成气的气体混合物，该合成气可用作MCFC系统的进料。木质素来源可以燃烧和用于提供一些电力（通过蒸汽发生和蒸汽轮机），而来自该工艺的排气可以提供MCFC系统的CO_2进料。

[0126] 对于一些配置，阴极入口的输入CO_2可衍生自从阳极输出合成气混合物中分离CO_2。可以在该料流用于产生用于各种工艺（包括通过蒸汽发生的额外发电）的热之前或之后，和/或在该料流用于向一工艺供氢和/或供热之前或之后进行这种分离。通常，可以在希望捕集CO_2时使用这种类型的方法。例如，可以将阳极输出物送往CO_2分离阶段，在此可以捕集大部分CO_2并且在此剩余合成气可随后用于热、电和/或化学工艺。然后可以将来自这些工艺的输出物与可能添加的甲烷和/或氧化剂（空气）一起送回阴极，以向阴极入口提供适当的温度和气体组成。

[0127] 或者，对于可能不需要CO_2捕集的一些配置，来自发酵系统的CO_2输出可以在与氧化剂（空气）混合并升高至适当的入口温度时用作阴极的至少一部分（即使不是全部）CO_2源。对于这些配置，该阳极输出可用于热、电和/或化学用途，且含有燃烧的合成气的所得最终料流可以排出和/或作为进料部分送回阴极入口。根据装置配置和对CO_2排放的要求，这些配置的任一配置或组合可能合意。例如，来自发酵的一些CO_2可以与用于各种热、电和

/或化学工艺后的剩余合成气料流合并，并可以使合并的料流与氧化剂（空气）反应以向阴极供氧和提高阴极入口料流的温度。

[0128] 来自MCFC的阳极出口料流可用于各种不同工艺。在一个配置中，这种料流可用于为蒸馏供热并可能涉及阳极出口中的剩余合成气的燃烧以生成用于蒸馏工艺的额外的热。对于这种配置，可以将氧化剂（空气）添加到出口料流中，并且该料流的显热和燃烧热通常可用于生成随后可用于为蒸馏供能的蒸汽。任选地，来自这一工艺的排气，在添加或不添加发酵工艺的情况下，可以在任选分离一部分CO_2之前和/或之后用作阴极进料。

[0129] 对于一些配置，阳极出口气体可以在不进一步加工的情况下、在变换反应后和/或在分离一部分CO_2后用作氢气源。该氢气可用于各种工艺。这些工艺可包括但不限于，通过在氢气轮机中燃烧而生产额外的、基本无碳的电力。附加地或作为选择地，该氢气可用于化学工艺，如处理其它生物燃料产品。例如，不适合发酵的木质纤维素材料（例如玉米秸秆和/或甘蔗渣）可经过热化学工艺，如热解以产生不适用于燃料的不稳定的高氧产物。可以使用各种工艺，如热解、快速热解和/或加氢热解，其中任何/所有工艺可用或不用催化剂实现。这些产物通常可含有残氧，这可降低产物热值并通常可极大降低它们在储存、运输和使用中的稳定性。这些类型的产物可以有利地用氢气处理以产生燃料相容的调和原料（热解油），其可任选与发酵产物掺合以提高生物燃料的总产量。

[0130] 氢气的另一用途可以是在生物柴油材料的联产中。通常，可以使用淀粉源（例如玉米、糖）制造用于汽油燃料的乙醇，而其它富含“油”（例如三酰基甘油酯）的作物，如大豆或棕榈可用于生产本身和/或在改质后可能适用于柴油燃料和/或喷气发动机燃料的更长链分子。其它可再生资源可含有本身和/或在改质后可能适用于润滑剂和/或更重质燃料如锅炉/船用燃料和/或家用燃料油的甚至更长链分子。这些材料通常需要一些涉及氢气的处理，尤其是在所需产物基本无氧时，例如在加氢处理的植物油而非脂肪酸甲酯(FAME)产物的情况下。生物燃料产品和作物可以基本同处一地，氢气的可供性可能有助于各种加工方案。

[0131] 在一些方面中，集成MCFC和发酵系统的目标可以是降低或最小化来自发酵厂的总CO_2产量。在这种系统的一个实例中，生物质进料可进入发酵厂并经过任选工艺以制备用于发酵的材料（例如研磨、水处理）。用于该工艺的电能和水可以至少部分（即使不是全部）由燃料电池输出提供。该发酵工艺可产生生物燃料以及副产物（例如蒸馏厂干粕(distiller’s dry grains)）和包含相对高量CO_2的气流。与适量的水混合的来自发酵厂的生物燃料产物可用作MCFC的阳极输入燃料。根据方面，生物燃料产品可相当于至少一部分发酵产物、至少一部分生物气或衍生自发酵的残余产物或副产物的其它燃料、或其组合。来自MCFC阳极出口的合成气可以燃烧以向所有装置工艺，包括蒸馏提供至少一些（即使不是需要的全部）热。阳极出口产物可以在CO_2分离过程之前和/或之后使用。或者，可以将阳极输出物分流，以使一些阳极出口料流可用于为发酵装置工艺提供至少一些热，而第二料流可用于为不同用途供热，如用于预热阴极输入料流。一些生成的含CO_2的料流可以与空气合并并用作阴极入口料流。该整体工艺可以有利地不使用外部能源并通常可排放仅源自生物过程的CO_2。或者，可以在各种点的任何一个或多个点，如在阳极后和/或在合并所有CO_2料流后添加CO_2分离方案。这一阶段可提供基本纯的CO_2输出料流以用于封存和/或用于一些其它用途。在这种配置中，总装置CO_2排放在生命周期基础上可以是负数（生

成小于 0 的净 CO_2)，因为可以除去生物衍生的 CO_2以供封存并具有按比例更少的（完全没有）外部碳基燃料输入。

[0132] 图 15 示意性显示熔融碳酸盐燃料电池（如熔融碳酸盐燃料电池阵列）与用于实施醇合成，如乙醇合成的反应系统的集成的一个实例。在图 15 中，熔融碳酸盐燃料电池 1510 示意性代表一个或多个燃料电池（如燃料电池堆或燃料电池阵列）以及该燃料电池的相关重整阶段。燃料电池 1510 可接收阳极输入料流 1505，如可重整燃料料流和含 CO_2的阴极输入料流 1509。任选地，阳极输入料流可包括来自另一来源 1545 的燃料，如由木质素和 / 或玉米秸秆通过燃烧和随后甲烷化生成的甲烷。任选地，阴极输入料流 1509 可包括衍生自在发酵制造乙醇（或另一发酵产物）的过程中生成的 CO_2的另一含 CO_2的料流 1539。来自燃料电池 1510 的阴极输出未显示在图 15 中。来自燃料电池 1510 的阳极输出 1515 然后可经过一个或多个分离阶段 1520，其可以以如下文所述和如图 1 和 2 中进一步例示的任何所需顺序包括一个或多个 CO_2、H_2O 和 / 或 H_2分离阶段和 / 或一个或多个水煤气变换反应阶段。分离阶段可产生一个或多个料流，相当于 CO_2输出料流 1522、H_2O 输出料流 1524 和 / 或 H_2（和 / 或合成气）输出料流 1526。该 H_2和 / 或合成气输出料流（统称为 1526）当存在时，可用于例如向通过乙醇加工装置 1560 蒸馏乙醇提供燃料。H_2O 输出料流 1524 当存在时，可以向乙醇加工装置供水。附加地或作为选择地，MCFC 1510 可生成供乙醇加工装置 1560 使用的电力 1502。乙醇加工装置 1560 可生成乙醇（和 / 或其它醇）输出 1565，其优选可以至少部分蒸馏以提高产物的醇浓度。要指出，图 15 中的配置或上述任何其它配置可以与任何其它备选配置组合，如使用木质素来源或其它生物燃料的联产。

[0133] 集成的 MCFC 和发酵系统的实例

[0134] 这一实例显示集成的 MCFC 和纤维素乙醇发酵工艺，从而以低 CO_2排放生产乙醇、氢气和电力。这一实例的一个焦点是与 MCFC 系统的集成方面。该发酵工艺，如用于乙醇发酵，可相当于传统发酵方法。为了提供实例，在需要乙醇发酵方法的细节的情况下，使用参考文献提供代表性的发酵工艺。（参见 Humbird 等人，Process Design and Economics for Biochemical Conversion of Lignocellulosic Biomass to Ethanol, NREL. 2011 年 5 月）。此文献中描述的基础乙醇发酵工艺相当于每天～ 520 吨的发酵厂。但是，任何其它方便的发酵工艺可代入这一实例。在这一实例中，可以由秸秆原料的发酵生产乙醇。来自发酵工艺的废气生物气和生物质可以燃烧产生用于该工艺的蒸汽和电力，一些过量电力回售给电网。在这种集成的 MCFC- 发酵工艺中，MCFC 可以使用甲烷 - 蒸汽混合物作为阳极进料和使用来自发酵系统的 CO_2气体混合物作为阴极进料。该热 MCFC 阳极排气可以与蒸汽系统集成以产生足以提供蒸馏塔加热需求的低压蒸汽。要指出，这也可以提高通过现有蒸汽轮机 /HRSG 系统的蒸汽速率。可以将该阳极排气变换并分离成 H_2和 CO_2产物料流。该 MCFC 可产生至少足够用于阳极排气分离和将气体压缩到管道条件的动力。

[0135] 图 14 显示该配置的 MCFC 部分的一个实例。在图 14 中，可以将蒸汽 1401 和预热甲烷 1402 送入 MCFC 1450 的阳极。MCFC 1450 可产生在高温下的主要由 $H_2/CO/CO_2$构成的混合物 1403。根据该方面，该 MCFC 可以在大约 25％至大约 60％的低燃料利用率，如至少大约 30％，或至少大约 40％，或大约 50％或更低，或大约 40％或更低的燃料利用率下运行。附加地或作为选择地，该 MCFC 可以在大约 70％或更高的更传统燃料利用率下运行，但这较不优选，因为在更高燃料利用率下会减少可从阳极排气中回收的潜在 H_2量。可从混合物 1403 中

回收热，例如在热交换器 1460 中，以由输入水流 1407 制造低压蒸汽 1408。输入水流 1407 可衍生自任何方便的来源，如从阴极出口料流 1414 和 / 或阳极出口料流 1403 中回收的水。低压蒸汽可用于例如提供蒸馏用热，如图 14 中所示的啤酒塔 1442 用的热。冷却的阳极排气 1404 可以在水煤气变换反应器 1470 中变换以产生主要由 H_2/CO_2 构成的混合物。这些气体可以在一个或多个分离阶段 1480 中分离成 H_2 料流 1405 和 CO_2 料流 1406。H_2 料流 1405 和 CO_2 料流 1406 可以压缩并销售使用。附加地或作为选择地，可以将至少一部分 CO_2 料流送往封存。在低 CO_2 排放不必要的一个备选但较不优选的配置中，可以将 CO_2 料流 1406 排放到大气中。阴极进料 1409 可以由发酵工艺的废气流的混合物构成。在图 14 中所示的实例中，阴极进料 1409 可以由排气洗涤器废气 1431 和生物气燃烧器废气 1433 构成，其可占从发酵工艺排出的 CO_2 的～ 94％。附加地或作为选择地，阴极进料 1409 可包括纤维素种子发酵器 (cellulose seed fermenter) 废气 1435、纤维素发酵器废气 1437、厌氧消化器废气 1439 和 / 或任何其它发酵器和 / 或消化器废气。该废气（或这些废气）可经过气体净化系统 1448 以预处理阴极进料。可以在燃烧器 1490 中将废气混合物 1409 与燃料 (CH_4) 1410 和氧化剂（空气）1411 合并并燃烧以将阴极进料加热至 MCFC 工作温度。燃烧器输出 1412 中的额外的热可用于预热甲烷阳极进料 1402。可以将阴极排气 1414 送往 HRSG 以回收任何热，然后排放到大气中和 / 或如果需要，可送往进一步加工。

[0136] 表 2 显示与不使用集成 MCFC 系统进行相同的传统发酵工艺相比，类似于图 14 的配置的 CO_2 排放降低量的实例。对于表 2 中所示的计算，假设该系统中使用的所有碳相当于最初源自生物源的碳。如表 2 中所示，发酵工艺与 MCFC 系统的集成具有显著降低来自乙醇发酵的 CO_2 排放的潜力。代替使该发酵工艺生成的 CO_2 逸出到大气中，利用至少一部分 CO_2 形成一些或所有阴极入口料流可将大部分 CO_2 分离到相对较纯的阳极出口料流中。然后可以以有效方式从阳极出口料流中分离出 CO_2（如分离出至少大约 90％的 CO_2，如至少大约 95％），从而封存 CO_2。特别地，如果考虑碳的原始来源（其中最初源自生物源的碳可能不计入输入该系统的碳），来自该集成系统的净 CO_2 排放可以实际上为负数。这可以反映下述事实：植物生命最初从大气中消耗的碳（生物源碳）已作为 CO_2 捕集并封存在此类工艺中，以致从环境中净去除碳。

[0137] 表 2 - 归因于 MCFC 集成的 CO_2 排放降低

[0138]

	EtOH 生产 [ton/day]	H_2 生产 [ton/day]	CO_2 排放 [kg CO_2/GJ]	为生物源校正的 CO_2 排放 [kg CO_2/GJ]
基础案例	520	0	172	0
集成案例	520	265	25	-147

[0139] 与藻类生长和加工集成

[0140] 已拟议用于制造生物柴油的藻场（光合藻类）需要几个输入：水、CO_2、阳光、营养素、主要氮、可能热、一方面，熔融碳酸盐燃料电池可以与藻场（和可能其它工艺）的需求集

成以提供具有降低的成本和降低的CO_2排放的更有效的总体工艺。

[0141] 一方面，由MCFC产生的CO_2可用作藻场的CO_2源。附加地或作为选择地，MCFC的输入和输出可以与藻场集成以实现下列一项或多项：1）使用由MCFC阳极排气产生的水作为藻类的补给水；2）使用生成的热在夜间/低温季节期间加热池塘；3）使用由MCFC生产的电运行循环装置和其它工艺；4）使用生物质废气（例如厌氧消化器）作为MCFC的燃料/甲烷来源；5）使用气化后的不同生物质（藻类生物质、木质素）作为阳极用的H_2/CO的来源；6）使用生成CO_2的生物过程（例如发酵）作为阴极的CO_2源，通过阳极中的分离捕集该CO_2，然后在分离后将该CO_2传送给藻类（例如提取由玉米制乙醇生成的CO，并将其用于藻类生长以制造其它产物）；和7）使用由MCFC产生的H_2和/或N_2制造用作藻类生产的核心营养素的含氮化合物（例如NH_3，尿素）。

[0142] 上述方面的一个益处是MCFC工艺和随后的分离可制造基本不含排气料流，如发电厂流出物或其它CO_2源的典型污染物的非常“清洁”的CO_2。附加地或作为选择地，上示集成益处能够-根据配置-将许多集成单元(integrated pieces)组合在一起。例如，MCFC的使用可实现CO_2生产工艺和CO_2消耗工艺之间的协同作用。在这样的协同工艺中，MCFC可充当以有效方式浓缩、分离和使用CO_2的媒介。再附加地或作为选择地，MCFC可以与典型的外部CO_2源（例如发电厂、涡轮机）一起配置，以使MCFC可用于a）浓缩CO_2、b）提纯CO_2和c）将CO_2以易用形式送往藻类生长环境。这与仅将含污染物的稀CO_2送往藻类相比是显著改进。

[0143] 与水泥制造的集成

[0144] 混凝土和钢是重要的基础设施建筑材料，它们构成大型基建工程建设中的大部分质量、成本和二氧化碳排放。例如，混凝土目前对大约5％的全球CO_2排放负责。在总排放中，水泥（例如波特兰水泥）的制造构成来自最终产品的总排放的大约95％。CO_2主要由两个来源生成：碳酸钙分解成氧化钙和CO_2，和将水泥窑加热到高达大约1800℃的温度，这通常用煤作为燃料进行。在成百上千的工厂（在美国有大约150-200个）中制造水泥，通常在发现其岩石成分的采石场附近。

[0145] 水泥的制造通常涉及将材料混合物加热到极高温度。主要成分可包括石灰石($CaCO_3$)以及二氧化硅（砂）、铁矿石、氧化铝（页岩、铝土矿、其它矿石）和/或其它材料的一种或多种。可以将这些成分压碎并混合，此后可以将它们引入极高温的窑中，通常在空气中并且通常在至少大约1400℃，如至少大约1800℃，有时高达大约2000℃或更高的温度下。在这些条件下，可产生被称作熟料的产品。熟料是一种稳定的产品，通常将其研碎以形成商业水泥。在这一论述中，熟料可以被称作水泥产品。形成水泥产品的工艺通常可带来一个显著的化学变化：石灰石分解成CaO和CO_2。一开始就是氧化物的其它矿石通常在化学上不变。在一定冷却后，通常可以将水泥产品与其它组分，如石膏混合并任选研磨以实现适用于水泥用途和/或混凝土生产的最终所需特征。

[0146] 一般而言，MCFC可通过使用来自水泥制造工艺的CO_2作为阴极进料而用作管理CO_2的资源。传统水泥制造释放的CO_2量通常至少大约50％来自$CaCO_3$分解，大约50％或更少归因于基于含碳燃料的燃烧的加热，这些量可能随各制造操作的特征而变。附加地或作为选择地，混凝土和水泥制造可需要用于整个工艺的电力和机械能。当通常与本地资源，如用于生产矿物的采石场同处一地或位置靠近时，运输、研磨、与水泥生产工艺相关的各种机械

过程会消耗大量电力。至少部分通过由与水泥厂集成的 MCFC 生成的电力满足这些能量需求。再附加地或作为选择地，对阳极排气进行的分离步骤会产生水，这种水可用于减轻和 / 或满足典型水泥厂的水需求。任选地，MCFC 可以在低燃料利用率下运行以提供氢气作为燃料，其仍可附加地或作为选择地消除或减轻归因于燃料燃烧的 CO_2 排放。

[0147] 一方面，可以将 MCFC 系统与水泥生产厂集成以利用水泥排放物作为 CO_2 源，同时也利用 MCFC 热和电向该生产厂供能。这种第一配置可消耗 CO_2 的主来源，还可减轻归因于热和电需求的一些二次 CO_2 来源。净结果是具有碳捕集可能性的较低碳排放的水泥制造工艺。

[0148] 在一个附加或替代性的配置中，可以将 MCFC 系统与水泥制造操作热集成，以致预热一个或多个 MCFC 入口料流，如所有 MCFC 入口料流所需的附加燃料量降低或甚至不需要附加燃料。例如，通过与窑输出物热交换，可以将阴极进料（其可能包含来自窑的一些含 CO_2 的流出物以及附加的（冷）氧化剂（空气）以提供充足的氧）充分预热至大约 500℃至大约 700℃的典型阴极入口温度。附加地或作为选择地，通常由燃煤提供的窑热可以取而代之地部分或完全通过燃烧来自 MCFC 系统的阳极排气流出物（其在衍生自碳密集性低于煤的来源时，可降低总 CO_2 排放）提供。

[0149] 在另一附加或替代性的配置中，可以配置 MCFC 系统以避免相当大部分的工厂整体碳排放。在这一配置中，MCFC 系统阳极出口——通常含 CO_2、CO、H_2 和水的料流，可经过旨在分离 CO_2 以供封存 / 捕集、在该相同或不同的分离过程中除去水和 / 或“变换”该水煤气变换气体以产生高富氢料流的一系列工艺。然后可以使用这种氢气料流作为窑的加热输入（当燃烧时），以产生降低的或最小化的碳排放。任选地，任何含有燃料价值的废气可以再循环到阳极（例如含 CO 的废气）。再附加地或作为选择地，来自阳极排气的水可用于抵消研磨、混合或其它水泥工艺中使用的可能取自当地资源的任何水。至少一部分或整个水泥、混凝土和 / 或采石场运作和 / 或至少一部分这些运作所需的电可以由 MCFC 现场提供。这可以降低或将传输损耗减至最低以及降低来自用于经电网供电的燃料的相应 CO_2 排放。整个工艺随之可表现出与传统采矿和制造操作相比显著降低的“生命周期 (life-cycle)”CO_2 排放，同时在更高的总热效率下运行。

[0150] 在这些配置中，输入阳极的燃料通常由天然气、甲烷和 / 或其它轻质烃的来源提供，任选与含一些轻质燃料组分的废气和 / 或其它废物料流一起和 / 或与水煤气变换组分一起。送入阳极的燃料可能含有可接受的量的其它惰性气体，如氮气，但优选不含显著量的氧，如没有故意添加的氧。附加地或作为选择地，阳极进料可包括和 / 或衍生自其它烃质材料，包括煤（如果首先将这些材料转化成可重整燃料）。这些转化所需的和任选预热阳极进料所需的至少一部分热（可能甚至所有热）可以有利地通过与窑排气或产物接触下的热交换提供。该热交换可以是直接的和 / 或经传热介质如蒸汽间接进行。用于这样的热交换工艺的水（蒸汽）和 / 或与水泥制造相关的其它工艺中所用的水可以至少部分使用由阳极化学和电化学反应产生的水（在从阳极排气料流中分离后）提供。

[0151] 阴极入口料流可以至少部分衍生自富含 CO_2 的窑排气。这种料流可能含有灰尘、污物、矿物和 / 或不适合引入 MCFC 的其它固体物质。可以用例如过滤器除去这样的不合适物质。附加地或作为选择地，水泥厂通常含有用于减少、最小化和 / 或基本消除来自窑的颗粒排放物的系统，并可以在与 MCFC 集成的系统中使用类似的系统。窑排气和 / 或含有至少一

部分窑排气的阴极入口料流可能含有一些对阴极无害的残留气体。这样的残留气体的实例可包括氮气、氧气和/或其它空气组分，以及以可接受的浓度（例如，根据杂质污染物，小于大约 100vppm，或小于大约 50vppm，或小于大约 25vppm）存在的任选次要量的杂质污染物，如氮氧化物。附加地或作为选择地，阴极可能需要使用新鲜空气以获得充足的氧浓度。优选地，阴极出口处的氧浓度可以至少大致为阴极出口处的 CO_2浓度，但至少大致为 CO_2浓度的一半的氧浓度也可接受。任选地，阴极入口处的氧浓度可以至少大致为阴极入口处的 CO_2浓度。在许多 MCFC 系统中，必须燃烧一些燃料以加热阴极入口料流。但是，对于上述配置，与窑气体排放物和/或固体产物的热交换可提供加热一个或多个阴极入口料流所需的至少一部分热或基本所有的热。这可以降低、最小化或可能消除对燃烧燃料以向阴极入口料流提供额外热量的需求。

[0152] 在大多数传统的发电 MCFC 系统中，阳极出口料流通常可以部分或完全再循环到阴极以提供 CO_2和热。在根据本发明的这些配置中，这种阳极排气不需要用于这些用途，而是任选但优选用于另一用途，如向窑供热。有利地，该 MCFC 可以在降低的燃料利用率下运行以使阳极排气（与或不与变换和/或分离步骤一起使用）可提供将窑加热至工作温度所需的至少一部分（或全部）热。有利地，附加地或作为选择地，可以选择条件以使总电力输出足以应对至少一部分（或全部）本地电力需求，这可包括直接水泥制造以及相关的混凝土、采石场和其它操作。可以设计 MCFC 系统以致通过改变燃料利用率，该系统可以满足这两种要求并可通过调节燃料利用率、电池电压和电流和/或其它参数来响应这些要求的变化。

[0153] 阴极排气料流——通常包含比阴极入口料流低的 CO_2和 O_2浓度以及惰性（空气）组分，如氮气——通常可以排放到大气中，但也可以在排放前首先经过一个或多个后处理。

[0154] 图 17 显示集成在水泥制造厂中以生产低 CO_2排放水泥的 MCFC 系统的一个实例。水泥制造厂的两个最大的 CO_2来源通常来自在窑，如回转窑中供热的化石燃料的燃烧，和 $CaCO_3$在窑中分解成 CaO。在图 17 中所示的配置中，该集成工艺可以取而代之地在窑中燃烧由 MCFC 产生的 H_2。附加地或作为选择地，可以使用分解 CO_2废气作为阴极进料。

[0155] 在图 17 中所示的配置中，可以将甲烷 1701 和蒸汽 1702 的气流送入 MCFC 1720 的阳极。可包含 H_2、CO、CO_2和 H_2O 的混合物的阳极排气 1703 可以在热回收蒸汽发生器 (HRSG) 1722 中冷却并在水煤气变换反应器（未显示）中变换，以产生主要由 H_2和 CO_2构成的混合物 1704。料流 1704 在这种情况中可以脱水 1760 并分离 1750 成含 H_2的料流 1706 和含 CO_2的料流 1707。料流 1707 可以压缩（并销售使用，运往远处使用等）和/或可以送往封存设施。料流 1706 可用作回转窑 1740 中的明火的燃料（与氧化剂/空气 1741 一起）。在窑 1740 中形成的“熟料”产品可送入熟料冷却器 1770。可以与窑 1740、熟料产品和/或熟料冷却器 1770 进行各种类型的热交换以向该系统中的其它工艺供热。在窑 1740 中，随着 $CaCO_3$分解，可以释放 CO_2。该 CO_2可以与火焰废气合并，并作为窑废气 1708 离开窑 1740 顶部。可以将窑废气 1708 净化和/或脱水 1730 以形成水和/或杂质流 1709 和可送回 MCFC 1720 的阴极前的含 CO_2的料流 1710。料流 1710 可以与空气 1711 和任选一部分阴极排气 1712 混合以助于满足阴极的 CO_2进料需求。脱 CO_2的阴极排气可以分流，一部分任选再循环 1712，另一部分送往 HRSG 1724 并排放到大气中 1713（如果没有送往进一步加工，未显示）。

[0156] 作为来自回转窑的加热要求和CO_2生产的一个实例，数值取自Energy and Emissions from the Cement Industry.(Choate,William T.Energy and Emissions Reduction Opportunities for the Cement Industry.U.S.Department of Energy,December 2003.）基于这些代表值，对规模为在回转窑中加工～300吨/小时熟料的集成工艺的一个实例进行计算。对于类似于图17的配置，基于质量和能量平衡计算的流量值显示在图18中的表中。在图18中，各列顶部的数字是指来自图17中的配置的相应元件。该计算可用于表明，图17中所示的熟料冷却器1770中的大量的热可用于将所有MCFC入口料流预热至工作温度。除用于该窑的H_2燃料外，MCFC还可产生～176MW电力，其可用于其它能量密集型工艺，如窑进料的原材料的研磨。表A显示基于图18中所示的计算得出的额外电力发生和降低的CO_2排放的概要。如表A中所示，使用回转窑的代表值对类似于图17的配置的计算表明，MCFC与水泥工艺的集成可以在将CO_2排放降低大约90％的同时提供额外电力。

[0157] 表A：水泥加工过程中的发电和CO_2排放

[0158]

	发电[MW]	CO_2 排放 [kg CO_2/吨熟料]
燃烧化石燃料的窑	0	976.5
MCFC + 窑	172	96.9

[0159] 如上所述，来自典型水泥工艺的CO_2排放的大约一半归因于向窑供热的燃料燃烧。这样的燃烧过程通常使用空气提供氧源，以使燃烧废气的CO_2浓度相对较稀（部分由于空气中存在的大量N_2）。从含稀CO_2（如10体积％CO_2或更少）的料流中分离CO_2的传统备选方案是使用胺洗，如基于单乙醇胺的胺洗。为了比较，利用基于单乙醇胺(MEA)的胺洗从稀CO_2料流（如含有大约10体积％或更少CO_2的料流）中捕集CO_2的典型预期能量成本估计为大约3GJ/ton CO_2。基于这种预期能量成本，利用胺洗代替MCFC捕集CO_2会消除由MCFC生成的额外电能，同时还带来显著的能量成本。

[0160] 与铁或钢制造的集成

[0161] 在各种方面中，提供了将铁和/或钢生产与MCFC系统的使用集成的方法。可由铁矿石中存在的氧化铁的还原生产铁。该反应需要高温，如高达2000℃，更通常大约800℃至大约1600℃，和可从高炉中可用的氧化铁中除去紧密结合的氧以产生铁金属的还原剂。最广泛使用的方法涉及煤的加工以产生焦炭和随后产生包含CO作为主要化学还原剂的高炉气。该方法通常还需要相当大量的热和通常显著量的电，两者都用于基础工艺本身和随后的炼钢加工。电需求可包括用于运行泵、阀和其它机械的典型装置需求以及例如用于直接还原铁加工、电炉炼钢和类似工艺的大量直接电输入。除简单用于冷却的水外，在炼钢中还需要相当大量的水，因为水可用于加工煤、从钢中直接除去铁鳞、用于生成蒸汽、水力学和其它系统。

[0162] 在传统铁生产工艺中，炉气可包含显著量的CO以及一定量的H_2、H_2O、N_2、任选但通常硫（如H_2S）和任选但通常衍生自煤的一种或多种其它各种气体。由于铁可以是有效的水

煤气变换催化剂，四种水煤气变换分子（CO、CO_2、H_2O、H_2）通常在该工艺中处于或接近平衡。CO 可以与氧化铁反应产生 CO_2和还原铁，同时将一些碳并入还原铁中。然后可以例如通过受控氧化在制造各种等级的铁和钢产品所需的程度上部分除去这种碳。煤和焦炭在传统铁生产工艺中的作用是双重的。首先，煤或焦炭可提供用于将氧化铁转化成铁的还原剂。其次，煤或焦炭可燃烧供热以保持极高炉温。该工艺通常在等于或接近大气压下进行。在传统工艺中，排出的高炉气仍通常可含有一定量的可燃材料，其可随后燃烧提供额外的热。

[0163] 传统工艺的缺点包括生产每吨铁或钢产生大量 CO_2。除工艺中使用的煤和焦炭外，助熔剂（通常碳酸盐，如 $CaCO_3$或碳酸盐和其它材料的混合物）可在该工艺中分解以释放额外的 CO_2。捕集或降低炉排出的 CO_2的量要求从各种排气系统中分离 CO_2，这是困难的并涉及许多收集、浓缩和净化步骤。

[0164] 在各种方面中，将熔融碳酸盐燃料电池的运行与铁和 / 或钢生产工艺集成可提供工艺改进，包括但不限于提高的效率、生产每吨产品的碳排放降低和 / 或作为该系统的集成部分的碳排放的捕集简化。可以在提供燃料原料和向这些工艺供能所需的各种化学、热和电输出的灵活性的同时降低单独工艺数和整个生产系统的复杂性。

[0165] 在附加或替代性的方面中，该联合 MCFC 和铁生产系统可以在提供加热灵活性的同时用更简单的系统有效收集碳。附加地或作为选择地，该联合 MCFC 和铁生产系统可以将可用作整个电输入的一部分的电的直接生成并入该装置中。由于现场发电，可以降低传输损耗或使传输损耗最小化，并且附加地或作为选择地，可以避免在将交流电转换成直流电时产生的潜在损失。此外，用于发电的燃料中的碳可并入用于从高炉排气（或用于铁或钢生产的另一类型的炉的排气）中捕集二氧化碳的相同碳捕集系统中。可针对还原剂 (CO)、热和电输出的可变生产设计该提出的系统，以使其适应使用相同核心组件的宽范围的钢铁冶炼工艺和技术。

[0166] 一方面，MCFC 系统可用于形成含有过量 H_2和 / 或 CO（合成气）的阳极排气料流。可以提取来自 MCFC 阳极排气的过量合成气并用于进行铁或钢生产，同时降低、最小化或消除焦炭的使用。来自 MCFC 的阳极排气可以在大约 500kPag 或更低，如大约 400kPag 或更低，或大约 250kPag 或更低的压力下排出。例如，可以获取由阳极排气生成或提取的合成气，将至少一部分 H_2与 CO 分离，用 H_2燃烧该炉，用 CO 进行铁的还原，然后在 MCFC 中消耗由铁生产工艺产生的 CO_2并捕集它，以显著降低来自该工艺的 CO_2排放。在这样的方面中，MCFC 可充当碳氧化物的管理系统（CO 源、CO_2汇）和充当铁或钢生产工艺的辅助进料源，如通过提供用于加热的 H_2、与输入和排出料流的热交换（以提高效率）、碳捕集和 / 或生产清洁的工艺用水。要指出，附加地或作为选择地，各种钢工艺可使用由 MCFC 系统提供的电能。例如，钢生产涉及使用电弧炉并可以用电流进行铁的直接还原。在各种方面中，包括 MCFC 的集成系统中所用的炉可以电加热或通过通常可避免该炉中的合成气燃烧的其它间接方法加热。

[0167] 作为熔融碳酸盐燃料电池集成在用于生产铁或钢的反应系统中的一个实例，可通过首先将甲烷或其它可重整燃料引入 MCFC 阳极（在此 MCFC 可用于生产电（如被该装置使用）和来自阳极输出的合成气））来向高炉提供还原剂气体。优选确定 MCFC 系统的尺寸以使生成的合成气的量足以提供铁或钢冶炼工艺所需的所有或基本所有 CO 还原剂。任选地，附加地或作为选择地，可作为炉的铁矿石或其它氧化铁进料的一部分引入用于铁或钢冶炼工艺的一部分 CO。根据可能需要更大量电力（例如在直接还原炼钢工艺中）或更少量电力

的所涉工艺的类型，可以将电送回电网或从电网获取电，以平衡来自该装置的能量输入。或者，可以确定 MCFC 的尺寸以使其可产生所需的所有电能和还原剂，在平衡这两种主要输出以适应装置要求的燃料利用率下运行 MCFC。该系统的灵活性能够调节这一比率（通过调节燃料利用率、电压和 / 或输入 / 输出温度等变量）以适应给定装置内的不断改变的工艺或工艺条件。

[0168] 任选但优选地，与铁或钢生产集成的 MCFC 系统可以在低燃料利用率下运行，以提高可由阳极排气生成 / 提取的合成气的量。尽管这可能不必要，但由于大多数 MCFC 运行通常产生包含合成气的阳极流出物，有时优选使阳极合成气的产量最大化。例如，燃料利用率可以为至少大约 25％，如至少大约 30％，或至少大约 35％，或至少大约 40％。附加地或作为选择地，燃料利用率可以为大约 60％或更低，如大约 55％或更低，或大约 50％或更低，或大约 45％或更低，或大约 40％或更低。低燃料利用值的使用可以提高阳极输出中的 H_2和 CO 含量。然后可利用阳极输出作为高炉还原气体的来源。如果需要，可以调节燃料利用率以使合成气输出与整个装置的电需求平衡。这可能避免需要单独的电网电力并可以在仅单一燃料源向单一发电系统供料的情况下提供该装置的能量自给自足；MCFC 在这种情况下可提供装置运行所需的电和化学成分。或者，该装置可使用与 MCFC 系统联用的单独发电系统，如涡轮机，以使这两个系统都产生一些电力并可针对合成气产量优化 MCFC 系统。尺寸、可得的燃料源、固有电需求和其它因素可能使得某一组合成为（最）有效和 / 或经济有利的布置。

[0169] 在各种方面中，集成的铁或钢生产系统中的 MCFC 的燃料输入可优选包含或是甲烷或天然气，但确实可以是与 MCFC 相容的任何烃质材料。对于无法直接在 MCFC 内重整的烃质材料（例如 C2-C5 轻气体），可以使用预重整器将输入燃料转化成甲烷 + 合成气混合物。在这样的情况下，阳极输入气体优选含有大百分比或主要百分比的可重整气体并可含有一定量的合成气成分和惰性物。该阳极输入可优选已除去杂质，如硫，这可通过常规系统实现并可随输入燃料的来源和纯度而变。如果首先转化成包含可重整燃料的混合物（从中除去了杂质），可以使用如煤和 / 或其它固体燃料之类的输入燃料。阴极输入可主要衍生自铁还原工艺排气并可含有其它含有 CO_2、H_2O、O_2和惰性物中的一种或多种的料流。可以添加空气 / 含氧料流以向阴极提供足够的氧气并通常要求整个阴极排气中的氧量超过总 CO_2量。

[0170] 来自阳极出口的合成气流出物可送往分离工艺，在此可以从该料流中除去 CO_2和可能一些水。可以设计该分离系统以除去足够的 H_2O 和 CO_2以产生合成气组合物，其在高炉中的铁还原工艺条件中平衡时可具有与其它气体组分相比适当量的 CO。与传统工艺不同，制成的 CO 基本不含杂质，如硫，从而简化了对使用煤和 / 或焦炭时通常需要的综合铁或钢冶炼厂周围的污染物控制系统的需求。在铁还原工艺中消耗 CO 后，在来自该工艺的流出物中可产生 CO_2。这种富 CO_2的流出料流，如果需要，在适当的热交换后，然后可用作 MCFC 阴极的进料。这通常涉及蒸汽生成，其然后由蒸汽轮机供给二次电力生产。例如，该流出气体可能含有可燃材料，其随后可通过添加空气或氧气燃烧产生另外的热。产生的热可用于各种装置工艺，但该燃烧产生的 CO_2可留在烟气中，其在随后引入阴极时可通过 MCFC 系统有效浓缩 / 捕集。

[0171] 在任何上述系统中可以降低或最小化用于加热 MCFC 系统的燃料的单独燃烧，因为铁或钢生产工艺通常可提供足够用于热交换的废热。优选使用较低的燃料利用率，因为

在这样的条件下运行可产生所用的每燃料电池阵列更高的CO产量和所用的每MCFC阵列更高的碳捕集。附加地或作为选择地，高炉废气可以与MCFC入口/出口热集成。一部分高炉废气可用作至少一部分（或可能全部）阴极进料，而其余高炉废气可排放到大气中和/或在低CO_2排放的铁或钢生产方案中压缩以封存CO_2。

[0172] 在另一实施方案中，可以在由阳极生成后分离H_2和CO，且H_2可任选但优选用于为各种装置工艺提供无碳加热，而CO可任选但优选用于铁还原。这可以减少整个装置内的CO_2源并可简化要作为阴极进料气体引入的CO_2的收集。

[0173] MCFC系统与传统碳捕集系统，如胺捕集相比的一个优点可包括用于捕集来自阳极的相对较高百分比（例如按体积计至少大约90％或至少大约95％）的CO_2的CO_2分离系统不重要。不同于传统捕集技术，可以将未捕集的任何碳（作为CO或CO_2）转化成CO_2，从铁还原工艺再循环到阴极入口，然后（通常）大多转化成碳酸根离子以跨过MCFC膜传输到阳极，在此它们可经受CO_2分离工艺。在这种配置中来自该系统的唯一CO_2排放可来自阴极排气。可基于阴极输出的CO_2浓度与阴极输入的CO_2浓度的比率调节该装置的总CO_2捕集效率，该比率容易改变，如通过调节MCFC阵列的运行阶段数和/或通过调节MCFC电池数以提高有效燃料电池面积。

[0174] 图19显示适用于与铁还原工艺联合运行熔融碳酸盐燃料电池(MCFCs)的配置的一个实例。图19的配置适用于将各种类型的铁矿石中存在的氧化铁，如Fe_2O_3和/或其它氧化铁还原成生铁（大约95％Fe)。在图19中，可以将蒸汽1901和预热甲烷1902送入MCFC 1940的阳极。任选但优选地，可以经热交换器1991通过从来自高炉废气的料流1907中回收热来预热甲烷1902。MCFC 1940，如在大约30％燃料利用率下运行的MCFC可以在可送往高炉的阳极排气1903中产生还原气体（例如CO和H_2)。阳极排气1903可任选但优选例如通过在热交换器1992中从高炉废气1906中回收一些热来加热。加热的阳极排气1904可以在预加热器1993中加热到高炉入口气体温度（例如大约1200℃），以产生入口气流1905。可以使用传统方法将氧化铁的固体粒子1952引入高炉1950顶部。任选地，氧化铁粒子的输入料流1952可以与有助于形成容易与铁产品分离的矿渣的助熔剂，如$CaCO_3$一起引入。氧化铁粒子的输入料流1952可以与通常在更偏底部的位置进入高炉1950的还原气体1905对流流过高炉1950。还原的Fe可作为底部料流1956离开该炉，而包含CO_2和H_2O的炉废气可作为1906离开该炉。炉废气1906可以与该工艺集成以在热交换器1992中加热阳极排气1903和/或在热交换器1991中预热阳极输入料流1902。这些热回收工艺可产生冷却的炉废气流1908。任选地，可以使用热回收蒸汽发生器(HRSG)从炉废气流1908中进一步除热。可以在冷凝器1994中由冷却的废气流1908冷凝水，以产生工艺用水1909和具有相对较高的CO_2浓度的气体1910。气体1910可任选还含有一些甲烷。一部分气流1910可作为进料流1912分流到燃烧器中并可以利用氧化源（空气）1913和燃料（甲烷）1914燃烧以产生在适合阴极进料1915的温度下的足够的CO_2。剩余气体1910可送往1911CO_2分离器/压缩系统，例如以产生可供使用和/或封存或排放到大气中的管道级CO_2。附加地或作为选择地，来自燃烧料流1912、1913和1914的一些热可用于加热料流1904。热回收蒸汽发生器(HRSG)可用于在将1915送往阴极之前除去1915中的任何额外的热并生成用于下游钢制造工艺的蒸汽。MCFC可除去1915中的方便的或所需的CO_2部分，例如至少大约50％或至少大约70％的CO_2，以产生CO_2减少的排气料流1916。可以将排气料流1916排放到大

气中和 / 或作为阴极输入流 1915 的一部分再循环。

[0175] MCFC 与高炉的集成的配置的实例

[0176] 此实例显示与将 Fe_2O_3还原成生铁 (95% Fe) 的铁高炉集成的 MCFC 系统。此实例的反应系统配置类似于图 19 中所示的配置。在此实例中,该 MCFC 系统用甲烷 - 蒸汽阳极进料以 30%燃料利用率运行以产生用于高炉的还原气体。高炉废气与 MCFC 入口 / 出口热集成且其中一部分可用作阴极进料,而剩余部分可排放到大气中或在低 CO_2排放的铁 / 钢生产方案中压缩以封存 CO_2。

[0177] 集成的 MCFC 工艺的规模可产生足够运行～ 2.8Mton/year 钢厂的高炉的还原气体。除基于阳极排气生成高炉的还原气体进料外,该 MCFC 还产生大约 233MW 的电力,其可用于向钢厂的其它部分供能、向用于管道输送的 CO_2(如图 19 中所示的 CO_2料流 1911) 的分离和压缩供能和 / 或回售给电网。图 20 显示在具有与图 19 中所示的配置类似的配置的系统中的各种位置的流体组成的代表值。为方便起见,图 19 中所示的料流名称也用于指示图 20 中的料流。要指出,阳极输出料流 1903 的组成基于大约 30%的阳极中的燃料利用率。料流 1904 和 1905 的相对组成的变化归因于经水煤气变换反应的平衡。要指出,高炉废气 1906 的组成基于高炉中的还原气体的～ 100%模拟消耗,同时在该炉中没有消耗甲烷。在真实系统中,有可能使用过量还原气体以提供工艺稳定性。另外,在高炉中可能通过与先前还原的铁反应消耗少量甲烷,可能导致向铁中引入少量的额外的碳以及生成额外的 H_2。但是,高炉废气 1906 的组成的这种理想化计算提供能量含量和组成的代表值。

[0178] 要指出,在 Arasto 等人的期刊文章 (标题 :Post-combustion capture of CO_2 at an integrated steel mill - Part I:Technical concept analysis ;Antti Arastoa, Eemeli Tsuparia, Janne **Kärkia,** Erkki **Pisilä,** Lotta **Sorsamäkia,** International Journal of Greenhouse Gas Control, 16, (2013) 第 271 - 277 页) 中报道了规模类似的钢厂的传统配置。Arasto 等人的配置用从传统煤燃烧器和高炉中回收热的 HRSG- 涡轮系统产生 135MW。这是足够运行～ 2.8Mton/year 钢厂、向地方社区供电和将一些输出到电网的电力。相反,通过使用 MCFC 用甲烷进料发电,与由钢厂的过热发电相比,这一实例中的 MCFC 生成大约 233MW 的电力。与 Arasto 等人报道的传统钢厂配置相比,该集成 MCFC- 高炉系统可产生更多电力并将 CO_2排放降低至少 65%。

[0179] MCFC 与炼油厂用氢和“无碳”氢的集成

[0180] 氢气在炼油厂内可用于各种工艺。大多数炼油厂在一些工艺 (例如汽油重整以生产芳烃) 中生成氢气并在另一些工艺 (例如从汽油和柴油调合料流中除硫) 中使用氢气。另外,炼油厂可具有大量锅炉、炉和 / 或其它用于加热需要能量的反应器的系统。这些加热和 / 或能量发生系统通常不使用氢气,因为氢气通常比其它燃料源更有价值,并且因为大多数炼油厂总体上是氢气的净输入方。通常,可以通过现场制造和 / 或通过接入附近 / 管道氢源进行氢气输入以使整个炼油厂达到平衡。

[0181] 由于大多数炼油厂工艺通常在升高的温度下进行并通常需要由各种种类的锅炉 (以及工艺蒸汽) 提供的热,炼油厂通常含有大量加热系统。这会带来尺寸大相径庭的大量 CO_2点源。一些会产生大量 CO_2,如催化裂化,而另一些会产生适中量。这些 CO_2点源各自对总炼油厂 CO_2生产作出贡献。由于大多数集成炼油厂通常总体上以大约 70-95%的热效率将原油转化成产品,在原油或其它进料中进入炼油厂的碳的通常大约 5-30%可作为 CO_2排

出（排放到空气中）。这些排放的降低可改进生产每单位产品的炼油厂温室气体排放。

[0182] 在各种方面中，MCFC 系统与炼油厂供氢的集成可以降低、最小化或消除对整体炼油厂操作的氢约束。附加地或作为选择地，MCFC 系统可以使用各种废气和 / 或其它料流作为进料，只要它们可以转化成“清洁”的轻气体和合成气混合物。要指出，可以使用轻气体和 / 或合成气混合物而对惰性物（例如 N_2、CO_2等，和它们的组合）的存在量没有太多限制。附加地或作为选择地，这种“输入集成”可以是精简提高炼油厂操作中的总效率的一个特征。更通常，MCFC 系统可以为炼油厂操作的多达四个（或可能更多）方面提供单一集成方案：工艺单元用热的生产、作为反应物的氢气的生产、碳的收集和封存，和来自各种工艺的废气和吹扫气流的有效利用。

[0183] 在一些方面中，H_2可用作炼油厂中的燃烧器中的燃料以降低、最小化或消除 CO_2排放点源。用于这两种用途的 H_2的集中供应可通过减少燃料和反应物的数量和类型来简化整体炼油厂操作 - 为这些用途分配仅一种材料。例如，氢气可以在各种温度和压力下使用。MCFC 系统可以在（任选）分离水和 CO_2和通过任何传统方法，如变压吸附进一步（任选）提纯后由阳极排气料流制氢。一旦提纯到典型炼油厂要求，如至少大约 80 体积％ H_2，或至少大约 90 体积％或至少 95 体积％或至少 98 体积％的纯度（折干计算），可以将含氢料流加压至适合工艺用途的压力并经管道输送 / 运送到任何工艺。可以将含氢料流分成多个料流，其中可以将较低纯度和 / 或较低压力的料流送往一些工艺或燃烧器，同时将较高纯度和 / 或较高压力的料流送往另一些工艺。

[0184] 附加地或作为选择地，但通常有利地，该集成系统可以生产电力。电力生产可用于至少部分向MCFC相关系统，如分离系统或压缩机供能，以及供给至少一部分（如最多全部）炼油厂电力需求。可以在几乎或完全没有传输损耗的情况下以相对较高的效率生产这种电力。另外，一些或所有电力可任选是直流电 (DC)，例如如果 DC 电对一些系统的运行优选，而没有在变压器 / 变换器中的正常损耗。在一些方面中，可以确定 MCFC 系统的规模以可提供炼油厂所需的至少一部分（或全部）电力，或甚至可提供过量电力。附加地或作为选择地，可以根据所需 H_2/ 热负荷和 / 或电负荷确定 MCFC 系统的规模。此外，可以在一定范围的条件下运行该系统，以适应可变的电和氢气需求量。

[0185] 可以收集至少一部分炼油厂工艺产生的 CO_2并用作阴极入口的一部分或所有气体，如大多数 CO_2生产工艺或所有 CO_2生产工艺。如果必要，可以将这些气体与空气或其它含氧料流混合以产生适用于阴极入口的具有 CO_2和氧气的气体混合物。通常可以用过量氧气 / 空气燃烧这些料流中存在的燃料成分以提供阴极入口的预热。总阴极入口的 CO_2浓度可大相径庭，并通常为至少大约 4 体积％，如至少大约 6 体积％、至少大约 8 体积％或至少大约 10 体积％。如果收集的料流不含足以用于 MCFC 运行的 CO_2浓度（或即使 CO_2浓度足够），可以将在阳极排气的分离中产生的和 / 或由来自该分离工艺的一个或多个废气或吹扫气流产生的 CO_2再循环到阴极入口。阴极入口料流的加热可来自这些料流中的废气的燃烧、热交换和 / 或可燃燃料组分的添加。例如，在一些方面中，该 MCFC 系统可以使用高碳材料，如焦炭或石油焦和 / 或来自石油工艺的其它“塔底物”，以向入口料流供热，其中这些材料的燃烧产物可用作阴极的 CO_2源。

[0186] 附加地或作为选择地，用于阴极入口料流的至少一部分 CO_2可以由燃气轮机，如可使用甲烷 / 天然气作为燃料的涡轮机提供。在这种类型的配置中，没有减少由催化裂化之

类的工艺生成的CO_2，但可以利用MCFC生成的H_2减少或最大限度减少由加热器、锅炉和/或其它燃烧器生成的CO_2。

[0187] 阳极出口料流可含有大浓度的二氧化碳以及其它合成气组分。通常，可以从这一料流中有效除去CO_2以产生可用于各种其它工艺的CO_2产物。由于很大部分的由炼油厂产生的二氧化碳可离开MCFC阳极，CO_2的收集有效并极大简化。作为单一点源的CO_2集合可随后用于其它操作（例如如果在油田附近，EOR，回注到气井中）和/或可以捕集/封存。取出整个CO_2负荷的一大部分，如至少大约70％，或至少大约80％以用于制氢和用电可以显著降低炼油厂操作的温室气体影响并可通过在单一工艺内加入电、氢气和热的高效来源改进总体炼油厂效率（原油转化成产品）。

[0188] 在MCFC系统与炼油厂中的氢气输送系统集成的方面中，MCFC系统的阳极输入可选自可获自各种炼油厂工艺的多种多样的材料，如预重整以减少C2+的轻气体；甲烷；气化的重质材料，如气化焦炭或沥青；合成气；和/或可脱除硫和其它有害杂质的任何其它烃质材料；以及它们的组合。因此，带有适当预净化的MCFC可充当原本无法在炼油厂中高效或有效使用的所有种类的进料的“处置装置(disposal)”。这些“废物料流”、“清除(purge)料流”或其它不合意料流中的主要量的碳可通过该系统作为分离的CO_2有效浓缩/捕集，而非（任选在作为燃料燃烧后）最终排放到大气中。阴极输入可以是或包含任何含CO_2废气的炼油厂料流+来自阳极排气或可能用于热交换的燃烧的新鲜甲烷的任何再循环。大多数炼油厂具有在各种温度下运行的多种多样的工艺，因此可以为一定的热集成选择适当的炼油厂工艺以管理例如净化冷却和加热。阴极排气通常可排放到大气中。阳极排气可以任选在分离一些组分后照原样使用，和/或可经过分离和水煤气变换以产生几乎全H_2的料流。该高H_2含量料流可以提纯至各种反应性工艺需要的水平，而燃烧H_2可含有更高量的残留CO、CO_2等，因为这种料流的燃烧仍可导致与烃质燃料的燃烧相比降低的碳氧化物排放。从阳极排气中分离的CO_2可任选再循环以例如用作阴极进料。附加地或作为选择地，阳极进料可包括具有大CO_2杂质的那些，如具有大CO_2含量的天然气。对于正常的炼油厂操作，当用于热或氢气发生时，这类料流可提高来自炼油厂的CO_2排放。但是，当送入MCFC系统的阳极时，该分离阶段可作为在阳极排气中除去其它CO_2的一部分有效除去这种额外的CO_2。

[0189] 从炼油厂中的不同CO_2源捕集碳的另一困难是炼油厂料流中常见的低CO_2浓度。通常，从气流中分离CO_2所需的能量高度依赖于该料流中的CO_2浓度。对于生成具有低CO_2浓度，如大约10体积％或更低的CO_2浓度的气流的工艺，需要大量能量从料流中分离CO_2以形成高纯CO_2料流。相反，在一些方面中，含有MCFC的系统的一个特征在于，CO_2可以从相对较低浓度的料流（如阴极入口料流）转移到相对较高浓度的料流（如阳极排气）中。这可降低形成高纯CO_2气流的能量需求。因此，在试图形成例如含CO_2料流以供封存时，MCFC可以提供相当大的能量节约。

[0190] 由MCFC生成的输出电力通常直接是DC电，但可以构造成产生在各种电流和电压设置下的任何方便的直流电和/或交流电混合物。通常，炼油厂的发电站/输入电力可以是普通的高电压AC电流（例如～960V）。由于熔融碳酸盐燃料电池的构造方式，可以产生基本任何DC电流/电压，并在逆变下产生各种AC电压。本地生产的DC没有长距离电力线路典型的传输损耗，并且不需要具有显著成本和一定效率损失的变换器。这可提供设计压缩机、泵和其它组件的一定灵活性和/或可消除许多电网和/或地方电力低效性

(inefficiencies)。

[0191] 除在炼油厂内使用外，氢气更通常可用于多种多样的产品和工艺，因为其在燃烧时仅产生水。但是，大多数传统制氢法需要大量的碳排放。例如，由甲烷的蒸汽重整制氢通常产生 CO_2（来自甲烷中的碳）和废热。由电解制氢需要通常可由化石燃料混合物生成的送往电网的电力。这些生产系统都会产生包含 CO_2 的流出物。如果需要碳捕集，这些流出物通常需要分处于各种来源处的碳捕集系统，而非任何方便地集成到更广的炼油厂操作中。通常，这些来源实际上在炼油厂门外，几乎或完全不允许各种化学、电和热输入和输出的协同生产 / 消耗。

[0192] 附加地或作为选择地，本发明的含 MCFC 的系统可提供作为分离和氢气提纯步骤的组成部分从该工艺中有效分离 CO_2 的手段。然后可以捕集 CO_2 和 / 或用于其它有用的工艺。这可以以高的总系统效率（远高于产生净氢气输出的传统手段）进行，尤其是在小规模下和在可变负荷下。

[0193] 利用 MCFC 系统制造可生成电力或热的后继工艺中所用的氢气可以实现在相对较高的效率和低（最低）碳排放下的相对低排放生产。该 MCFC 系统可通过调节化学能生产与电能生产的比率而动态响应不同的氢气需求，并对负荷和需求不大致恒定的用途理想 - 从没有过量氢气的纯发电到高制氢不等。此外，可以在更宽的应用范围内以比更大规模的系统，如甲烷蒸汽重整器高的效率确定该集成 MCFC 系统的规模。

[0194] 该 MCFC- 制氢系统的优点在于，重新利用氢气的燃料价值可产生比没有碳捕集的传统系统低的净 CO_2 排放并可借助内在的系统 CO_2 分离产生低得多的排放。这在各种用途中有价值。可以为使用低温 / 低压氢气的燃料电池车辆制氢。可根据总体需求改变氢气和电的量以保持总体高系统效率。输出到锅炉和 / 或其它热电联产系统的氢气可以不断产生电力（例如在独立发电中）以及通过制氢及随后在加热器 / 锅炉和类似系统中燃烧而产生可变量的无碳热。例如，装置可以在夏季主要产生用于空调系统的电力，而在冬季切换成用于加热操作的主要化学能的混合物。其它用途可包括旨在提供现场氢气的系统，如在实验室和其它技术和制造设施中，其中除需要电能外，一定量的氢气也有益。

[0195] 在涉及制氢和 / 或发电的方面中，可以向阳极入口送入新鲜甲烷、另一合适的烃燃料和 / 或新鲜燃料和来自各种工艺的再循环 CO 和 / 或 H_2 的组合。包含 H_2 和 / 或 CO 的阳极出口料流可提供制氢用的组分。这通常可通过反应、分离和提纯步骤的一定组合进行。一个实例是利用水煤气变换通过反应 $H_2O+CO = H_2+CO_2$ 将尽可能多的 CO 变换成 H_2 的第一阶段，接着从 H_2 中除去 H_2O 和 CO_2 并提供纯度合适的产物的第二（和后继）阶段。此类阶段可包括单独或组合的 PSA、深冷分离、膜和其它已知的分离方法。来自这些步骤的废气可以再循环和 / 或用于向入口料流供热。分离的 CO_2 可用作再循环料流和 / 或可以捕集和 / 或用于其它工艺。阴极入口可以由来自整体工艺的再循环 CO_2 和 / 或通过用于向入口料流供热的新鲜（或再循环）燃料的燃烧产生的 CO_2 构成。阴极流出物通常可以排放到大气中（任选但优选在热回收以例如向其它工艺料流和 / 或在联合循环发电中供热后），尽管如果需要，阴极流出物可任选但较不优选送往进一步处理。

[0196] 集成到无碳热电用途中的 MCFC 系统可以在从用于较低制氢的燃料利用率（例如 60-70％）到用于高制氢的较低燃料利用率（例如 20-30％）的运行条件范围内使用。各用途的确切运行范围可随用途和时间广泛变化。适应这种运行范围的能力可具有合意的优

点。分离阶段数和/或实现的纯度可取决于最终用途。用于低排放供热的简单制氢可容许氢气中的适量杂质，因为甚至数百分比的CO_2和/或CO仍可实现极低的总排放。高纯用途，如燃料电池车辆和/或实验室用氢，可能需要多个步骤（例如深冷分离，接着PSA）实现纯度规格。

[0197] 作为向多个炼油厂工艺供氢的一个实例，可以运行MCFC以生成电力和含有H_2、CO_2和H_2O的阳极排气。可以使用一次或多次分离以从阳极排气（或从衍生自阳极排气的气流）中分离CO_2和/或H_2O。这可产生具有比阳极排气高的H_2体积百分比的第一气流。然后可以对第一气流进行分离以形成具有比第一气流更高的H_2体积百分比的第二气流。然后可以将第一气流的剩余部分压缩至第一压力以用于对氢气具有较不严格要求的工艺，同时可以将第二气流压缩至第二（更高）压力以用于需要更高压力和/或更高纯度的氢气输入的工艺。

[0198] 实例 -MCFC与炼油厂供氢的集成

[0199] 在下列实施例中，对使用MCFC系统作为各种燃烧器、锅炉和/或利用燃料燃烧作为能量源的其它单元的氢气源的配置进行计算。尽管下列实例专注于向燃烧反应供氢，但附加地或作为选择地，由MCFC生成的氢气可用于供给一个或多个工艺（如多个工艺），其中氢气可用于非燃烧用途。例如，由MCFC生成的氢气可用于炼油厂内的一个或多个加氢处理反应器。

[0200] 在下列实例中，基于使用外部CO_2源计算用于阴极的CO_2。为了便于证实与尝试通过另一方法（如对各潜在的碳点源使用传统胺洗）捕集CO_2相比利用MCFC降低CO_2排放的益处而作出这一选择。为了比较，使用胺洗（基于使用单乙醇胺(MEA)）从相对较稀的CO_2料流（如含有大约10体积%或更少CO_2的料流）中捕集CO_2的典型预期能量成本接近大约3GJ/ton CO_2。利用MCFC浓缩阳极排气料流中的CO_2可以避免相当一部分的这种能量成本。要指出，在从炼油厂内的各种点源收集CO_2以用作阴极输入的一部分的实施方案中，需要一些额外能量成本向MCFC输送CO_2料流。但是，传统配置（其中需要单独胺洗以带来将CO_2送往中心胺洗的类似成本）所需的额外能量浪费(energy inefficiencies)和/或为各CO_2点源提供单独胺洗带来的额外能量浪费与这些成本至少大致相抵（如果不超过）。

[0201] 下列配置实例提供用于运行MCFC以提供在炼油厂中消耗的氢气的两种备选方案。在第一种配置的计算中，使用燃气轮机生成电力和提供用于阴极输入的CO_2源。在对第二配置的计算中，燃烧附加的甲烷以提供用于运行燃料电池的热和CO_2。在这两种配置中，都在一个或多个分离阶段中加工阳极排气以将CO_2（如用于封存）与H_2（用作炼油厂中的燃料）分离。

[0202] 在这些实施例中，针对供应可加工大约500kbd原油的典型炼油厂的热需求进行计算。炼油能力为大约500kbd的炼油厂可以在加热系统中使用大约118Mscf/d（或每天大约3.34×10^6 m^3）的天然气，如果不使用捕集/封存机制，其可以由燃烧产生大约118Mscf/d的CO_2排放。下列实例将MCFC工艺与大约500kbd系统中的炼油厂气体火焰加热器系统集成以提供具有低CO_2排放的分布式供热。

[0203] 图21示意性显示具有燃气轮机、MCFC系统和燃烧H_2的炼油厂宽火焰加热器的集成加工系统的一个实例。配置图21中的系统以使涡轮机生成阴极中所需的CO_2进料以在MCFC系统中产生足以运行炼油厂加热系统的H_2。将空气2101和甲烷2102送入燃气轮机

2150 并燃烧产生热阴极进料 2103。利用热阴极进料 2103 中的过热预热阳极甲烷进料 2104，其随后可送入 2105MCFC 2140 的阴极。将阳极甲烷进料 2104 和蒸汽 2106 送入 MCFC 2140 的阳极。该 MCFC 可以在高温下产生低 CO_2 含量的阴极排气 2107。根据该方面，该 MCFC 可以在低燃料利用率（例如大约 25％至大约 60％，如至少大约 30％、或至少大约 40％、或大约 50％或更低，或大约 40％或更低的燃料利用率）下运行。附加地或作为选择地，该 MCFC 可以在更传统的燃料利用率（例如大约 70％或更高，尽管传统燃料利用率通常为 70％至 75％）下运行，但这较不优选，因为会降低能从阳极排气中回收的可能的 H_2 量。在将阴极排气排放到大气中（或进一步加工）之前可以在 HRSG（热回收蒸汽发生系统）中从阴极排气 2107 中回收热。阳极排气 2108 可以在 HRSG 中冷却和 / 或可以在水煤气变换反应阶段 2160 中变换。变换的气体 2109，主要是 H_2 和 CO_2，可经过分离单元 2170 以产生 CO_2 料流 2110 和 H_2 料流 2111。可以将 CO_2 料流 2110 压缩并销售使用和 / 或封存。可以将 H_2 料流 2111 作为加热燃料分配到炼油厂加热器。H_2 料流 2111 的各子流可以在位于炼油厂中的一个或多个位置的燃烧器 2180 中用氧化剂（空气）2112 燃烧以提供基本无 CO_2 排放的热。对于类似于图 21 的配置，图 22 显示该配置内的流体积的代表值。

[0204] 图 23 示意性显示具有 MCFC 系统和炼油厂火焰加热器及甲烷和氢气燃烧器的集成加工系统的另一实例。配置这一系统以使甲烷燃烧器可生成阴极中所需的 CO_2 进料以在 MCFC 系统中产生足以运行其余氢气燃烧器的 H_2。将甲烷 2301 和氧化剂（空气）2302 分配到甲烷燃烧器 2390 中。可以从甲烷燃烧器中收集废气 2303 并送往进料预热器 2345。甲烷 2304、氧化剂（空气）2305 和废气 2303 可以在预热器 2345 中燃烧以产生热阴极进料 2306。2306 中的过热可用于预热阳极（甲烷）进料 2307 并在 2308 处送入阴极。将预热的甲烷 2309 和蒸汽 2310 送入阳极。该 MCFC 2350 可以在相对较高的温度下产生低 CO_2 含量的阴极排气 2311。在将其排放到大气中或送往进一步处理（未显示）之前可以在例如 HRSG 中从阴极排气 2311 中回收热。阳极排气 2312 可以在 HRSG 中冷却和在 2360 中变换。变换的气体 2313，主要是 H_2 和 CO_2，可经过分离单元 2370 以产生 CO_2 料流 2314 和 H_2 料流 2315。可以将 H_2 料流 2315 分配到氢气燃烧器 2380。各子流可以在位于炼油厂中的一个或多个位置的燃烧器 2380 中用氧化剂（空气）2316 燃烧以提供基本无 CO_2 排放的热。对于类似于图 23 的配置，图 24 显示该配置内的流体积的代表值。

[0205] 基于类似于图 21 和 23 的配置和基于类似于图 22 和 24 的工艺流，计算与 MCFC 集成的炼油厂的用于封存碳的相对净功率生成。将这与传统炼油厂系统（其中胺洗系统用于各点源的碳捕集）的净功率生成的计算进行比较。如上所述，已经测定，使用代表性的胺洗（例如借助 MEA）从典型的稀炼油厂料流（如含有大约 2 体积％至大约 8 体积％ CO_2 的料流）中捕集 CO_2 需要大约 3GJ/ton CO_2。表 2 显示类似于图 21 和 23 的本发明的配置（其可产生 CO_2 料流，如料流 2110 或料流 2314）与传统胺洗法的比较。对于表 2 中的比较，％ CO_2 排放降低代表经过 MCFC 的阳极的碳的百分比。基于表 2 中所示的计算值，利用 MCFC 向炼油厂燃烧器供氢和集中分离 CO_2 可以生成额外的可用功率。这明显不同于使用传统配置分离 CO_2 的显著功率需求。

[0206] 表 2 - 碳捕集和净功率生成

[0207]

	配置 1	配置 2
% CO_2排放降低	55.98%	86%

[0208]

具有 MCFC 功率的净功率 [MW]	110	36
借助 MEA 捕集的净功率 [MW]	-115	-180

[0209] 与 MCFC 系统集成的低温燃烧排气源

[0210] 低温燃烧排气源可包含任何含有CO_2和O_2(或可能仅添加了空气了CO_2)的料流,其在用于燃料电池之前需要冷却。这通常直接归因于存在一些会毒化阴极上的 Ni 催化剂的污染物(例如硫、金属)。对此,少量 NOx 或 SOx 通常不被视为阴极 Ni 催化剂的毒物。对于含有提高的污染物水平的燃烧排气源,需要将原始燃烧流出物冷却到可除去杂质的温度,然后通过例如与阴极流出物的热交换再加热到 MCFC 工作温度。

[0211] 低温燃烧排气源的实例可包括燃煤燃烧源,如燃煤电厂和燃烧木质素的燃烧,如来自木材和其它生物质燃烧。其它“脏 (dirty)”燃料可能包括衍生自石油的重质燃料,如锅炉燃料或其它重质船用燃料,其中有足够的杂质需要净化。

[0212] 该综合系统可提供比原本可能的程度更清洁地实施多个操作的能力。例如,可以燃烧木质素(例如来自纤维素乙醇生产)以制造CO_2,热交换以使其足够冷以除去杂质,然后可以将该CO_2料流与来自发酵的CO_2废气合并作为阴极进料。这种CO_2然后生产(与阳极中的甲烷一起)电力以向该装置的操作供电,且余热供应给对生物燃料而言处于较低温度下的其它反应器。可以分离 / 捕集残留CO_2,这随后改进该装置的总体排放。对于使用重质燃料油的船载系统,该船的核心电力可以与热一起供应,并在默认情况下,具有清洁得多的总排放(即使排放CO_2)。对于煤燃烧,益处可基于减少CO_2排放的潜力,尽管为此(和其它情况)产生过量合成气的能力也可用作“脏”材料的基础 (prime) 燃烧中的燃烧助剂。在这些方面中,用作燃烧助剂的H_2或H_2/CO 可改进低质燃料的燃烧特性,一开始就实现更清洁 / 更有效的燃烧。另外,过量合成气可作为H_2用于该材料的预先净化操作(例如加氢脱硫),以提供必要的成分而不实际构建任何附加设备。

[0213] 阴极进料可以是在冷却、脱除污染物和经热交换再加热后的该燃烧源。可以通过氢气处理进行待燃烧的材料的一些预先净化,其中H_2来自 MCFC。可以向该阴极进料补充在贫燃条件下燃烧的新鲜甲烷,或如果需要更多 O2,补充空气。可以将阴极输出排放到大气中。阳极进料可以是甲烷、天然气或另一可重整燃料,但也可以补充部分气化材料(气化生物质或煤)和如果存在,预重整的轻质烃。阳极排气中的H_2可以分离和 / 或再循环。

[0214] 与氢气轮机的集成

[0215] 在一些方面中,生产低碳电力的一个目标是在保持高CO_2捕集效率的同时和 / 或在有效利用现有系统的同时提高或使总功率输出最大化。在传统系统中,可以将燃气轮机连接到 MCFC 系统上以使燃气轮机产生包含CO_2的排气料流,其充当阴极进料的组分以向阴极提供热和CO_2。关于这种配置,如文献中已知,可以通过传统手段捕集CO_2且该 MCFC 系统可以在相对较高的燃料利用率(通常高于 70% 至大约 80%,或大约 75%)下运行以在普通

运行条件下保持 MCFC 内的热平衡。

[0216] 可以通过降低燃料利用率以加工过量燃料，例如甲烷和作为排气产生过量合成气来改进 MCFC 的有效利用。这种排气 / 流出物可经过各种分离以产生可用于各种化学和工业用途的合成气料流。但是，在合成气不可用作原料的情况下和 / 或在以发电为主要目标的情况下，合成气料流的生成可能无法提供额外的低碳电力。

[0217] 在各种方面中，提供在任选但优选提供始终高的碳捕集的同时由固定 MCFC 系统生产提高的或最大化的电力量的系统和方法。在一些方面中，可通过联合使用传统燃气轮机作为 MCFC 阴极的 CO_2 源、低燃料利用率以产生高量合成气和可增加衍生自 MCFC 阳极排气的氢气产量的分离和 / 或转化系统的组合来提供这样的系统。然后可以将衍生自阳极排气的这种氢气流引入第二氢气轮机，在此可以在降低或最小化的 CO_2 排放下生成额外电力。由于第二涡轮机可以由衍生自阳极排气的含氢气料流供能，为运行第二涡轮机而生成的附加 CO_2 量可限于例如，该含氢气料流中的碳氧化物和碳燃料残留组分。附加地或作为选择地，来自阳极排气的氢气可用于以其它方式生成电力，例如通过燃烧氢气以生成随后可用于生成电力的蒸汽。再附加地或作为选择地，衍生自阳极排气的一部分氢气可用作第一（传统）涡轮机的进料。例如如果用于第一涡轮机的含碳燃料具有提高的惰性物，如 CO_2 和 / 或 N_2 含量，这是有益的。

[0218] 除在炼油厂内使用外，氢气更普遍可用于多种多样的产品和工艺，因为其在燃烧时仅产生水蒸气。但是，大多数传统制氢法需要大的碳排放。例如，由甲烷的蒸汽重整制氢可产生 CO_2（来自甲烷中的碳）和废热。由电解制氢需要电，这通常基于化石燃料混合物的燃烧为电网生成。这些生产系统通常都会产生含 CO_2 的排放物。燃料电池车辆之类的用途需要利用高纯氢气的低温燃料电池。尽管该车辆不产生大量碳排放，但用于该车辆的制氢效率低，不容易适用于更小规模，并可产生显著的碳排放。

[0219] 在一些附加的或替代的方面中，本文中的系统和方法有利于从作为分离和氢气提纯步骤的组成部分的工艺中有效分离 CO_2。然后可以捕集 CO_2 和 / 或用于其它有用的工艺。这可以以高的总系统效率（与生产净氢气产物 / 输出的传统手段相比）进行，尤其是在小规模下和在可变负荷下。

[0220] 利用 MCFC 系统制造可生成电力或热的后继工艺中所用的氢气可以实现在高效率和降低或最小化的碳排放下的低排放能量生产。该 MCFC 系统可通过调节化学能生产与电能生产的比率而动态响应不同的氢气需求，并可适用于负荷和需求可能不恒定的用途 - 从几乎或完全没有过量氢气的高发电到高制氢不等。另外，可以在更宽的应用范围内以比更大规模的系统，如甲烷蒸汽重整器高的效率确定该集成系统的规模。这可以例如实现用于其它用途，如燃料电池车辆系统的氢气的联产和实现可变电力或简单用于改变电能输出。

[0221] 例如，在一些运行配置中，基础燃气轮机（如通过含碳燃料的燃烧供能的涡轮机）可以在恒定的高效率条件下运行，而 MCFC 系统在可变燃料利用率下运行以产生不同的电和氢气产值，这可控制来自整个系统的电输出。可以在保持总体高系统效率的同时根据总体需求改变氢气和电的量。输出到锅炉和 / 或其它热电联产系统的氢气可以不断产生电力（例如在独立发电中）以及通过制氢及随后在加热器 / 锅炉和 / 或类似系统中燃烧而产生可变量的无碳热。例如，装置可以在夏季主要产生用于空调系统的电力，而在冬季切换成用于加热操作的主要化学能的混合物。在高电力需求期间，可以向氢气轮机输送更多的氢气

以使发电量最大化。其它用途可包括旨在提供现场氢气的系统，如在实验室和其它技术和制造设施中，其中除需要电能外，还需要一定量的氢气。

[0222] 在涉及制氢和/或发电的方面中，可以向阳极入口送入新鲜甲烷、另一合适的烃燃料和/或新鲜燃料和来自各种工艺的再循环 CO 和/或 H_2的组合。包含 H_2和/或 CO 的阳极出口料流可提供制氢用的组分。这通常通过反应、分离和提纯步骤的一定组合进行。一个实例是利用水煤气变换通过反应 $H_2O+CO = H_2+CO_2$将尽可能多（几乎所有）的 CO 变换成 H_2的第一阶段，接着从 H_2中除去 H_2O 和 CO_2并提供纯度合适的产物的第二（和可能的后继）阶段。此类阶段可包括单独或组合的 PSA、深冷分离、膜和其它已知的分离方法。来自这些步骤的废气可以再循环和/或可用于向入口料流供热。分离的 CO_2可用作再循环料流和/或可以捕集并任选用于其它工艺。阴极入口可以由来自整体工艺的再循环 CO_2和/或通过用于向入口料流供热的新鲜（或再循环）燃料的燃烧产生的 CO_2构成。在一些优选方面中，阴极入口可至少包括来自第一传统燃气轮机的一部分燃烧排气。阴极流出物通常可以排放到大气中（任选但优选在热回收以例如向其它工艺料流和/或在联合循环发电中供热后），尽管如果需要，阴极流出物可任选但较不优选送往进一步处理。

[0223] 集成到无碳热电用途中的 MCFC 系统可以在包含高（例如大约 60％至大约 70％）燃料利用率及低制氢量到低燃料利用率（例如大约 20％至大约 60％）及提高的制氢量的运行条件范围内使用。低燃料利用率的实例可包括至少大约 20％，如至少大约 30％，和/或大约 60％或更低，如大约 50％或更低。各用途的确切运行范围可随用途和时间广泛变化。适应这种运行范围的能力具有合意的优点。分离阶段数和实现的纯度取决于最终用途。用于低排放供热的简单制氢可容许氢气中的适量杂质，因为排出料流中甚至数百分比的 CO_2和/或 CO 仍可实现极低的总碳排放。高纯用途，如燃料电池车辆和/或实验室用氢气，可能需要多个步骤（例如深冷分离，接着 PSA）实现纯度规格。

[0224] 在另一些配置中，该 MCFC 可以在用于提供热和/或动力的阳极出口燃料过量的情况下在较低燃料利用率下运行。在这两种情况下，优点都在于，固定燃气轮机和 MCFC 系统的“基本负载”功率输出可保持大致恒定，而整体工艺的一个小分部，即氢气轮机可用于变载。可变燃料利用率和可变氢气轮机进料的组合使得整个装置可以在该装置的主要子系统在相当一致的运行条件下运行的同时满足对热、电力和/或氢气需求的多种多样的需要。

[0225] 图 25 显示可由方便的含碳燃料，如天然气和/或甲烷生产低 CO_2排放动力的集成发电 MCFC 工艺的示例性流程表。在这一图表中，燃烧天然气的涡轮机 2540 可燃烧氧化剂（空气）2501 和甲烷/天然气 2502 以生成动力和废气流 2503。可以将废气 2503 送入 MCFC 2530 的阴极。可以向 MCFC2530 的阳极送入附加燃料（甲烷/天然气）2505 和蒸汽 2506。通过电化学反应，MCFC 2530 可生成动力，可产生贫 CO_2的阴极排气 2504 并可产生含 $H_2/CO_2/CO$ 的阳极排气 2507。可以从阴极排气 2504 中回收热，然后可以将阴极排气 2504 排放到大气中和/或视需要施以进一步处理。阳极排气 2507 可以在水煤气变换反应器 2560 中变换以提高 H_2浓度。该变换反应器流出物可进行分离 2570 以除去水 2508，回收 $CO_2$2509 和形成含 H_2的分离料流 2510。可以将含 CO_2的料流 2509 压缩至管道条件，然后可销售使用，用于不同工艺和/或封存。分离料流 2510 可以与氧化剂（空气）2511 合并和送往氢气轮机 2550 以生成额外动力。来自氢气轮机 2550 的排气 2512 主要是水和 N_2并可以排放到大气中和/或视需要施以进一步处理。

[0226] 作为一个实例，使用与图 25 中所示的系统类似的配置进行模拟。也对不包括氢气轮机的系统进行对比模拟。在对比模拟中，取而代之地将来自阳极排气的燃料（包含氢气）再循环至传统涡轮机的燃烧区。要指出，传统涡轮机的尺寸在这些模拟中保持不变，因此来自阳极排气的燃料的再循环导致送往传统涡轮机的新鲜天然气的量降低。

[0227] 来自模拟的结果显示在图 26 中。图 26 中的结果看似表明，在传统燃料利用率，如～ 75％的燃料利用率下，第二氢气轮机的使用可能不太有益。在～ 75％的燃料利用率下，结果看似表明，使用第二氢气轮机可在也降低生成的净动力的同时降低总体发电效率。

[0228] 在大约 50％的燃料利用率下，图 26 中的模拟结果看似显示与第二氢气轮机一起运行的益处。含第二氢气轮机的系统的总体效率仍看起来较低，因为总效率为大约 50％，而对比例的模拟结果为～ 55％。但是，该模拟看起来表明在大约 50％燃料利用率下的运行导致产生的功率（大约 624MW）大于任何对比例，同时也看起来具有比任何对比例低的每 MWhr 的 CO_2 排放（大约 1441bs/MWhr）。在大约 30％燃料利用率下的模拟看起来表现出通过在更低燃料利用率下运行而产生大氢气体积的更大益处。该模拟看起来表现出显著提高的功率生成（大约 790MW），同时也显著降低 CO_2 排放量（大约 1131bs/MWhr）。在这些模拟中看起来部分由于提高的 CO_2 捕集量（在大约 50％燃料利用率下大约 1.92Mtons/yr，在大约 30％燃料利用率下大约 2.56Mtons/ 年）而实现提高的功率和降低的 CO_2 排放的组合。因此，该模拟看起来表明，与大约 60％或更低，如大约 50％或更低的燃料利用率结合使用氢气轮机可以在提供提高的电能生产的同时提供出乎意料地低的生成每单位能量的 CO_2 排放。

[0229] 附加燃料电池运行策略

[0230] 作为对本文描述的燃料电池运行策略的增加、补充和 / 或替代，可以运行熔融碳酸盐燃料电池以便可相对于氧化量选择重整量以实现燃料电池的所需热比率。本文所用的“热比率”被定义为由燃料电池组件中的放热反应生成的热除以在燃料电池组件内发生的重整反应的吸热需求。以数学方式表达，热比率 (TH) ＝ Q_{EX}/Q_{EN}，其中 Q_{EX} 是由放热反应生成的热量总和且 Q_{EN} 是在燃料电池内发生的吸热反应消耗的热量总和。要指出，由放热反应生成的热相当于归因于该电池中的重整反应、水煤气变换反应和电化学反应的任何热。可基于跨过电解质的燃料电池反应的理想电化学势减去燃料电池的实际输出电压计算由电化学反应生成的热。例如，基于在电池中发生的净反应，认为 MCFC 中的反应的理想电化学势为大约 1.04V。在 MCFC 的运行过程中，由于各种损失，该电池通常会具有小于 1.04V 的输出电压。例如，常见输出 / 工作电压可以为大约 0.7V。生成的热等于该电池的电化学势（即～ 1.04V）减去工作电压。例如，当输出电压为～ 0.7V 时，由电池中的电化学反应生成的热为～ 0.34V。因此，在这种情况中，电化学反应产生～ 0.7V 的电和～ 0.34V 的热能。在这种实例中，～ 0.7V 的电能不作为 Q_{EX} 的一部分。换言之，热能不是电能。

[0231] 在各种方面中，可以对任何方便的燃料电池结构，如燃料电池堆、燃料电池堆内的独立燃料电池、具有集成的重整段的燃料电池堆、具有集成的吸热反应段的燃料电池堆或其组合测定热比率。也可以对燃料电池堆内的不同单元，如燃料电池或燃料电池堆的组装件计算热比率。例如，可以对单一燃料电池内的单一阳极、燃料电池堆内的阳极段或与集成的重整段和 / 或集成的吸热反应段元件（从热集成角度看足够紧密靠近要集成的阳极段）一起的燃料电池堆内的阳极段计算热比率。本文所用的“阳极段”包括在燃料电池堆内的共用共同入口或出口歧管的多个阳极。

[0232] 在本发明的各种方面中，可以基于热比率表征燃料电池的运行。如果运行燃料电池以具有所需热比率，则可以运行熔融碳酸盐燃料电池以具有大约 1.5 或更低，例如大约 1.3 或更低，或大约 1.15 或更低，或大约 1.0 或更低，或大约 0.95 或更低，或大约 0.90 或更低，或大约 0.85 或更低，或大约 0.80 或更低，或大约 0.75 或更低的热比率。附加地或作为选择地，热比率可以为至少大约 0.25，或至少大约 0.35，或至少大约 0.45，或至少大约 0.50。附加地或作为选择地，在一些方面中，可以运行燃料电池以具有大约 40℃或更小，如大约 20℃或更小，或大约 10℃或更小的在阳极输入与阳极输出之间的升温。再附加地或作为选择地，可以运行燃料电池以具有比阳极入口温度低大约 10℃至高大约 10℃的阳极出口温度。再附加地或作为选择地，可以运行燃料电池以具有比阳极出口温度高的阳极入口温度，如高至少大约 5℃，或高至少大约 10℃，或高至少大约 20℃，或高至少大约 25℃。再附加地或作为选择地，可以运行燃料电池以具有比阳极出口温度高大约 100℃或更低，如高大约 80℃或更低，或大约 60℃或更低，或大约 50℃或更低，或大约 40℃或更低，或大约 30℃或更低，或大约 20℃或更低的阳极入口温度。

[0233] 作为对本文描述的燃料电池运行策略的增加、补充和 / 或替代，可以在降低或最小化在阴极排气料流中离开燃料电池的 CO_2 量的同时以提高的合成气（或氢气）产量运行熔融碳酸盐燃料电池（如燃料电池组件）。合成气可以是用于各种工艺的有价值的进料。除具有燃料价值外，合成气还可用作用于形成其它更高价值产品的原材料，例如通过使用合成气作为费托合成和 / 或甲醇合成工艺的进料。用于制造合成气的一个选项可以是重整烃或烃类燃料，如甲烷或天然气。对于许多类型的工业工艺，具有接近 2:1（或甚至更低）的 H_2/CO 比的合成气通常合意。如果可提供额外的 CO_2（如在阳极中生成），则可以利用水煤气变换反应降低合成气中的 H_2/CO 比。

[0234] 通过将合成气生成和熔融碳酸盐燃料电池的使用集成而提供的整体效益的一种表征方式可基于在阳极排气中离开燃料电池的合成气的净量相对于在阴极排气中离开燃料电池的 CO_2 量的比率。这种表征衡量以低排放和高效率（电和化学）发电的效力。在本说明书中，阳极排气中的合成气的净量被定义为阳极排气中存在的 H_2 摩尔数和 CO 摩尔数的总和减去阳极入口存在的 H_2 和 CO 量。由于该比率基于阳极排气中的合成气的净量，简单地将过量 H_2 送入阳极不会改变该比率的值。但是，由于在阳极中和 / 或在与阳极相关的内部重整段中重整而生成的 H_2 和 / 或 CO 可造成该比率的更高值。在阳极中氧化的氢可降低该比率。要指出，水煤气变换反应可以用 H_2 交换 CO，因此 H_2 和 CO 的总摩尔数代表阳极排气中的总潜在合成气，无论合成气中最终所需的 H_2/CO 比如何。然后可以将阳极排气的合成气含量 (H_2+CO) 与阴极排气的 CO_2 含量相比较。这可提供一种类型的效率值，其也可说明 (account for) 碳捕集量。这可同等地表示为如下方程

[0235] 阳极排气中的净合成气与阴极 CO_2 的比率＝

[0236] $(H_2+CO)_{阳极}$ 的净摩尔数 / $(CO_2)_{阴极}$ 的摩尔数

[0237] 在各种方面中，阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率可以为至少大约 2.0，如至少大约 3.0，或至少大约 4.0，或至少大约 5.0。在一些方面中，阳极排气中的净合成气与阴极排气中的 CO_2 量的比率可以更高，如至少大约 10.0，或至少大约 15.0，或至少大约 20.0。附加地或作为选择地，可以实现大约 40.0 或更低，如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低的比率值。在阴极入口处的 CO_2 量为大约 6.0 体积％或更低，如

大约 5.0 体积％或更低的方面中，至少大约 1.5 的比率值可能足够／现实的。阳极排气中的净合成气与阴极排气中的 CO_2 量的这种摩尔比率值可高于照常规运行的燃料电池的值。

[0238] 作为对本文描述的燃料电池运行策略的增加、补充和／或替代，熔融碳酸盐燃料电池（如燃料电池组件）可以在降低的燃料利用率值如大约 50％或更低的燃料利用率下运行，同时还具有高 CO_2 利用率值，如至少大约 60％。在这种类型的配置中，该熔融碳酸盐燃料电池可有效用于碳捕集，因为 CO_2 利用率可有利地足够高。不同于试图使电效率最大化，在这种类型的配置中可基于综合电和化学效率改进或提高该燃料电池的总效率。化学效率可基于作为输出物从阳极排气中取出的氢气和／或合成气料流以用于其它工艺。尽管与一些传统配置相比可能降低电效率，但利用阳极排气中的化学能量输出可实现燃料电池的合意的总效率。

[0239] 在各种方面中，燃料电池阳极中的燃料利用率可以为大约 50％或更低，如大约 40％或更低，或大约 30％或更低，或大约 25％或更低，或大约 20％或更低。在各种方面中，为了生成至少一些电力，该燃料电池中的燃料利用率可以为至少大约 5％，如至少大约 10％，或至少大约 15％，或至少大约 20％，或至少大约 25％，或至少大约 30％。附加地或作为选择地，CO_2 利用率可以为至少大约 60％，如至少大约 65％，或至少大约 70％，或至少大约 75％。

[0240] 作为对本文描述的燃料电池运行策略的增加、补充和／或替代，可以在提高或使合成气产量最大化的条件下（可能以发电量和电效率为代价）运行熔融碳酸盐燃料电池。代替选择燃料电池的运行条件以改进或使燃料电池的电效率最大化，可以建立运行条件（可能包括送入阳极的可重整燃料的量）以提高燃料电池的化学能量输出。这些运行条件可能导致燃料电池的较低电效率。尽管电效率降低，任选但优选地，这些运行条件可导致基于燃料电池的综合电效率和化学效率的燃料电池总效率提高。通过提高引入阳极的可重整燃料与在阳极处实际电化学氧化的燃料的比率，可以提高阳极输出中的化学能含量。

[0241] 在一些方面中，送往阳极和／或送往与阳极相关的重整阶段的输入料流中的可重整燃料的可重整氢含量可以比在阳极处反应的氢气的净量高至少大约 50％，如高至少大约 75％或高至少大约 100％。附加地或作为选择地，送往阳极和／或送往与阳极相关的重整阶段的输入料流中的燃料的可重整氢含量可以比在阳极处反应的氢气的净量高至少大约 50％，如高至少大约 75％或高至少大约 100％。在各种方面中，燃料料流中的可重整燃料的可重整氢含量与在阳极中反应的氢量的比率可以为至少大约 1.5:1，或至少大约 2.0:1，或至少大约 2.5:1，或至少大约 3.0:1。附加地或作为选择地，燃料料流中的可重整燃料的可重整氢含量与在阳极中反应的氢量的比率可以为大约 20:1 或更低，如大约 15:1 或更低或大约 10:1 或更低。一方面，预计阳极入口料流中的可重整氢含量的少于 100％可转化成氢。例如，阳极入口料流中的可重整氢含量的至少大约 80％可以在阳极中和／或在相关重整阶段中转化成氢，如至少大约 85％，或至少大约 90％。附加地或作为选择地，可基于相对于在阳极中氧化的氢的 LHV 的可重整燃料的低位发热值 (LHV) 表征送往阳极的可重整燃料量。这可被称作可重整燃料过剩率 (surplus ratio)。在各种方面中，可重整燃料过剩率可以为至少大约 2.0，如至少大约 2.5，或至少大约 3.0，或至少大约 4.0。附加地或作为选择地，可重整燃料过剩率可以为大约 25.0 或更低，如大约 20.0 或更低，或大约 15.0 或更低，或大约 10.0 或更低。

[0242] 作为对本文描述的燃料电池运行策略的增加、补充和/或替代，也可以在可改进或优化燃料电池的综合电效率和化学效率的条件下运行熔融碳酸盐燃料电池（如燃料电池组件）。代替选择用于使燃料电池的电效率最大化的传统条件，该运行条件可以在燃料电池的阳极排气中输出过量合成气和/或氢气。该合成气和/或氢气然后可用于各种用途，包括化学合成工艺和收集氢气以用作“清洁”燃料。在本发明的方面中，可以降低电效率以实现高的总效率，这包括基于相对于燃料电池的燃料输入的能量值的生成的合成气和/或氢气的化学能量值的化学效率。

[0243] 在一些方面中，可基于电效率表征燃料电池的运行。如果运行燃料电池以具有低的电效率(EE)，则可以运行熔融碳酸盐燃料电池以具有大约40％或更低的电效率，例如大约35％EE或更低，大约30％EE或更低，大约25％EE或更低，或大约20％EE或更低，大约15％EE或更低，或大约10％EE或更低。附加地或作为选择地，EE可以为至少大约5％，或至少大约10％，或至少大约15％，或至少大约20％。再附加地或作为选择地，可基于总燃料电池效率(TFCE)，如燃料电池的综合电效率和化学效率表征燃料电池的运行。如果运行燃料电池以具有高的总燃料电池效率，则可以运行熔融碳酸盐燃料电池以具有大约55％或更大，例如大约60％或更大，或大约65％或更大，或大约70％或更大，或大约75％或更大，或大约80％或更大，或大约85％或更大的TFCE（和/或综合电效率和化学效率）。要指出，对于总燃料电池效率和/或综合电效率和化学效率，在效率计算中可不包括利用燃料电池生成的过量热生成的任何额外电力。

[0244] 在本发明的各种方面中，可基于大约40％或更低的所需电效率和大约55％或更大的所需总燃料电池效率表征燃料电池的运行。如果运行燃料电池以具有所需电效率和所需总燃料电池效率，则可以运行熔融碳酸盐燃料电池以具有大约40％或更低的电效率及大约55％或更大的TFCE，例如大约35％EE或更低及大约60％或更大的TFCE，大约30％EE或更低及大约65％或更大的TFCE，大约25％EE或更低及大约70％TFCE或更大，或大约20％EE或更低及大约75％或更大的TFCE，大约15％EE或更低及大约80％或更大的TFCE，或大约10％EE或更低及大约85％或更大的TFCE。

[0245] 作为对本文描述的燃料电池运行策略的增加、补充和/或替代，可以在可提供提高的功率密度的条件下运行熔融碳酸盐燃料电池（如燃料电池组件）。燃料电池的功率密度相当于实际工作电压V_A乘以电流密度I。对于在电压V_A下运行的熔融碳酸盐燃料电池，该燃料电池还倾向于生成废热，废热被定义为$(V_0 - V_A)*I$，其基于V_A与提供电流密度I的燃料电池的理想电压V_0之差。可重整燃料在燃料电池的阳极内的重整可消耗一部分这种废热。剩余部分的这种废热可以被周围的燃料电池结构和气流吸收，以造成跨过燃料电池的温度差。在传统运行条件下，可基于燃料电池在不损害燃料电池完整性的情况下可容许的废热量限制燃料电池的功率密度。

[0246] 在各种方面中，通过在燃料电池内进行有效量的吸热反应，可以提高燃料电池可容许的废热量。吸热反应的一个实例包括可重整燃料在燃料电池阳极内和/或在相关重整段，如燃料电池堆中的集成重整段中的蒸汽重整。通过向燃料电池的阳极（或向集成/相关重整段）提供额外的可重整燃料，可以进行额外的重整以便可消耗额外的废热。这可降低跨燃料电池的温度差的量，由此允许燃料电池在具有提高的废热量的运行条件下运行。电效率的损失可通过产生可用于各种用途（包括额外的发电）的额外产物料流抵消，所述额

外产物料流例如为合成气和 / 或 H_2，以进一步扩大该系统的功率范围。

[0247] 在各种方面中，燃料电池生成的废热量，如上定义的 $(V_0 - V_A)*I$ 可以为至少大约 30mW/cm^2，如至少大约 40mW/cm^2，或至少大约 50mW/cm^2，或至少大约 60mW/cm^2，或至少大约 70mW/cm^2，或至少大约 80mW/cm^{2}或至少大约 100mW/cm^2，或至少大约 120mW/cm^2，或至少大约 140mW/cm^2，或至少大约 160mW/cm^2，或至少大约 180mW/cm^2。附加地或作为选择地，燃料电池生成的废热量可以小于大约 250mW/cm^2，如小于大约 200mW/cm^2，或小于大约 180mW/cm^2，或小于大约 165mW/cm^2，或小于大约 150mW/cm^2。

[0248] 尽管生成的废热量可能相对较高，但这样的废热不一定代表燃料电池以差效率运行。相反，可能由于在提高的功率密度下运行燃料电池而生成废热。改进燃料电池的功率密度部分可包括在足够高的电流密度下运行燃料电池。在各种方面中，燃料电池生成的电流密度可以为至少大约 150mA/cm^2，如至少大约 160mA/cm^2，或至少大约 170mA/cm^2，或至少大约 180mA/cm^2，或至少大约 190mA/cm^2，或至少大约 200mA/cm^2，或至少大约 225mA/cm^2，或至少大约 250mA/cm^2。附加地或作为选择地，燃料电池生成的电流密度可以为大约 500mA/cm^{2}或更低，如 450mA/cm^{2}或更低，或 400mA/cm^{2}或更低，或 350mA/cm^{2}或更低，或 300mA/cm^{2}或更低。

[0249] 在各种方面中，为了能在提高的发电和提高的废热生成下运行燃料电池，可以进行有效量的吸热反应（如重整反应）。或者，可通过在燃料电池阵列中布置热连通但不流体连通的“板”或阶段而使用与阳极运行无关的其它吸热反应来利用废热。可以在相关重整阶段、集成重整阶段、用于进行吸热反应的集成堆叠元件或其组合中进行有效量的吸热反应。有效量的吸热反应可相当于足以将从燃料电池入口到燃料电池出口的升温降至大约 100℃或更低，如大约 90℃或更低，或大约 80℃或更低，或大约 70℃或更低，或大约 60℃或更低，或大约 50℃或更低，或大约 40℃或更低，或大约 30℃或更低的量。附加地或作为选择地，有效量的吸热反应可相当于足以使从燃料电池入口到燃料电池出口的降温为大约 100℃或更低，如大约 90℃或更低，或大约 80℃或更低，或大约 70℃或更低，或大约 60℃或更低，或大约 50℃或更低，或大约 40℃或更低，或大约 30℃或更低，或大约 20℃或更低，或大约 10℃或更低的量。当有效量的吸热反应超过生成的废热时，可发生从燃料电池入口到燃料电池出口的降温。附加地或作为选择地，这可相当于吸热反应（如重整和另一吸热反应的组合）消耗燃料电池生成的废热的至少大约 40％，如消耗至少大约 50％的废热，或至少大约 60％的废热，或至少大约 75％的废热。再附加地或作为选择地，吸热反应可消耗大约 95％或更少的废热，如大约 90％或更少的废热，或大约 85％或更少的废热。

[0250] 作为对本文描述的燃料电池运行策略的增加、补充和 / 或替代，可以在与降低的工作电压和低燃料利用率对应的条件下运行熔融碳酸盐燃料电池（如燃料电池组件）。在各种方面中，可以在小于大约 0.7 伏特，例如小于大约 0.68V、小于大约 0.67V、小于大约 0.66V、或大约 0.65V 或更低的电压 V_A下运行该燃料电池。附加地或作为选择地，可以在至少大约 0.60，例如至少大约 0.61、至少大约 0.62 或至少大约 0.63 的电压 V_A下运行该燃料电池。在这种情况下，随着电压降低，原本在高电压下作为电能离开燃料电池的能量可作为热留在电池内。这种额外的热能够增加吸热反应，例如提高 CH_4转化成合成气的转化率。

[0251] 定义

[0252] 合成气：在本说明书中，合成气被定义为 H_2和 CO 的任何比率的混合物。任选地，

H_2O 和 / 或 CO_2 可存在于合成气中。任选地，惰性化合物（如氮）和残留可重整燃料化合物可存在于合成气中。如果 H_2 和 CO 以外的组分存在于合成气中，合成气中 H_2 和 CO 的总体积百分比可以为合成气总体积的至少 25 体积%，如至少 40 体积%，或至少 50 体积%，或至少 60 体积%。附加地或作为选择地，合成气中 H_2 和 CO 的总体积百分比可以为 100 体积%或更低，如 95 体积%或更低或 90 体积%或更低。

[0253] 可重整燃料：可重整燃料被定义为含有可重整生成 H_2 的碳 - 氢键的燃料。烃是可重整燃料的实例，其它烃质化合物，如醇也是。尽管 CO 和 H_2O 可参与水煤气变换反应以形成氢气，CO 不被视为这一定义下的可重整燃料。

[0254] 可重整氢含量：燃料的可重整氢含量被定义为可由燃料通过重整该燃料然后驱使水煤气变换反应完全以使 H_2 生成最大化而形成的 H_2 分子数。要指出，H_2 按定义具有 1 的可重整氢含量，尽管 H_2 本身不被定义为本文中的可重整燃料。类似地，CO 具有 1 的可重整氢含量。尽管 CO 严格来讲不是可重整的，但驱使水煤气变换反应完全会导致 CO 交换成 H_2。作为可重整燃料的可重整氢含量的实例，甲烷的可重整氢含量为 4 个 H_2 分子，而乙烷的可重整氢含量为 7 个 H_2 分子。更概括地，如果燃料的组成为 CxHyOz，则该燃料在 100％重整和水煤气变换下的可重整氢含量为 n(H_2最大重整）= 2x+y/2 - z。基于这一定义，电池内的燃料利用率可随之表示为 n(H_2Ox)/n(H_2最大重整）。当然，可基于各组分的可重整氢含量确定组分混合物的可重整氢含量。也可以以类似方式计算含有其它杂原子，如氧、硫或氮的化合物的可重整氢含量。

[0255] 氧化反应：在这一论述中，燃料电池的阳极内的氧化反应被定义为是相当于通过与 CO_3^{2} 反应而将 H_2 氧化以形成 H_2O 和 CO_2 的反应。要指出，在阳极中的氧化反应的这一定义中不包括阳极内的重整反应，在重整反应中含碳 - 氢键的化合物被转化成 H_2 和 CO 或 CO_2。水煤气变换反应类似地在氧化反应的这一定义之外。进一步指出，提到燃烧反应被定义是提到 H_2 或含碳 - 氢键的化合物在非电化学燃烧器，如燃烧供能发电机的燃烧区中与 O_2 反应形成 H_2O 和碳氧化物的反应。

[0256] 本发明的方面可调节阳极燃料参数以实现燃料电池的所需运行范围。阳极燃料参数可以直接地和 / 或与其它燃料电池工艺相关地，以一种或多种比率的形式表征。例如，可以控制阳极燃料参数以实现一种或多种比率，包括燃料利用率、燃料电池热值利用率、燃料过剩率、可重整燃料过剩率、可重整氢含量燃料比及其组合。

[0257] 燃料利用率：燃料利用率是用于表征阳极运行的一个选项，其基于相对于输入料流的可重整氢含量的氧化的燃料量，可用于确定燃料电池的燃料利用率。在这一论述中，“燃料利用率”被定义为是为发电而在阳极中氧化的氢量（如上所述）与阳极进料（包括任何相关重整段）的可重整氢含量的比率。可重整氢含量已在上文定义为可由燃料通过重整该燃料然后驱使水煤气变换反应完全以使 H_2 生成最大化而形成的 H_2 分子数。例如，引入阳极并暴露在蒸汽重整条件下的各甲烷导致在最大产量下生成 $4H_2$ 分子当量。（取决于重整和 / 或阳极条件，重整产物可相当于非水煤气变换产物，其中一个或多个 H_2 分子取而代之地以 CO 分子的形式存在）。因此，甲烷被定义为具有 4 个 H_2 分子的可重整氢含量。作为另一实例，在这一定义下乙烷具有 7 个 H_2 分子的可重整氢含量。

[0258] 阳极中的燃料利用率也可以通过基于由于燃料电池阳极反应而在阳极中氧化的氢气的低位发热值与送往阳极和 / 或与阳极相关的重整段的所有燃料的低位发热值的比

率定义热值利用率来表征。可以使用进入和离开燃料电池阳极的燃料组分的流速和低位发热值 (LHV) 计算本文所用的“燃料电池热值利用率”。因此，燃料电池热值利用率可作为 (LHV(anode_in) - LHV(anode_out))/LHV(anode_in) 计算，其中 LHV(anode_in) 和 LHV(anode_out) 分别是指阳极入口和出口料流或流中燃料组分（如 H_2、CH_4和 / 或 CO) 的 LHV。在这一定义中，可作为输入和 / 或输出料流中各燃料组分的数值总和计算料流或流的 LHV。各燃料组分在该总和中的份额可相当于燃料组分的流速（例如摩尔 / 小时）乘以燃料组分的 LHV（例如焦耳 / 摩尔）。

[0259] 低位发热值：低位发热值被定义为燃料组分燃烧成气相完全氧化产物（即气相 CO_2和 H_2O 产物）的焓。例如，阳极输入料流中存在的任何 CO_2不构成阳极输入的燃料含量，因为 CO_2已完全氧化。对于这一定义，由于阳极燃料电池反应而在阳极中发生的氧化量被定义为作为如上定义的阳极中的电化学反应的一部分的阳极中的 H_2氧化。

[0260] 要指出，对于阳极输入料流中的唯一燃料是 H_2的特殊情况，在阳极中可发生的涉及燃料组分的唯一反应是 H_2转化成 H_2O。在这种特殊情况中，燃料利用率简化成 (H_2- 速率 - 入 - H_2- 速率 - 出)/H_2- 速率 - 入。在这种情况下，H_2是唯一的燃料组分，因此 H_2LHV 会从该方程中消去。在更常见的情况下，阳极进料可能含有例如各种量的 CH_4、H_2和 CO。由于这些物类通常可以不同量存在于阳极出口中，可能需要如上所述求和以测定燃料利用率。

[0261] 作为对燃料利用率的替代或补充，可以表征燃料电池中的其它反应物的利用率。例如，附加地或作为选择地，可以就“CO_2利用率”和 / 或“氧化剂”利用率表征燃料电池的运行。可以以类似方式规定 CO_2利用率和 / 或氧化剂利用率的值。

[0262] 燃料过剩率：表征熔融碳酸盐燃料电池中的反应的另一方式是通过基于送往阳极和 / 或与阳极相关的重整段的所有燃料的低位发热值与由于燃料电池阳极反应而在阳极中氧化的氢气的低位发热值的比率来定义利用率。这种量被称作燃料过剩率。因此，燃料过剩率可作为 (LHV(anode_in)/(LHV(anode_in)-LHV(anode_out)) 计算，其中 LHV(anode_in) 和 LHV(anode_out) 分别是指阳极入口和出口料流或流中燃料组分（如 H_2、CH_4和 / 或 CO) 的 LHV。在本发明的各种方面中，可以运行熔融碳酸盐燃料电池以具有至少大约 1.0，如至少大约 1.5，或至少大约 2.0，或至少大约 2.5，或至少大约 3.0，或至少大约 4.0 的燃料过剩率。附加地或作为选择地，燃料过剩率可以为大约 25.0 或更低。

[0263] 要指出，并非阳极输入料流中的所有可重整燃料都可被重整。优选地，进入阳极（和 / 或进入相关重整段）的输入料流中至少大约 90％的可重整燃料在离开阳极之前可重整，如至少大约 95％或至少大约 98％。在另一些方面中，可重整燃料的重整量可以为大约 75％至大约 90％，如至少大约 80％。

[0264] 对燃料过剩率的上述定义提供了相对于在燃料电池阳极中发电所消耗的燃料量表征在阳极和 / 或与燃料电池相关的重整段内发生的重整量的一种方法。

[0265] 任选地，可以改变燃料过剩率以虑及燃料从阳极输出再循环到阳极输入的情况。当燃料（如 H_2、CO 和 / 或未重整或部分重整的烃）从阳极输出再循环到阳极输入时，这样的再循环燃料组分不代表可用于其它用途的过剩量的可重整或重整燃料。相反，这样的再循环燃料组分仅指示降低燃料电池中的燃料利用率的需求。

[0266] 可重整燃料过剩率：计算可重整燃料过剩率是虑及这样的再循环燃料组分的一个选项，其缩窄了过剩燃料的定义，以在阳极输入料流中仅包括可重整燃料的 LHV。本文所

用的“可重整燃料过剩率”被定义为送往阳极和/或与阳极相关的重整段的可重整燃料的低位发热值与由于燃料电池阳极反应而在阳极中氧化的氢气的低位发热值的比率。在可重整燃料过剩率的定义下，不包括阳极进料中的任何 H_2 或 CO 的 LHV。仍可通过表征进入燃料电池阳极的实际组合物测量可重整燃料的这种 LHV，因此不需要区分再循环组分和新鲜组分。尽管一些未重整或部分重整燃料也可再循环，但在大多数方面中再循环到阳极的大部分燃料可相当于重整产物，如 H_2 或 CO。以数学方式表达，可重整燃料过剩率 (R_{RFS}) = LHV_{RF}/LHV_{OH}，其中 LHV_{RF} 是可重整燃料的低位发热值 (LHV) 且 LHV_{OH} 是在阳极中氧化的氢气的低位发热值 (LHV)。可通过从阳极入口料流的 LHV 中减去阳极出口料流的 LHV（例如，LHV(anode_in)-LHV(anode_out)）来计算在阳极中氧化的氢气的 LHV。在本发明的各种方面中，可以运行熔融碳酸盐燃料电池以具有至少大约 0.25，如至少大约 0.5，或至少大约 1.0，或至少大约 1.5，或至少大约 2.0，或至少大约 2.5，或至少大约 3.0，或至少大约 4.0 的可重整燃料过剩率。附加地或作为选择地，可重整燃料过剩率可以为大约 25.0 或更低。要指出，基于送往阳极的可重整燃料量相对于阳极中的氧化量的比率的这一较窄定义可区分具有低燃料利用率的两种类型的燃料电池运行方法。一些燃料电池通过将相当一部分的阳极输出物再循环回阳极输入而实现低燃料利用率。这种再循环能使阳极输入中的任何氢气再用作阳极的输入。这可降低重整量，因为即使在单次经过燃料电池时的燃料利用率低，至少一部分未用的燃料也可再循环用于稍后的流程。因此，具有多种多样的燃料利用值的燃料电池可具有相同的送往阳极重整段的可重整燃料与在阳极反应中氧化的氢气的比率。为了改变送往阳极重整段的可重整燃料与阳极中的氧化量的比率，需要识别具有原有含量的不可重整燃料的阳极进料，或需要取出阳极输出物中的未用燃料以用于其它用途，或两者。

[0267] 可重整氢过剩率：用于表征燃料电池运行的另一选项基于“可重整氢过剩率”。上文定义的可重整燃料过剩率是基于可重整燃料组分的低位发热值定义的。可重整氢过剩率被定义为送往阳极和/或与阳极相关的重整段的可重整燃料的可重整氢含量与由于燃料电池阳极反应而在阳极中反应的氢的比率。因此，“可重整氢过剩率”可作为 (RFC(reformable_anode_in)/(RFC(reformable_anode_in)-RFC(anode_out)) 计算，其中 RFC(reformable_anode_in) 是指阳极入口料流或流中的可重整燃料的可重整氢含量，而 RFC(anode_out) 是指阳极入口和出口料流或流中的燃料组分（如 H_2、CH_4 和/或 CO）的可重整氢含量。RFC 可以以摩尔/秒、摩尔/小时或类似单位表示。在送往阳极重整段的可重整燃料与阳极中的氧化量的大比率下运行燃料电池的方法的一个实例可以是进行过量重整以平衡燃料电池中的热发生和消耗的方法。将可重整燃料重整以形成 H_2 和 CO 是一个吸热过程。可通过燃料电池中的电流生成对抗这种吸热反应，所述电流生成也可产生过量热，其（大致）对应于由阳极氧化反应和碳酸盐形成反应生成的热量和以电流形式离开燃料电池的能量之差。阳极氧化反应/碳酸盐形成反应中涉及的每摩尔氢的过量热可大于通过重整生成 1 摩尔氢而吸收的热。因此，在传统条件下运行的燃料电池可表现出从入口到出口的升温。代替这种类型的传统运行，可以提高在与阳极相关的重整段中重整的燃料量。例如，可以重整额外的燃料以便可通过重整中消耗的热（大致）平衡放热燃料电池反应生成的热，或重整消耗的热甚至可超过燃料氧化生成的过量热，以致跨过燃料电池的温度下降。这可导致与电力生成所需的量相比氢显著过量。作为一个实例，送入燃料电池的阳极入口或相关重整段的进料可以基本由可重整燃料，如基本纯的甲烷进料构成。在使用这种燃料

发电的传统运行过程中，可以以大约 75％的燃料利用率运行熔融碳酸盐燃料电池。这意味着送往阳极的燃料含量的大约 75％（或 3/4）用于形成氢气，其随后在阳极中与碳酸根离子反应形成 H_2O 和 CO_2。在传统运行中，剩余大约 25％的燃料含量可以在燃料电池内重整成 H_2（或对燃料中的任何 CO 或 H_2 而言可以不反应地穿过燃料电池），然后在燃料电池外燃烧以形成 H_2O 和 CO_2 以向燃料电池的阴极入口供热。可重整氢过剩率在这种情形下可以为 4/(4-1) ＝ 4/3。

[0268] 电效率：本文所用的术语“电效率”（“EE”）被定义为由燃料电池产生的电化学动力除以燃料电池的燃料输入的低位发热值（“LHV”）率。燃料电池的燃料输入包括送往阳极的燃料以及用于保持燃料电池的温度的任何燃料，如送往与燃料电池相关的燃烧器的燃料。在本说明书中，由该燃料产生的动力可以以 LHV(el) 燃料率 (fuel rate) 描述。

[0269] 电化学动力：本文所用的术语“电化学动力”或 LHV(el) 是由燃料电池中连接阴极与阳极的电路和跨过燃料电池电解质的碳酸根离子转移生成的动力。电化学动力不包括燃料电池上游或下游的设备产生或消耗的动力。例如，由燃料电池排气料流中的热产生的电不被视为电化学动力的一部分。类似地，由燃料电池上游的燃气轮机或其它设备生成的动力不是生成的电化学动力的一部分。“电化学动力”不考虑燃料电池运行过程中消耗的电力或由直流电转化成交流电引起的任何损失。换言之，不从燃料电池产生的直流电力中减去用于维持燃料电池运行或以其它方式运行燃料电池的电力。本文所用的功率密度是电流密度乘以电压。本文所用的总燃料电池功率是功率密度乘以燃料电池面积。

[0270] 燃料输入：本文所用的术语“阳极燃料输入”，被称作 LHV(anode_in)，是阳极入口料流内的燃料量。术语“燃料输入”，被称作 LHV(in)，是送往燃料电池的燃料总量，包括阳极入口料流内的燃料量和用于保持燃料电池的温度的燃料量。基于本文提供的可重整燃料的定义，该燃料可包括可重整和不可重整的燃料。燃料输入不同于燃料利用率。

[0271] 总燃料电池效率：本文所用的术语“总燃料电池效率”（“TFCE”）被定义为：由燃料电池生成的电化学动力加上由燃料电池生成的合成气的 LHV 的速率，除以阳极的燃料输入的 LHV 的速率 (the rate of LHV)。换言之，TFCE ＝ (LHV(el)+LHV(sg net))/LHV(anode_in)，其中 LHV(anode_in) 是指送往阳极的燃料组分（如 H2、CH4 和 / 或 CO）的 LHV 的速率，且 LHV(sg net) 是指在阳极中产生合成气 (H2、CO) 的速率，其是阳极的合成气输入与阳极的合成气输出之差。LHV(el) 描述燃料电池的电化学动力生成。总燃料电池效率不包括由该燃料电池生成的热，其用于燃料电池外的有益利用。在运行中，由燃料电池生成的热可能被下游设备有益利用。例如，该热可用于生成额外的电力或用于加热水。当在本申请中使用该术语时，在燃料电池外实施的这些用途不是总燃料电池效率的一部分。总燃料电池效率仅针对燃料电池运行，并且不包括燃料电池上游或下游的动力生成或消耗。

[0272] 化学效率：本文所用的术语“化学效率”被定义为燃料电池的阳极排气中的 H_2 和 CO 的低位发热值或 LHV(sg out) 除以燃料输入或 LHV(in)。

[0273] 电效率和总系统效率都不考虑上游或下游工艺的效率。例如，可以有利地使用涡轮机排气作为燃料电池阴极的 CO_2 源。在这种布置中，涡轮机的效率不被视为电效率或总燃料电池效率计算的一部分。类似地，来自燃料电池的输出物可作为输入物再循环到燃料电池。当以单程模式计算电效率或总燃料电池效率时不考虑再循环回路。

[0274] 生成的合成气：本文所用的术语“生成的合成气”是阳极的合成气输入与阳极的

合成气输出之差。合成气可以至少部分用作阳极的输入或燃料。例如，系统可包括阳极再循环回路，其将来自阳极排气的合成气送回阳极入口，在此对其补充天然气或其它合适的燃料。生成的合成气 LHV(sg net) = (LHV(sg out)-LHV(sg in))，其中 LHV(sg in) 和 LHV(sg out) 分别是指阳极入口中的合成气和阳极出口料流或流中的合成气的 LHV。要指出，通过阳极内的重整反应生成的至少一部分合成气通常可以在阳极中用于发电。用于发电的氢气不包括在“生成的合成气”的定义中，因为其不离开阳极。本文所用的术语“合成气比率”是生成的净合成气的 LHV 除以阳极的燃料输入的 LHV 或 LHV(sg net)/LHV(anode in)。可以使用合成气和燃料的摩尔流速代替 LHV 以表示摩尔基合成气比率和摩尔基生成的合成气。

[0275] 汽碳比 (S/C)：本文所用的汽碳比 (S/C) 是料流中的蒸汽与料流中的可重整碳的摩尔比。CO 和 CO_2 形式的碳不计为这一定义中的可重整碳。可以在该系统中的不同点测量和 / 或控制汽碳比。例如，可以控制阳极入口料流的组成以实现适合阳极中的重整的 S/C。可作为 H_2O 的摩尔流速除以（燃料的摩尔流速乘以燃料中的碳原子数（例如甲烷为 1）的乘积）给出 S/C。因此，$S/C = f_{H2O}/(f_{CH4}X\#C)$，其中 f_{H2O} 是水的摩尔流速，其中 f_{CH4} 是甲烷（或其它燃料）的摩尔流速且 #C 是燃料中的碳数。

[0276] EGR 比：本发明的各方面可以使用与燃料电池协作的涡轮机。综合燃料电池和涡轮机系统可包括排气再循环（“EGR”）。在 EGR 系统中，可以将涡轮机生成的至少一部分排气送往热回收发生器。可以将另一部分排气送往燃料电池。EGR 比描述了送往燃料电池的排气量 vs 送往燃料电池或热回收发生器的总排气。本文所用的“EGR 比”是排气的燃料电池相关部分的流速除以燃料电池相关部分和送往热回收发生器的回收相关部分的总流速。

[0277] 在本发明的各种方面中，熔融碳酸盐燃料电池 (MCFC) 可用于促进从含 CO_2 料流中分离 CO_2，同时也生成额外的电力。可以利用与燃烧基发电机（其可以向燃料电池的阴极部分提供至少一部分输入进料）的协同作用进一步增强 CO_2 分离。

[0278] 燃料电池和燃料电池部件：在这一论述中，燃料电池可相当于单电池，其中阳极和阴极被电解质隔开。阳极和阴极可接收输入气流以促进各自的阳极和阴极反应，以将电荷传输过电解质和生成电力。燃料电池堆可代表集成单元中的多个电池。尽管燃料电池堆可包括多个燃料电池，但燃料电池通常可以并联并可（大致）表现得像它们集体代表尺寸更大的单燃料电池。当向燃料电池堆的阳极或阴极输送输入料流时，该燃料堆可包括用于在该堆中的各电池之间分配输入料流的流动通道和用于合并来自各电池的输出料流的流动通道。在这一论述中，燃料电池阵列可用于表示串联、并联或以任何其它方便的方式（例如串联和并联的组合）布置的多个燃料电池（如多个燃料电池堆）。燃料电池阵列可包括燃料电池和 / 或燃料电池堆的一个或多个段，其中来自第一段的阳极 / 阴极输出可充当第二段的阳极 / 阴极输入。要指出，燃料电池阵列中的阳极不必以与该阵列中的阴极相同的方式连接。为方便起见，燃料电池阵列的第一阳极段的输入可以被称作该阵列的阳极输入，且燃料电池阵列的第一阴极段的输入可以被称作该阵列的阴极输入。类似地，最终阳极 / 阴极段的输出可以被称作该阵列的阳极 / 阴极输出。

[0279] 应该理解的是，在本文中提到使用燃料电池通常是指由单燃料电池构成的“燃料电池堆”，更通常是指使用流体连通的一个或多个燃料电池堆。通常可以将独立燃料电池元件（板）一起“堆叠”在被称作“燃料电池堆”的矩形阵列中。这种燃料电池堆通常可以获取进料流并将反应物分配在所有单独的燃料电池元件之间，然后可以从各元件收集产物。当

被视为一个单元时，燃料电池堆在运行中可以被当作整体，尽管由许多（通常数十或数百）单独燃料电池元件构成。这些单独燃料电池元件通常可具有类似电压（因为反应物和产物浓度类似），当这些元件电串联时，总电输出可来自所有电池元件中的所有电流的总和。电池堆也可以串联布置以产生高电压。并联布置可提升电流。如果可提供足够大体积的燃料电池堆以加工给定排气流，则本文描述的系统和方法可以与单个熔融碳酸盐燃料电池堆一起使用。在本发明的另一些方面中，由于多种原因可能合意或需要的是多个燃料电池堆。

[0280] 对本发明而言，除非另行规定，术语“燃料电池”应被理解为也是指和/或被定义为包括涉及具有单输入和输出的由一个或多个单独燃料电池元件的组合构成的燃料电池堆，因为这是燃料电池在实践中的通常使用方式。类似地，除非另行规定，术语燃料电池（复数）应被理解为也是指和/或被定义为包括多个独立的燃料电池堆。换言之，除非特别说明，本文内的所有提及可互换地是指燃料电池堆作为“燃料电池”运行。例如，商业规模的燃烧发电机生成的排气体积可能太大以致无法通过常规尺寸的燃料电池（即单电池堆）加工。为了加工整个排气，可以并联布置多个燃料电池（即两个或更多个独立的燃料电池或燃料电池堆），以使各燃料电池可加工（大致）相等部分的燃烧排气。尽管可以使用多个燃料电池，但考虑到其（大致）相等部分的燃烧排气，各燃料电池通常可以大致类似的方式运行。

[0281] “内部重整”和“外部重整”：燃料电池或燃料电池堆可包括一个或多个内部重整段。本文所用的术语“内部重整”是指在燃料电池、燃料电池堆的主体内或以其它方式在燃料电池组件内发生的燃料重整。通常与燃料电池联合使用的外部重整在位于燃料电池堆外的独立设备件中进行。换言之，外部重整器的主体不与燃料电池或燃料电池堆的主体直接物理接触。在典型的布置中，可以将来自外部重整器的输出送入燃料电池的阳极入口。除非特别另行说明，本申请内描述的重整是内部重整。

[0282] 内部重整可以在燃料电池阳极内进行。附加地或作为选择地，内部重整可以在集成在燃料电池组件内的内部重整元件内进行。集成的重整元件可位于燃料电池堆内的燃料电池元件之间。换言之，电池堆中的盘之一可以是重整段而非燃料电池元件。一方面，燃料电池堆内的流动布置将燃料导向内部重整元件，然后导入燃料电池的阳极部分。因此，从流动角度看，内部重整元件和燃料电池元件可串联布置在燃料电池堆内。本文所用的术语“阳极重整”是在阳极内发生的燃料重整。本文所用的术语“内部重整”是在集成的重整元件内而非在阳极段中发生的重整。

[0283] 在一些方面中，在燃料电池组件内的重整段可以被认为与燃料电池组件中的阳极相关。在另一些方面中，对于可与阳极相关（如与多个阳极相关）的燃料电池堆中的重整段，可提供将来自重整段的输出料流送入至少一个阳极的流动路径。这可相当于具有燃料电池板的初始段，该段不与电解质接触而是仅充当重整催化剂。相关重整段的另一选项可以是具有单独的集成重整段作为燃料电池堆中的元件之一，其中将来自集成重整段的输出送回燃料电池堆中的一个或多个燃料电池的输入侧。

[0284] 从热集成角度看，燃料电池堆中的特征高度可以是单独燃料电池堆元件的高度。要指出，独立的重整阶段和/或独立的吸热反应阶段在该堆中可具有与燃料电池不同的高度。在这种情况下，可以使用燃料电池元件的高度作为特征高度。在一些方面中，集成的吸热反应阶段可以被定义为与一个或多个燃料电池热集成的阶段，以使该集成的吸热反应阶

段可利用来自燃料电池的热作为吸热反应的热源。这种集成的吸热反应阶段可以被定义为与向该集成阶段供热的任何燃料电池相距不到一个堆元件高度的 5 倍。例如，集成的吸热反应阶段（如重整阶段）可以与热集成的任何燃料电池相距不到一个堆元件高度的 5 倍，如不到一个堆元件高度的 3 倍。在这一论述中，代表燃料电池元件的相邻堆元件的集成重整阶段和 / 或集成吸热反应阶段可以被定义为与相邻燃料电池元件相距大约一个堆元件高度或更低。

[0285] 在一些方面中，与燃料电池元件热集成的独立重整阶段可相当于与燃料电池元件相关的重整阶段。在这样的方面中，集成的燃料电池元件可以向相关重整阶段提供至少一部分热，且相关重整阶段可以将至少一部分重整阶段输出物作为燃料料流供往集成的燃料电池。在另一些方面中，独立重整阶段可以与燃料电池集成以传热，但不与燃料电池相关。在这种类型的情况中，该独立重整阶段可以从燃料电池接收热，但可以决定不使用重整阶段的输出物作为燃料电池的输入。相反，可以决定将这种重整阶段的输出物用于另一用途，如将该输出物直接添加到阳极排气料流中，和 / 或形成来自燃料电池组件的独立输出料流。

[0286] 更通常，燃料电池堆中的独立堆元件可用于进行可利用集成的燃料电池堆元件提供的废热的任何方便类型的吸热反应。代替适用于对烃燃料料流进行重整反应的板，独立堆元件可具有适用于催化另一类型的吸热反应的板。燃料电池堆中的歧管或入口导管的其它布置可用于向各堆元件提供适当的输入料流。附加地或作为选择地，类似的歧管或出口导管的其它布置可用于从各堆元件中取出输出料流。任选地，可以从燃料电池堆中取出来自堆中的吸热反应阶段的输出料流而不使该输出料流经过燃料电池阳极。在这样的任选方面中，放热反应的产物可以因此在不经过燃料电池阳极的情况下离开燃料电池堆。可以在燃料电池堆中的堆元件中进行的其它类型的吸热反应的实例可包括，但不限于，乙醇脱水以形成乙烯，和乙烷裂化。

[0287] 再循环：如本文定义，一部分燃料电池输出（如阳极排气或从阳极排气中分离或取出的料流）再循环到燃料电池入口，这可相当于直接或间接再循环料流。料流直接再循环到燃料电池入口被定义为不经过中间过程的料流再循环，而间接再循环涉及使料流经过一个或多个中间过程后的再循环。例如，如果阳极排气在再循环之前经过 CO_2 分离段，这被视为阳极排气的间接再循环。如果将阳极排气的一部分，如从阳极排气中取出的 H_2 料流送入用于将煤转化成适合引入燃料电池的燃料的气化器，这也被视为间接再循环。

[0288] 阳极输入和输出

[0289] 在本发明的各种方面中，可以向 MCFC 阵列供入在阳极入口接收的燃料，其包含例如氢气和烃，如甲烷（或者，可能含有不同于 C 和 H 的杂原子的烃质或类烃化合物）。送入阳极的大部分甲烷（或其它烃质或类烃化合物）通常是新鲜甲烷。在本说明书中，新鲜燃料，如新鲜甲烷是指不是从另一燃料电池工艺再循环而来的燃料。例如，从阳极出口料流再循环到阳极入口的甲烷不可被视为“新鲜”甲烷，而是可以被描述为再生甲烷。所用燃料源可以与其它部件分享，如涡轮机，涡轮机利用一部分燃料源向阴极输入提供含 CO_2 料流。该燃料源输入可包括与该燃料成一定比例的水，所述比例适于重整段中重整烃（或类烃）化合物生成氢气。例如，如果甲烷是用于重整以生成 H_2 的燃料输入，水与燃料的摩尔比可以为大约 1 比 1 至大约 10 比 1，如至少大约 2 比 1。4 比 1 或更大的比率对外部重整是典型的，但

更低的值对内部重整是典型的。在H_2作为燃料源的一部分的程度上，在一些任选方面中，在燃料中可能不需要额外的水，因为阳极处的H_2氧化可倾向于产生可用于重整该燃料的H_2O。燃料源还可任选含有该燃料源附带的组分（例如，天然气进料可含有一定含量的CO_2作为附加组分）。例如，天然气进料可含有CO_2、N_2和/或其它惰性（稀有）气体作为附加组分。任选地，在一些方面中，该燃料源还可含有CO，如来自阳极排气的再循环部分的CO。进入燃料电池组件的燃料中的CO的附加或替代的可能来源可以是由进入燃料电池组件之前对燃料进行的烃燃料蒸汽重整生成的CO。

[0290] 更通常，各种类型的燃料料流可适合用作熔融碳酸盐燃料电池的阳极的输入料流。一些燃料料流可相当于含有烃和/或还可包含不同于C和H的杂原子的类烃化合物的料流。在这一论述中，除非另行规定，用于MCFC阳极的含烃燃料料流的提及被定义为包括含有这样的类烃化合物的燃料料流。烃（包括类烃）燃料料流的实例包括天然气、含C1-C4碳化合物（如甲烷或乙烷）的料流和含有更重的C5+烃（包括类烃化合物）的料流以及它们的组合。用于阳极输入中的可能的燃料料流的另一些附加或替代的实例可包括生物气类型的料流，如由有机材料的天然（生物）分解产生的甲烷。

[0291] 在一些方面中，熔融碳酸盐燃料电池可用于加工由于存在稀释剂化合物而具有低能量含量的输入燃料料流，如天然气和/或烃料流。例如，甲烷和/或天然气的一些来源是可包括显著量的CO_2或其它惰性分子，如氮、氩或氦的来源。由于存在提高量的CO_2和/或惰性物，可降低基于该来源的燃料料流的能量含量。低能量含量的燃料用于燃烧反应（如用于为燃烧供能的涡轮机供能）会造成困难。但是，熔融碳酸盐燃料电池可基于低能量含量的燃料源发电并对燃料电池的效率具有降低的或最小的影响。附加气体体积的存在可需要附加的热将燃料温度升至用于重整和/或阳极反应的温度。另外，由于燃料电池阳极内的水煤气变换反应的平衡性质，附加CO_2的存在可影响阳极输出中存在的H_2和CO的相对量。但是，另外，惰性化合物对重整和阳极反应可只具有极小的直接影响。熔融碳酸盐燃料电池的燃料料流中CO_2和/或惰性化合物（当存在时）的量可以为至少大约1体积%，如至少大约2体积%，或至少大约5体积%，或至少大约10体积%，或至少大约15体积%，或至少大约20体积%，或至少大约25体积%，或至少大约30体积%，或至少大约35体积%，或至少大约40体积%，或至少大约45体积%，或至少大约50体积%，或至少大约75体积%。附加地或作为选择地，熔融碳酸盐燃料电池的燃料料流中CO_2和/或惰性化合物的量可以为大约90体积%或更低，如大约75体积%或更低，或大约60体积%或更低，或大约50体积%或更低，或大约40体积%或更低，或大约35体积%或更低。

[0292] 阳极输入料流的可能来源的另一些实例可对应于炼油和/或其它工业工艺的输出料流。例如，炼焦是在许多炼油厂中用于将重质化合物转化成较低沸程的常见工艺。炼焦通常产生含有在室温下为气体的多种化合物，包括CO和各种C1-C4烃的废气。这种废气可用作阳极输入料流的至少一部分。附加地或作为选择地，另一些炼油厂废气料流可适合包含在阳极输入料流中，如在裂化或其它炼油厂工艺过程中生成的轻馏分(C1-C4)。附加地或作为选择地，另一些合适的炼油厂料流可包括含CO或CO_2的炼油厂料流，其还含有H_2和/或可重整燃料化合物。

[0293] 附加地或作为选择地，阳极输入的另一些可能的来源包括具有提高的水含量的料流。例如，来自乙醇厂（或另一类型的发酵工艺）的乙醇输出料流在最终蒸馏之前可包括

相当一部分的 H_2O。这样的 H_2O 通常可对燃料电池的运行仅造成极小的影响。因此，醇（或其它发酵产物）和水的发酵混合物可用作阳极输入料流的至少一部分。

[0294] 生物气或沼气是阳极输入的另一附加或替代的可能来源。生物气可能主要包含甲烷和 CO_2 并通常通过有机物的分解或消化产生。厌氧菌可用于消化有机物并产生生物气。可以在用作阳极输入之前从生物气中除去杂质，如含硫化合物。

[0295] 来自 MCFC 阳极的输出料流可包括 H_2O、CO_2、CO 和 H_2。任选地，该阳极输出料流还可具有进料中的未反应燃料（如 H_2 或 CH_4）或惰性化合物作为附加输出组分。代替使用这种输出料流作为向重整反应供热的燃料源或作为用于加热电池的燃烧燃料，可以对阳极输出料流进行一次或多次分离以将 CO_2 与具有作为另一工艺的输入的潜在价值的组分，如 H_2 或 CO 分离。H_2 和 / 或 CO 可用作用于化学合成的合成气、用作用于化学反应的氢源和 / 或用作具有降低的温室气体排放的燃料。

[0296] 在各种方面中，阳极的输出料流的组成可受若干因素影响。可影响阳极输出组成的因素可包括阳极的输入料流的组成、由燃料电池生成的电流量和 / 或阳极出口的温度。由于水煤气变换反应的平衡性质，阳极出口的温度是有关联的。在典型阳极中，构成阳极壁的至少一个板可适用于催化水煤气变换反应。因此，如果 a) 阳极输入料流的组成已知，b) 阳极输入料流中的可重整燃料的重整程度已知，和 c) 从阴极传输到阳极的碳酸根的量（对应于生成的电流量）已知，则可基于水煤气变换反应的平衡常数确定阳极输出的组成。

[0297] $K_{eq} = [CO_2][H_2]/[CO][H_2O]$

[0298] 在上述方程中，K_{eq} 是该反应在给定温度和压力下的平衡常数，且 [X] 是组分 X 的分压。基于水煤气变换反应，可以指出，阳极输入中提高的 CO_2 浓度可倾向于导致额外的 CO 形成（以 H_2 为代价），而提高的 H_2O 浓度可倾向于导致额外的 H_2 形成（以 CO 为代价）。

[0299] 为了测定阳极输出的组成，可以使用阳极输入的组成作为起点。然后可以改变这种组成以反映在阳极内可能发生的任何可重整燃料的重整程度。这种重整可降低阳极输入的烃含量，变换成增加的氢气和 CO_2。接着，基于生成的电流量，可以降低阳极输入中的 H_2 量，变换成额外的 H_2O 和 CO_2。然后可以基于水煤气变换反应的平衡常数调节这种组成以测定 H_2、CO、CO_2 和 H_2O 的出口浓度。

[0300] 表 1 显示对于典型类型的燃料在不同燃料利用率下的阳极排气组成。阳极排气组成可反映阳极重整反应、水煤气变换反应和阳极氧化反应的综合结果。表 1 中的输出组成值通过假设阳极输入组成具有大约 2 比 1 的汽 (H_2O) / 碳（可重整燃料）比而计算。假设可重整燃料是甲烷，假设其 100％重整成氢气。假设阳极输入中的初始 CO_2 和 H_2 浓度可忽略不计，而输入 N_2 浓度为大约 0.5％。如该表中所示使燃料利用率 U_f（如本文中定义）从大约 35％到大约 70％改变。为了测定平衡常数的准确值，假设燃料电池阳极的出口温度为大约 650℃。

[0301] 表 1- 阳极排气组成

[0302]

Uf	%	35%	40%	45%	50%	55%	60%	65%	70%
阳极排气组成									
H_2O	%，湿	32.5%	34.1%	35.5%	36.7%	37.8%	38.9%	39.8%	40.5%
CO_2	%，湿	26.7%	29.4%	32.0%	34.5%	36.9%	39.3%	41.5%	43.8%
H_2	%，湿	29.4%	26.0%	22.9%	20.0%	17.3%	14.8%	12.5%	10.4%
CO	%，湿	10.8%	10.0%	9.2%	8.4%	7.5%	6.7%	5.8%	4.9%
N_2	%，湿	0.5%	0.5%	0.5%	0.4%	0.4%	0.4%	0.4%	0.4%
CO_2	%，干	39.6%	44.6%	49.6%	54.5%	59.4%	64.2%	69.0%	73.7%
H_2	%，干	43.6%	39.4%	35.4%	31.5%	27.8%	24.2%	20.7%	17.5%
CO	%，干	16.1%	15.2%	14.3%	13.2%	12.1%	10.9%	9.7%	8.2%
N_2	%，干	0.7%	0.7%	0.7%	0.7%	0.7%	0.7%	0.7%	0.7%
H_2/CO		2.7	2.6	2.5	2.4	2.3	2.2	2.1	2.1
$(H_2-CO_2)/(CO+CO_2)$		0.07	-0.09	-0.22	-0.34	-0.44	-0.53	-0.61	-0.69

[0303] 表 1 显示在条件和阳极输入组成的特定设置下的阳极输出组成。更通常，在各种方面中，阳极输出可包括大约 10 体积％至大约 50 体积％ H_2O。H_2O 的量可在很大程度上变化，因为阳极中的 H_2O 可由阳极氧化反应产生。如果将超过重整所需量的过量 H_2O 引入阳极，则除由于燃料重整和水煤气变换反应消耗（或生成）的 H_2O 外，该过量 H_2O 通常会大多未反应地通过。阳极输出中的 CO_2 浓度也可很大程度上变化，如大约 20 体积％至大约 50 体积％ CO_2。生成的电流量以及阳极输入料流中的 CO_2 量都可影响 CO_2 量。附加地或作为选择地，取决于阳极中的燃料利用率，阳极输出中的 H_2 量可以为大约 10 体积％ H_2 至大约 50 体积％ H_2。在阳极输出中，CO 量可以为大约 5 体积％至大约 20 体积％。要指出，对于给定燃料电池，阳极输出中的相对于 H_2 量的 CO 量可部分取决于在燃料电池中存在的温度和压力下的水煤气变换反应的平衡常数。附加地或作为选择地，阳极输出还可包括 5 体积％或更少的各种其它组分，如 N_2、CH_4（或其它未反应的含碳燃料）和 / 或其它组分。

[0304] 任选地，如果需要，可在阳极输出后包括一个或多个水煤气变换反应段以将阳极输出中的 CO 和 H_2O 转化成 CO_2 和 H_2。可以例如通过在较低温度下使用水煤气变换反应器将阳极输出中存在的 H_2O 和 CO 转化成 H_2 和 CO_2 来提高阳极输出中存在的 H_2 量。或者，可以提高温度并可以逆转水煤气变换反应，以由 H_2 和 CO_2 产生更多 CO 和 H_2O。水是在阳极处发生的反应的预期输出，因此该阳极输出通常可具有与阳极输出中存在的 CO 量相比过量的 H_2O。或者，可以在阳极出口后但在水煤气变换反应前将 H_2O 添加到料流中。由于在重整过程中的不完全碳转化和 / 或由于在重整条件或在阳极反应过程中存在的条件下 H_2O、CO、H_2 和 CO_2 之间的平衡反应（即水煤气变换平衡），在阳极输出中可存在 CO。水煤气变换反应器可以在以 CO 和 H_2O 为代价进一步朝形成 CO_2 和 H_2 的方向驱动该平衡的条件下运行。较

高温度可以往往有利于形成 CO 和 H_2O。因此，运行水煤气变换反应器的一个选项可以是在合适的温度，例如大约 190℃至大约 210℃下使阳极输出料流暴露在合适的催化剂，如包括氧化铁、氧化锌、载铜氧化锌等的催化剂下。任选地该水煤气变换反应器可包括用于降低阳极输出料流中的 CO 浓度的两个段，其中第一较高温段在至少大约 300℃至大约 375℃的温度下运行，第二较低温段在大约 225℃或更低，如大约 180℃至大约 210℃的温度下运行。除提高阳极输出中存在的 H_2 量外，附加地或作为选择地，水煤气变换反应可以以 CO 为代价提高 CO_2 量。这可以将难除去的一氧化碳 (CO) 变换成二氧化碳，二氧化碳可以更容易地通过冷凝（例如低温脱除）、化学反应（如胺脱除）和 / 或其它 CO_2 脱除法除去。附加地或作为选择地，可能合意的是提高阳极排气中存在的 CO 含量以实现所需 H_2/CO 比。

[0305] 在经过任选水煤气变换反应段后，可以使阳极输出经过一个或多个分离段以从阳极输出料流中除去水和 / 或 CO_2。例如，可通过单独或组合使用一种或多种方法对阳极输出进行 CO_2 分离来形成一个或多个 CO_2 输出料流。这些方法可用于生成具有 90 体积％或更高，如至少 95％体积％ CO_2 或至少 98 体积％ CO_2 的 CO_2 含量的 CO_2 输出料流。这些方法可回收阳极输出的 CO_2 含量的大约至少 70％，如阳极输出的 CO_2 含量的至少大约 80％，或至少大约 90％。或者，在一些方面中可能合意的是回收阳极输出料流内的仅一部分 CO_2，回收的 CO_2 部分为阳极输出中的 CO_2 的大约 33％至大约 90％，如至少大约 40％，或至少大约 50％。例如，可能合意的是使一些 CO_2 留在阳极输出料流中以在随后的水煤气变换段中实现所需组成。合适的分离方法可包括使用物理溶剂（例如，SelexolTM 或 RectisolTM）；胺或其它碱（例如，MEA 或 MDEA）；制冷（例如，深冷分离）；变压吸附；真空变压吸附；和它们的组合。深冷 CO_2 分离器可以是合适的分离器的一个实例。随着将阳极输出冷却，阳极输出中的大部分水可作为冷凝（液）相分离出。贫水阳极输出料流的进一步冷却和 / 或加压可随后分离高纯 CO_2，因为阳极输出料流中的其它剩余组分（如 H_2、N_2、CH_4）不容易形成冷凝相。取决于运行条件，深冷 CO_2 分离器可回收流中存在的 CO_2 的大约 33％至大约 90％。

[0306] 从阳极排气中除水以形成一个或多个水输出料流也是有益的，无论这是在进行 CO_2 分离之前、之中还是之后。阳极输出中的水量可随所选运行条件而变。例如，在阳极入口建立的汽 / 碳比可影响阳极排气中的水含量，高汽 / 碳比通常导致大量的水，其可以未反应地通过阳极和 / 或仅由于阳极中的水煤气变换平衡而反应。根据该方面，阳极排气中的水含量可相当于阳极排气中的体积的多达大约 30％或更大。附加地或作为选择地，水含量可以为阳极排气体积的大约 80％或更小。尽管可通过压缩和 / 或冷却及随之冷凝除去这样的水，但这种水的脱除可需要额外的压缩机功率和 / 或热交换表面积和大量的冷却水。除去一部分这种过量水的一种有益方式可基于使用吸附剂床，其可从湿阳极流出物中捕获水分，然后可利用干燥的阳极进料气“再生”，以向阳极进料提供额外的水。HVAC- 型（加热、通风和空气调节）吸附轮设计是适用的，因为阳极排气和入口可在压力上类似，且从一个料流到另一料流的轻微泄漏对整个工艺的影响极小。在使用深冷法进行 CO_2 脱除的实施方案中，在 CO_2 脱除之前或之中除水可能是合意的，包括通过三乙二醇 (TEG) 系统和 / 或干燥剂除水。相反，如果使用胺洗除去 CO_2，则可以在 CO_2 脱除段下游从阳极排气中除水。

[0307] 代替性地或除了 CO_2 输出料流和 / 或水输出料流外，阳极输出还可用于形成一个或多个含有所需化学或燃料产物的产物料流。这样的产物料流可相当于合成气料流、氢气料流或合成气产物和氢气产物料流两者。例如，可形成含有至少大约 70 体积％ H_2，如至少大

约 90 体积％ H_2或至少大约 95 体积％ H_2的氢气产物料流。附加地或作为选择地，可形成含有总共至少大约 70 体积％的 H_2和 CO，如至少大约 90 体积％的 H_2和 CO 的合成气料流。所述一个或多个产物料流可具有相当于阳极输出中的总 H_2和 CO 气体体积的至少大约 75％，如总 H_2和 CO 气体体积的至少大约 85％或至少大约 90％的气体体积。要指出，基于利用水煤气变换反应段在产物之间进行转化，产物料流中 H_2和 CO 的相对量可能不同于阳极输出中的 H_2/CO 比。

[0308] 在一些方面中，可能合意的是除去或分离阳极输出中存在的一部分 H_2。例如，在一些方面中阳极排气中的 H_2/CO 比可以为至少大约 3.0:1。相反，利用合成气的工艺，如费托合成可以以不同比率，如接近 2:1 的比率消耗 H_2和 CO。一个备选方案可以是利用水煤气变换反应改变阳极输出的含量以具有更接近所需合成气组成的 H_2/CO 比。另一备选方案可以是利用膜分离除去阳极输出中存在的一部分 H_2以实现所需 H_2/CO 比，或使用膜分离和水煤气变换反应的组合。利用膜分离除去阳极输出中的仅一部分 H_2的一个优点可以是在相对温和条件下进行所需分离。由于一个目标可以是产生仍具有显著 H_2含量的渗余物，可通过膜分离生成高纯氢的渗透物而不需要苛刻的条件。例如，渗透物侧可以在比环境压力高的压力下，同时仍具有足以进行膜分离的驱动力，而非在膜渗透物侧上具有大约 100kPaa 或更低（如环境压力）的压力。附加地或作为选择地，可以使用吹扫气体如甲烷提供膜分离的驱动力。这可降低 H_2渗透物料流的纯度，但取决于该渗透物料流的所需用途，可能是有利的。

[0309] 在本发明的各种方面中，至少一部分阳极排气料流（优选在分离 CO_2和 / 或 H_2O 后）可用作燃料电池和相关重整段外的工艺的进料。在各种方面中，阳极排气可具有大约 1.5:1 至大约 10:1，如至少大约 3.0:1，或至少大约 4.0:1，或至少大约 5.0:1 的 H_2/CO 比。可以由阳极排气生成或取出合成气料流。阳极排气，任选在分离 CO_2和 / 或 H_2O 之后和任选在进行水煤气变换反应和 / 或膜分离以除去过量氢气之后，可相当于含有相当一部分 H_2和 / 或 CO 的料流。对于具有相对较低 CO 含量的料流，如 H_2/CO 比为至少大约 3:1 的料流，该阳极排气适合用作 H_2进料。可获益于 H_2进料的工艺的实例可包括，但不限于，炼油厂工艺、氨合成装置或（不同）发电系统中的涡轮机或其组合。根据用途，更低的 CO_2含量可能是合意的。对于具有小于大约 2.2 比 1 和大于大约 1.9 比 1 的 H_2/CO 比的料流，该料流可适合用作合成气进料。可获益于合成气进料的工艺的实例可包括，但不限于，气至液装置（如使用借助非变换催化剂的费托法的装置）和 / 或甲醇合成装置。用作外部工艺的进料的阳极排气的量可以是任何方便的量。任选地，当使用一部分阳极排气作为外部工艺的进料时，第二部分的阳极排气可再循环到阳极输入和 / 或再循环到燃烧供能发电机的燃烧区。

[0310] 可用于不同类型的费托合成工艺的输入料流可提供可以适合由阳极输出生成的不同类型的产物料流的一个实例。对于使用变换催化剂，如铁基催化剂的费托合成反应系统，该反应系统的所需输入料流除 H_2和 CO 外还可包括 CO_2。如果在输入料流中不存在足量的 CO_2，则具有水煤气变换活性的费托催化剂可消耗 CO 以生成额外的 CO_2，导致可能 CO 不足的合成气。为了将这种费托工艺与 MCFC 燃料电池集成，可以运行阳极输出的分离段以保持合成气产物中的所需 CO_2（和任选 H_2O）量。相反，对基于非变换催化剂的费托催化剂，产物料流中存在的任何 CO_2可充当费托反应系统中的惰性组分。

[0311] 在用吹扫气体，如甲烷吹扫气体吹扫膜的方面中，甲烷吹扫气体可相当于用作阳

极燃料或用于不同的低压工艺，如锅炉、炉、燃气轮机或其它燃料消耗装置的甲烷料流。在这一方面中，跨过该膜的低水平 CO_2 渗透可具有极小后果。可能渗透过膜的这种 CO_2 对阳极内的反应具有极小影响，并且这种 CO_2 可保留在阳极产物中。因此，由于渗透而跨膜损失的 CO_2（如果有的话）不需要再转移通过 MCFC 电解质。这可以显著降低对透氢膜的分离选择性要求。这可允许例如使用具有较低选择性的较高渗透率膜，其可以使使用较低压力和/或降低的膜表面积成为可能。在本发明的这一方面中，吹扫气体的体积可以为阳极排气中的氢气体积的大倍数，这能使渗透物侧上的有效氢气浓度保持接近 0。由此分离的氢气可并入涡轮机的进料甲烷中，在此其可以如上所述增强涡轮机燃烧特征。

[0312] 要指出，在阳极中生成的过量 H_2 可代表已分离出温室气体的燃料。阳极输出中的任何 CO_2 可容易地从阳极输出中分离，如通过使用胺洗、深冷 CO_2 分离器和/或变压或真空变压吸附法。阳极输出的几种组分（H_2、CO、CH_4）不容易除去，而 CO_2 和 H_2O 通常可以容易除去。根据该实施方案，可以分离出阳极输出中的 CO_2 的至少大约 90 体积%，形成相对高纯的 CO_2 输出料流。因此，可以有效分离出在阳极中生成的任何 CO_2 以形成高纯 CO_2 输出料流。在分离后，阳极输出的剩余部分可主要相当于具有化学和/或燃料价值的组分以及降低量的 CO_2 和/或 H_2O。由于由原始燃料（在重整前）生成的相当一部分 CO_2 可已被分离出，可以降低由剩余部分的阳极输出的随后燃烧生成的 CO_2 量。特别地，在剩余部分的阳极输出中的燃料是 H_2 的程度上，通常不能由这种燃料的燃烧形成额外的温室气体。

[0313] 可以对阳极排气施以各种气体加工选择，包括水煤气变换和组分的互相分离。两种一般的阳极加工方案显示在图 1 和 2 中。

[0314] 图 1 示意性显示与化学合成工艺联合运行熔融碳酸盐燃料电池的燃料电池阵列的反应系统的一个实例。在图 1 中，向与燃料电池 120（如作为燃料电池阵列中的燃料电池堆的一部分的燃料电池）的阳极 127 相关的一个（或多个）重整段 110 提供燃料料流 105。与燃料电池 120 相关的重整段 110 可以在燃料电池组件内。在一些任选方面中，也可以使用外部重整段（未显示）在将输入料流送入燃料电池组件之前重整输入料流中的一部分可重整燃料。燃料料流 105 可优选包括可重整燃料，如甲烷、其它烃和/或其它类烃化合物，如含有碳-氢键的有机化合物。燃料料流 105 还可任选含有 H_2 和/或 CO，如由任选的阳极再循环料流 185 提供的 H_2 和/或 CO。要指出，阳极再循环料流 185 是任选的，并且在许多方面中，没有直接或通过与燃料料流 105 或重整燃料料流 115 结合而间接地从阳极排气 125 回到阳极 127 的再循环流。在重整后，可以将重整燃料料流 115 送入燃料电池 120 的阳极 127。也可以将含 CO_2 和 O_2 的料流 119 送入阴极 129。来自燃料电池的阴极部分 129 的碳酸根离子（CO_3^{2}）流 122 可提供阳极燃料电池反应所需的其余反应物。基于阳极 127 中的反应，所得阳极排气 125 可包括 H_2O、CO_2、对应于不完全反应的燃料的一种或多种组分（H_2、CO、CH_4 或与可重整燃料对应的其它组分）和任选一种或多种额外非反应性组分，如 N_2 和/或作为燃料料流 105 的一部分的其它污染物。然后可以将阳极排气 125 送入一个或多个分离段。例如，CO_2 脱除段 140 可对应于深冷 CO_2 脱除系统、用于除去酸性气体，如 CO_2 的胺洗段或用于从阳极排气中分离 CO_2 输出料流 143 的另一合适类型的 CO_2 分离段。任选地，阳极排气可首先经过水煤气变换反应器 130 以将阳极排气中存在的任何 CO（与一些 H_2O 一起）转化成任选水煤气变换的阳极排气 135 中的 CO_2 和 H_2。取决于 CO_2 脱除段的性质，水冷凝或脱除段 150 可能是合意的以从阳极排气中除去水输出料流 153。尽管在图 1 中显示的是在

CO_2分离段 140 之后，但其可任选位于 CO_2分离段 140 之前。另外，可使用任选的用于分离 H_2的膜分离段 160 以生成 H_2的高纯渗透物料流 163。所得渗余物料流 166 可随后用作化学合成工艺的进料。附加地或作为选择地，料流 166 可以在第二水煤气变换反应器 131 中变换以将 H_2、CO 和 CO_2含量调节至不同比率，产生进一步用于化学合成工艺的输出料流 168。在图 1 中，显示的是从渗余物料流 166 中取出阳极再循环料流 185，但附加地或作为选择地，可以从各种分离段内或之间的其它方便的位置取出阳极再循环料流 185。附加地或作为选择地，分离段和变换反应器可以以不同次序和 / 或以并联构造配置。最后，可作为阴极 129 的输出生成具有降低的 CO_2含量的料流 139。为简单起见，没有显示在该方法中可能有用的各种压缩和供热 / 除热段以及蒸汽添加或脱除段。

[0315] 如上所述，对阳极排气进行的各种类型的分离可以以任何方便的顺序进行。图 2 显示对阳极排气进行分离的另一顺序的实例。在图 2 中，可以首先将阳极排气 125 送入分离段 260 以从阳极排气 125 中除去一部分 263 氢气含量。这能够例如降低阳极排气的 H_2含量以提供具有接近 2:1 的 H_2/CO 比的渗余物 266。然后可以在水煤气变换段 230 中进一步调节 H_2/CO 比以实现所需值。水煤气变换的输出 235 然后可经过 CO_2分离段 240 和除水段 250 以产生适合用作所需化学合成工艺的进料的输出料流 275。任选可以对输出料流 275 施以附加水煤气变换段（未显示）。一部分输出料流 275 可任选再循环（未显示）到阳极输入。当然，基于具有所需组成的阳极输出，可以利用分离段的其它组合和排序来生成料流。为简单起见，没有显示在该方法中可能有用的各种压缩和供热 / 除热段以及蒸汽添加或脱除段。

[0316] 阴极输入和输出

[0317] 传统上，可基于在消耗送往阳极的燃料料流中的一部分燃料的同时提取所需荷载来运行熔融碳酸盐燃料电池。然后可通过该荷载、阳极的燃料输入、向阴极提供的空气和 CO_2和燃料电池的内电阻确定燃料电池的电压。送往阴极的 CO_2传统上可部分地使用阳极排气作为至少一部分阴极输入料流来提供。相反，本发明可以对阳极输入和阴极输入使用分开 / 不同的来源。通过消除阳极输入流和阴极输入流的组成之间的任何直接联系，可提供用于运行燃料电池的附加选项，以例如生成过量合成气、以改进二氧化碳捕集和 / 或改进燃料电池的总效率（电 + 化学动力）等。

[0318] 在熔融碳酸盐燃料电池中，跨过燃料电池中的电解质的碳酸根离子传输可提供从第一流动路径向第二流动路径传输 CO_2的方法，其中该传输方法可允许从较低浓度（阴极）向较高浓度（阳极）传输，这可因此有利于捕集 CO_2。该燃料电池对 CO_2分离的选择性部分可基于能使该电池生成电力的电化学反应。对于有效地不参与燃料电池内的电化学反应的非反应性物类（如 N_2），可以存在不明显的反应量和从阴极到阳极的传输。相反，阴极和阳极之间的电位（电压）差可提供跨燃料电池传输碳酸根离子的强驱动力。因此，熔融碳酸盐燃料电池中的碳酸根离子传输可允许以相对较高的选择性从阴极（较低 CO_2浓度）向阳极（较高 CO_2浓度）传输 CO_2。但是，使用熔融碳酸盐燃料电池脱除二氧化碳的一个挑战可能在于，该燃料电池具有有限的从相对较稀的阴极进料中除去二氧化碳的能力。随着 CO_2浓度下降到大约 2.0 体积％以下，由碳酸盐燃料电池生成的电压和 / 或功率开始快速降低。随着 CO_2浓度进一步降低，例如降到大约 1.0 体积％以下，在某一时刻，跨过燃料电池的电压变得足够低以致几乎不能或完全不能发生碳酸根的进一步传输且燃料电池停止工作。因

此，在商业可行的运行条件下来自燃料电池的阴极段的排气中可能存在至少一些 CO_2。

[0319] 可基于阴极入口源的 CO_2 含量确定送往燃料电池阴极的二氧化碳量。适合用作阴极输入料流的含 CO_2 料流的一个实例可以是来自燃烧源的输出或排气流。燃烧源的实例包括，但不限于，基于天然气的燃烧、煤的燃烧和 / 或其它烃型燃料（包括生物衍生燃料）的燃烧的来源。另外或替代的来源可包括其它类型的锅炉、火焰加热器、炉和 / 或燃烧含碳燃料以加热另一物质（如水或空气）的其它类型的装置。大致上，来自燃烧源的输出料流的 CO_2 含量可以为该流的次要部分。甚至对较高 CO_2 含量的排气流，如来自燃煤燃烧源的输出而言，来自大多数商业燃煤发电厂的 CO_2 含量可以为大约 15 体积％或更低。更通常，来自燃烧源的输出或排气流的 CO_2 含量可以为至少大约 1.5 体积％，或至少大约 1.6 体积％，或至少大约 1.7 体积％，或至少大约 1.8 体积％，或至少大约 1.9 体积％，或至少大于 2 体积％，或至少大约 4 体积％，或至少大约 5 体积％，或至少大约 6 体积％，或至少大约 8 体积％。附加地或作为选择地，来自燃烧源的输出或排气流的 CO_2 含量可以为大约 20 体积％或更低，如大约 15 体积％或更低，或大约 12 体积％或更低，或大约 10 体积％或更低，或大约 9 体积％或更低，或大约 8 体积％或更低，或大约 7 体积％或更低，或大约 6.5 体积％或更低，或大约 6 体积％或更低，或大约 5.5 体积％或更低，或大约 5 体积％或更低，或大约 4.5 体积％或更低。上文给出的浓度是基于干燥基础。要指出，在来自一些天然气或甲烷燃烧源（如作为可能包括或可能不包括排气再循环回路的发电系统的一部分的发电机）的排气中可存在更低的 CO_2 含量值。

[0320] 附加地或作为选择地，阴极输入料流的其它可能的来源包括生物制 CO_2 来源。这可包括例如，在生物衍生化合物的加工过程中生成的 CO_2，如在乙醇生产过程中生成的 CO_2。一个附加或替代的实例可包括通过生物制燃料的燃烧，如木质纤维素的燃烧生成的 CO_2。另一些附加或替代的可能 CO_2 来源可对应于来自各种工业工艺的输出或排气流，如由钢、水泥和 / 或纸的制造装置生成的含 CO_2 料流。

[0321] 另一附加或替代的可能 CO_2 来源可以是来自燃料电池的含 CO_2 料流。来自燃料电池的含 CO_2 料流可对应于来自不同燃料电池的阴极输出料流、来自不同燃料电池的阳极输出料流、从燃料电池的阴极输出到阴极输入的再循环料流和 / 或从燃料电池的阳极输出到阴极输入的再循环料流。例如，在传统条件下以独立模式运行的 MCFC 可生成具有至少大约 5 体积％的 CO_2 浓度的阴极排气。这样的含 CO_2 的阴极排气可用作根据本发明的一个方面运行的 MCFC 的阴极输入。更通常，可以另外或替代性地使用产生来自阴极排气的 CO_2 输出的其它类型的燃料电池，以及不是由“燃烧”反应和 / 或燃烧供能发电机生成的其它类型的含 CO_2 料流。任选但优选地，来自另一燃料电池的含 CO_2 料流可来自另一熔融碳酸盐燃料电池。例如，对于就阴极而言串联的熔融碳酸盐燃料电池，来自第一熔融碳酸盐燃料电池的阴极的输出可用作第二熔融碳酸盐燃料电池的阴极的输入。

[0322] 对于来自燃烧源以外的来源的各种类型的含 CO_2 料流，该料流的 CO_2 含量可在很大程度上变化。阴极输入料流的 CO_2 含量可含有至少大约 2 体积％的 CO_2，如至少大约 4 体积％，或至少大约 5 体积％，或至少大约 6 体积％，或至少大约 8 体积％。附加地或作为选择地，阴极输入料流的 CO_2 含量可以为大约 30 体积％或更低，如大约 25 体积％或更低，或大约 20 体积％或更低，或大约 15 体积％或更低，或大约 10 体积％或更低，或大约 8 体积％或更低，或大约 6 体积％或更低，或大约 4 体积％或更低。对于一些更高 CO_2 含量的料流，CO_2

含量可高于大约 30 体积%，如仅含附带量的其它化合物的基本由 CO_2 构成的料流。例如，无排气再循环的燃气轮机可产生具有大约 4.2 体积%的 CO_2 含量的排气料流。在 EGR 下，燃气轮机可产生具有大约 6-8 体积%的 CO_2 含量的排气料流。甲烷的化学计量燃烧可产生具有大约 11 体积%的 CO_2 含量的排气料流。煤的燃烧可产生具有大约 15 - 20 体积%的 CO_2 含量的排气料流。使用炼油厂废气的火焰加热器可产生具有大约 12 - 15 体积%的 CO_2 含量的排气料流。无任何 EGR 的用低 BTU 气体运行的燃气轮机可产生具有～ 12 体积%的 CO_2 含量的排气料流。

[0323] 除 CO_2 外，阴极输入料流还必须包括 O_2 以提供阴极反应所必需的组分。一些阴极输入料流可基于以空气作为组分。例如，可通过在空气存在下燃烧烃燃料形成燃烧排气料流。这种燃烧排气料流或由于包括空气而具有氧含量的另一类型的阴极输入料流可具有大约 20 体积%或更低，如大约 15 体积%或更低，或大约 10 体积%或更低的氧含量。附加地或作为选择地，阴极输入料流的氧含量可以为至少大约 4 体积%，如至少大约 6 体积%，或至少大约 8 体积%。更通常，阴极输入料流可具有适用于进行阴极反应的氧含量。在一些方面中，这可相当于大约 5 体积%至大约 15 体积%，如大约 7 体积%至大约 9 体积%的氧含量。对于许多类型的阴极输入料流，CO_2 和 O_2 的总量可相当于该输入料流的小于大约 21 体积%，如该料流的小于大约 15 体积%或该料流的小于大约 10 体积%。可以将含氧空气料流与具有低氧含量的 CO_2 源合并。例如，通过煤燃烧生成的排气料流可包括低氧含量，其可以与空气混合形成阴极入口料流。

[0324] 除 CO_2 和 O_2 外，阴极输入料流还可以由惰性 / 非反应性物类，如 N_2、H_2O 和其它典型的氧化剂（空气）组分构成。例如，对于衍生自燃烧反应排气的阴极输入，如果使用空气作为用于燃烧反应的氧化剂来源的一部分，则该排气可包括空气的典型组分，如 N_2、H_2O 和存在于空气中的次要量的其它化合物。取决于用于燃烧反应的燃料源的性质，基于燃料源的燃烧之后存在的附加物类可包括 H_2O、氮氧化物 (NOx) 和 / 或硫氧化物 (SOx) 和存在于燃料中和 / 或作为燃料中存在的化合物的部分或完全燃烧产物的其它化合物（如 CO）中的一种或多种。这些物类可以以不毒化阴极催化剂表面的量存在，尽管它们可能降低总阴极活性。这样的性能降低可能是可接受的，或可通过已知的污染物去除技术将与阴极催化剂相互作用的物类减至可接受的水平。

[0325] 阴极输入料流（如基于燃烧排气的阴极输入料流）中存在的 O_2 量可有利地足以提供燃料电池中的阴极反应所需的氧。因此，O_2 的体积百分比可以有利地为该排气中的 CO_2 量的至少 0.5 倍。任选地，如果必要，可以向阴极输入中加入额外空气以向阴极反应提供足够的氧化剂。当使用某种形式的空气作为氧化剂时，阴极排气中的 N_2 量可以为至少大约 78 体积%，例如至少大约 88 体积%，和 / 或大约 95 体积%或更低。在一些方面中，阴极输入料流可另外或替代性地含有通常被视为污染物的化合物，如 H_2S 或 NH_3。在另一些方面中，可以净化阴极输入料流以降低或将此类污染物的含量减至最低。

[0326] 除用于形成跨电解质传输的碳酸根离子的反应外，阴极中的条件也可适用于将氮氧化物转化成硝酸盐和 / 或硝酸根离子。为方便起见，下面仅提到硝酸根离子。所得硝酸根离子也可跨电解质传输以用于阳极中的反应。阴极输入料流中的 NOx 浓度通常可以为 ppm 级，因此这种硝酸根传输反应对跨电解质传输的碳酸根的量可具有极小影响。但是，这种 NOx 脱除法可对基于来自燃气轮机的燃烧排气的阴极输入料流是有益的，因为这可提供

降低 NOx 排放的机制。附加地或作为选择地，阴极中的条件可适用于将未燃烃（与阴极输入料流中的 O_2结合）转化成典型燃烧产物，如 CO_2和 H_2O。

[0327] 适用于运行 MCFC 的温度可以为大约 450℃至大约 750℃，如至少大约 500℃，例如具有大约 550℃的入口温度和大约 625℃的出口温度。在进入阴极之前，可以向燃烧排气引入热，或如果需要，从燃烧排气中除热以例如向其它工艺（如阳极的燃料输入的重整）供热。例如，如果阴极输入料流的来源是燃烧排气料流，则该燃烧排气料流的温度可大于阴极入口的所需温度。在这一方面中，可以在用作阴极输入料流之前从燃烧排气中除热。或者，该燃烧排气可以在极低温度下，例如在燃煤锅炉上的湿气体洗涤器后，在这种情况下该燃烧排气可低于大约 100℃。或者，该燃烧排气可来自以联合循环模式运行的燃气轮机的排气，其中该气体可通过生成蒸汽以运行蒸汽轮机以额外发电来冷却。在这种情况下，该气体可低于大约 50℃。可以向比预期冷的燃烧排气引入热。

[0328] 燃料电池布置

[0329] 在各种方面中，燃料电池（如含有多个燃料电池堆的燃料电池阵列）的一个配置选项可以是在多个燃料电池之间分配含 CO_2料流。相对于单个燃料电池的容量，含 CO_2料流的一些类型的来源可生成大体积流速。例如，相对于尺寸合理的单 MCFC 的合意运行条件，来自工业燃烧源的含 CO_2的输出料流通常可相当于大流量体积。代替在单 MCFC 中加工整个流，可以将该流在多个 MCFC 单元之间分配，其中至少一些通常可以并联，以使各单元中的流速在所需流速范围内。

[0330] 第二配置选项可以是利用串联的燃料电池以从流动料流中相继除去 CO_2。无论含 CO_2料流可并联分配到的初始燃料电池数是多少，各初始燃料电池之后可以是串联的一个或多个附加电池以进一步除去额外的 CO_2。如果阴极输出中的 CO_2所需量足够低，尝试在单燃料电池或燃料电池段中从阴极输入料流中除去 CO_2至所需水平会造成燃料电池的低和 / 或不可预测的电压输出。不同于尝试在单燃料电池或燃料电池段中除去 CO_2至所需水平，可以在连续的电池中除去 CO_2直至可实现所需水平。例如，一连串燃料电池中的各电池可用于除去燃料料流中存在的一定百分比（例如大约 50％）的 CO_2。在这种实例中，如果串联使用三个燃料电池，则可以降低 CO_2浓度（例如降至原始存在量的大约 15％或更低，这相当于经串联的三个燃料电池的进程将 CO_2浓度从大约 6％降至大约 1％或更低）。

[0331] 在另一配置中，可以在串联的较早燃料段中选择运行条件以提供所需输出电压，同时可选择阶段阵列以实现所需碳分离水平。例如，可以使用具有串联的三个燃料电池的燃料电池阵列。串联的前两个燃料电池可用于在保持所需输出电压的同时除去 CO_2。然后可以运行最后一个燃料电池以除去 CO_2至所需浓度，但在较低电压下。

[0332] 在再一配置中，燃料电池阵列中的阳极和阴极可单独连接。例如，如果燃料电池阵列包括串联的燃料阴极，相应的阳极可以以任何方便的方式连接，例如不必与它们的相应阴极相同的布置相匹配。这可包括，例如，并联连接阳极，以使各阳极接收相同类型的燃料进料，和 / 或反向串联连接阳极，以使阳极中的最高燃料浓度对应于具有最低 CO_2浓度的那些阴极。

[0333] 在又一配置中，可以控制送往一个或多个阳极段的燃料量和 / 或送往一个或多个阴极段的 CO_2量以改进燃料电池阵列的性能。例如，燃料电池阵列可具有串联的多个阴极段。在包括串联的三个阴极段的阵列中，这可意味着来自第一阴极段的输出可相当于第二

阴极段的输入，来自第二阴极段的输出可相当于第三阴极段的输入。在这种类型的配置中，CO_2浓度可随各相继阴极段降低。为了补偿这种降低的CO_2浓度，可以向与后继阴极段对应的阳极段送入附加的氢气和/或甲烷。与后继阴极段对应的阳极中的附加的氢气和/或甲烷可至少部分补偿由降低的CO_2浓度造成的电压和/或电流损失，这可提高由该燃料电池产生的电压和因此提高净功率。在另一实例中，燃料电池阵列中的阴极可以部分串联和部分并联。在这种类型的实例中，代替将整个燃烧输出送入第一阴极段中的阴极，可以将至少一部分燃烧排气送入后继阴极段。这可以在后继阴极段中提供提高的CO_2含量。如果需要，可以使用向阳极段或阴极段送入可变进料的其它选项。

[0334] 如上所述，燃料电池的阴极可相当于来自燃料电池阵列的多个阴极。在一些方面中，可以运行燃料电池阵列以改进或使从阴极向阳极转移的碳量最大化。在这样的方面中，对于来自阵列序列（通常至少包括串联布置，或最后阴极和最初阴极相同）中的最后阴极的阴极输出，输出组成可包括大约2.0体积％或更少的CO_2（例如，大约1.5体积％或更少或大约1.2体积％或更少）和/或至少大约0.5体积％的CO_2，或至少大约1.0体积％，或至少大约1.2体积％或至少大约1.5体积％。由于这种限制，使用熔融碳酸盐燃料电池时CO_2脱除的净效率可取决于阴极输入中的CO_2量。对于CO_2含量大于大约6体积％，如至少大约8％的阴极输入料流，对可除去的CO_2量的限制不严格。但是，对于如燃气轮机中常见的那样使用天然气作为燃料和使用过量空气的燃烧反应，燃烧排气中的CO_2量可能仅相当于阴极输入处的CO_2浓度，其小于大约5体积％。排气再循环的使用可以使阴极输入处的CO_2量提高到至少大约5体积％，例如至少大约6体积％。如果使用天然气作为燃料时提高EGR以产生超过大约6体积％的CO_2浓度，则燃烧器中的可燃性可降低且燃气轮机变得不稳定。但是，在将H_2添加到燃料中时，可以显著提高可燃性窗口，以致能进一步提高排气再循环的量，从而可实现阴极输入处的CO_2浓度为至少大约7.5体积％或至少大约8体积％。例如，基于阴极排气处大约1.5体积％的脱除限，将阴极输入处的CO_2含量从大约5.5体积％提高到大约7.5体积％可相当于可用燃料电池捕集并传输到阳极回路以最终分离CO_2的CO_2量增加～10％。附加地或作为选择地，可以降低阴极输出中的O_2量，其通常为与除去的CO_2量成比例的量，这可导致阴极出口处其它（非阴极反应性）物类的量的小幅相应提高。

[0335] 在另一些方面中，可以运行燃料电池阵列以改进或使燃料电池的能量输出，如总能量输出、电能输出、合成气化学能量输出或其组合最大化。例如，可以在各种情况中用过量的可重整燃料运行熔融碳酸盐燃料电池，如用于生成用于化学合成装置的合成气料流和/或用于生成高纯氢气料流。该合成气料流和/或氢气料流可用作合成气来源、氢气来源、清洁燃料源和/或用于任何其它方便的用途。在这样的方面中，阴极排气中的CO_2量可以与阴极输入料流中的CO_2量和在所需运行条件下的CO_2利用率相关联以改进或使燃料电池能量输出最大化。

[0336] 附加地或作为选择地，取决于运行条件，MCFC可以将阴极排气料流的CO_2含量降至大约5.0体积％或更低，例如大约4.0体积％或更低，或大约2.0体积％或更低，或大约1.5体积％或更低，或大约1.2体积％或更低。附加地或作为选择地，阴极排气料流的CO_2含量可以为至少大约0.9体积％，如至少大约1.0体积％，或至少大约1.2体积％，或至少大约1.5体积％。

[0337] 熔融碳酸盐燃料电池运行

[0338] 在一些方面中，可以以单程或一次通过模式运行燃料电池。在单程模式中，不将阳极排气中的重整产物送回阳极入口。因此，在单程运行中不将合成气、氢气或一些其它产物从阳极输出直接再循环到阳极入口。更通常，在单程运行中，阳极排气中的重整产物也不间接送回阳极入口，如通过利用重整产物加工随后引入阳极入口的燃料料流。任选地，来自阳极出口的 CO_2可以在 MCFC 以单程模式运行的过程中再循环到阴极入口。更通常，在另一些方面中，对于以单程模式运行的MCFC，可能发生从阳极出口到阴极入口的再循环。附加地或作为选择地，来自阳极排气或输出的热可以在单程模式中再循环。例如，阳极输出料流可经过热交换器，热交换器将阳极输出冷却并将另一料流，如阳极和 / 或阴极的输入料流加温。将来自阳极的热再循环到燃料电池与在单程或一次通过运行中的使用是一致的。任选但不优选地，在单程模式中可以燃烧阳极输出的成分以向燃料电池供热。

[0339] 图 3 显示用于发电的 MCFC 的运行的一个示意性实例。在图 3 中，燃料电池的阳极部分可接收燃料和蒸汽 (H_2O) 作为输入，并输出水、CO_2和任选过量 H_2、CH_4（或其它烃）和 / 或 CO。燃料电池的阴极部分可接收 CO_2和一些氧化剂（例如空气 /O_2）作为输入，输出相当于在贫氧的氧化剂（空气）中的降低量的 CO_2。在燃料电池内，在阴极侧形成的 CO_3^{2} 离子可跨电解质传输以提供在阳极处发生的反应所需的碳酸根离子。

[0340] 在熔融碳酸盐燃料电池，如图 3 中所示的示例性燃料电池内可发生若干反应。重整反应可以是任选的并且如果直接向阳极提供足够的 H_2，则可以减少或消除省掉该反应。下列反应基于 CH_4，但在燃料电池中使用其它燃料时，可发生类似反应。

[0341] (1)< 阳极重整 >CH_4+H_2O = >$3H_2+CO$

[0342] (2)< 水煤气变换 >$CO+H_2O$ = >H_2+CO_2

[0343] (3)< 重整和水煤气变换的组合 >CH_4+2H_2O = >$4H_2+CO_2$

[0344] (4)< 阳极 H_2氧化 >$H_2+CO_3^{2}$ = >H_2O+CO_2+2e

[0345] (5)< 阴极 >$1/2O_2+CO_2+2e$ = >CO_3^{2}

[0346] 反应 (1) 代表基本的烃重整反应以生成用于燃料电池的阳极的 H_2。反应 (1) 中形成的 CO 可通过水煤气变换反应 (2) 转化成 H_2。反应 (1) 和 (2) 的组合显示为反应 (3)。反应 (1) 和 (2) 可以在燃料电池外进行，和 / 或重整可以在阳极内进行。

[0347] 分别在阳极和阴极处的反应 (4) 和 (5) 代表造成燃料电池内的电力发生的反应。反应 (4) 将存在于进料中或任选由反应 (1) 和 / 或 (2) 生成的 H_2与碳酸根离子合并以形成 H_2O、CO_2和送往电路的电子。反应 (5) 使 O_2、CO_2和来自该电路的电子合并形成碳酸根离子。由反应 (5) 生成的碳酸根离子可跨燃料电池的电解质传输以提供反应 (4) 所需的碳酸根离子。与碳酸根离子跨电解质的传输相结合，然后可通过在阳极和阴极之间提供电连接形成闭合电流回路。

[0348] 在各种实施方案中，运行燃料电池的目标可以是改进燃料电池的总效率和 / 或燃料电池 + 集成化学合成工艺的总效率。这通常不同于燃料电池的传统运行，其中目标可以对于利用供给电池的燃料发电以高电效率运行燃料电池。如上定义，可通过将燃料电池的电输出加上燃料电池输出的低位发热值再除以燃料电池的输入组分的低位发热值来确定总燃料电池效率。换言之，TFCE = (LHV(el)+LHV(sg out))/LHV(in)，其中 LHV(in) 和 LHV(sg out) 分别是指送往燃料电池的燃料组分（如 H_2、CH_4和 / 或 CO) 和阳极出口料流或流中的合成气 (H_2、CO 和 / 或 CO_2) 的 LHV。这可提供燃料电池和 / 或集成化学工艺生成的

电能 + 化学能的量度。要指出，在总效率的这一定义下，燃料电池内使用的和 / 或集成的燃料电池 / 化学合成系统内使用的热能可对总效率有贡献。但是，该定义不包括从燃料电池或集成的燃料电池 / 化学合成系统中交换或以其它方式取出的任何过量热。因此，如果来自燃料电池的过量热例如用于生成蒸汽以通过蒸汽轮机发电，则总效率的定义中不包括这样的过量热。

[0349] 可以控制一些运行参数以用过量可重整燃料运行燃料电池。一些参数可类似于目前对燃料电池运行推荐的参数。在一些方面中，燃料电池的阴极条件和温度输入可类似于文献中推荐的那些。例如，可以在熔融碳酸盐燃料电池典型的燃料电池运行温度范围内实现所需电效率和所需总燃料电池效率。在典型运行中，温度可跨燃料电池提高。

[0350] 在另一些方面中，燃料电池的运行参数可背离典型条件从而运行燃料电池以使温度从阳极入口到阳极出口和 / 或从阴极入口到阴极出口降低。例如，将烃转化成 H_2 和 CO 的重整反应是吸热反应。如果相对于用于产生电流的氢的氧化量，在燃料电池阳极中进行足量重整，则该燃料电池中的净热平衡可以是吸热的。这可导致燃料电池的入口与出口之间的降温。在吸热运行过程中，可以控制燃料电池中的温度降低以使燃料电池中的电解质保持熔融态。

[0351] 可以以不同于目前推荐的方式控制的参数可包括向阳极提供的燃料量、向阳极提供的燃料的组成、和 / 或没有合成气从阳极排气显著再循环到阳极输入或阴极输入的情况下阳极输出中的合成气的分离和捕集。在一些方面中，不能允许发生合成气或氢气从阳极排气直接或间接再循环到阳极输入或阴极输入。在附加或替代性的方面中，可发生有限量的再循环。在这样的方面中，从阳极排气到阳极输入和 / 或阴极输入的再循环量可小于阳极排气的大约 10 体积%，如小于大约 5 体积%或小于大约 1 体积%。

[0352] 附加地或作为选择地，运行燃料电池的目标可以是除发电外还从燃烧反应或产生 CO_2 输出料流的另一工艺的输出料流中分离 CO_2。在这样的方面中，燃烧反应可用于向一个或多个发电机或涡轮机供能，这可提供由综合发电机 / 燃料电池系统生成的大部分动力。不同于运行燃料电池以优化通过燃料电池发电，可运行该系统以在降低或将捕集二氧化碳所需的燃料电池数减至最低的同时改进来自燃烧供能发电机的二氧化碳的捕集。选择燃料电池的输入和输出料流的适当配置以及选择燃料电池的适当运行条件可实现总效率和碳捕集的合意组合。

[0353] 在一些实施方案中，可以布置燃料电池阵列中的燃料电池以便可仅存在单一段的燃料电池（如燃料电池堆）。在这种类型的实施方案中，该单一段的阳极燃料利用率可代表该阵列的阳极燃料利用率。另一选项可以是燃料电池阵列可含有多个阳极段和多个阴极段，其中各阳极段具有在相同范围内的燃料利用率，如各阳极段具有在规定值的 10％以内，例如在规定值的 5％以内的燃料利用率。再一选项可以是各阳极段可具有等于规定值或比规定值低一定量以下的燃料利用率，如各阳极段等于规定值或比规定值小 10％或更低，例如 5％或更低。作为一个示例性实例，具有多个阳极段的燃料电池阵列可以使各阳极段与 50％燃料利用率相差大约 10％以内，这会相当于各阳极段具有大约 40％至大约 60％的燃料利用率。作为另一实例，具有多个段的燃料电池阵列可以使各阳极段为不大于 60％阳极燃料利用率，最大偏差为小大约 5％，这相当于各阳极段具有大约 55％至大约 60％的燃料利用率。在再一实例中，燃料电池阵列中的一个或多个燃料电池段可以以大约 30％至大约

50％的燃料利用率运行，如以大约 30％至大约 50％的燃料利用率运行该阵列中的多个燃料电池段。更通常，任何上述类型的范围可以与本文中规定的任何阳极阳极燃料利用值配对。

[0354] 另一附加或替代的选项可包括对并非所有阳极段规定燃料利用率。例如，在本发明的一些方面中，可以至少部分在一个或多个串联布置中布置燃料电池 / 堆以对串联中的第一阳极段、串联中的第二阳极段、串联中的最后一个阳极段或串联中的任何其它方便的阳极段规定阳极燃料利用率。本文所用的串联中的“第一”段相当于向其从燃料源直接进料输入的段（或如果该布置也含有并联段，则为段组），后继（“第二”、“第三”、“最后”等）段代表以向其进料来自一个或多个在先段的输出而非直接来自各自的燃料源的段。在来自在先段的输出和直接来自燃料源的输入二者共同供入一个段的情况下，可以有“第一个”（组）段和“最后一个”（组）段，但更难在其它段（“第二”、“第三”等）之间建立顺序（例如，在这样的情况下，可通过复合输入进料组合物中的一种或多种组分（例如 CO_2）的浓度水平确定序号顺序，从最高浓度“第一”到最低浓度“最后”，以大致类似的组成差异代表相同的定序水平）。

[0355] 再一附加或替代的选项可以是规定与特定阴极段对应的阳极燃料利用率（再次，其中燃料电池 / 堆仍可以至少部分在一个或多个串联布置中布置）。如上所述，基于阳极和阴极内的流向，第一阴极段可不对应于第一阳极段（可不与第一阳极段跨过相同的燃料电池膜）。因此，在本发明的一些方面中，可以对串联中的第一阴极段、串联中的第二阴极段、串联中的最后一个阴极段或串联中的任何其它方便的阴极段规定阳极燃料利用率。

[0356] 又一附加或替代的选项可以是规定燃料电池阵列中的所有燃料电池的燃料利用率的总平均值。在各种方面中，燃料电池阵列的燃料利用率的总平均值可以为大约 65％或更低，例如大约 60％或更低，大约 55％或更低，大约 50％或更低，或大约 45％或更低（附加地或作为选择地，燃料电池阵列的总平均燃料利用率可以为至少大约 25％，例如至少大约 30％，至少大约 35％，或至少大约 40％）。这种平均燃料利用率不需要必须限制任一单段中的燃料利用率，只要该燃料电池阵列符合所需燃料利用率。

[0357] 捕集后的 CO_2 输出的用途

[0358] 在本发明的各种方面中，上述系统和方法可允许作为加压流体产生二氧化碳。例如，由深冷分离段生成的 CO_2 最初可相当于具有至少大约 90％，例如至少大约 95％、至少大约 97％、至少大约 98％或至少大约 99％纯度的加压 CO_2 液体。这种加压 CO_2 料流可例如用于注入井中以进一步增强采油或采气，如在二次采油中。当在包含燃气轮机的设施附近实施时，整个系统可获益于电力 / 机械动力应用中的额外协同作用和 / 或与整个系统的热集成。

[0359] 或者，对专用于强化采油 (EOR) 用途的系统而言（即未合并在具有严格组成标准的管道系统中），可以明显放松 CO_2 分离要求。EOR 用途可对 O_2 的存在敏感，因此在一些实施方案中在要用于 EOR 的 CO_2 料流可不存在 O_2。但是，EOR 用途可往往对溶解的 CO、H_2 和 / 或 CH_4 具有低敏感性。输送 CO_2 的管道也可能对这些杂质敏感。这些溶解的气体通常可对用于 EOR 的 CO_2 的增溶能力只有微小影响。作为 EOR 气体注入 CO、H_2 和 / 或 CH_4 之类的气体可导致燃料回收值 (fuel value recovery) 的一定损失，但这些气体可能在其它方面与 EOR 用途相容。

[0360] 附加地或作为选择地，CO_2作为加压液体的一个可能的用途是可作为生物工艺，如藻类生长 / 收获中的营养素。MCFCs 用于 CO_2分离可确保大多数生物学上重要的污染物可被降至可接受的低水平，以产生只有少量不可能明显不利地影响光合自养生物生长的其它“污染”气体（如 CO、H_2、N_2等和它们的组合）的含 CO_2料流。这与大多数工业来源生成的输出料流形成鲜明对比，大多数工业来源生成的输出料流通常可含有可能高毒材料，如重金属。

[0361] 在本发明的这一类型的方面中，在阳极回路中通过 CO_2的分离生成的 CO_2料流可用于生产生物燃料和 / 或化学品以及它们的前体。再附加地或作为选择地，CO_2可作为稠密流体生成，以便容易得多地跨距离泵送和运输，例如运往光合自养生物的大田 (large fields)。传统排放源可排放含有与其它气体和污染物混合的适量 CO_2（例如大约 4-15％）的热气。这些材料通常会需要作为稀薄气体泵往藻塘或生物燃料“农场”。相反，本发明的 MCFC 系统可产生浓缩 CO_2料流（基于干燥基础，～ 60-70 体积％），其可以进一步浓缩至 95％ +（例如 96％ +、97％ +、98％ + 或 99％ +）并容易地液化。这种料流然后可以以相对较低的成本容易并有效地长距离运输并有效地大面积分配。在这些实施方案中，来自燃烧源 /MCFC 的余热也可集成到整个系统中。

[0362] 可采用另一实施方案，其中 CO_2源 /MCFC 和生物 / 化学生产现场同处一地。在这种情况下，可能只需要最小压缩（即提供足以用于生物生产的 CO_2压力，例如大约 15psig 至大约 150psig）。在这种情况下可能有几种新型布置。可任选对阳极排气施加二次重整以降低 CH_4含量，并可另外或替代性地任选存在水煤气变换以驱使任何剩余 CO 成为 CO_2和 H_2。

[0363] 来自阳极输出料流和 / 或阴极输出料流的组分可用于各种用途。一个选项可以是如上所述使用阳极输出作为氢源。对于与炼油厂集成或同处一地的 MCFC，该氢气可用作各种炼油厂工艺，如加氢处理的氢源。另一选项可以是另外或替代性地使用氢气作为燃料源，其中已“捕集”来自燃烧的 CO_2。这样的氢气可以在炼油厂或其它工业设施中用作锅炉、炉和 / 或火焰加热器的燃料，和 / 或该氢气可用作发电机，如涡轮机的进料。来自 MCFC 燃料电池的氢气还可另外或替代性地用作需要氢气作为输入的其它类型的燃料电池（可能包括燃料电池供能的车辆）的输入料流。又一选项可以是另外或替代性地使用作为 MCFC 燃料电池的输出生成的合成气作为发酵输入。

[0364] 另一选项可以是另外或替代性地使用由阳极输出生成的合成气。当然，可以使用合成气作为燃料，尽管合成气基燃料在作为燃料燃烧时仍可导致生成一些 CO_2。在另一些方面中，合成气输出料流可用作化学合成工艺的输入。一个选项可以是另外或替代性地将合成气用于费托型工艺和 / 或由合成气输入形成更大烃分子的另一工艺。另一选项可以是另外或替代性地使用合成气形成中间产物，如甲醇。甲醇可用作最终产物，但在另一些方面中由合成气生成的甲醇可用于生成更大化合物，如汽油、烯烃、芳族化合物和 / 或其它产物。要指出，在甲醇合成工艺和 / 或使用变换催化剂的费托工艺的合成气进料中，少量 CO_2是可接受的。加氢甲酰化是可利用合成气输入的又一合成工艺的一个附加或替代的实例。

[0365] 要指出，对使用 MCFC 生成合成气的一个改变方案可以是使用 MCFC 燃料电池作为用于加工海上石油平台取出的甲烷和 / 或天然气的系统或距其最终市场相当远的其它生产系统的一部分。不是尝试运输来自井的气相输出或尝试长期储存该气相产物，而是可使用来自井的气相输出作为 MCFC 燃料电池阵列的输入。这可带来各种益处。首先，由该燃料

电池阵列生成的电力可用作该平台的电源。另外，来自该燃料电池阵列的合成气输出可用作生产现场的费托工艺的输入。这可形成更容易通过管道、船舶或轨道车从生产现场运往例如岸上设施或更大终端的液烃产物。

[0366] 另一些集成选项可以另外或替代性地包括使用阴极输出作为更高纯度的加热氮气的来源。阴极输入通常可包括一大部分空气，这意味着在阴极输入中可包括相当一部分氮气。燃料电池可以从阴极跨电解质向阳极输送 CO_2 和 O_2，且阴极出口可具有比空气中低的 CO_2 和 O_2 浓度和因此更高的 N_2 浓度。在随后除去残留 O_2 和 CO_2 的情况下，这种氮气输出可用作用于生产氨或其它含氮化学品，如尿素、硝酸铵和 / 或硝酸的进料。要指出，脲合成可另外或替代性地使用从阳极输出中分离的 CO_2 作为输入进料。

[0367] 集成实施例：与燃烧轮机集成的用途

[0368] 在本发明的一些方面中，用于发电并排出含 CO_2 的排气的燃烧源可以与熔融碳酸盐燃料电池的运行集成。合适的燃烧源的一个实例是燃气轮机。优选，燃气轮机可以与蒸汽发生和热回收集成的联合循环模式燃烧天然气、甲烷气体或其它烃气体以获得额外效率。对于最大最新的设计，现代天然气联合循环效率为大约 60％。所得含 CO_2 的排气料流可以在与 MCFC 运行相容的升高的温度，如 300℃ -700℃，优选 500℃ -650℃下产生。可任选但优选的是，在气体源进入涡轮机前从其中清除可使 MCFC 中毒的污染物，如硫。或者，该气体源可以是燃煤发电机，其中由于排气中较高的污染物水平，通常在燃烧后净化该排气。在这一备选方案中，可能必须向 / 从该气体进行一定的热交换以便能在较低温度下净化。在附加或替代性的实施方案中，含 CO_2 的排气的来源可以是来自锅炉、燃烧器或燃烧富碳燃料的其它热源的输出。在另一些附加或替代性的实施方案中，含 CO_2 的排气的来源可以是与其它来源结合的生物制 CO_2。

[0369] 为了与燃烧源集成，用于加工燃料电池阳极的一些备选配置可以是合意的。例如，一个备选配置可以是将至少一部分来自燃料电池阳极的排气再循环到燃料电池阳极的输入。来自 MCFC 阳极的输出料流可包括 H_2O、CO_2、任选 CO 和任选但通常是未反应的燃料（如 H_2 或 CH_4）作为主要输出组分。代替使用这种输出料流作为外部燃料料流和 / 或与另一工艺集成的输入料流，可以对阳极输出料流进行一次或多次分离以将 CO_2 与具有潜在燃料价值的组分，如 H_2 或 CO 分离。然后可以将具有燃料价值的组分再循环到阳极的输入。

[0370] 这种类型的配置可提供一个或多个益处。首先，可以从阳极输出中分离 CO_2，如通过使用深冷 CO_2 分离器。阳极输出的几种组分（H_2、CO、CH_4）不是易冷凝组分，而 CO_2 和 H_2O 可独立地作为冷凝相分离。根据该实施方案，可以分离出阳极输出中至少大约 90 体积％的 CO_2 以形成相对高纯的 CO_2 输出料流。或者，在一些方面中可以从阳极输出中除去较少 CO_2，因此可分离出阳极输出中大约 50 体积％至大约 90 体积％的 CO_2，如大约 80 体积％或更少或大约 70 体积％或更少。在分离后，阳极输出的剩余部分可主要相当于具有燃料价值的组分以及降低量的 CO_2 和 / 或 H_2O。分离后的这部分阳极输出可再循环以与附加燃料一起用作阳极输入的一部分。在这种类型的配置中，即使在经过 MCFC 的单程中的燃料利用率可能是低的，但未用的燃料可有利地再循环以再次经过阳极。因此，单程燃料利用率可在降低的水平，同时避免了未燃的燃料损失（排放）到环境中。

[0371] 作为将一部分阳极排气再循环到阳极输入的补充或替代，另一配置选项可以是使用一部分阳极排气作为涡轮机或其它燃烧装置，如锅炉、炉和 / 或火焰加热器的燃烧反应

的输入。再循环到阳极输入和/或作为输入再循环到燃烧装置的阳极排气的相对量可以是任何方便或合意的量。如果阳极排气再循环到阳极输入和燃烧装置的仅一种中，则再循环量可以是任何方便的量，如用于除去 CO_2 和/或 H_2O 的任何分离后留下的那部分阳极排气的最多 100%。当一部分阳极排气既再循环到阳极输入又再循环到燃烧装置时，总再循环量按定义可以为阳极排气的剩余部分的 100%或更低。或者，可以使用阳极排气的任何方便的分流。在本发明的各种实施方案中，再循环到阳极输入的量可以为分离后留下的阳极排气的至少大约 10%，例如至少大约 25%、至少大约 40%、至少大约 50%、至少大约 60%、至少大约 75%或至少大约 90%。在这些实施方案中附加地或作为选择地，再循环到阳极输入的量可以为分离后留下的阳极排气的大约 90%或更少，例如大约 75%或更少、大约 60%或更少、大约 50%或更少、大约 40%或更少、大约 25%或更少、或大约 10%或更少。再附加地或作为选择地，在本发明的各种实施方案中，再循环到燃烧装置的量可以为分离后留下的阳极排气的至少大约 10%，例如至少大约 25%、至少大约 40%、至少大约 50%、至少大约 60%、至少大约 75%或至少大约 90%。在这些实施方案中附加地或作为选择地，再循环到燃烧装置的量可以为分离后留下的阳极排气的大约 90%或更少，例如大约 75%或更少、大约 60%或更少、大约 50%或更少、大约 40%或更少、大约 25%或更少、或大约 10%或更少。

[0372] 在本发明的另一些方面中，附加地或作为选择地，燃烧装置的燃料可以是具有提高量的惰性和/或在燃料中充当稀释剂的组分的燃料。CO_2 和 N_2 是天然气进料中在燃烧反应过程中可以是相对惰性的组分的实例。当燃料进料中的惰性组分量达到足够水平时，可影响涡轮机或其它燃烧源的性能。这种影响可部分归因于惰性组分的吸热能力，这可倾向于猝熄燃烧反应。具有足够的惰性组分水平的燃料进料的实例可包括含有至少大约 20 体积% CO_2 的燃料进料或含有至少大约 40 体积% N_2 的燃料进料或含有具有足够惰性的热容以提供类似猝熄能力的 CO_2 和 N_2 的组合的燃料进料。(要指出，CO_2 的热容高于 N_2，因此较低浓度的 CO_2 可具有与较高浓度的 N_2 类似的影响。CO_2 也可比 N_2 更容易地参与燃烧反应并在此时从该燃烧中除 H_2。H_2 的这种消耗可通过降低火焰速度和缩窄空气和燃料混合物的可燃范围而对燃料的燃烧具有极大影响。)更通常，对于含有影响燃料进料的可燃性的惰性组分的燃料进料，该燃料进料中的惰性组分可以为至少大约 20 体积%，如至少大约 40 体积%，或至少大约 50 体积%，或至少大约 60 体积%。优选地，该燃料进料中的惰性组分的量可以为大约 80 体积%或更少。

[0373] 当在燃料进料中存在足量惰性组分时，所得燃料进料可能在进料的燃料组分的可燃窗口外。在这种类型的情况中，来自阳极排气的再循环部分的 H_2 添加到发电机的燃烧区中可扩大燃料进料和 H_2 的组合的可燃窗口，这能使例如含有至少大约 20 体积% CO_2 或至少大约 40% N_2(或 CO_2 和 N_2 的其它组合)的燃料进料成功燃烧。

[0374] 相对于送往燃烧区的燃料进料和 H_2 的总体积，用于扩大可燃窗口的 H_2 量可以为燃料进料 +H_2 的总体积的至少大约 5 体积%，如至少大约 10 体积%和/或大约 25 体积%或更低。表征为扩大可燃窗口而添加的 H_2 量的另一选项可基于添加 H_2 前的燃料进料中存在的燃料组分的量。燃料组分可相当于甲烷、天然气、其它烃和/或传统上被视为燃烧供能的涡轮机或其它发电机的燃料的其它组分。添加到燃料进料中的 H_2 量可相当于燃料进料中的燃料组分的体积的至少大约 1/3(1:3 的 H_2: 燃料组分)，如燃料组分的体积的至少大约一半(1:2)。附加地或作为选择地，添加到燃料进料中的 H_2 量可大致等于燃料进料中的燃料组分

的体积（1:1）或更低。例如，对于含有大约 30 体积% CH_4、大约 10% N_2和大约 60% CO_2的进料，可以将足量阳极排气添加到燃料进料中以实现大约 1:2 的 H_2:CH_4比。对仅含 H_2的理想化阳极排气，添加 H_2以实现 1:2 的比率会产生含有大约 26 体积% CH_4、13 体积% H_2、9 体积% N_2和 52 体积% CO_2的进料。

[0375] 排气再循环

[0376] 除向燃料电池阵列提供排气以捕集和最终分离 CO_2外，排气的另外或替代性的潜在用途可包括再循环回燃烧反应以提高 CO_2含量。当有氢气可用于添加到燃烧反应中，如来自燃料电池阵列的阳极排气的氢气时，可以由使用再循环的排气提高燃烧反应内的 CO_2含量获得进一步的益处。

[0377] 在本发明的各种方面中，发电系统的排气再循环回路可接收第一部分燃烧排气，而燃料电池阵列可接收第二部分。再循环到发电系统的燃烧区的燃烧排气的量可以是任何方便的量，如至少大约 15%（按体积计），例如至少大约 25%、至少大约 35%、至少大约 45%或至少大约 50%。附加地或作为选择地，再循环到燃烧区的燃烧排气的量可以为大约 65%（按体积计）或更低，例如大约 60%或更低，大约 55%或更低，大约 50%或更低，或大约 45%或更低。

[0378] 在本发明的一个或多个方面中，氧化剂（如空气和/或富氧空气）和燃料的混合物可以燃烧并（同时）与再循环排气的料流混合。通常可包括燃烧产物如 CO_2的再循环排气的料流可用作稀释剂以控制、调节或以其它方式缓和燃烧温度和可进入后续膨胀机的排气的温度。由于使用富氧空气，再循环的排气可具有提高的 CO_2含量，由此能使膨胀机在相同的入口和排放温度下以更高膨胀比运行，由此能显著提高功率产生。

[0379] 燃气轮机系统可代表可利用再循环排气增强该系统的性能的发电系统的一个实例。燃气轮机系统可具有经轴与膨胀机连接的第一/主压缩机。该轴可以是任何机械、电或其它动力联接器，由此能使膨胀机生成的一部分机械能驱动主压缩机。燃气轮机系统还可包括构造成燃烧燃料和氧化剂的混合物的燃烧室。在本发明的各种方面中，燃料可包括任何合适的烃气体/液体，如合成气、天然气、甲烷、乙烷、丙烷、丁烷、石脑油柴油、煤油、航空燃料、煤衍生燃料、生物燃料、氧化烃原料或它们的任何组合。氧化剂在一些实施方案中可源自流体联接到燃烧室并适合压缩进料氧化剂的第二或入口压缩机。在本发明的一个或多个实施方案中，进料氧化剂可包括大气空气和/或富氧空气。当氧化剂包括仅富氧空气或包括大气空气和富氧空气的混合物时，可通过入口压缩机压缩富氧空气（在混合物的情况下，在与大气空气混合之前或之后）。富氧空气和/或空气-富氧空气混合物可具有至少大约 25 体积%，例如至少大约 30 体积%、至少大约 35 体积%、至少大约 40 体积%、至少大约 45 体积%或至少大约 50 体积%的总氧浓度。附加地或作为选择地，富氧空气和/或空气-富氧空气混合物可具有大约 80 体积%或更低，如大约 70 体积%或更低的总氧浓度。

[0380] 富氧空气可衍生自若干来源中的任何一个或多个。例如，富氧空气可衍生自如膜分离、变压吸附、变温吸附、制氮装置副产物料流和/或它们的组合之类的分离技术。附加地或作为选择地，富氧空气可衍生自用于生产用于保持压力或其它用途的氮气的空气分离单元（ASU），如深冷 ASU。在本发明的某些实施方案中，来自这种 ASU 的废料流可以是富氧的，具有大约 50 体积%至大约 70 体积%的总氧含量，可用作富氧空气的至少一部分并且如果需要，随后用未加工的大气空气稀释以获得所需氧浓度。

[0381] 除燃料和氧化剂外，燃烧室任选还可接收压缩的再循环排气，如主要具有 CO_2和氮组分的排气再循环。压缩的再循环排气可衍生自例如主压缩机并适合帮助促进氧化剂和燃料的燃烧，例如通过温和燃烧产物的温度。可以认识到，该排气的再循环可用于提高 CO_2浓度。

[0382] 导向膨胀机入口的排气可作为燃烧反应的产物生成。至少部分基于将再循环的排气引入燃烧反应，排气可具有提高的 CO_2含量。随着排气经膨胀机膨胀，其可生成机械动力以驱动主压缩机、驱动发电机和 / 或向其它设施供能。

[0383] 该发电系统在许多实施方案中还可包括排气再循环 (EGR) 系统。在本发明的一个或多个方面中，EGR 系统可包括热回收蒸汽发生器 (HRSG) 和 / 或与蒸汽轮机流体联接的其它类似装置。在至少一个实施方案中，HRSG 和蒸汽轮机的组合可表征为发电的闭合兰金循环。与燃气轮机系统结合，HRSG 和蒸汽轮机可构成联合循环发电厂，如天然气联合循环 (NGCC) 电厂的一部分。可以将气态排放物引入 HRSG 以生成蒸汽和冷却的排气。HRSG 可包括用于从排气料流中分离和 / 或冷凝出水、传热以形成蒸汽和 / 或将料流压力调节至所需水平的各种单元。在某些实施方案中，可以将蒸汽送往蒸汽轮机以生成额外的电力。

[0384] 在经过 HRSG 和任选除去至少一些 H_2O 后，含 CO_2的排气料流在一些实施方案中可以再循环用作燃烧反应的输入。如上所述，排气料流可以压缩（或解压）以匹配燃烧反应容器内的所需反应压力。

[0385] 集成系统的实例

[0386] 图 4 示意性显示集成系统的一个实例，其包括将含 CO_2的再循环排气和来自燃料电池阳极排气的 H_2或 CO 都引入向涡轮机供能的燃烧反应。在图 4 中，该涡轮机可包括压缩机 402、轴 404、膨胀机 406 和燃烧区 415。可以将氧源 411（如空气和 / 或富氧空气）与再循环排气 498 合并，并在进入燃烧区 415 之前在压缩机 402 中压缩。可以将燃料 412，如 CH_4，和任选含 H_2或 CO 的料流 187 送往燃烧区。燃料和氧化剂可以在区域 415 中反应并任选但优选通过膨胀机 406 以生成电力。来自膨胀机 106 的排气可用于形成两个料流，例如含 CO_2料流 422（其可用作燃料电池阵列 425 的输入进料）和另一含 CO_2料流 492（其可用作热回收和蒸汽发生器系统 490 的输入，这可以例如使得利用蒸汽轮机 494 生成额外电力成为可能）。在通过热回收系统 490，包括从含 CO_2料流中任选除去一部分 H_2O 后，输出料流 498 可以再循环以在压缩机 402 或未显示的第二压缩机中压缩。可基于用于添加到燃烧区 415 中的所需 CO_2量来确定膨胀机 406 的排气的用于含 CO_2料流 492 的比例。

[0387] 本文所用的 EGR 比是排气的燃料电池相关部分的流速除以燃料电池相关部分和送往热回收发生器的回收相关部分的总流速。例如，图 4 中所示的流的 EGR 比是料流 422 的流速除以料流 422 和 492 的总流速。

[0388] 可以将含 CO_2料流 422 送入熔融碳酸盐燃料电池阵列 425 的阴极部分（未显示）。基于燃料电池阵列 425 内的反应，可以从料流 422 中分离 CO_2并送往燃料电池阵列 425 的阳极部分（未显示）。这可产生贫 CO_2的阴极输出料流 424。然后可以将阴极输出料流 424 送入热回收（和任选蒸汽发生器）系统 450 以利用蒸汽轮机 454（其可任选与上述蒸汽轮机 494 相同）生成热交换和 / 或额外发电。在通过热回收和蒸汽发生器系统 450 后，可以将所得烟气流 456 排放到环境中和 / 或通过另一类型的碳捕集技术，如胺洗涤器。

[0389] 在 CO_2从燃料电池阵列 425 的阴极侧传输到阳极侧后，可任选将阳极输出 435 送

入水煤气变换反应器 470。水煤气变换反应器 470 可用于以阳极输出 435 中存在的 CO（和 H_2O）为代价生成额外的 H_2和 CO_2。然后可以将来自任选水煤气变换反应器 470 的输出送入一个或多个分离段 440，如冷箱或深冷分离器。这可以将 H_2O 料流 447 和 CO_2料流 449 与阳极输出的其余部分分离。阳极输出的其余部分 485 可包括通过重整生成但在燃料电池阵列 425 中未消耗的未反应 H_2。含 H_2料流 485 的第一部分 445 可以再循环到燃料电池阵列 425 中的阳极的输入。料流 485 的第二部分 487 可用作燃烧区 415 的输入。第三部分 465 可以原样用于另一用途和 / 或经处理以随后进一步使用。尽管图 4 和本文中的描述示意性详述达多三个部分，但预计根据本发明可以利用这三个部分的仅一个，可以仅利用其中两个，或可以利用所有这三个。

[0390] 在图 4 中，用于排气再循环回路的排气由第一热回收和蒸汽发生器系统 490 提供，而第二热回收和蒸汽发生器系统 450 可用于捕集来自燃料电池阵列 425 的阴极输出的过量热。图 5 显示一个备选实施方案，其中由用于加工燃料电池阵列输出的相同热回收蒸汽发生器提供排气再循环回路。在图 5 中，由热回收和蒸汽发生器系统 550 作为烟气流 556 的一部分提供再循环的排气 598。这可省掉与涡轮机相关的单独热回收和蒸汽发生器系统。

[0391] 在本发明的各种实施方案中，该方法可以以燃烧反应开始，该燃烧反应用于向涡轮机、内燃机或可将由燃烧反应生成的热和 / 或压力转化成另一形式的动力的其它系统供能。用于燃烧反应的燃料可包含或是氢气、烃和 / 或可氧化（燃烧）以释放能量的任何其它含碳化合物。除燃料仅含氢气时外，来自燃烧反应的排气的组成可具有取决于反应性质的一定范围的 CO_2含量（例如至少大约 2 体积％至大约 25 体积％或更低）。因此，在燃料为碳质燃料的某些实施方案中，排气的 CO_2含量可以为至少大约 2 体积％，例如至少大约 4 体积％、至少大约 5 体积％、至少大约 6 体积％、至少大约 8 体积％或至少大约 10 体积％。在这样的碳质燃料实施方案中附加地或作为选择地，CO_2含量可以为大约 25 体积％或更低，例如大约 20 体积％或更低、大约 15 体积％或更低、大约 10 体积％或更低、大约 7 体积％或更低、或大约 5 体积％或更低。具有较低相对 CO_2含量的排气（对于碳质燃料）可相当于使用天然气之类的燃料在稀燃（过量空气）下的燃烧反应的排气。相对 CO_2含量较高的排气（对于碳质燃料）可对应于优化的天然气燃烧反应，如在排气再循环下的那些，和 / 或煤之类燃料的燃烧。

[0392] 在本发明的一些方面中，用于燃烧反应的燃料可含有至少大约 90 体积％的含 5 个或更少碳的化合物，例如至少大约 95 体积％。在这样的方面中，该排气的 CO_2含量可以为至少大约 4 体积％，例如至少大约 5 体积％、至少大约 6 体积％、至少大约 7 体积％或至少大约 7.5 体积％。附加地或作为选择地，该排气的 CO_2含量可以为大约 13 体积％或更低，例如大约 12 体积％或更低，大约 10 体积％或更低，大约 9 体积％或更低，大约 8 体积％或更低，大约 7 体积％或更低，或大约 6 体积％或更低。该排气的 CO_2含量可代表取决于燃烧供能发电机的配置的数值范围。排气的再循环可有益于实现至少大约 6 体积％的 CO_2含量，而将氢气添加到燃烧反应中能使 CO_2含量进一步提高以实现至少大约 7.5 体积％的 CO_2含量。

[0393] 备选配置 - 高强度 NOx 涡轮机

[0394] 燃气轮机的运行可受若干因素限制。一个典型限制可以说是可以将燃烧区中的最大温度控制在一定界限以下以实现足够低的氮氧化物 (NOx) 浓度，从而满足监管排放限

值。当使燃烧排气排放到环境中时，监管排放限值可要求燃烧排气具有大约 20vppm 或更低，可能 10vppm 或更低的 NOx 含量。

[0395] 燃烧天然气的燃烧轮机中的 NOx 形成可以随温度和停留时间而不同。导致形成 NOx 的反应在大约 1500 °F 的火焰温度以下可以具有降低的和 / 或极小的重要性，但随着温度提高到超过这一点，NOx 产生可快速增加。在燃气轮机中，可以将初始燃料产物与额外空气混合以将该混合物冷却到大约 1200 °F 的温度并可通过膨胀机叶片的冶金学来限制温度。早期的燃气轮机通常在具有温度远超过 1500 °F 的化学计量区的扩散火焰中实施燃烧，导致较高的 NOx 浓度。最近，目前这一代“干式低 NOx”(DLN) 燃烧器可以使用特殊的预混燃烧器在更冷的稀燃（比化学计算量少的燃料）条件下燃烧天然气。例如，可以将较多稀释空气混入初始火焰中，稍后可混入较少以使温度降到～ 1200 °F 透平膨胀机入口温度。DLN 燃烧器的缺点可包括降燃 (turndown) 时的不良性能、较高维护、窄运行范围和差燃料灵活性。后者可能是要关注的，因为 DLN 燃烧器可更难用于品质各异的燃料（或根本很难用于液体燃料）。对于低 BTU 燃料，如含有高 CO_2 含量的燃料，通常不使用 DLN 燃烧器而是可使用扩散燃烧器。此外，可以使用更高的透平膨胀机入口温度提高燃气轮机效率。但是，由于稀释空气的量有限并且这种量可随透平膨胀机入口温度提高而降低，随着燃气轮机的效率改进，DLN 燃烧器可变得更不太有效地保持低 NOx。

[0396] 在本发明的各种方面中，将燃气轮机与用于碳捕集的燃料电池集成的系统允许使用更高的燃烧区温度，同时降低和 / 或将额外 NOx 排放减至最低，以及能通过使用目前与 DLN 燃烧器不相容的涡轮机燃料实现类似 DLN 的 NOx 节约。在这样的方面中，涡轮机可以在造成较高 NOx 排放的较高功率（即较高温度）以及较高功率输出和可能较高效率下运行。在本发明的一些方面中，燃烧排气中的 NOx 量可以为至少大约 20vppm，如至少大约 30vppm，或至少大约 40vppm。附加地或作为选择地，燃烧排气中的 NOx 量可以为大约 1000vppm 或更低，如大约 500vppm 或更低，或大约 250vppm 或更低，或大约 150vppm 或更低，或大约 100vppm 或更低。为了将 NOx 水平降至规章要求的水平，所产生的 NOx 可通过经几种机制之一的热 NOx 破坏（将 NOx 水平降至排气料流中的平衡水平）来平衡，所述机制例如为气相中的简单热破坏；由燃料电池阵列中的镍阴极催化剂催化的破坏；和 / 或通过注入少量氨、脲或其它还原剂而在燃料电池前的辅助热破坏。这可通过引入衍生自阳极排气的氢气辅助。可通过电化学破坏实现燃料电池的阴极中的 NOx 的进一步降低，其中 NOx 可以在阴极表面反应并可被破坏。这造成一些氮穿过膜电解质传输到阳极，在此其可形成氨或其它还原的氮化合物。就涉及 MCFC 的 NOx 减少方法而言，来自燃料电池 / 燃料电池阵列的预期 NOx 减少可以为燃料电池阴极的输入中的 NOx 的大约 80％或更低，如大约 70％或更低，和 / 或至少大约 5％。要指出，在传统系统中硫化物腐蚀也可限制温度并影响涡轮机叶片冶金学。但是，MCFC 系统的硫限制可通常要求降低的燃料硫含量，这降低或最大限度减少与硫化物腐蚀有关的问题。在低燃料利用率下运行 MCFC 阵列可进一步缓解这些问题，如在用于燃烧反应的一部分燃料相当于来自阳极排气的氢气的方面中。

[0397] 附加实施方案

[0398] 这组实施方案是组 A。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案。

[0399] 实施方案 1. 一种生产发酵产物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料

料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含CO_2和O_2的阴极入口料流引入燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；从阳极排气中分离含H_2的料流、含合成气的料流或其组合；加工生物质以产生至少一种发酵产物和发酵废气；和蒸馏所述至少一种发酵产物，通过与所述阳极排气的热交换、所述含合成气的料流的燃烧、所述含H_2的料流的燃烧、利用在熔融碳酸盐燃料电池内生成的电力的电加热或其组合提供至少一部分蒸馏热，其中所述方法进一步包括下列一项或多项：a) 所述阴极入口料流包含至少一部分发酵废气；b) 所述加工步骤在从所述阳极排气中分离的H_2O、从所述含合成气的料流中分离的H_2O、从所述含H_2的料流中分离H_2O或其组合存在下进行；c) 所述可重整燃料包含一部分发酵产物，所述可重整燃料任选含有至少50体积%的发酵产物（例如至少60体积%或至少70体积%），所述发酵产物部分任选是具有大约1.5:1至大约3.0:1（例如大约1.5:1至大约2.5:1）的水碳比的发酵产物的蒸馏部分；d) 所述加工步骤包括将基本可发酵的生物质部分与基本不可发酵的生物质部分分离，所述基本不可发酵的生物质部分在一个或多个热、化学和/或热化学工艺中在至少一部分含H_2的气流、至少一部分含合成气的料流或其组合存在下加工；e) 引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的量提供至少大约2.0的可重整燃料过剩率；f) 引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而氧化的氢气量高至少大约50%（例如高至少大约75%或高至少大约100%）；g) 所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约10%至大约40%（例如大约10%至大约35%，大约10%至大约30%，或大约10%至大约25%），且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约55%（例如至少大约65%、至少大约70%、至少大约75%或至少大约80%）；h) 所述熔融碳酸盐燃料电池在大约0.25至大约1.5（例如大约0.25至大约1.3，大约0.25至大约1.15，大约0.25至大约1.0，大约0.25至大约0.85，或大约0.25至大约0.75）的热比率下运行；i) 阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的CO_2摩尔数的比率为至少大约2.0（例如至少大约3.0、至少大约4.0、至少大约5.0、至少大约10.0或至少大约20.0），和任选大约40.0或更低（例如大约30.0或更低，或大约20.0或更低）；j) 熔融碳酸盐燃料电池的阳极中的燃料利用率为大约50%或更低（例如大约40%或更低，大约30%或更低，大约25%或更低，或大约20%或更低）且阴极中的CO_2利用率为至少大约60%（例如至少大约65%、至少大约70%或至少大约75%）；k) 在第一运行条件下运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成电力和至少100mW/cm^{2}的废热，第一运行条件提供至少大约150mA/cm^{2}的电流密度并进行有效量的吸热反应以保持大约80℃或更低（例如大约60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差；l) 所述熔融碳酸盐燃料电池在大约0.60伏特至大约0.67伏特（例如大约0.60伏特至大约0.65伏特，大约0.62伏特至大约0.67伏特，或大约0.62伏特至大约0.65伏特）的电压V_A下运行，所述熔融碳酸盐燃料电池任选在大约65%或更低的燃料利用率下运行；m) 所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，将至少一部分阳极排气再循环到阳极；n) 所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，至少一部分阳极排气用作燃气轮机的燃烧区的阳极再循环燃料，燃气轮机的燃烧区的任选第二燃料料流任选包含至少大约30体积%CO_2和/或至少大约35体积%的CO_2和惰性物的组合（例如至少大约40体积%的CO_2和惰性物的组合、至少大约45体积%的CO_2和惰性物的组合，或至少大

约50体积%的CO_2和惰性物的组合）；o）所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，至少第一部分的所述阳极排气用作燃气轮机的燃烧区的阳极再循环燃料，且至少第二部分的阳极排气再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极中；p）所述阴极入口料流包含至少一部分燃气轮机排气，所述阴极入口料流包含至少大约20vppm的NOx，且阴极排气包含所述阴极入口料流的NOx含量的不到大约一半；q）所述方法进一步包括燃烧至少一部分所述含H_2气流以发电，所述燃烧任选在第二涡轮机的燃烧区中进行，且所述阴极入口料流任选包含至少一部分由含碳燃料的燃烧生成的燃气轮机排气；r）所述方法进一步包括在甲醇合成催化剂存在下在用于形成甲醇的有效条件下使至少一部分所述含合成气的料流反应以产生至少一个含甲醇料流和一个或多个含气体产物或液体产物的料流，和任选将至少一部分所述一个或多个含气体产物或液体产物的料流再循环以形成至少一部分阴极入口料流；s）所述方法进一步包括任选将衍生自一个或多个第一炼油厂工艺的一个或多个含CO_2的料流送往阴极入口，从至少一部分阳极排气中分离CO_2以形成CO_2含量高于阳极排气的CO_2含量的富CO_2气流和CO_2含量小于阳极排气的CO_2含量的贫CO_2气流，并将所述贫CO_2气流送往一个或多个第二炼油厂工艺；t）所述方法进一步包括从至少一部分阳极排气中分离CO_2以产生CO_2含量高于阳极排气的CO_2含量的富CO_2料流和H_2含量高于阳极排气的H_2含量的贫CO_2气流，和在氨合成工艺中、在有机含氮化合物合成工艺中或在两者中使用至少一部分所述贫CO_2气流；u）所述方法进一步包括从阳极排气中取出包含CO的第一气流，所述阳极排气具有大约500kPag或更低的压力，将从阳极排气中取出的第一气流引入铁和/或钢生产工艺，和任选从阳极排气中取出包含H_2的第二气流，并且如果取出，利用第二气流作为用于铁和/或钢生产工艺中的加热的燃料；v）所述方法进一步包括生成包含H_2、CO、H_2O和至少大约20体积%CO_2的阳极排气，使至少一部分阳极排气在有效费托条件下在变换费托催化剂存在下反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物，其中所述至少一部分阳极排气中的CO_2浓度为所述阳极排气中的CO_2浓度的至少80%，和将至少一部分所述至少一种气体产物再循环到阴极入口；w）所述方法进一步包括生成包含H_2、CO、CO_2和H_2O并具有至少大约2.5:1的H_2/CO比率的阳极排气，将至少一部分阳极排气中的H_2/CO比率降至大约1.7:1至大约2.3:1的比率以形成经典合成气料流，其还具有阳极排气中的CO_2浓度的至少60%的CO_2浓度，在有效费托条件下在非变换费托催化剂存在下使所述经典合成气料流反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物，和任选将至少一部分所述至少一种气体产物再循环到阴极入口；和x）所述方法进一步包括生成包含H_2、CO和CO_2、具有至少大约2.5:1的H_2/CO比率并具有至少大约20体积%的CO_2含量的阳极排气，从至少一部分阳极排气中除去水和CO_2以产生阳极流出物气流，所述阳极流出物气流具有小于阳极排气中的水浓度的一半的水浓度、具有小于阳极排气中的CO_2浓度的一半的CO_2浓度、或其组合，所述阳极流出物气流还具有大约2.3:1或更小的H_2/CO比率，和使至少一部分阳极流出物气流在非变换费托催化剂上反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物。

[0400] 实施方案2.实施方案1的方法，其中所述阴极入口料流包含至少一部分阳极排气、至少一部分取自阳极排气的任何气流或其组合。

[0401] 实施方案3.实施方案1或2的方法，其中所述阴极入口料流包含至少一部分来自燃烧反应的排气、来自燃气轮机的排气或其组合。

[0402] 实施方案4.上述实施方案任一项的方法，其中从阳极排气、取自阳极排气的任何

气流或其组合中分离 CO_2，至少一部分分离的 CO_2任选与至少一部分发酵废气合并。

[0403] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中从阳极排气、取自阳极排气的任何气流或其组合中分离 H_2O。

[0404] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从所述阳极排气中分离 H_2O 并在生物质加工过程中使用所述分离的 H_2O 以生产所述至少一种发酵产物。

[0405] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电包括在一定的燃料利用率下运行所述燃料电池，基于生物质加工的电需求、生物质加工的热需求和发酵产物蒸馏的热需求的至少一项选择燃料利用率。

[0406] 实施方案8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述可重整燃料衍生自生物质——通过由生物质加工产生的生物质残渣的厌氧消化。

[0407] 实施方案 9. 实施方案 8 的方法，其中至少一些可重整燃料衍生自生物质——通过由生物质加工产生的生物质残渣的部分氧化和 / 或气化。

[0408] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中所述至少一种发酵产物包含乙醇。

[0409] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从阳极排气中分离富 CO_2 料流并使用所述富 CO_2料流作为光合藻类生长工艺的一部分。

[0410] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中所述可重整燃料衍生自藻类生长池塘中生成的藻类生物质。

[0411] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从阳极排气中分离富 CO_2 料流和将至少一部分富 CO_2料流送往阴极入口。

[0412] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中基于发酵产物的燃烧提供至少一部分蒸馏热。

[0413] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有至少大约 3.0:1 的 H_2:CO 摩尔比。

[0414] 这组实施方案是组 B。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0415] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种发电方法，所述方法包括 ：将再循环的阳极排气燃料料流、低能量含量燃料料流和含 O_2的料流引入燃烧区，所述再循环的阳极排气燃料料流包含 H_2，所述低能量含量燃料料流包含至少大约 30 体积％的一种或多种惰性气体 ；在所述燃烧区中进行燃烧反应以生成燃烧排气 ；将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件、或其组合 ；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极 ；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电 ；由熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成包含 H_2的阳极排气 ；和分离至少一部分所述阳极排气以形成所述再循环的阳极排气燃料料流。

[0416] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述低能量含量燃料料流包含至少大约 35 体积％。

[0417] 实施方案 3. 实施方案 1 或 2 的方法，其中所述低能量含量燃料料流中的所述一种或多种惰性气体是 CO_2、N_2或其组合。

[0418] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极的燃料利用率为大约 65％或更低（例如大约 60％或更低）。

[0419] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极的燃料利用率为大约 30％至大约 50％。

[0420] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括将所述阳极排气料流的阳极再循环部分再循环到所述一个或多个燃料电池阳极。

[0421] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述可重整燃料包含 CH_4。

[0422] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含至少一部分所述燃烧排气。

[0423] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中所述燃烧排气包含大约 10 体积％或更少的 CO_2（例如大约 8 体积％或更少的 CO_2），所述燃烧排气任选包含至少大约 4 体积％的 CO_2。

[0424] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气料流包含至少大约 5.0 体积％的 H_2（例如至少大约 10 体积％或至少大约 15 体积％）。

[0425] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在分离至少一部分所述阳极排气料流以形成所述再循环的阳极排气燃料料流之前使所述阳极排气料流暴露在水煤气变换催化剂下，所述变换的阳极排气料流的 H_2 含量大于所述暴露前的阳极排气料流的 H_2 含量。

[0426] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中在将所述再循环的阳极排气燃料料流送入燃烧区前将所述再循环的阳极排气燃料料流与所述低能量含量燃料料流合并。

[0427] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中阴极排气料流具有大约 2.0 体积％或更低（例如大约 1.5 体积％或更低或大约 1.2 体积％或更低）的 CO_2 含量。

[0428] 这组实施方案是组 C。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0429] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种捕集来自燃烧源的二氧化碳的方法，所述方法包括：将燃料料流和含 O_2 的料流引入燃烧区；在所述燃烧区中进行燃烧反应以生成燃烧排气，所述燃烧排气包含 CO_2；用一个或多个熔融碳酸盐燃料电池的燃料电池阵列加工阴极入口料流以形成来自所述燃料电池阵列的至少一个阴极出口的阴极排气料流，所述阴极入口料流包含至少第一部分的所述燃烧排气，所述一个或多个熔融碳酸盐燃料电池包含一个或多个燃料电池阳极和一个或多个燃料电池阴极，所述一个或多个熔融碳酸盐燃料电池经至少一个阴极入口切实连向所述燃烧区；使来自所述一个或多个燃料电池阴极的碳酸盐与所述一个或多个燃料电池阳极内的 H_2 反应以产生电力和来自所述燃料电池阵列的至少一个阳极出口的阳极排气料流，所述阳极排气料流包含 CO_2 和 H_2；在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2 以形成贫 CO_2 的阳极排气料流；将至少所述贫 CO_2 的阳极排气料流的燃烧再循环部分送往燃烧区；和将至少所述贫 CO_2 的阳极排气料流的阳极再循环部分再循环到所述一个或多个燃料电池阳极。

[0430] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述一个或多个燃料电池阳极中的燃料利用率为大约 65％或更低（例如大约 60％或更低）。

[0431] 实施方案 3. 实施方案 2 的方法，其中所述一个或多个燃料电池阳极中的燃料利用率为大约 30％至大约 50％。

[0432] 实施方案 4. 实施方案 2 的方法，其中所述一个或多个燃料电池阳极包含多个阳极段且所述一个或多个燃料电池阴极包含多个阴极段，其中所述多个阳极段中的低利用率阳极段具有 65％或更低（如大约 60％或更低）的阳极燃料利用率，所述低利用率阳极段对应于所述多个阴极段的高利用率阴极段，所述高利用率阴极段的阴极入口 CO_2含量与所述多个阴极段的任何其它阴极段的阴极入口的 CO_2一样高或更高。

[0433] 实施方案 5. 实施方案 4 的方法，其中所述低利用率阳极段中的燃料利用率为至少大约 40％（例如至少大约 45％或至少大约 50％）。

[0434] 实施方案 6. 实施方案 4 的方法，其中所述多个阳极段的各阳极段中的燃料利用率为大约 65％或更低（例如大约 60％或更低）。

[0435] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述贫 CO_2的阳极排气料流的燃烧再循环部分构成所述贫 CO_2的阳极排气料流的至少大约 25％，且其中所述贫 CO_2的阳极排气料流的阳极再循环部分构成所述贫 CO_2的阳极排气料流的至少大约 25％。

[0436] 实施方案 8. 实施方案 7 的方法，其进一步包括将含碳燃料送入所述一个或多个燃料电池阳极，所述含碳燃料任选包含 CH_4。

[0437] 实施方案 9. 实施方案 8 的方法，其进一步包括：重整至少一部分所述含碳燃料以生成 H_2；和将至少一部分生成的 H_2送入所述一个或多个燃料电池阳极。

[0438] 实施方案 10. 实施方案 8 的方法，其中将所述含碳燃料送入所述一个或多个燃料电池阳极而不在进入所述一个或多个燃料电池阳极之前将所述含碳燃料送入重整阶段。

[0439] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中所述燃烧排气包含大约 10 体积％或更少的 CO_2（例如 8 体积％或更少的 CO_2），所述燃烧排气任选包含至少大约 4 体积％的 CO_2。

[0440] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括将第二部分的燃烧排气再循环到燃烧区，所述第二部分的燃烧排气任选包含至少大约 6 体积％ CO_2。

[0441] 实施方案 13. 实施方案 12 的方法，其中将所述第二部分的燃烧排气再循环到燃烧区包括：在第二部分的燃烧排气和含 H_2O 的料流之间交换热以形成蒸汽；从所述第二部分的燃烧排气中分离水以形成贫 H_2O 的燃烧排气料流；和将至少一部分所述贫 H_2O 的燃烧排气送入燃烧区。

[0442] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2之前，所述阳极排气料流包含至少大约 5.0 体积％的 H_2（例如至少大约 10 体积％或至少大约 15 体积％）。

[0443] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2之前使所述阳极排气料流暴露在水煤气变换催化剂下以形成变换的阳极排气料流，暴露在水煤气变换催化剂下后的所述变换的阳极排气料流的 H_2含量大于暴露在水煤气变换催化剂下之前的阳极排气料流的 H_2含量。

[0444] 实施方案 16. 上述实施方案任一项的方法，其中在将所述贫 CO_2的阳极排气料流的燃烧再循环部分送入燃烧区前将所述贫 CO_2的阳极排气料流的燃烧再循环部分与燃料料流合并。

[0445] 实施方案 17. 上述实施方案任一项的方法，其中阴极排气料流具有大约 2.0 体积％或更低（例如大约 1.5 体积％或更低或大约 1.2 体积％或更低）的 CO_2含量。

[0446] 实施方案 18. 上述实施方案任一项的方法，其中在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2包括：任选从所述阳极排气料流中分离水以形成任选贫 H_2O 的阳极排气料流；冷却所述任选贫 H_2O 的阳极排气料流以形成 CO_2的凝聚相。

[0447] 这组实施方案是组 D。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0448] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种捕集来自燃烧源的二氧化碳的方法，所述方法包括：将燃烧燃料料流和含 O_2的料流引入燃烧区；在所述燃烧区中进行燃烧反应以生成燃烧排气，所述燃烧排气包含 CO_2；用一个或多个熔融碳酸盐燃料电池的燃料电池阵列加工阴极入口料流以形成来自所述燃料电池阵列的至少一个阴极出口的阴极排气料流，所述阴极入口料流包含至少第一部分的所述燃烧排气，所述一个或多个熔融碳酸盐燃料电池包含一个或多个燃料电池阳极和一个或多个燃料电池阴极，所述一个或多个熔融碳酸盐燃料电池经至少一个阴极入口切实连向所述燃烧区；使来自所述一个或多个燃料电池阴极的碳酸盐与所述一个或多个燃料电池阳极内的 H_2反应以产生电力和来自所述燃料电池阵列的至少一个阳极出口的阳极排气料流，所述阳极排气料流包含 CO_2和 H_2；在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2以形成贫 CO_2的阳极排气料流；和将至少所述贫 CO_2的阳极排气料流的燃烧再循环部分送往燃烧区。

[0449] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其进一步包括将所述贫 CO_2的阳极排气料流的阳极再循环部分再循环到所述一个或多个燃料电池阳极。

[0450] 实施方案 3. 实施方案 2 的方法，其进一步包括将含碳燃料送入所述一个或多个燃料电池阳极，所述含碳燃料任选包含 CH_4。

[0451] 实施方案 4. 实施方案 3 的方法，其中将含碳燃料送入所述一个或多个燃料电池阳极包括：重整至少一部分所述含碳燃料以生成 H_2；和将至少一部分生成的 H_2送入所述一个或多个燃料电池阳极。

[0452] 实施方案 5. 实施方案 3 的方法，其中将所述含碳燃料送入所述一个或多个燃料电池阳极而不在进入所述一个或多个燃料电池阳极之前将所述含碳燃料送入重整阶段。

[0453] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述燃烧排气包含大约 10 体积％或更少的 CO_2（例如 8 体积％ CO_2），所述燃烧排气任选包含至少大约 4 体积％的 CO_2。

[0454] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括将第二部分的燃烧排气再循环到燃烧区，所述第二部分的燃烧排气任选包含至少大约 6 体积％ CO_2。

[0455] 实施方案 8. 实施方案 7 的方法，其中将所述第二部分的燃烧排气再循环到燃烧区包括：在所述第二部分的燃烧排气和含 H_2O 的料流之间交换热以形成蒸汽；从所述第二部分的燃烧排气中分离水以形成贫 H_2O 的燃烧排气料流；和将至少一部分所述贫 H_2O 的燃烧排气料流送入燃烧区。

[0456] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2之前，所述阳极排气料流包含至少大约 5.0 体积％的氢气（例如至少大约 10 体积％或至少大约 15 体积％）。

[0457] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2之前使所述阳极排气料流暴露在水煤气变换催化剂下以形成变换的阳极排气料流，所述变换的阳极排气料流的 H_2含量大于暴露在水煤气变换催化剂下之前的阳极排气料流的 H_2含量。

[0458] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中所述一个或多个燃料电池阳极的燃料利用率为大约 45％至大约 65％（例如大约 60％或更低）。

[0459] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中在将所述贫 CO_2的阳极排气料流的燃烧再循环部分送入燃烧区前将所述贫 CO_2的阳极排气料流的燃烧再循环部分与所述燃烧燃料料流合并。

[0460] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中阴极排气料流具有大约 2.0 体积％或更低（例如大约 1.5 体积％或更低或大约 1.2 体积％或更低）的 CO_2含量。

[0461] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2包括冷却所述阳极排气料流以形成 CO_2的凝聚相。

[0462] 实施方案 15. 实施方案 14 的方法，其中在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气料流中分离 CO_2进一步包括在形成 CO_2的凝聚相之前从所述阳极排气料流中分离水。

[0463] 实施方案 16. 补充或替代任何上述实施方案组，一种发电系统，其包含：包括压缩机的燃气轮机，所述压缩机接收氧化剂进料并与燃烧区流体连通，所述燃烧区进一步接收至少一个燃烧燃料进料，所述燃烧区与具有排气输出的膨胀机流体连通；提供第一部分的膨胀机排气输出和燃烧区之间的流体连通的排气再循环系统；包含一个或多个燃料电池阳极和一个或多个燃料电池阴极的熔融碳酸盐燃料电池阵列，所述熔融碳酸盐燃料电池阵列具有至少一个阴极输入、至少一个阴极输出、至少一个阳极输入和至少一个阳极输出，第二部分的膨胀机排气输出与所述至少一个阴极输入流体连通；和阳极再循环回路，其包含一个或多个用于分离阳极排气料流的二氧化碳分离阶段以形成阳极再循环回路输出，第一部分的阳极再循环回路输出作为燃烧燃料进料供往燃烧区。

[0464] 实施方案 17. 实施方案 16 的系统，其中第二部分的阳极再循环回路输出供往所述至少一个阳极输入。

[0465] 实施方案 18. 实施方案 16 或 17 的系统，其中所述阳极再循环回路进一步包含水煤气变换反应阶段，所述阳极排气料流在所述一个或多个二氧化碳分离阶段的至少一个阶段之前经过水煤气变换反应阶段。

[0466] 实施方案 19. 实施方案 16 至 18 任一项的系统，其中所述排气再循环系统进一步包含热回收蒸汽发生系统。

[0467] 实施方案 20. 实施方案 16 至 19 任一项的系统，其中所述排气再循环系统通过将第一部分的膨胀机排气输出送入压缩机来提供第一部分的膨胀机排气输出和燃烧区之间的流体连通。

[0468] 这组实施方案是组 E。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0469] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种捕集来自燃烧源的二氧化碳的方法，所述方法包括：捕集来自燃烧源的输出料流，所述捕集的输出料流包含氧气和二氧

化碳；用一个或多个熔融碳酸盐燃料电池的燃料电池阵列加工所述捕集的输出料流以形成来自所述燃料电池阵列的至少一个阴极出口的阴极排气料流，所述一个或多个熔融碳酸盐燃料电池包含一个或多个燃料电池阳极和一个或多个燃料电池阴极，所述一个或多个熔融碳酸盐燃料电池经至少一个阴极入口切实连向来自燃烧源的捕集的输出料流；使来自所述一个或多个燃料电池阴极的碳酸盐与所述一个或多个燃料电池阳极内的 H_2 反应以产生电力和来自所述燃料电池阵列的至少一个阳极出口的阳极排气料流，所述阳极排气料流包含 CO_2 和 H_2；任选使所述阳极排气料流经过水煤气变换反应阶段以形成任选变换的阳极排气料流；在一个或多个分离阶段中从所述任选变换的阳极排气料流中分离二氧化碳以形成贫 CO_2 的阳极排气料流；和将至少一部分所述贫 CO_2 的阳极排气料流再循环到所述一个或多个燃料电池阳极，与碳酸盐反应的至少一部分 H_2 包含来自所述再循环的至少一部分贫 CO_2 的阳极排气料流的 H_2。

[0470] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述阳极排气料流的 H_2 含量为至少大约 10 体积%（例如至少大约 20 体积%）。

[0471] 实施方案 3. 上述实施方案任一项的方法，其中所述一个或多个燃料电池阳极的燃料利用率为大约 60%或更低（例如大约 50%或更低）。

[0472] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述一个或多个燃料电池阳极的燃料利用率为至少大约 30%（例如至少大约 40%）。

[0473] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中阴极排气具有大约 2.0 体积%或更低（例如大约 1.5 体积%或更低）的 CO_2 含量。

[0474] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括将含碳燃料送入所述一个或多个燃料电池阳极。

[0475] 实施方案 7. 实施方案 6 的方法，其中所述含碳燃料在组装件内的至少一个重整阶段中重整，所述组装件包含所述至少一个重整阶段和所述燃料电池阵列。

[0476] 实施方案 8. 实施方案 6 或 7 的方法，其中来自所述再循环的至少一部分贫 CO_2 的阳极排气料流的 H_2 构成阳极输入料流的至少大约 5 体积%。

[0477] 实施方案 9. 实施方案 8 的方法，其中将所述含碳燃料送入所述一个或多个燃料电池阳极而不在进入所述一个或多个燃料电池阳极之前将所述含碳燃料送入重整阶段。

[0478] 实施方案 10. 实施方案 6-9 任一项的方法，其中所述含碳燃料包含甲烷。

[0479] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中将所述至少一部分贫 CO_2 的阳极排气料流再循环到所述一个或多个阳极，而不将一部分阳极排气料流直接或间接再循环到所述一个或多个阴极。

[0480] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中所述捕集的输出料流包含至少大约 4 体积% CO_2。

[0481] 实施方案 13. 上述权利要求任一项的方法，其中所述捕集的输出料流包含大约 8 体积% CO_2 或更少。

[0482] 这组实施方案是组 F。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0483] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用包含阳极和阴极的熔融

碳酸盐燃料电池生产电力和氢气或合成气的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；从所述阳极排气中分离含 H_2 的料流、含合成气的料流或其组合，其中引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的量提供至少大约 2.0（例如至少大约 2.5 或至少大约 3.0）的可重整燃料过剩率

[0484] 实施方案 2. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用包含阳极和阴极的熔融碳酸盐燃料电池生产电力和氢气或合成气的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；从所述阳极排气中分离含 H_2 的料流、含合成气的料流或其组合，其中所述阳极燃料料流具有比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中氧化的 H_2 量高至少 50％的可重整氢气含量。

[0485] 实施方案 3. 实施方案 1 或 2 的方法，其中引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中氧化的 H_2 量高至少大约 75％（例如高至少大约 100％）。

[0486] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，所述方法进一步包括重整所述可重整燃料，其中在经过熔融碳酸盐燃料电池的阳极的单程中重整引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的至少大约 90％。

[0487] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极的 CO_2 利用率为至少大约 50％。

[0488] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极燃料料流包含至少大约 10 体积％惰性化合物、至少大约 10 体积％ CO_2 或其组合。

[0489] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述含合成气的料流具有大约 3.0:1 至大约 1.0:1（例如大约 2.5:1 至大约 1.0:1，大约 3.0:1 至大约 1.5:1，或大约 2.5:1 至大约 1.5:1）的 H_2/CO 摩尔比。

[0490] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有大约 1.5:1 至大约 10:1（例如大约 3.0:1 至大约 10:1）的 H_2/CO 摩尔比。

[0491] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中 a）少于 10 体积％的阳极排气、b）少于 10 体积％的在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中单程产生的 H_2 或 c）少于 10 体积％的所述含合成气的料流直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0492] 实施方案 10. 实施方案 1-8 任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极、直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阴极或其组合。

[0493] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从 i）阳极排气、ii）含

氢气的料流和 iii) 含合成气的料流之一或其组合中分离 CO_2 和 H_2O 的至少一种。

[0494] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中所述含氢气的料流含有至少大约 90 体积% H_2（例如大约 95 体积% H_2 或大约 98 体积% H_2）。

[0495] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含大约 20 体积% CO_2 或更少（例如大约 15 体积% CO_2 或更少，或大约 12 体积% CO_2 或更少）。

[0496] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.67 伏特或更低（例如大约 0.65 伏特或更低）的电压 V_A 下运行。

[0497] 这组实施方案是组 G。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0498] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用具有阳极和阴极的熔融碳酸盐燃料电池生产电力和氢气或合成气的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；从所述阳极排气中分离含氢气的料流、含合成气的料流或其组合，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 55％。

[0499] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述含合成气的料流具有大约 3.0:1 至大约 1.0:1（例如大约 2.5:1 至大约 1.0:1，大约 3.0:1 至大约 1.5:1，或大约 2.5:1 至大约 1.5:1）的 H_2/CO 摩尔比。

[0500] 实施方案 3. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 35％或更低（例如大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）。

[0501] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 65％（例如至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）。

[0502] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，所述方法进一步包括重整所述可重整燃料，其中在经过熔融碳酸盐燃料电池的阳极的单程中重整引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的重整阶段或其组合的可重整燃料的至少大约 90％。

[0503] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中氧化的 H_2 量高至少大约 75％（例如高至少大约 100％）。

[0504] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极燃料料流包含至少大约 10 体积％惰性化合物、至少大约 10 体积% CO_2 或其组合。

[0505] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中 a) 少于 10 体积％的阳极排气、b) 少于 10 体积％的在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中单程产生的 H_2 或 c) 少于 10 体积％的所述含合成气的料流直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0506] 实施方案 9. 实施方案 1-7 任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极、直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阴极或其组合。

[0507] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从 i）阳极排气、ii）含氢气的料流和 iii）含合成气的料流之一或其组合中分离 CO_2和 H_2O 的至少一种。

[0508] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含大约 20 体积％ CO_2或更少（例如大约 15 体积％或更少，大约 12 体积％或更少，或大约 10 体积％或更少）。

[0509] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在小于大约 0.67 伏特或更低（例如大约 0.65 伏特或更低）的电压 V_A下运行。

[0510] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有大约 1.5:1 至大约 10:1（例如大约 3.0:1 至大约 10:1）的 H_2/CO 摩尔比。

[0511] 这组实施方案是组 H。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0512] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用熔融碳酸盐燃料电池生产电力和氢气或合成气的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极的阳极入口；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极的阴极入口；在大约 1.3 或更低（例如大约 1.15 或更低或大约 1.0 或更低）的热比率下运行所述熔融碳酸盐燃料电池以发电；从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；和从所述阳极排气中分离含氢气的料流、含合成气的料流或其组合。

[0513] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述阴极的 CO_2利用率为的至少大约 50％。

[0514] 实施方案 3. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池进一步包含一个或多个集成吸热反应阶段。

[0515] 实施方案 4. 实施方案 3 的方法，其中所述一个或多个集成吸热反应阶段的至少一个集成吸热反应阶段包含集成重整阶段，引入阳极入口的所述阳极燃料料流在进入阳极入口之前经过所述集成重整阶段。

[0516] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.67 伏特或更低（例如大约 0.65 伏特或更低）的电压 V_A下运行。

[0517] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从 i）阳极排气、ii）含氢气的料流和 iii）含合成气的料流之一或其组合中分离 CO_2和 H_2O 的至少一种。

[0518] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述热比率为大约 0.85 或更低，所述方法进一步包括向所述熔融碳酸盐燃料电池供热以保持比阳极入口的温度低大约 5℃至大约 50℃的阳极出口的温度。

[0519] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述热比率为至少大约 0.25。

[0520] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极出口的温度比阳极入口的温度高大约 40° ℃或更低。

[0521] 实施方案 10. 实施方案 1-8 任一项的方法，其中阳极入口的温度与阳极出口的温度相差大约 20℃或更低。

[0522] 实施方案 11. 实施方案 1-8 任一项的方法，其中阳极出口的温度比阳极入口的温度低大约 10℃至大约 80℃。

[0523] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中 a) 少于 10 体积％的阳极排气、b) 少于 10 体积％的在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中单程产生的 H_2 或 c) 少于 10 体积％的所述含合成气的料流直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0524] 实施方案 13. 实施方案 1-11 任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极、直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阴极或其组合。

[0525] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中所述含合成气的料流具有大约 3.0:1 至大约 1.0:1（例如大约 2.5:1 至大约 1.0:1，大约 3.0:1 至大约 1.5:1，或大约 2.5:1 至大约 1.5:1）的 H_2/CO 摩尔比。

[0526] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有大约 1.5:1 至大约 10:1（例如大约 3.0:1 至大约 10:1）的 H_2/CO 摩尔比。

[0527] 这组实施方案是组 J。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0528] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用包含阳极和阴极的熔融碳酸盐燃料电池发电的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；和从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率为至少大约 2.0。

[0529] 实施方案 2. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用包含阳极和阴极的熔融碳酸盐燃料电池发电的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极，阴极入口料流中的 CO_2 浓度为大约 6 体积％或更低；和在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；和从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率为至少大约 1.5。

[0530] 实施方案 3. 实施方案 2 的方法，其中阴极入口料流中的 CO_2 浓度为大约 5 体积％或更低。

[0531] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率为至少大约 3.0（例如至少大约 4.0）。

[0532] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述方法进一步包括从所述阳极排气中分离含 H_2 的料流、含合成气的料流或其组合。

[0533] 实施方案 6. 实施方案 5 的方法，其进一步包括在从阳极排气中分离含合成气的料流之前从阳极排气中分离含 H_2 的料流，所述含 H_2 的料流含有至少大约 90 体积％ H_2（例如至少大约 95 体积％ H_2，或至少大约 98 体积％ H_2）。

[0534] 实施方案7. 实施方案5或6的方法，其中所述含合成气的料流具有大约3.0:1（例如大约2.5:1或更低）至大约1.0:1（例如至少大约1.5:1）的H_2/CO摩尔比。

[0535] 实施方案8. 实施方案5-7任一项的方法，其进一步包括从i）阳极排气、ii）含H_2的料流和iii）含合成气的料流之一或其组合中分离CO_2和H_2O的至少一种。

[0536] 实施方案9. 实施方案5-8任一项的方法，其进一步包括从所述含合成气的料流中分离含有至少大约90体积%H_2的料流。

[0537] 实施方案10. 上述权利要求任一项的方法，其中所述阳极排气具有大约1.5:1（例如至少大约3.0:1）至大约10:1的H_2/CO比。

[0538] 实施方案11. 上述权利要求任一项的方法，其中所述阳极燃料料流包含至少大约10体积%惰性化合物、至少大约10体积%CO_2或其组合。

[0539] 实施方案12. 上述权利要求任一项的方法，其中a）少于10体积%的阳极排气、b）少于10体积%的在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中单程产生的H_2或c）少于10体积%的所述含合成气的料流直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0540] 实施方案13. 实施方案1-11任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极、直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阴极或其组合。

[0541] 实施方案14. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含来自燃烧供能发电机的燃烧排气料流。

[0542] 实施方案15. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约0.67伏特或更低的电压V_A下运行。

[0543] 这组实施方案是组K。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0544] 实施方案1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用包含阳极和阴极的熔融碳酸盐燃料电池生产电力和氢气或合成气的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含CO_2和O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；从所述阳极排气中分离含H_2的料流、含合成气的料流或其组合，其中所述阳极的燃料利用率为大约50%或更低且所述阴极的CO_2利用率为至少大约60%。

[0545] 实施方案2. 实施方案1的方法，其中引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中氧化的H_2量高至少大约75%。

[0546] 实施方案3. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含大约20体积%CO_2或更少（例如大约15体积%CO_2或更少，或大约12体积%CO_2或更少）。

[0547] 实施方案4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极的燃料利用率为大约40%或更低（例如大约30%或更低）。

[0548] 实施方案5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的阴极

的 CO_2利用率为至少大约 65%（例如至少大约 70%）。

[0549] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极燃料料流包含至少大约 10 体积%惰性化合物、至少大约 10 体积% CO_2或其组合。

[0550] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述含合成气的料流具有大约 3.0:1（例如大约 2.5:1 或更低）至大约 1.0:1（例如至少大约 1.5:1）的 H_2/CO 摩尔比。

[0551] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有大约 1.5:1（例如至少大约 3.0:1）至大约 10:1 的 H_2/CO 摩尔比。

[0552] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中 a）少于 10 体积%的阳极排气、b）少于 10 体积%的在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中单程产生的 H_2或 c）少于 10 体积%的所述含合成气的料流直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0553] 实施方案 10. 实施方案 1-8 任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极、直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阴极或其组合。

[0554] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从 i）阳极排气、ii）含 H_2的料流和 iii）含合成气的料流之一或其组合中分离 CO_2和 H_2O 的至少一种。

[0555] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中所述含 H_2的料流含有至少大约 90 体积% H_2（例如至少大约 95 体积%，或至少大约 98 体积%）。

[0556] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含来自燃烧供能发电机的燃烧排气料流。

[0557] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.67 伏特或更低（例如大约 0.65 伏特或更低）的电压 V_A下运行。

[0558] 这组实施方案是组 L。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0559] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种运行熔融碳酸盐燃料电池的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极的阳极入口；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极的阴极入口；在第一运行条件下运行熔融碳酸盐燃料电池以生成电力和至少 $30mW/cm^2$的废热，第一运行条件提供至少大约 $150mA/cm^2$的电流密度；从熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；和进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低的在阳极入口与阳极出口之间的温度差。

[0560] 实施方案 2. 补充或替代任何上述实施方案组，一种运行熔融碳酸盐燃料电池的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极的阳极入口；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极的阴极入口；在第一运行条件下运行熔融碳酸盐燃料电池以生成电力，第一运行条件提供至少大约 $150mA/cm^2$的电流密度，第一运行条件具有相应的基线运行条件；从熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；和进行有效量的吸热反应以保持大约 80℃或更低的在阳极入口与阳极出口之间的温度差，其中在基线运行条件下运行熔融碳酸盐燃料电池会导致在阳极

入口与阳极出口之间至少大约100℃的升温，所述熔融碳酸盐燃料电池的基线运行条件被定义为除基线运行条件包含大约75％的熔融碳酸盐燃料电池的阳极的燃料利用率且基线运行条件中的阳极燃料料流包含至少大约80体积％的甲烷外与第一运行条件相同的运行条件。

[0561] 实施方案3.补充或替代任何上述实施方案组，一种运行熔融碳酸盐燃料电池的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极的阳极入口；将包含CO_2和O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极的阴极入口；在第一运行条件下运行熔融碳酸盐燃料电池以生成在第一功率密度下的电力和废热，第一运行条件包含第一阳极入口温度、第一阳极入口流速、第一阳极燃料分压、第一阳极水分压、第一阴极入口流速、第一阴极入口CO_2分压和第一阴极入口O_2分压，第一运行条件具有相应的最大功率运行条件；从熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；和进行有效量的吸热反应以保持大约80℃或更低的在阳极入口与阳极出口之间的温度差，其中在最大功率运行条件下运行燃料电池组件会产生与第一功率密度相差小于大约20％的功率密度，最大功率运行条件相当于就包含第一阳极入口温度、第一阳极入口流速、第一阳极燃料分压、第一阳极水分压、第一阴极入口流速、第一阴极入口CO_2分压和第一阴极入口O_2分压的运行条件而言生成最大功率密度的运行条件。

[0562] 实施方案4.实施方案3的方法，其中在最大功率运行条件下的功率密度与第一功率密度相差小于大约15％。

[0563] 实施方案5.上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从所述熔融碳酸盐燃料电池中取出包含一种或多种通过进行有效量的吸热反应生成的反应产物的产物料流。

[0564] 实施方案6.实施方案5的方法，其中从所述熔融碳酸盐燃料电池中取出所述产物料流而不经过所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极。

[0565] 实施方案7.上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池进一步包含一个或多个集成吸热反应阶段。

[0566] 实施方案8.实施方案7的方法，其中所述一个或多个集成吸热反应阶段的至少一个集成吸热反应阶段包含集成重整阶段，所述阳极燃料料流在引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极的阳极入口之前经过所述集成重整阶段。

[0567] 实施方案9.实施方案7或8的方法，其中进行有效量的吸热反应包括将可重整燃料重整。

[0568] 实施方案10.上述实施方案任一项的方法，其中进行有效量的吸热反应包括进行消耗通过在第一运行条件下运行熔融碳酸盐燃料电池而生成的废热的至少大约40％的吸热反应。

[0569] 实施方案11.上述实施方案任一项的方法，其中阳极出口的温度比阳极入口的温度高少于50℃。

[0570] 实施方案12.上述实施方案任一项的方法，其中运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成至少大约40mW/cm^2（例如至少大约50mW/cm^2，或至少大约60mW/cm^2）的废热。

[0571] 实施方案13.上述实施方案任一项的方法，其中第一运行条件提供至少大约200mA/cm^{2}的电流密度。

[0572] 实施方案14.上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在小于

大约 0.7 伏特（例如大约 0.67 伏特或更低，或大约 0.65 伏特或更低）的电压 V_A 下运行。

[0573] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到阳极、直接或间接再循环到阴极或其组合。

[0574] 实施方案 16. 上述实施方案任一项的方法，其中少于 10 体积％的阳极排气直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0575] 实施方案 17. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从所述阳极排气中分离含 H_2 的料流、含合成气的料流或其组合。

[0576] 实施方案 18. 实施方案 17 的方法，其中少于 10 体积％的在熔融碳酸盐燃料电池的阳极中单程产生的 H_2 直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0577] 实施方案 19. 实施方案 17 的方法，其中少于 10 体积％的所述含合成气的料流直接或间接再循环到熔融碳酸盐燃料电池的阳极或熔融碳酸盐燃料电池的阴极。

[0578] 这组实施方案是组 M。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0579] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用具有阳极和阴极的熔融碳酸盐燃料电池发电的方法，所述方法包括：将燃烧燃料料流和含 O_2 的料流引入燃烧区；在所述燃烧区中进行燃烧反应以生成燃烧排气，所述燃烧排气包含至少大约 20vppm 的 NOx；将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含至少一部分所述燃烧排气的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极，所述阴极入口料流包含 CO_2、O_2 和至少大约 20vppm 的氮氧化物；生成 a) 熔融碳酸盐燃料电池内的电力、b) 包含 H_2 和 CO_2 的阳极排气和 c) 包含小于阴极入口料流的大约一半的 NO_x 含量的阴极排气；和分离至少一部分所述阳极排气以形成具有比所述阳极排气高的 CO_2 含量的富 CO_2 阳极排气料流和具有比所述阳极排气低的 CO_2 含量的贫 CO_2 阳极排气料流。

[0580] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述阴极排气包含大约 15vppm 或更少的 NOx。

[0581] 实施方案 3. 实施方案 1 或 2 的方法，其中所述阴极入口料流包含大约 500vppm 或更少的 NOx。

[0582] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述燃烧排气包含大约 10 体积％或更少的 CO_2（例如大约 8 体积％或更少）。

[0583] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述燃烧区在至少大约 1200 °F 的温度下运行。

[0584] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括将至少一部分所述贫 CO_2 的阳极排气料流再循环到燃烧区、熔融碳酸盐燃料电池的阳极或其组合。

[0585] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在从所述阳极排气料流中分离 CO_2 之前使所述阳极排气料流暴露在水煤气变换催化剂下，所述变换的阳极排气料流的 H_2 含量小于所述暴露前的阳极排气料流的 H_2 含量。

[0586] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括将来自燃烧排气的燃烧

排气再循环部分再循环到燃烧区。

[0587] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极排气料流具有大约 2.0 体积％或更低（例如大约 1.5 体积％或更低，或大约 1.2 体积％或更低）的 CO_2含量。

[0588] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极燃料料流包含至少大约 10 体积％惰性化合物、至少大约 10 体积％ CO_2或其组合。

[0589] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气料流包含大约 3.0:1 至大约 10.0:1 摩尔比的 H_2和 CO。

[0590] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中进入燃烧区的燃烧燃料料流是烃质的，阴极入口料流中的 CO_2与阴极入口料流中的 NOx 的比率为大约 100 至大约 10,000。

[0591] 实施方案 13. 补充或替代任何上述实施方案组，一种发电方法，所述方法包括：将一个或多个燃料料流和含 O_2的料流引入反应区；在所述燃烧区中进行燃烧反应以生成燃烧排气，所述燃烧排气包含至少大约 20vppm 的 NOx；将包含可重整燃料的阳极燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含至少一部分所述燃烧排气的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极，所述阴极入口料流包含大约 20vppm 至大约 500vppm 氮氧化物的氮氧化物含量；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；和生成氮氧化物含量不到阴极入口料流的氮氧化物含量的一半的阳极排气。

[0592] 实施方案 14. 实施方案 13 的方法，其中进入燃烧区的燃料料流是烃质的，阴极入口料流中的 CO_2与阴极入口料流中的 NOx 的比率为大约 100 至大约 10,000。

[0593] 这组实施方案是组 N。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0594] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种发电方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电，所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 60％或更低的燃料利用率下运行；生成包含 H_2、CO 和 CO_2的阳极排气；从至少一部分阳极排气中分离包含至少大约 80 体积％（例如至少大约 90％）H_2的第一富 H_2气流；和燃烧至少一部分第一富 H_2气流以发电。

[0595] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其进一步包括 (i) 对所述阳极排气、所述至少一部分阳极排气或其组合进行水煤气变换工艺；(ii) 从所述阳极排气、所述至少一部分阳极排气或其组合中分离 CO_2和 / 或 H_2O；或 (iii)(i) 和 (ii)。

[0596] 实施方案 3. 实施方案 1 或 2 的方法，其中所述分离步骤包括：对所述阳极排气或至少一部分阳极排气进行水煤气变换工艺以形成变换的阳极排气部分；和从所述变换的阳极排气部分中分离 H_2O 和 CO_2以形成第一富 H_2气流。

[0597] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中燃烧步骤包括由燃烧生成的热生成蒸汽和由至少一部分生成的蒸汽发电。

[0598] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述燃烧步骤包括在涡轮机中燃烧所述至少一部分第一富 H_2气流。

[0599] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含来自含碳燃料在燃气轮机中的燃烧的排气。

[0600] 实施方案 7。实施方案 6 的方法，其中所述含碳燃料包含下列一种或多种：至少 5 体积％的惰性气体；至少大约 10 体积％ CO_2；和至少大约 10 体积％ N_2。

[0601] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有至少大约 2.5:1（例如至少大约 3.0:1、至少大约 4.0:1 或至少大约 5.0:1）的 H_2:CO 比。

[0602] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括由所述阳极排气、所述至少一部分阳极排气、第一富 H_2 气流或其组合形成第二含 H_2 料流；和将至少一部分第二含 H_2 料流再循环至燃气轮机。

[0603] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中至少大约 90 体积％的可重整燃料是甲烷。

[0604] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.3，大约 0.25 至大约 1.15，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.85，大约 0.25 至大约 0.8，或大约 0.25 至大约 0.75）的热比率下运行。

[0605] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池中反应的氢气量高至少大约 50％（例如高至少大约 75％或高至少大约 100％）。

[0606] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率为至少大约 2.0:1（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0，或至少大约 20.0），和任选大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）。

[0607] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 50％或更低（例如大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的 CO_2 利用率为至少大约 60％（例如至少大约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）。

[0608] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成在至少大约 150mA/cm^2 的电流密度下的电力和至少大约 40mW/cm^2（例如至少大约 50mW/cm^2、至少大约 60mW/cm^2、至少大约 80mW/cm^2 或至少 100mW/cm^2）的废热，所述方法进一步包括进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低（例如大约 80℃或更低或大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差，并且任选其中，进行所述吸热反应消耗至少大约 40％（例如至少大约 50％、至少大约 60％或至少大约 75％）的废热。

[0609] 实施方案 16. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％（例如大约 10％至大约 35％，大约 10％至大约 30％，大约 10％至大约 25％，大约 10％至大约 20％）且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 50％（例如至少大约 55％、至少大约 60％、至少大约 65％、至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）。

[0610] 这组实施方案是组 P。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0611] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种合成烃质化合物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件、或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的

阴极入口；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；生成包含 H_2、CO、H_2O 和至少大约 20 体积% CO_2的阳极排气；在有效费托条件下在变换费托催化剂（例如包含 Fe）存在下使至少一部分阳极排气反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物，其中所述至少一部分阳极排气中的 CO_2浓度为所述阳极排气中的 CO_2浓度的至少 80%；和将至少一部分所述至少一种气体产物再循环到阴极入口。

[0612] 实施方案 2. 补充或替代任何上述实施方案组，一种合成烃质化合物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与阳极相关的内部重整元件、或其组合；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极入口；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；生成包含 H_2、CO、H_2O 和至少大约 20 体积% CO_2的阳极排气；和在有效费托条件下在变换费托催化剂（例如包含 Fe）存在下使至少一部分阳极排气反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物，其中所述至少一部分阳极排气中的 CO_2浓度为所述阳极排气中的 CO_2浓度的至少 80%，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量提供至少大约 1.5 的可重整燃料过剩率。

[0613] 实施方案 3. 实施方案 2 的方法，其进一步包括将至少一部分气体产物再循环到阳极入口、阴极入口或其组合。

[0614] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气中的 H_2/CO 比为至少大约 2.5:1（例如至少大约 3.0:1、至少大约 4.0:1 或至少大约 5.0:1）。

[0615] 实施方案 5. 实施方案 1 和 3-4 任一项的方法，其中所述再循环步骤包括：从所述至少一种气体产物中除去 CO_2以产生含 CO_2的料流和包含 CO_2、CO 和 H_2的分离的合成气流出物，以使所述含 CO_2的料流具有比所述至少一种气体产物中的 CO_2含量高的 CO_2含量；任选氧化至少一部分分离的合成气流出物；和然后将任选氧化的至少一部分分离的合成气流出物再循环到阴极入口。

[0616] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在所述至少一部分阳极排气在有效费托条件下反应前压缩所述阳极排气、所述至少一部分阳极排气或其组合。

[0617] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括使至少一部分阳极排气料流暴露在水煤气变换催化剂下以形成变换的阳极排气，然后从至少一部分变换的阳极排气中除去水和 CO_2。

[0618] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含来自燃气轮机的排气。

[0619] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池中反应的氢气量高至少大约 50%（例如高至少大约 75%或高至少大约 100%）。

[0620] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2摩尔数的比率为至少大约 2.0:1（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0 或至少大约 20.0），和任选大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）。

[0621] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 50%或更低（例如大约 30%或更低，大约 25%或更低，或大约 20%或更低）且阴极中的 CO_2利用率为至少大约 60%（例如至少大约 65%、至少大约 70%或至少大约 75%）。

[0622] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成在至少大约 150mA/cm^2的电流密度下的电力和至少大约 40mW/cm^2（例如至少大约 50mW/cm^2、至少大约 60mW/cm^2、至少大约 80mW/cm^2或至少 100mW/cm^2）的废热，所述方法进一步包括进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低（例如大约 80℃或更低或大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差，并且任选其中，进行所述吸热反应消耗至少大约 40%（例如至少大约 50%、至少大约 60%或至少大约 75%）的废热。

[0623] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10%至大约 40%（例如大约 10%至大约 35%，大约 10%至大约 30%，大约 10%至大约 25%，大约 10%至大约 20%）且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 50%（例如至少大约 55%、至少大约 60%、至少大约 65%、至少大约 70%、至少大约 75%或至少大约 80%）。

[0624] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.3，大约 0.25 至大约 1.15，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.85，大约 0.25 至大约 0.8，或大约 0.25 至大约 0.75）的热比率下运行。

[0625] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中所述至少一种气体产物包含尾气流，其包含 (i) 未反应的 H_2、(ii) 未反应的 CO 和 (iii)C4- 烃质和 / 或 C4- 含氧化合物的一种或多种。

[0626] 这组实施方案是组 Q。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0627] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种合成烃质化合物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件、或其组合；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极入口；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；生成包含 H_2、CO、CO_2和 H_2O 并具有至少大约 2.5:1（例如至少大约 3.0:1、至少大约 4.0:1 或至少大约 5.0:1）的 H_2/CO 比率的阳极排气；将至少一部分阳极排气中的 H_2/CO 比率降至大约 1.7:1 至大约 2.3:1 的比率以形成经典合成气料流，其还具有阳极排气中的 CO_2浓度的至少 60%的 CO_2浓度；在有效费托条件下在非变换费托催化剂（例如包含 Co、Rh、Ru、Ni、Zr 或其组合）存在下使所述经典合成气料流反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物；和将至少一部分所述至少一种气体产物再循环到阴极入口。

[0628] 实施方案 2. 补充或替代任何上述实施方案组，一种合成烃质化合物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件、或其组合；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极入口；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；生成包含 H_2、CO、CO_2和 H_2O 并具有至少大约 2.5:1（例如至少大约 3.0:1、至少大约 4.0:1 或至少大约 5.0:1）的 H_2/CO 比率的阳极排气；将至少一部分阳极排气中的 H_2/CO 比率降至大约 1.7:1 至大约 2.3:1 的比率以形成经典合成气料流，其还具有阳极排气中的 CO_2浓度的至少 60%的 CO_2浓度；和在有效费托条件下在非变换费托催化剂（例如包含 Co、Rh、Ru、Ni、Zr 或其组合）存在下使所述经典合成气料流反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物，其中引入阳极、与阳极相关的内部

重整元件或其组合中的可重整燃料的量提供至少大约 1.5 的可重整燃料过剩率。

[0629] 实施方案 3. 实施方案 2 的方法，其进一步包括将至少一部分所述至少一种气体产物再循环到阴极入口。

[0630] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中降低所述经典合成气料流中的 H_2/CO 比率包括 (i) 对所述经典合成气料流实施反向水煤气变换，(ii) 从所述阳极排气、从所述经典合成气料流，或从它们的组合中提取包含 H_2的气流，或 (iii)(i) 和 (ii)。

[0631] 实施方案 5. 实施方案 1 和 3-4 任一项的方法，其中所述再循环步骤包括 ：从所述至少一种气体产物中除去 CO_2以产生含 CO_2的料流和包含 CO_2、CO 和 H_2的分离的合成气流出物 ；任选氧化至少一部分分离的合成气流出物 ；和然后将任选氧化的至少一部分分离的合成气流出物再循环到阴极入口。

[0632] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在所述经典合成气料流在有效费托条件下反应前压缩所述阳极排气、所述经典合成气料流或其组合。

[0633] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含来自燃气轮机的排气。

[0634] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池中反应的氢气量高至少大约 50％（例如高至少大约 75％或高至少大约 100％）。

[0635] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2摩尔数的比率为至少大约 2.0（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0 或至少大约 20.0)，和任选大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）。

[0636] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 50％或更低（例如大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的 CO_2利用率为至少大约 60％（例如至少大约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）。

[0637] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成在至少大约 150mA/cm^2的电流密度下的电力和至少大约 40mW/cm^2（例如至少大约 50mW/cm^2、至少大约 60mW/cm^2、至少大约 80mW/cm^2或至少 100mW/cm^2）的废热，所述方法进一步包括进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低（例如大约 80℃或更低或大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差。

[0638] 实施方案 12. 实施方案 11 的方法，其中进行所述吸热反应消耗至少大约 40％（例如至少大约 50％、至少大约 60％或至少大约 75％）的废热。

[0639] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％（例如大约 10％至大约 35％，大约 10％至大约 30％，大约 10％至大约 25％，大约 10％至大约 20％）且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 50％（例如至少大约 55％、至少大约 60％、至少大约 65％、至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）。

[0640] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.3，大约 0.25 至大约 1.15，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.85，大约 0.25 至大约 0.8，或大约 0.25 至大约 0.75) 的热比率下运行。

[0641] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中所述至少一种气体产物包含尾气流，其包含 (i) 未反应的 H_2、(ii) 未反应的 CO 和 (iii)C4- 烃质和 / 或 C4- 含氧化合物的一种或多种。

[0642] 这组实施方案是组 R。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0643] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种合成烃质化合物的方法，所述方法包括 ：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件、或其组合 ；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极 ；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电 ；生成包含 H_2、CO、CO_2和 H_2O、具有至少大约 2.5:1 的 H_2/CO 比率并具有至少大约 20 体积％的 CO_2含量的阳极排气 ；从至少一部分阳极排气中除去水和 CO_2以产生阳极流出物气流，所述阳极流出物气流具有小于阳极排气中的水浓度的一半的水浓度、具有小于阳极排气中的 CO_2浓度的一半的 CO_2浓度、或其组合，所述阳极流出物气流还具有大约 2.3:1 或更小的 H_2/CO 比率 ；使至少一部分阳极流出物气流在非变换费托催化剂 (例如包含 Co、Rh、Ru、Ni、Zr 或其组合) 上反应以产生至少一种气体产物和至少一种非气体产物 ；和任选将至少一部分气体产物再循环到阳极入口、阴极入口或其组合。

[0644] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述再循环步骤包括 ：从所述气体产物中除去 CO_2以产生 CO_2浓缩料流和包含 CO_2、CO 和 H_2的分离的合成气产物 ；任选氧化至少一部分分离的合成气产物 ；和然后将至少一部分分离的合成气产物再循环到阳极入口、阴极入口或其组合。

[0645] 实施方案 3. 实施方案 1 或 2 的方法，其中所述气体产物包含尾气流，其包含 (i) 未反应的 H_2、(ii) 未反应的 CO 和 (iii)C4- 烃质和 / 或 C4- 含氧化合物的一种或多种。

[0646] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括使至少一部分阳极排气暴露在水煤气变换催化剂下以形成变换的阳极排气 (其任选具有比阳极排气中的 H_2/CO 摩尔比小的 H_2/CO 摩尔比)，然后从至少一部分所述变换的阳极排气中除去水和 CO_2以形成纯化的 H_2料流。

[0647] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括使至少一部分阳极流出物气流暴露在水煤气变换催化剂下以形成变换的阳极流出物 (其可任选具有比阳极流出物气流中的 H_2/CO 摩尔比小的 H_2/CO 摩尔比)。

[0648] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含来自燃气轮机的排气。

[0649] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有至少大约 3.0:1(例如至少大约 4.0:1，大约 3.0:1 至大约 10:1，或大约 4.0:1 至大约 10:1) 的 H_2:CO 比率。

[0650] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量比为发电而在熔融碳酸盐燃料电池中反应的氢气量高至少大约 50％ (例如高至少大约 75％或高至少大约 100％)。

[0651] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中燃料电池阳极排气中的合成气的净摩尔数与燃料电池阴极排气中的 CO_2摩尔数的比率为至少大约 2.0(例如至少大约 3.0、

至少大约4.0、至少大约5.0、至少大约10.0或至少大约20.0)，和任选大约40.0或更低（例如大约30.0或更低，或大约20.0或更低）。

[0652] 实施方案10. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约50％或更低（例如大约30％或更低，大约25％或更低，或大约20％或更低）且阴极中的CO_2利用率为至少大约60％（例如至少大约65％、至少大约70％或至少大约75％）。

[0653] 实施方案11. 上述实施方案任一项的方法，其中运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成在至少大约150mA/cm^2的电流密度下的电力和至少大约40mW/cm^2（例如至少大约50mW/cm^2、至少大约60mW/cm^2、至少大约80mW/cm^2或至少100mW/cm^2）的废热，所述方法进一步包括进行有效量的吸热反应以保持大约100℃或更低（例如大约80℃或更低或大约60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差。

[0654] 实施方案12. 实施方案11的方法，其中进行所述吸热反应消耗至少大约40％（例如至少大约50％、至少大约60％或至少大约75％）的废热。

[0655] 实施方案13. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约10％至大约40％（例如大约10％至大约35％，大约10％至大约30％，大约10％至大约25％，大约10％至大约20％）且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约50％（例如至少大约55％、至少大约60％、至少大约65％、至少大约70％、至少大约75％或至少大约80％）。

[0656] 实施方案14. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约0.25至大约1.5（例如大约0.25至大约1.3，大约0.25至大约1.15，大约0.25至大约1.0，大约0.25至大约0.85，大约0.25至大约0.8，或大约0.25至大约0.75）的热比率下运行。

[0657] 实施方案15. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量提供至少大约1.5（例如至少大约2.0、至少大约2.5或至少大约3.0）的可重整燃料过剩率。

[0658] 这组实施方案是组S。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0659] 实施方案1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种合成烃质化合物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件、或其组合；将包含CO_2和O_2的阴极入口料流引入燃料电池的阴极，所述阴极入口料流任选包含来自燃烧轮机的排气；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；生成包含H_2、CO和CO_2的阳极排气；从至少一部分阳极排气中分离CO_2以产生阳极流出物气流；在甲醇合成催化剂存在下在用于形成甲醇的有效条件下使至少一部分阳极流出物气流反应以产生至少一个含甲醇料流和一个或多个含气体产物或液体产物的料流；和将至少一部分所述一个或多个含气体产物或液体产物的料流再循环以形成至少一部分阴极入口料流。

[0660] 实施方案2. 实施方案1的方法，其进一步包括调节阳极排气、阳极流出物气流或其组合的组成（例如通过从中除去CO_2、通过实施反向水煤气变换工艺或其组合）以实现大约1.7至大约2.3（例如大约1.8至大约2.3、大约1.9至大约2.3、大约1.7至大约2.2、大约1.8至大约2.2、大约1.9至大约2.2、大约1.7至大约2.1、大约1.8至大约2.1、或大约1.9至大约2.1）的阳极流出物气流的模数值M，其中M被定义为$M = [H_2-CO_2]/[CO+CO_2]$。

[0661] 实施方案 3. 实施方案 2 的方法，其中所述调节步骤包括：将阳极排气或阳极流出物气流分成第一分流和第二分流；对第一分流实施反向水煤气变换以形成第一变换料流；和将至少一部分第一变换料流与至少一部分第二分流合并以形成调节的阳极排气或调节的阳极流出物气流。

[0662] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有至少大约 3.0:1（例如至少大约 4.0:1 或至少大约 5.0:1）和任选大约 10:1 或更低的 H_2:CO 摩尔比。

[0663] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在甲醇合成催化剂存在下反应之前压缩所述至少一部分阳极流出物气流。

[0664] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述一个或多个含气体产物或液体产物的料流包括：(i) 至少一个包含 C2+ 醇的料流；(ii) 至少一个包含 H_2、CO、可重整燃料或其组合的料流；或 (iii)(i) 和 (ii)。

[0665] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述反应步骤进一步产生至少一个包含合成气的料流，将其再循环以在甲醇合成催化剂存在下反应。

[0666] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中至少大约 90 体积％的可重整燃料是甲烷。

[0667] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中所述燃料料流进一步包含至少 5 体积％（例如至少大约 10 体积％、至少大约 20 体积％、至少大约 30 体积％、至少大约 35 体积％或至少大约 40 体积％）的惰性气体（例如包含 CO_2 和 / 或 N_2）。

[0668] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中所述有效甲醇合成条件包括大约 5MPag 至大约 10MPag 的压力和大约 250℃至大约 300℃的温度。

[0669] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从阳极排气、阳极流出物气流或其组合中分离 H_2O。

[0670] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.3，大约 0.25 至大约 1.15，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.85，大约 0.25 至大约 0.8，或大约 0.25 至大约 0.75）的热比率下运行。

[0671] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量提供至少大约 1.5（例如至少大约 2.0、至少大约 2.5 或至少大约 3.0）的可重整燃料过剩率。

[0672] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率为至少大约 2.0（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0 或至少大约 20.0），和任选大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）。

[0673] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 50％或更低（例如大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的 CO_2 利用率为至少大约 60％（例如至少大约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）。

[0674] 实施方案 16. 上述实施方案任一项的方法，其中运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成在至少大约 150mA/cm^2 的电流密度下的电力和至少大约 40mW/cm^2（例如至少大约 50mW/cm^2、至少大约 60mW/cm^2、至少大约 80mW/cm^2 或至少 100mW/cm^2）的废热，所述方法进一步包括进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低的阳极入口与阳极出口之间的温度差，

其中进行所述吸热反应任选消耗至少大约 40％的废热。

[0675] 实施方案 17. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％（例如大约 10％至大约 35％，大约 10％至大约 30％，大约 10％至大约 25％，大约 10％至大约 20％）且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 50％（例如至少大约 55％、至少大约 60％、至少大约 65％、至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）。

[0676] 这组实施方案是组 T。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0677] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种在炼油厂中生成氢气的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；生成包含 H_2和 CO_2的阳极排气；对所述阳极排气进行分离（例如使用膜）以形成 CO_2含量高于所述阳极排气的 CO_2含量的富 CO_2气流和 CO_2含量小于所述阳极排气的 CO_2含量的贫 CO_2气流，所述贫 CO_2气流任选包含富 H_2气流和合成气料流；和将所述贫 CO_2气流送往一个或多个第二炼油厂工艺。

[0678] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中所述阴极入口料流包含直接或间接衍生自一个或多个第一炼油厂工艺的一个或多个含 CO_2的料流。

[0679] 实施方案 3. 实施方案 1 或 2 的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.3，大约 0.25 至大约 1.15，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.85，或大约 0.25 至大约 0.75）的热比率下运行。

[0680] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在一个或多个分离阶段中从所述阳极排气、所述贫 CO_2料流和所述富 CO_2料流的至少一个中分离 H_2O。

[0681] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的内部重整元件或其组合中的可重整燃料的量提供至少大约 1.5（例如至少大约 2.0、至少大约 2.5 或至少大约 3.0）的可重整燃料过剩率。

[0682] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2摩尔数的比率为至少大约 2.0（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0 或至少大约 20.0），并任选为大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）。

[0683] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 50％或更低（例如大约 45％或更低，大约 40％或更低，大约 35％或更低，大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的 CO_2利用率为至少大约 60％（例如至少大约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）。

[0684] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中在第一运行条件下运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成电力和至少大约 50mW/cm^2（例如至少大约 80mW/cm^2或至少 100mW/cm^2）的废热，第一运行条件提供至少大约 150mA/cm^2的电流密度，且其中进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低（例如大约 80℃或更低，或大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差。

[0685] 实施方案 9. 实施方案 8 的方法，其中进行所述吸热反应消耗至少大约 40％（例如至少大约 50％、至少大约 60％或至少大约 75％）的废热。

[0686] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％（例如大约 10％至大约 35％，大约 10％至大约 30％，大约 10％至大约 25％，或大约 10％至大约 20％）且所述熔融碳酸盐燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 55％（例如至少大约 60％、至少大约 65％、至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）。

[0687] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中满足下列一项或多项：所述一个或多个第一炼油厂工艺中的至少一个工艺是所述一个或多个第二炼油厂工艺中的工艺；所述燃料料流衍生自一个或多个第三炼油厂工艺；且所述阳极排气具有至少大约 3.0:1 的 H_2/CO 摩尔比并具有至少大约 10 体积％的 CO_2 含量。

[0688] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中至少一部分燃料料流在引入阳极之前经过预重整阶段。

[0689] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中至少一部分燃料料流在引入阳极之前经过脱硫阶段。

[0690] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括利用水煤气变换工艺改变所述阳极排气、所述富 CO_2 气流和所述贫 CO_2 气流的一个或多个的 H_2 含量。

[0691] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中将所述贫 CO_2 气流进一步分离成具有第一 H_2 纯度的第一富 H_2 料流和具有第二 H_2 纯度的第二富 H_2 料流，其中将第二富 H_2 料流压缩至比第一富 H_2 料流高的压力。

[0692] 这组实施方案是组 U。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0693] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种合成含氮化合物的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件、或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；生成包含 H_2 和 CO_2 的阳极排气；从至少一部分阳极排气中分离 CO_2 以产生 CO_2 含量高于所述阳极排气的 CO_2 含量的富 CO_2 料流和 H_2 含量高于所述阳极排气的 H_2 含量的贫 CO_2 气流；和在氨合成工艺中使用至少一部分所述贫 CO_2 气流和 / 或在第二合成工艺中使用至少一部分所述富 CO_2 料流以形成有机含氮化合物（例如脲）。

[0694] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其中使用至少一部分所述贫 CO_2 气流包括使至少一部分所述贫 CO_2 气流在有效氨合成条件下暴露在催化剂下以形成至少一个含氨料流和一个或多个含气体产物或液体产物的料流（所述一个或多个含气体产物或液体产物的料流可包括至少一个含 H_2 和 / 或 CH_4 的料流）和任选再循环至少一部分所述一个或多个含气体产物或液体产物的料流以形成至少一部分阴极入口料流。

[0695] 实施方案 3. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括调节所述阳极排气、分离 CO_2 前的所述至少一部分阳极排气、贫 CO_2 气流、用于氨合成工艺前的所述至少一部分贫 CO_2 气流或其组合的组成。

[0696] 实施方案 4. 实施方案 3 的方法，其中调节所述组成包括下列一项或多项：(i) 进

行水煤气变换工艺，(ii) 进行反向水煤气变换工艺，(iii) 进行分离以降低所述组合物的水含量，和 (iv) 进行分离以降低所述组合物的 CO_2 含量。

[0697] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中通过从所述贫 CO_2 气流中分离 H_2 浓缩料流，形成所述至少一部分贫 CO_2 气流，所述分离的 H_2 浓缩料流包含至少大约 90 体积% H_2（例如至少大约 95 体积% H_2、至少大约 98 体积% H_2 或至少大约 99 体积% H_2）。

[0698] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有至少大约 3.0:1（例如至少大约 4.0:1）和任选大约 10:1 或更低的 H_2:CO 摩尔比。

[0699] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括：从阴极排气中提取含 N_2 的气流；和使用至少一部分提取的含 N_2 的气流作为氨合成工艺中的 N_2 源。

[0700] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述第二合成工艺进一步包括使用来自所述氨合成工艺的氨形成有机含氮化合物。

[0701] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其中至少大约 90 体积%的可重整燃料是甲烷。

[0702] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中所述有效氨合成条件包括大约 6MPag 至大约 18MPag 的压力和大约 350℃至大约 500℃的温度。

[0703] 实施方案 11. 上述权利要求任一项的方法，其中阴极入口料流包含来自燃气轮机的排气。

[0704] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流中的至少一部分 O_2 衍生自空气分离步骤，其中空气经过 PSA 装置以生成富氮产物料流和富氧废气流，以将至少一部分所述富氧废气流送往阴极入口，并将至少一部分所述富氮产物料流送往氨合成工艺。

[0705] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从阴极排气中提取含 N_2 的富 N_2 气流；和使用至少一部分富 N_2 气流作为氨合成工艺中的 N_2 源（例如通过使至少一部分富 N_2 气流在有效合成条件下暴露在合成催化剂下）。

[0706] 实施方案 14. 实施方案 13 的方法，其中使用至少一部分阴极排气料流作为氨合成工艺中的 N_2 源包括对所述富 N_2 气流进行分离工艺和提纯工艺的至少一个以提高 N_2 浓度，然后将至少一部分所述富 N_2 气流送入在提高的 N_2 浓度下的氨合成工艺。

[0707] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从所述阳极排气、所述富 CO_2 气流、所述贫 CO_2 气流和阴极排气的至少一个中分离 H_2O。

[0708] 实施方案 16. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括使所述富 CO_2 料流、所述贫 CO_2 料流和至少一部分阳极排气料流的一个或多个暴露在水煤气变换催化剂下。

[0709] 实施方案 17. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含来自燃气轮机的排气。

[0710] 实施方案 18. 上述实施方案任一项的方法，其中少于 10 体积%的阳极排气直接或间接再循环到阳极或阴极。

[0711] 实施方案 19. 上述实施方案任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到阳极。

[0712] 实施方案 20. 上述实施方案任一项的方法，其中没有一部分阳极排气直接或间接再循环到阴极。

[0713] 实施方案 21. 上述实施方案任一项的方法，其中少于 10 体积％的在阳极中单程产生的 H_2 直接或间接再循环到阳极或阴极。

[0714] 实施方案 22. 上述实施方案任一项的方法，所述方法进一步包括重整所述可重整燃料，其中在经过所述阳极的单程中重整引入阳极、与阳极相关的重整阶段或其组合的可重整燃料的至少大约 90％。

[0715] 实施方案 23. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的重整阶段或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而反应的氢气量高至少大约 50％（例如至少大约 75％或至少大约 100％）。

[0716] 实施方案 24. 上述实施方案任一项的方法，其中可重整燃料过剩率为至少大约 2.0（例如至少大约 2.5 或至少大约 3.0）。

[0717] 实施方案 25. 上述实施方案任一项的方法，其中阴极中的 CO_2 利用率为至少大约 50％（例如至少大约 60％）。

[0718] 实施方案 26. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％（例如大约 10％至大约 35％，大约 10％至大约 30％，大约 10％至大约 25％，或大约 10％至大约 20％）且所述熔融碳酸盐燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 55％（例如至少大约 60％、至少大约 65％、至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）。

[0719] 实施方案 27. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.3，大约 0.25 至大约 1.15，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.85，或大约 0.25 至大约 0.75）的热比率下运行。

[0720] 实施方案 28. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率为至少大约 2.0（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0，或至少大约 20.0），并任选为大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）。

[0721] 实施方案 29. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 50％或更低（例如大约 45％或更低，大约 40％或更低，大约 35％或更低，大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的 CO_2 利用率为至少大约 60％（例如至少大约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）。

[0722] 实施方案 30. 上述实施方案任一项的方法，其中在第一运行条件下运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成电力和至少大约 50mW/cm^2（例如至少 100mW/cm^2）的废热，第一运行条件提供至少大约 150mA/cm^2 的电流密度，且其中进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低（例如大约 80℃或更低，或大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差。

[0723] 实施方案 31. 实施方案 30 的方法，其中进行所述吸热反应消耗至少大约 40％（例如至少大约 50％、至少大约 60％或至少大约 75％）的废热。

[0724] 这组实施方案是组 V。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0725] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种生产铁和 / 或钢的方法，所述

方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件或其组合；将包含 CO_2 和 O_2 的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内发电；从阳极排气中取出包含 CO 的第一气流，所述阳极排气具有大约 500kPag 或更低的压力；和将从阳极排气中取出的第一气流引入铁和 / 或钢生产工艺。

[0726] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其进一步包括利用生成的电向铁和 / 或钢生产工艺供热。

[0727] 实施方案 3. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从阳极排气中取出包含 H_2 的第二气流并利用第二气流作为用于加热铁和 / 或钢生产工艺的燃料。

[0728] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从阳极排气、从阳极排气中取出的第一气流或其组合中分离水，并使用分离的水洗涤工艺矿渣。

[0729] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含至少一部分由铁和 / 或钢生产工艺产生的含 CO_2 的排气。

[0730] 实施方案 6. 实施方案 5 的方法，其进一步包括从由铁和 / 或钢生产工艺产生的含 CO_2 的排气中分离 CO_2。

[0731] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在将取出的第一气流引入铁和 / 或钢生产工艺之前，使取出的第一气流在有效水煤气变换条件下暴露在水煤气变换催化剂下。

[0732] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中以大约 1.0 或更低的热比率运行所述熔融碳酸盐燃料电池以发电，所述方法进一步包括将来自铁和 / 或钢生产工艺（例如来自炉）的热转移到熔融碳酸盐燃料电池中，其中阳极排气的温度高于阳极入口的温度。

[0733] 实施方案 9. 实施方案 8 的方法，其中热转移包括在阳极入口料流与铁和 / 或钢生产工艺炉和铁和 / 或钢生产工艺排气的至少一项之间进行热交换，其中进行热交换任选包括将阳极入口料流的温度提高至少大约 100℃，例如至少大约 150℃。

[0734] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括在将所述气流引入铁和 / 或钢生产工艺之前，使所述取出的气流在有效水煤气变换条件下暴露在水煤气变换催化剂下。

[0735] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括从阳极排气、取出的第一气流或其组合中分离水，并使用分离的水洗涤工艺矿渣。

[0736] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、引入与阳极相关的内部重整元件或引入其组合中的可重整燃料的量提供至少大约 1.5（例如至少大约 2.0、至少大约 2.5 或至少大约 3.0）的可重整燃料过剩率。

[0737] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，所述方法进一步包括重整所述可重整燃料，其中在经过阳极的单程中重整引入阳极、与阳极相关的重整阶段或其组合的可重整燃料的至少大约 90％。

[0738] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中燃料电池阳极排气中的合成气的净摩尔数与燃料电池阴极排气中的 CO_2 摩尔数的比率为至少大约 2.0（例如至少大约 3.0、至少大约 4.0、至少大约 5.0、至少大约 10.0 或至少大约 20.0）和任选大约 40.0 或更低（例如大约 30.0 或更低，或大约 20.0 或更低）。

[0739] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 65％或更低（例如大约 60％或更低，大约 50％或更低，大约 40％或更低，大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的 CO_2 利用率为至少大约 50％（例如至少大约 60％、至少大约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）。

[0740] 实施方案 16. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％（例如大约 10％至大约 35％，大约 10％至大约 30％，大约 10％至大约 25％，大约 10％至大约 20％）且所述燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 50％（例如至少大约 55％、至少大约 60％、至少大约 65％、至少大约 70％、至少大约 75％或至少大约 80％）。

[0741] 实施方案 17. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气具有至少大约 3.0:1（例如至少大约 4.0:1，大约 3.0:1 至大约 10:1，或大约 4.0:1 至大约 10:1）的 H_2:CO 摩尔比。

[0742] 实施方案 18. 上述实施方案任一项的方法，其中至少大约 90 体积％的可重整燃料是甲烷。

[0743] 实施方案 19. 上述实施方案任一项的方法，其中少于 10 体积％的在阳极中单程产生的 H_2 直接或间接再循环到阳极或阴极。

[0744] 实施方案 20. 上述实施方案任一项的方法，其中引入阳极、与阳极相关的重整阶段或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而反应的氢气量高至少大约 50％（例如高至少大约 75％或高至少大约 100％）。

[0745] 实施方案 21. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池进一步包含一个或多个集成吸热反应阶段。

[0746] 实施方案 22. 实施方案 21 的方法，其中至少一个所述集成吸热反应阶段包含集成重整阶段，引入阳极的燃料料流在进入阳极之前任选经过至少一个所述集成重整阶段。

[0747] 实施方案 23. 上述实施方案任一项的方法，其中在第一运行条件下运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成电力和至少大约 30mW/cm^2（例如至少大约 40mW/cm^2、至少大约 50mW/cm^2 或至少 100mW/cm^2）的废热，第一运行条件提供至少大约 150mA/cm^2 的电流密度，且其中进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低（例如大约 80℃或更低，或大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差。

[0748] 实施方案 24. 实施方案 23 的方法，其中进行所述吸热反应消耗至少大约 40％（例如至少大约 50％、至少大约 60％或至少大约 75％）的废热。

[0749] 实施方案 25. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在小于大约 0.68V（例如小于大约 0.67V、小于大约 0.66V 或大约 0.65V 或更低）和任选至少大约 0.60V（例如至少大约 0.61V、至少大约 0.62V 或至少大约 0.63V）的电压 V_A 下运行。

[0750] 实施方案 26. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括重整所述可重整燃料，其中在经过阳极的单程中重整引入阳极、与阳极相关的重整阶段或其组合的可重整燃料的至少大约 90％。

[0751] 这组实施方案是组 W。提到“任何上述实施方案”意在仅指这组内的其它实施方案，而提到“任何上述实施方案组”意在表示来自一个或多个其它组的任一实施方案或实施方案组合。

[0752] 实施方案 1. 补充或替代任何上述实施方案组，一种使用包含阳极和阴极的熔融碳酸盐燃料电池生产电力和氢气或合成气的方法，所述方法包括：将包含可重整燃料的燃料料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与所述阳极相关的内部重整元件、或其组合；将包含 CO_2和 O_2的阴极入口料流引入熔融碳酸盐燃料电池的阴极；在所述熔融碳酸盐燃料电池内在大约 65％或更低（例如大约 60％或更低，大约 55％或更低，大约 50％或更低，大约 45％或更低，大约 40％或更低，大约 35％或更低，大约 30％或更低，大约 25％或更低，或大约 20％或更低）的燃料利用率下和在电池工作电压 / 电池最大电压的比率为大约 0.65 或更低（例如大约 0.64 或更低，大约 0.63 或更低，大约 0.62 或更低，或大约 0.61 或更低）的电池工作电压下发电；从所述熔融碳酸盐燃料电池的阳极出口生成阳极排气；和从所述阳极排气中分离含 H_2的料流、含合成气的料流或其组合。

[0753] 实施方案 2. 实施方案 1 的方法，其进一步包括重整所述可重整燃料，其中在经过熔融碳酸盐燃料电池的阳极的单程中重整引入熔融碳酸盐燃料电池的阳极、与熔融碳酸盐燃料电池的阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的至少大约 90％。

[0754] 实施方案 3. 实施方案 1 或 2 的方法，其中引入所述阳极、与所述阳极相关的内部重整元件或其组合的可重整燃料的可重整氢气含量比为发电而氧化的氢气量高至少大约 75％（例如高至少大约 100％）。

[0755] 实施方案 4. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极的 CO_2利用率为至少大约 50％（例如至少大约 60％）。

[0756] 实施方案 5. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极燃料料流包含至少大约 10 体积％惰性化合物、至少大约 10 体积％ CO_2或其组合。

[0757] 实施方案 6. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阳极排气包含具有大约 1.5:1 至大约 10.0:1（例如大约 3.0:1 至大约 10:1）的 H_2/CO 摩尔比的 H_2和 CO。

[0758] 实施方案 7. 上述实施方案任一项的方法，其中所述含 H_2的料流含有至少大约 90％ H_2（例如大约 95 体积％ H_2，或大约 98 体积％ H_2）。

[0759] 实施方案 8. 上述实施方案任一项的方法，其中所述阴极入口料流包含大约 20 体积％ CO_2或更少（例如大约 15 体积％ CO_2或更少，或大约 12 体积％ CO_2或更少）。

[0760] 实施方案 9. 上述实施方案任一项的方法，其进一步包括将至少一部分所述含 H_2的料流再循环到燃气轮机。

[0761] 实施方案 10. 上述实施方案任一项的方法，其中至少大约 90 体积％的可重整燃料是甲烷。

[0762] 实施方案 11. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池在大约 0.25 至大约 1.5（例如大约 0.25 至大约 1.25，大约 0.25 至大约 1.0，大约 0.25 至大约 0.9，或大约 0.25 至大约 0.85）的热比率下运行。

[0763] 实施方案 12. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极排气中的合成气的净摩尔数与阴极排气中的 CO_2摩尔数的比率为至少大约 2.0:1（例如至少大约 2.5:1 或至少大约 3:1）。

[0764] 实施方案 13. 上述实施方案任一项的方法，其中阳极中的燃料利用率为大约 50％或更低（例如大约 45％或更低，大约 40％或更低，大约 35％或更低，大约 30％或更低，或大约 25％或更低，或大约 20％或更低）且阴极中的 CO_2利用率为至少大约 60％（例如至少大

约 65％、至少大约 70％或至少大约 75％）。

[0765] 实施方案 14. 上述实施方案任一项的方法，其中运行所述熔融碳酸盐燃料电池以生成在至少大约 150mA/cm^2的电流密度下的电力和至少大约 40mW/cm^2（例如至少大约 50mW/cm^2、至少大约 60mW/cm^2、至少大约 80mW/cm^2或至少大约 100mW/cm^2）的废热，所述方法进一步包括进行有效量的吸热反应以保持大约 100℃或更低（例如大约 80℃或更低或大约 60℃或更低）的阳极入口与阳极出口之间的温度差，任选其中进行所述吸热反应消耗至少大约 40％（例如至少大约 50％、至少大约 60％或至少大约 70％）的废热。

[0766] 实施方案 15. 上述实施方案任一项的方法，其中所述熔融碳酸盐燃料电池的电效率为大约 10％至大约 40％且所述熔融碳酸盐燃料电池的总燃料电池效率为至少大约 55％。

[0767] 尽管已就具体实施方案描述了本发明，但其不限于此。适用于在具体条件下的运行的变更 / 修改是本领域技术人员显而易见的。因此下列权利要求意在被解释为涵盖落在本发明的真实精神 / 范围内的所有这样的变更 / 修改。

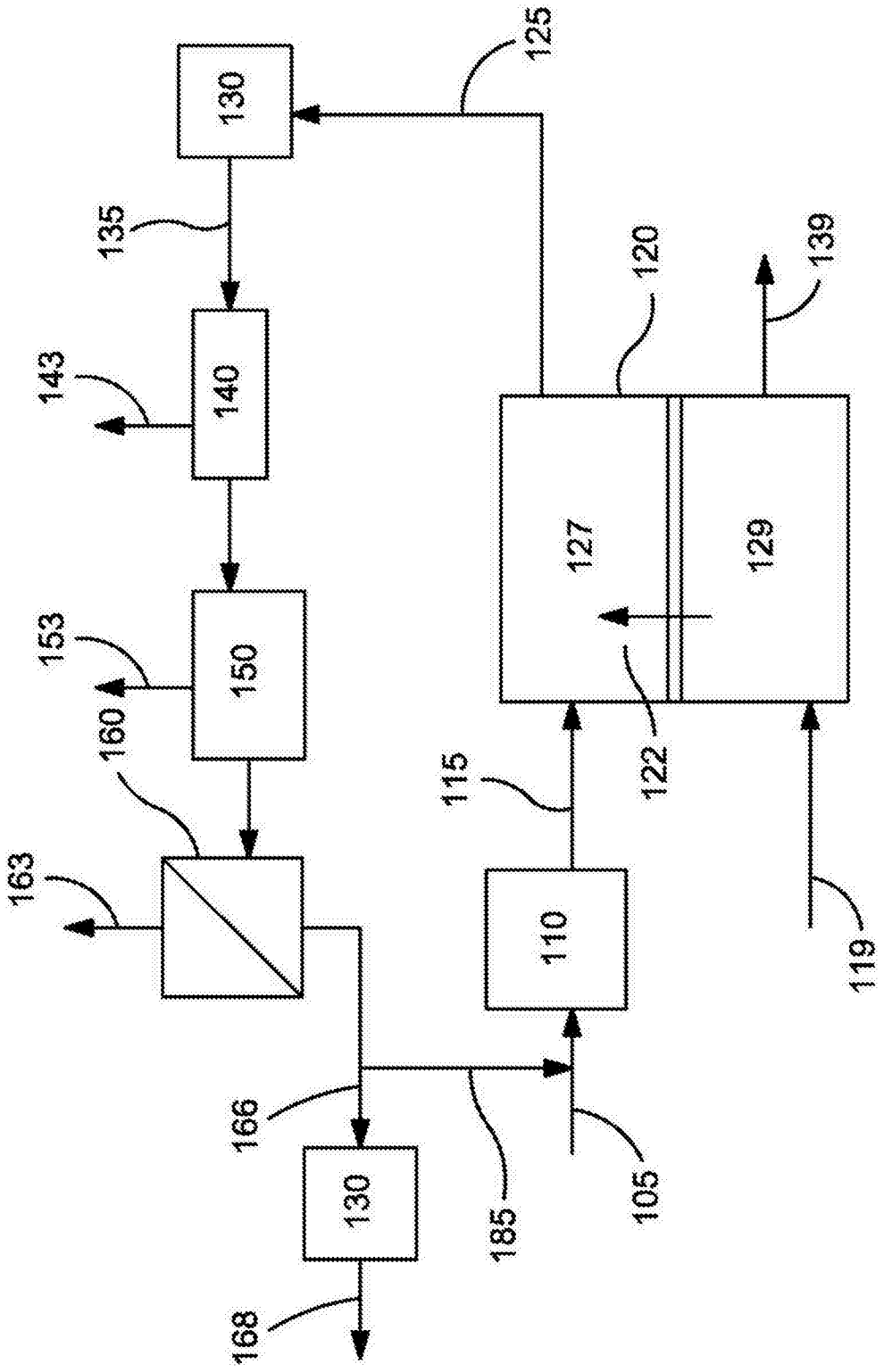

130
125
135
140
143
120
139
127
129
153
150
160
122
115
163
110
119
166
130
185
105
168

图 1

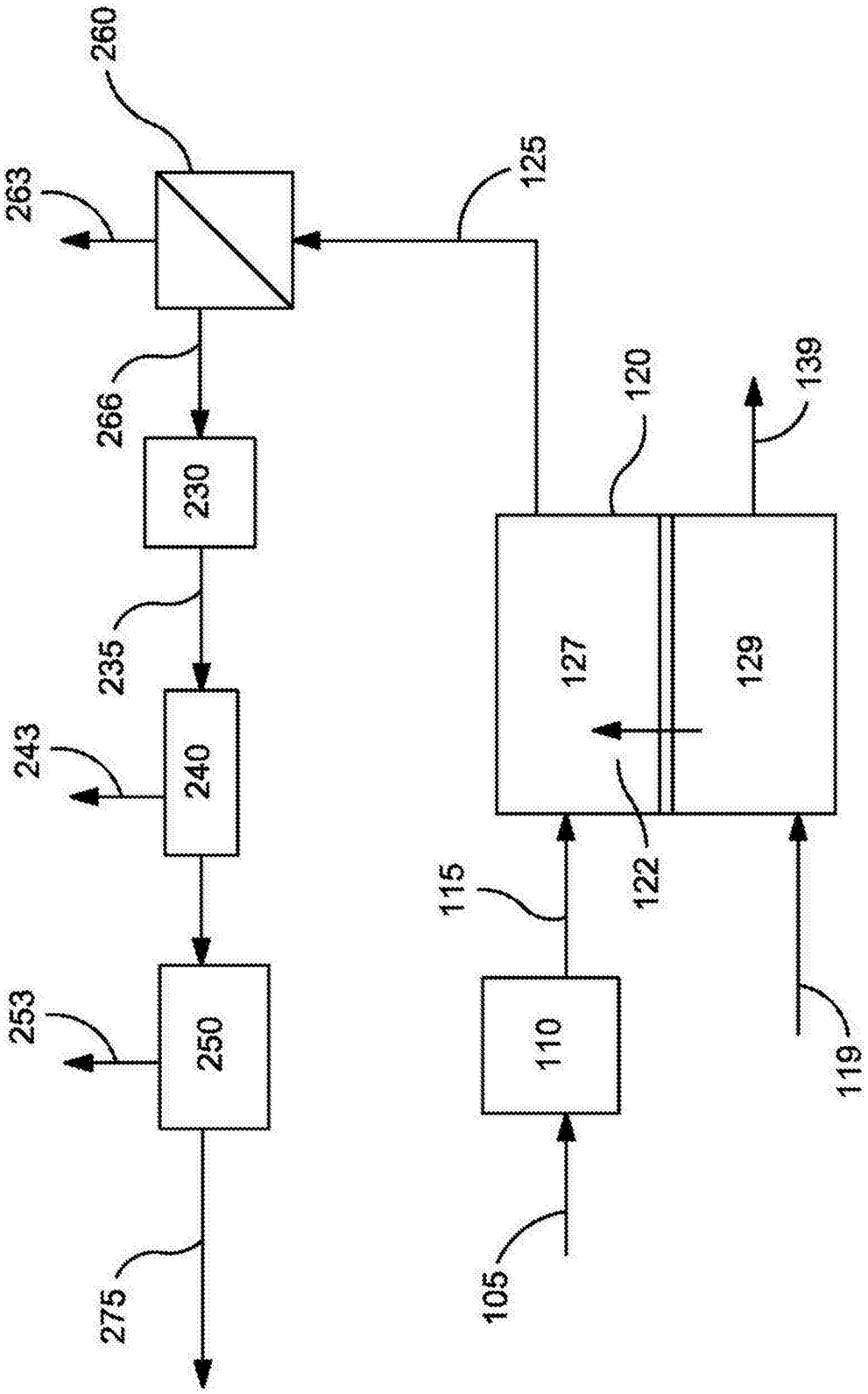

260
263
125
266
230
120
139
235
127
129
243
240
122
115
253
250
110
119
275
105

图 2

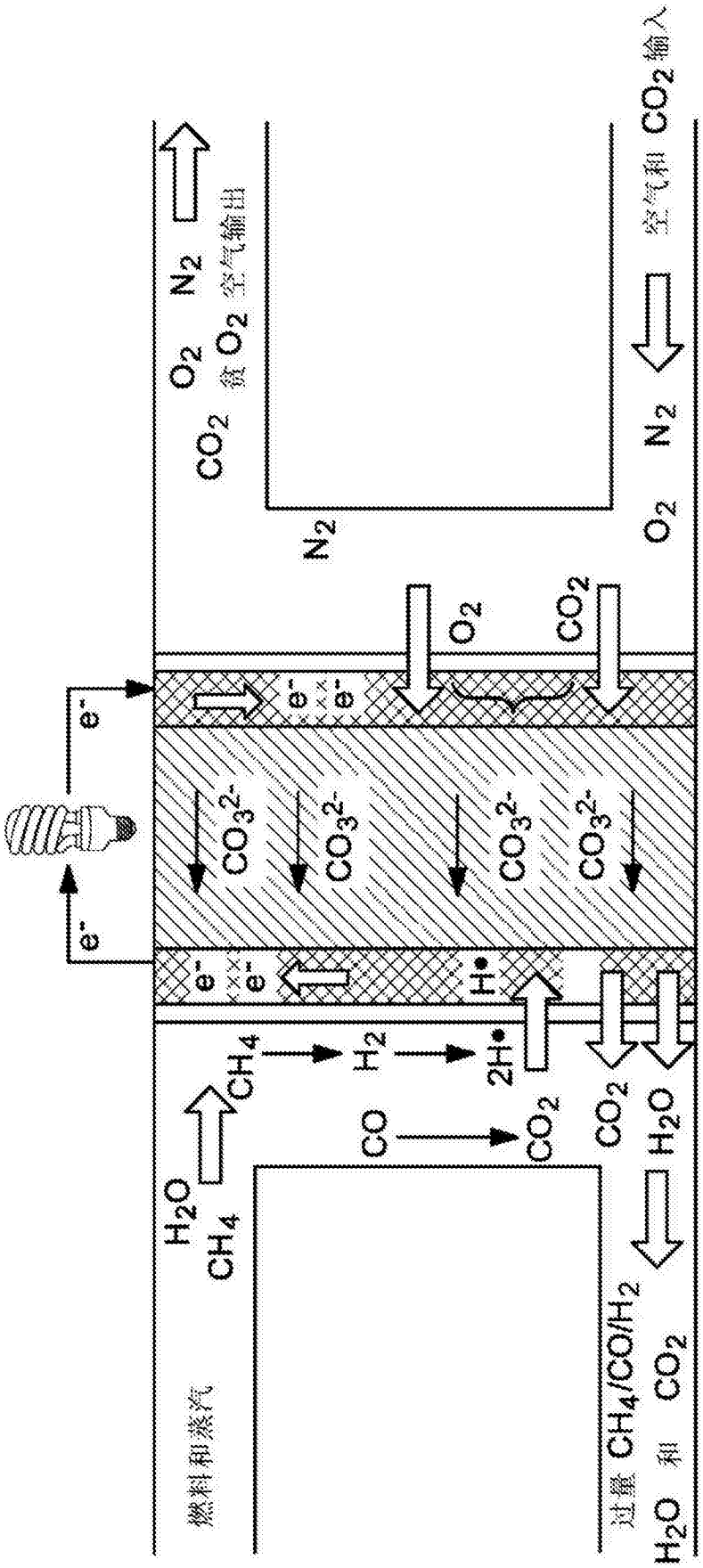

空气和 CO_2 输入
N_2
O_2
O_2
CO_2
N_2
O_2 贫 O_2 空气输出
N_2
O_2
CO_2
e⁻
e⁻
e⁻
e⁻
e⁻
CO_3^{2-}
CO_3^{2-}
CO_3^{2-}
CO_3^{2-}
e⁻
e⁻
H•
CH_4
H_2
2H•
CO
CO_2
CO_2
H_2O
H_2O
CH_4
燃料和蒸汽
过量 $CH_4/CO/H_2$ 和 CO_2
H_2O

图 3

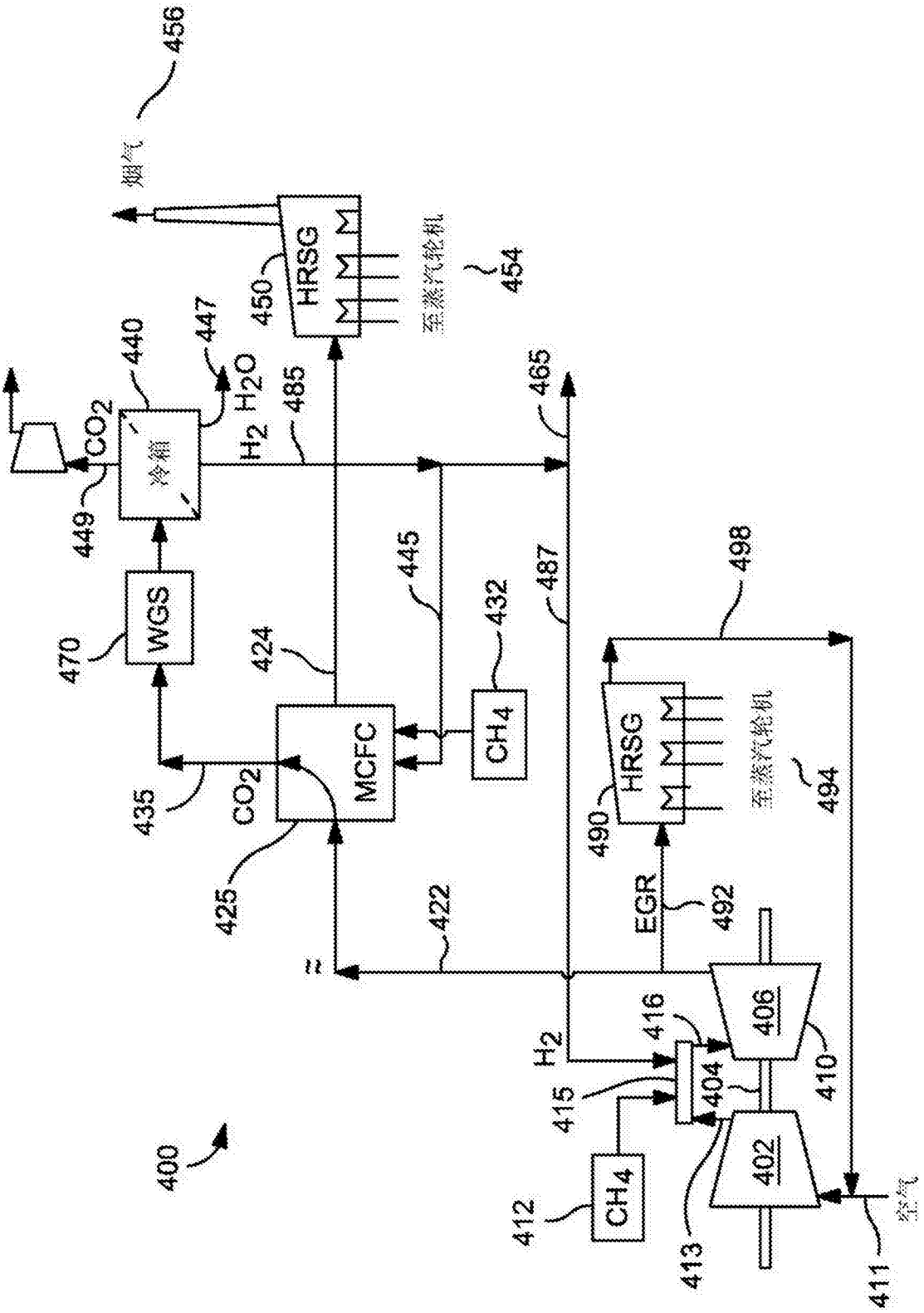

400
456
烟气
HRSG
450
至蒸汽轮机
454
440
447
H_2O
CO_2
冷箱
449
H_2
485
465
WGS
470
424
445
432
487
498
MCFC
CH_4
435
CO_2
425
422
HRSG
490
至蒸汽轮机
494
EGR
492
H_2
416
406
410
415
404
402
CH_4
412
413
411
空气

图 4

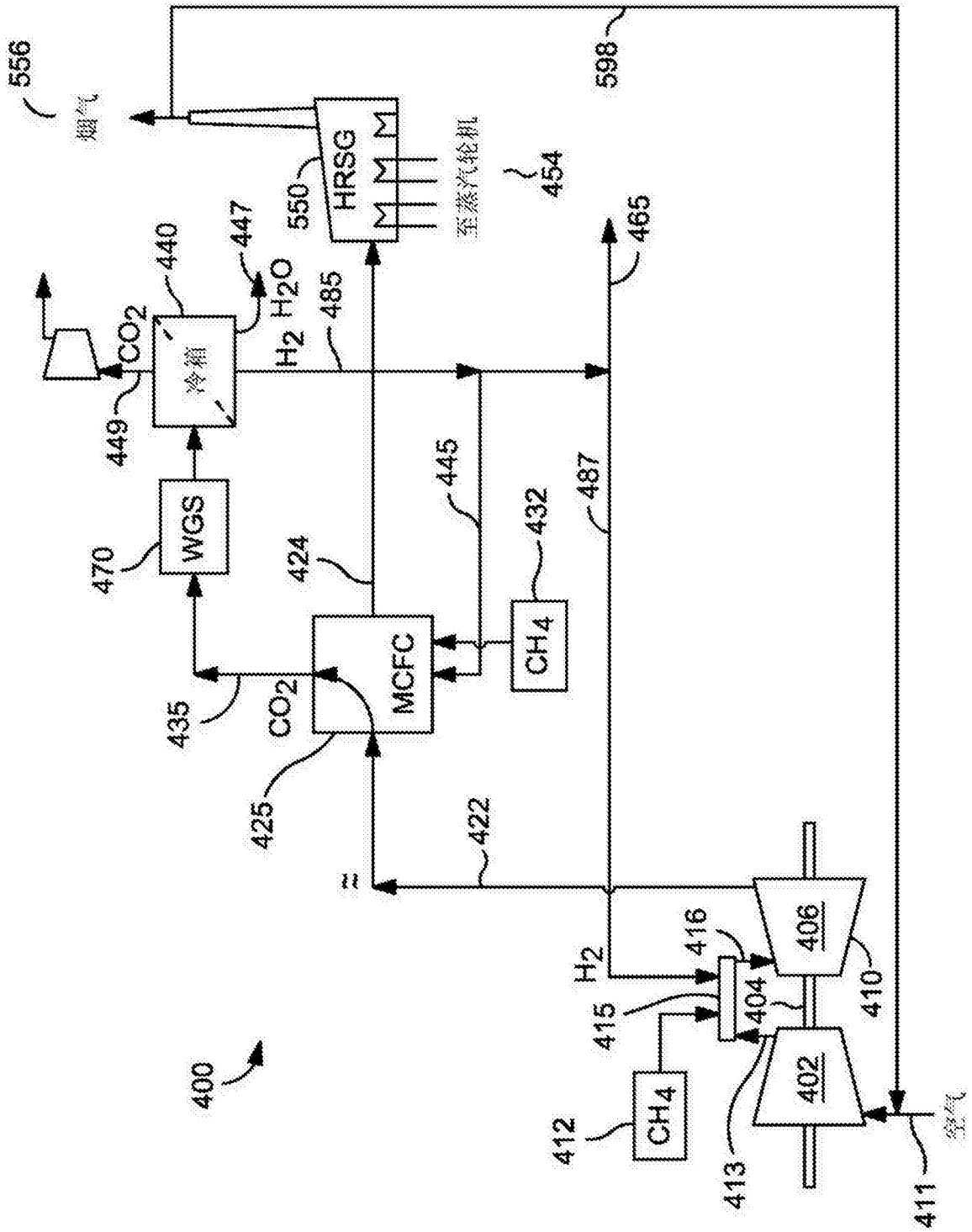

556
烟气
598
HRSG
550
至蒸汽轮机
454
465
440
447
H_2O
CO_2
485
H_2
冷箱
449
445
487
WGS
470
424
432
CH_4
MCFC
435
CO_2
425
422
400
H_2
416
406
410
415
404
402
412
CH_4
413
411
空气

图 5

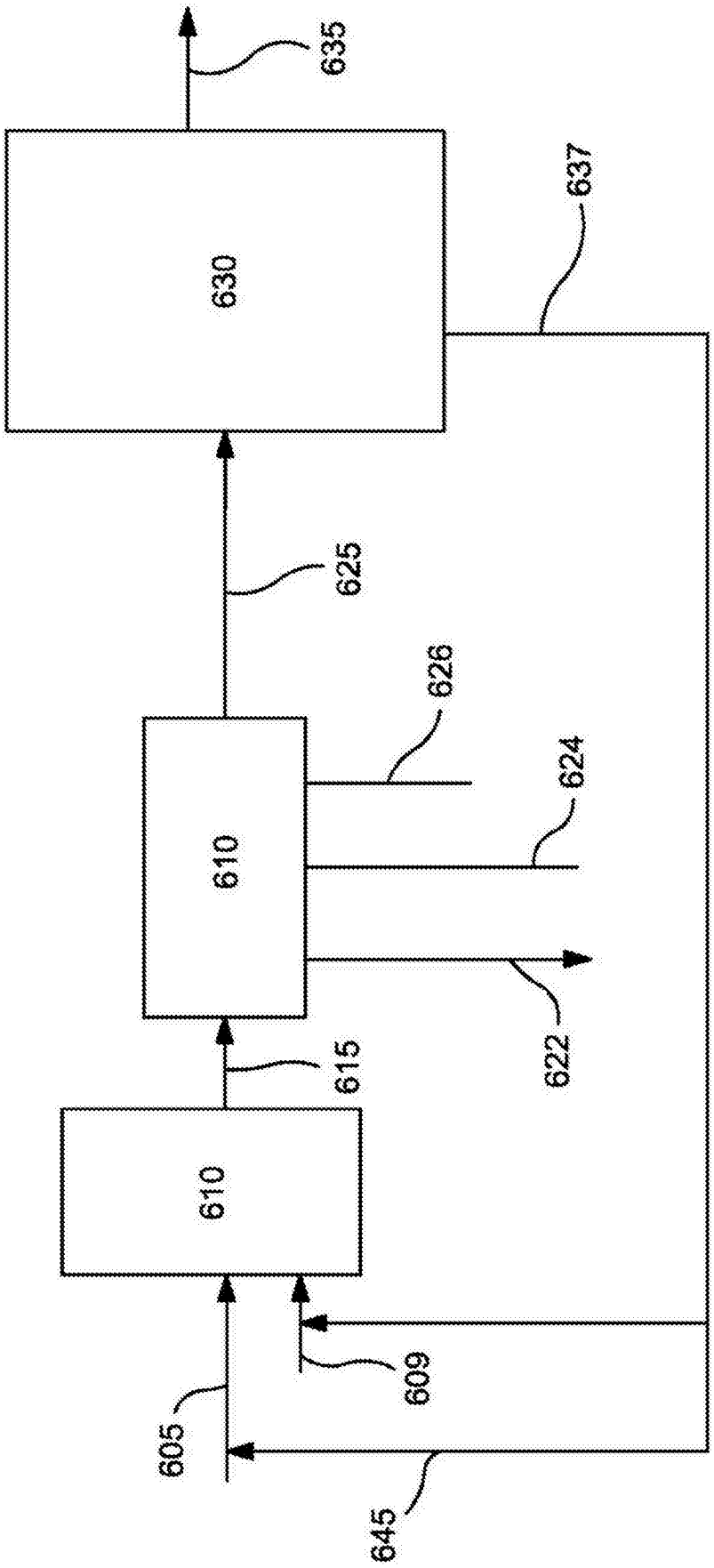


图 6

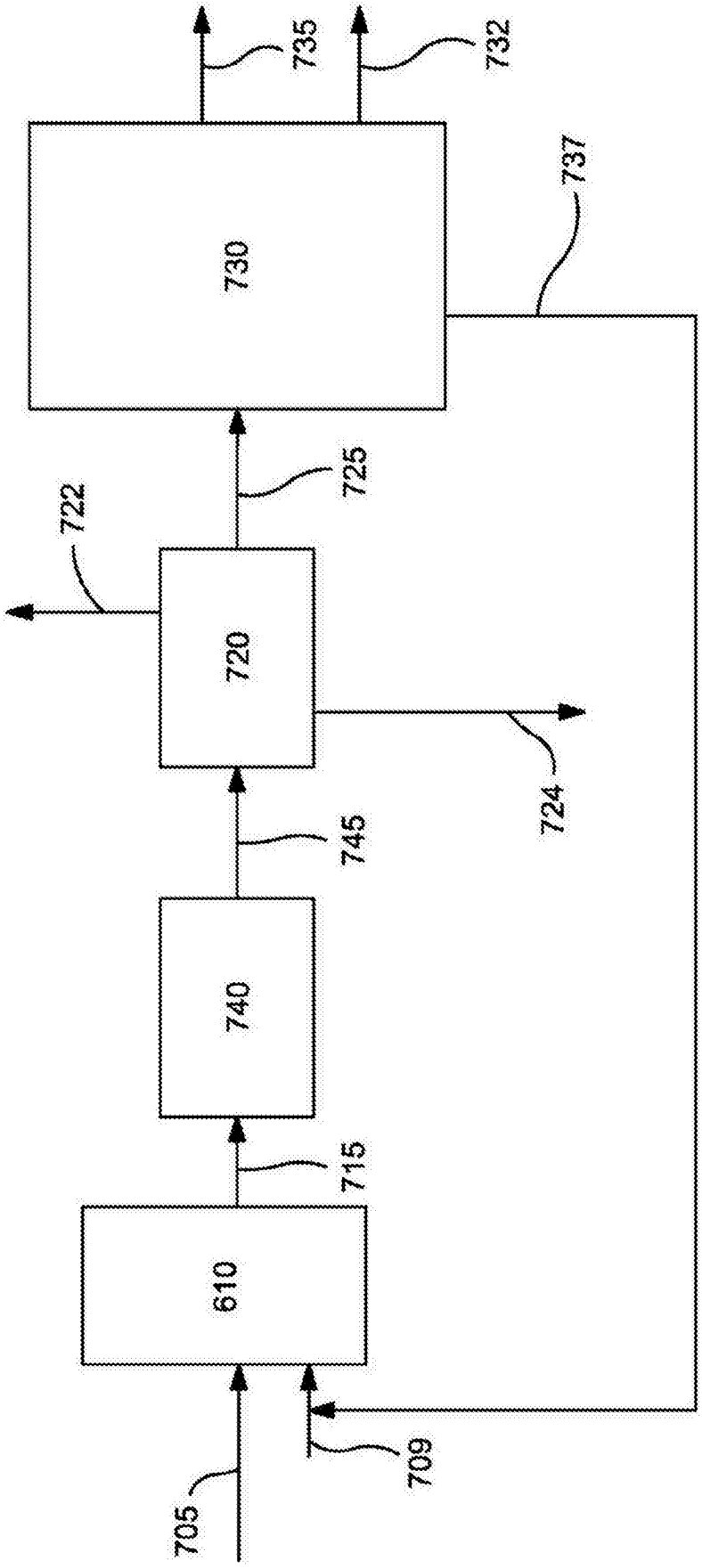


图 7

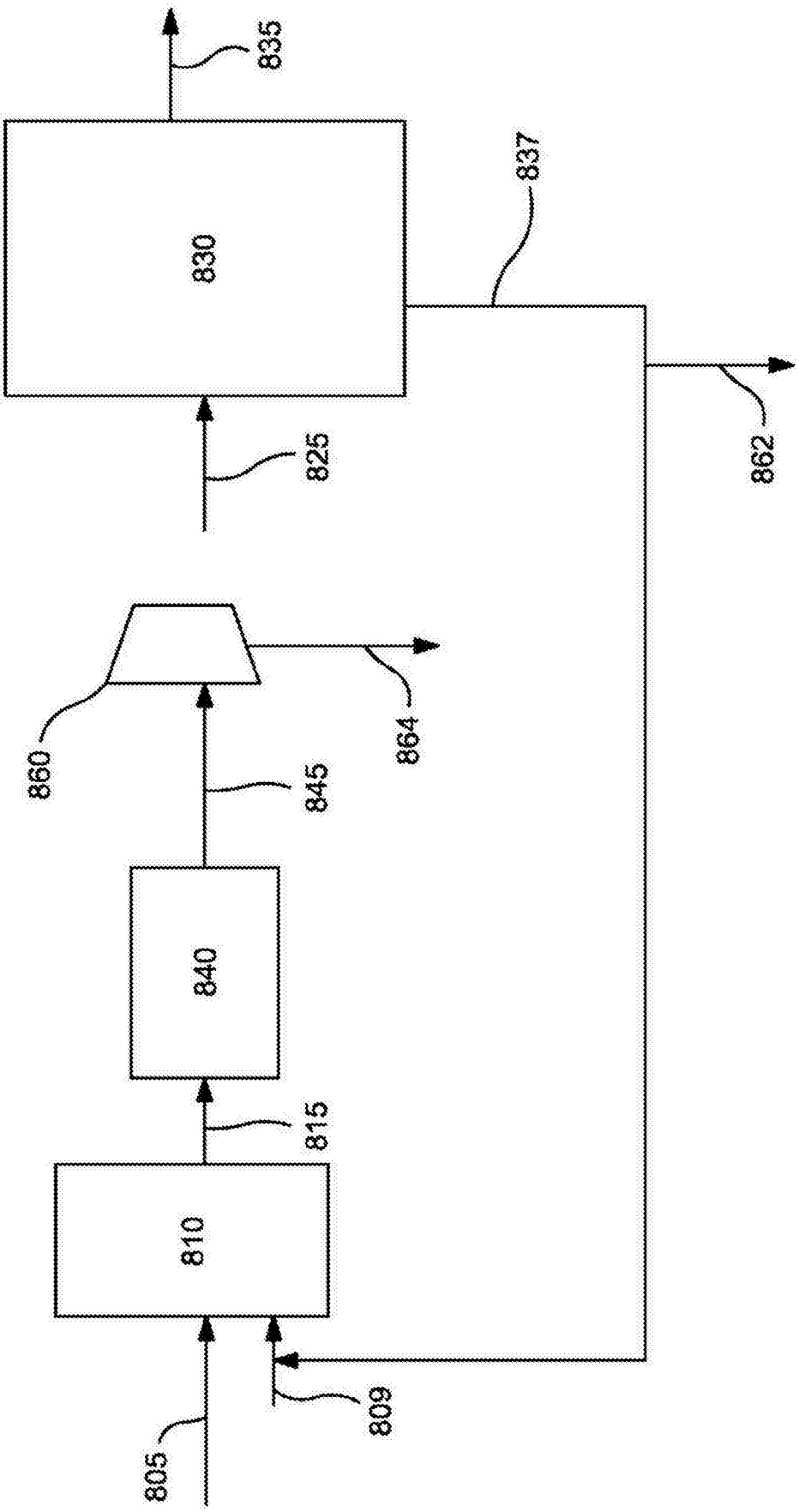


图 8

	变换催化剂（Co基）			非变换催化剂（Fe基）		
	无CO2捕集	w/CO2捕集		无CO2捕集	w/CO2捕集	
燃料利用率（%）	35%	35%		35%	35%	
汽碳比	2.00	2.00		2.00	2.00	
排气再循环（%）	N/A	N/A		N/A	N/A	
水煤气变换反应器	反向	反向		无	无	
内部重整（%）	40%	40%		40%	40%	
MCFC CO2阴极入口浓度（%）	18.71%	16.11%		18.64%	15.89%	
MCFC CO2阴极排气浓度（%）	5.2%	1.3%		5.2%	1.1%	
MCFC O2阴极排气浓度（%）	7.0%	7.5%		6.8%	7.3%	
MCFC电压（V）	0.65	0.65		0.65	0.65	
MCFC电流密度（A/m2）	2918	2595		2915	2565	
MCFC面积（k-m2）	77	87		77	88	
阳极蒸汽损耗（penalty）（MW）	15.1	15.1		15.1	15.1	
净MCFC电输出（MW）	132	132		132	132	
净蒸汽轮机功率（MW）	17	16		40	39	
总净功率（MW）	100	95		122	116	
电效率（%）	14.0%	13.3%		16.8%	16.2%	
近似总装置效率（%）	64.3%	63.7%		66.9%	66.6%	
费托液体（bpd）	5959	5948		5981	5981	
碳平衡 - 作为C1的碳（lbmol/hr）						
入口						
至风道燃烧器的新鲜燃料	463	434		527	485	
至阳极的新鲜燃料	6614	6614		6614	6614	
至风道燃烧器的空气中的CO2	17	17		17	17	
出口						
烟道气	2575	599		2606	517	
FT液体	4510	4501		4527	4527	
闪存	0	1939		0	2048	
废水中的CO2	9	25		25	25	

图 9

	FT前的CO2分离	FT后的CO2分离
燃料利用率（%）	30%	30%
汽碳比	2.00	2.00
排气再循环（%）	0%	0%
水煤气变换反应器	反向	反向
内部重整（%）	20%	20%
MCFC CO2阴极入口浓度 (%)	4.36%	4.25%
MCFC CO2阴极排气浓度 (%)	1.5%	1.5%
MCFC C2阴极排气浓度 (%)	10.5%	10.5%
MCFC电压（V）	0.70	0.70
MCFC电流密度 (A/m2)	1054	1036
MCFC面积 (k-m2)	152	150
CO2捕集（%）	50.7%	52.1%
CO2捕集（兆吨/年）	1.36	1.34
面积/捕集吨数（k-m2*年/兆吨）	112.1	111.6
CO2排放（来自阴极排气，lbs CO2/MWhr）	250.3	240.3
阳极进料中的H2:可重整C（摩尔）的比率	0.00	0.00
阳极进料中的N2（%）	0.0%	0.0%
阳极蒸汽损耗（penalty）（MW）	12.9	12.5
H2或CO形式的涡轮机燃料%	3.5%	3.0%
总净功率 (MW)	575	596
电效率（%）	40.2%	41.0%
近似总装置效率（%）	61.3%	61.3%
费托液体 (bpd)	4986	4856
碳平衡 - 作为C1的碳 (lbmol/hr)		
入口		
至CTG的新鲜燃料	8130	8548
至风道燃烧器的新鲜燃料	516	486
至阳极的新鲜燃料	5489	5302
至风道燃烧器的空气中的CO2	71	71
出口		
烟道气	3262	3252
FT液体	3773	3675
封存	7166	7464
废水中的CO2	5	15

图 10

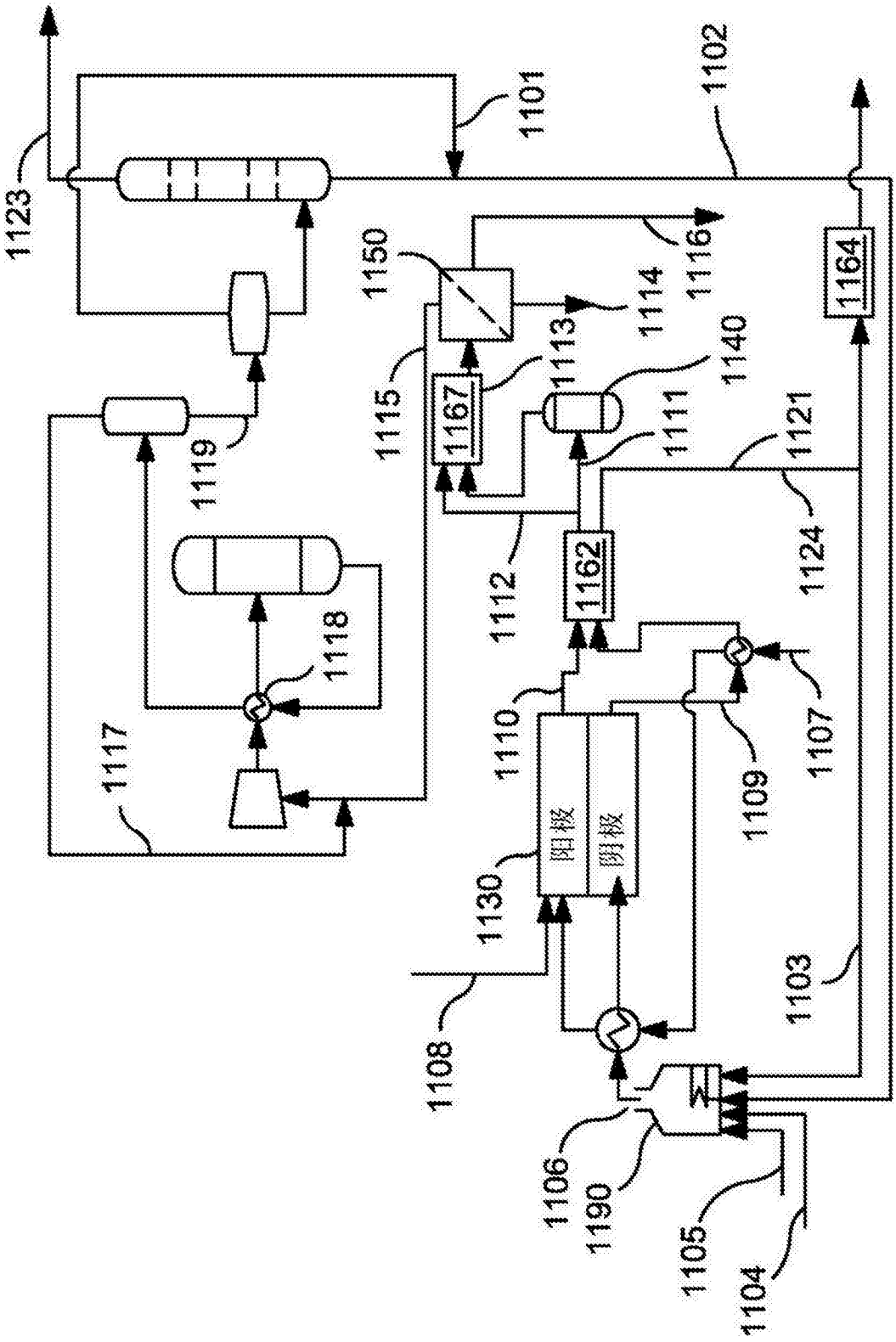

1123
1101
1102
1150
1116
1164
1114
1113
1140
1115
1167
1111
1121
1119
1112
1162
1124
1118
1110
1107
1117
1109
阳极
阴极
1130
1103
1108
1106
1190
1105
1104

图 11

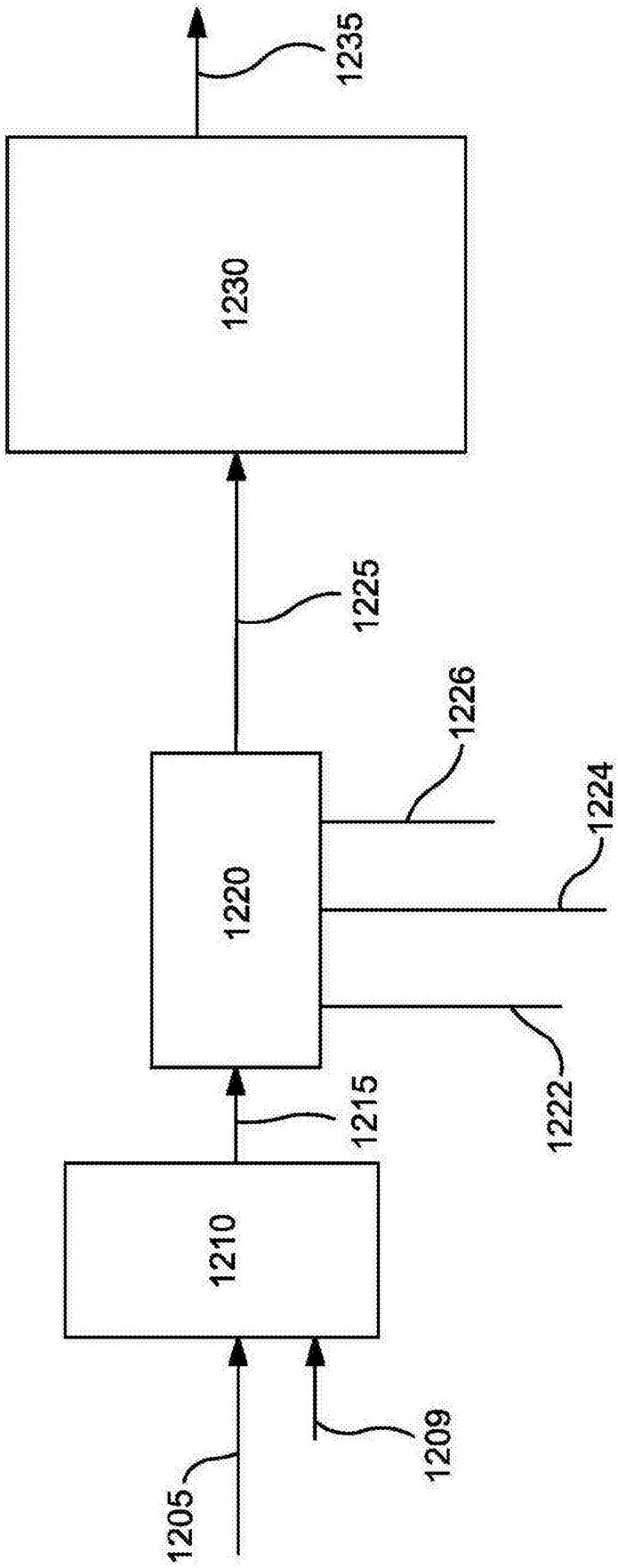


图 12

	1101	1102	1103	1104	1105	1106	1107	1108
T (C)	30	30	578	30	30	694	30	626
[kg/hr]								
H2	506							
CH4	1779			70096			56656	
CO2	2275		51707		572	255420		
CO	347							
H20	24	580	2839983			2989456		118254
N2	936		18647744		980700	19629204		
O2			135128		300735	142240		
Ar			17598		18524	18524		
MeOH	513	206						
DME	59							
CAHSOH		205						

	1109	1110	1111	1112	1113	1114	1115	1116
T (C)	593	593	350	350	200	50	50	50
[kg/hr]								
H2		13960	5137	8822	6771		15331	249
CH4		3421	1259	2162	1262		3026	395
CO2	54428	245002	90161	154841	129840		68408	222433
CO		65154	23977	41178	1361		39967	2507
H20	2989456	116966	43044	73923	30200	104123		
N2	19629204	3198	1177	2021	1180		3022	176
O2	142240							
Ar	18524							
MeOH								
DME								
CAHSOH								

	1117	1118	1123	1124	1121
T (C)	30	271	35	578	578
[kg/hr]					
H2	61043	61561			
CH4	166687	168463			
CO2	68790	75601		54428	2721
CO	37570	37917			
H20	251	12428	9	2989456	149473
N2	106617	107552		19629204	981460
O2				142240	7112
Ar				18524	926
MeOH	7874	113392	104763		
DME	3975	5234			
CAHSOH	2	208			

图 13

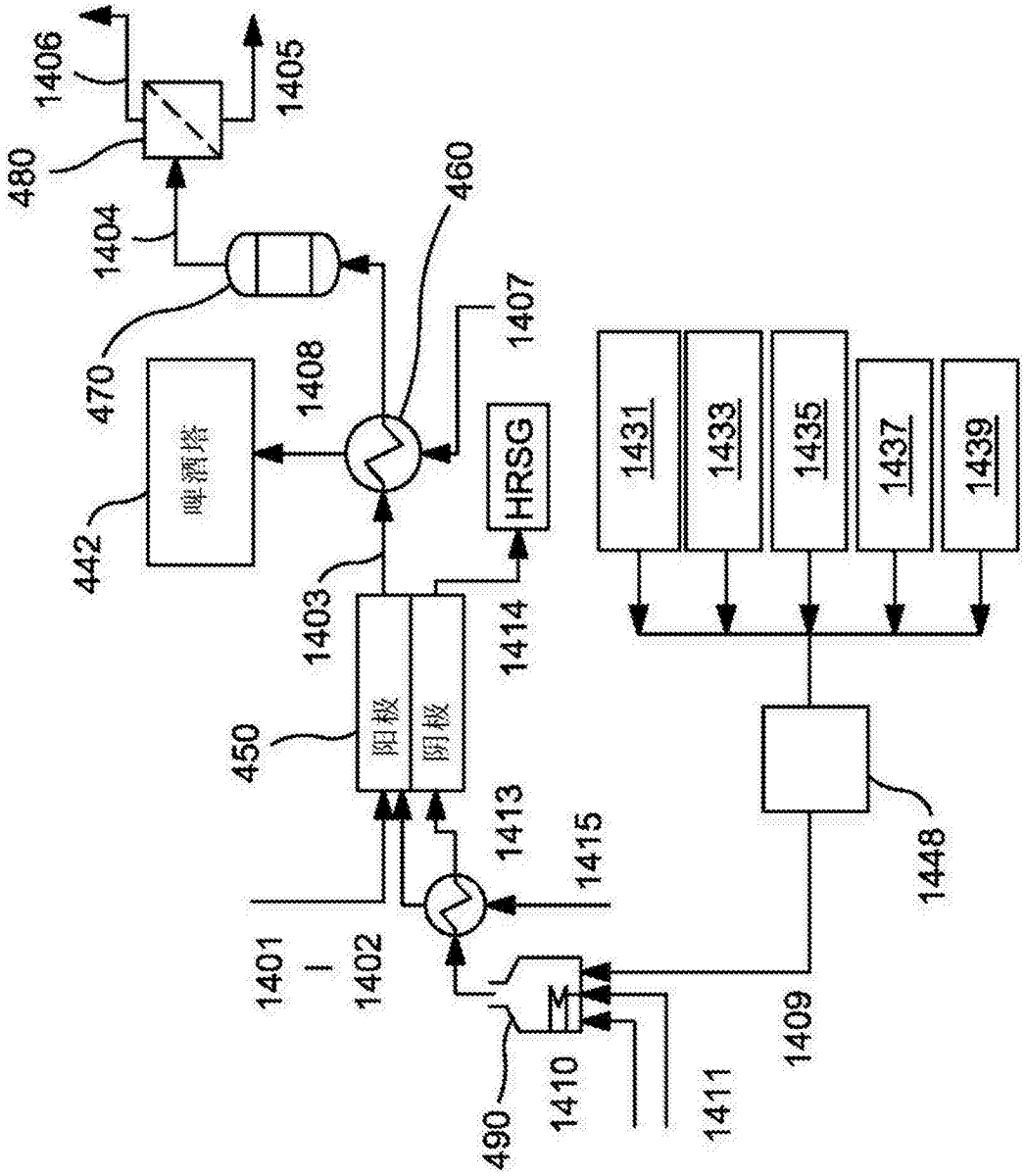

1406
1405
480
1404
460
1407
470
1408
442
啤酒塔
HRSG
1431
1433
1435
1437
1439
1403
1414
450
阳极
阴极
1413
1415
1448
1401
1402
1409
490
1410
1411

图 14

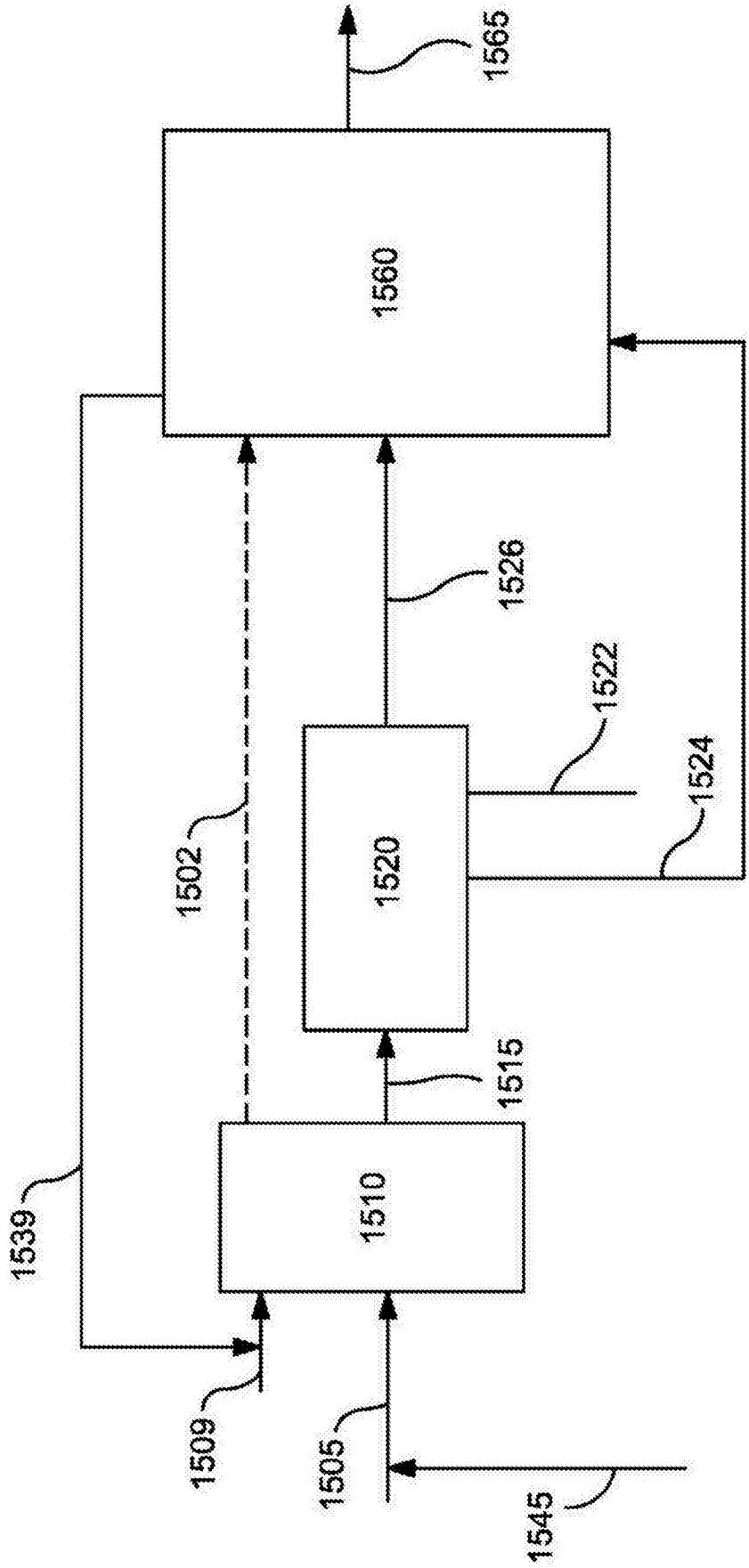

1565
1560
1526
1522
1524
1502
1520
1515
1539
1510
1509
1505
1545

图 15

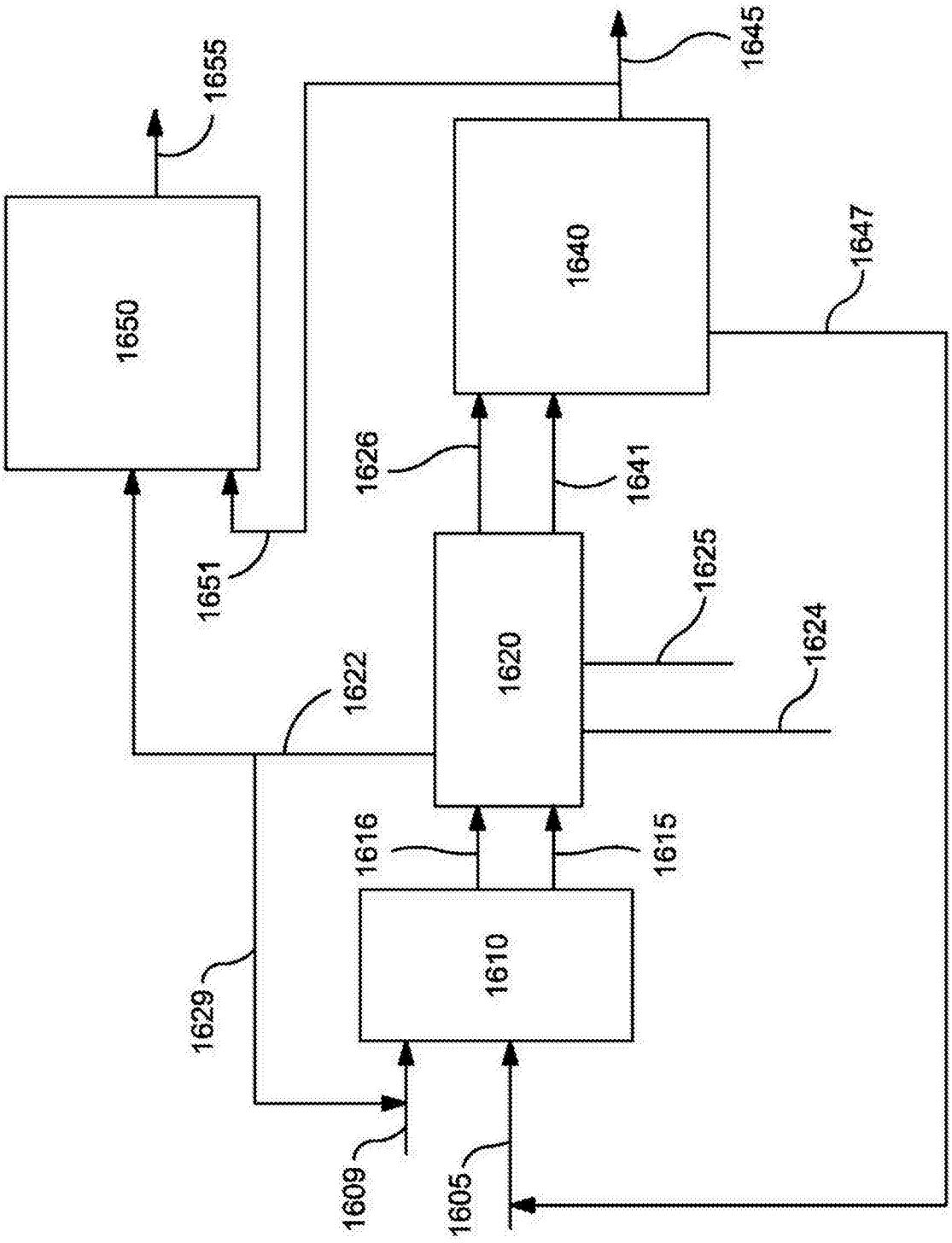

1655
1645
1650
1640
1647
1626
1641
1651
1625
1620
1624
1622
1616
1615
1610
1629
1609
1605

图 16

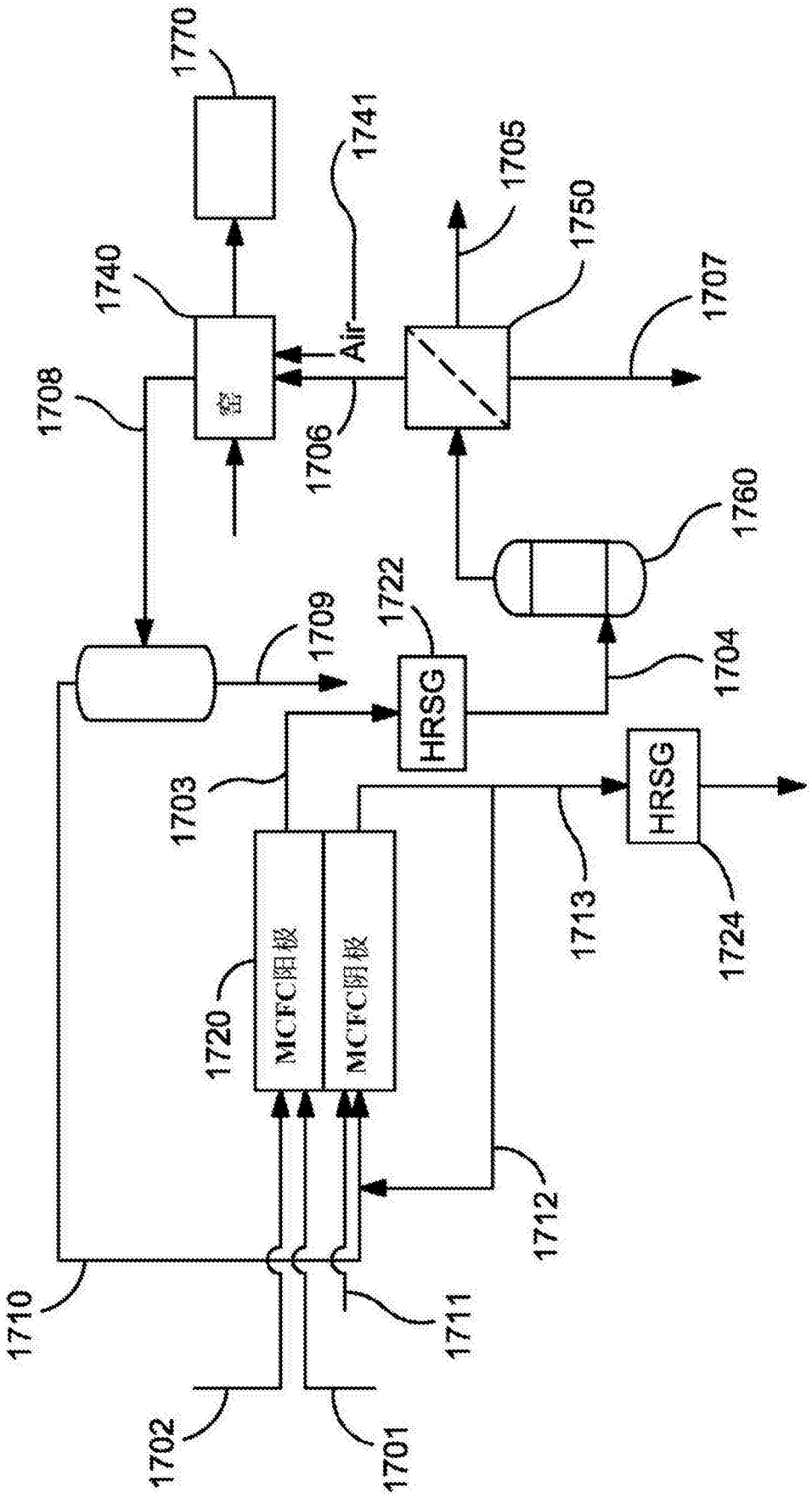

1770
1741
1705
1750
1740
1707
Air
1708
1706
1760
1722
1709
1704
HRSG
1703
HRSG
1713
1724
1720
MCFC阳极
MCFC阴极
1712
1710
1711
1702
1701

图 17

kg/hr	1701	1702	1703	1704	1705	1706	1707
H2			10092	10092		268	13164
CH4	41360		1728	1728		1712	16
CO2			167860	167860		238876	2420
CO			49728	49728		2940	28
H2O		82768	81488	81488	1584	1856	16
N2							
O2							
Ar							

kg/hr	1708	1709	1710	1711	1712	1713
H2						
CH4						
CO2	165660		165650	220	7744	29084
CO						
H2O	105360	94816	10528		2800	10528
N2	367444		367444	397936	203448	765380
O2	7328		7328	122016	21152	79584
Ar	6952		6952	7524	3828	14476

图 18

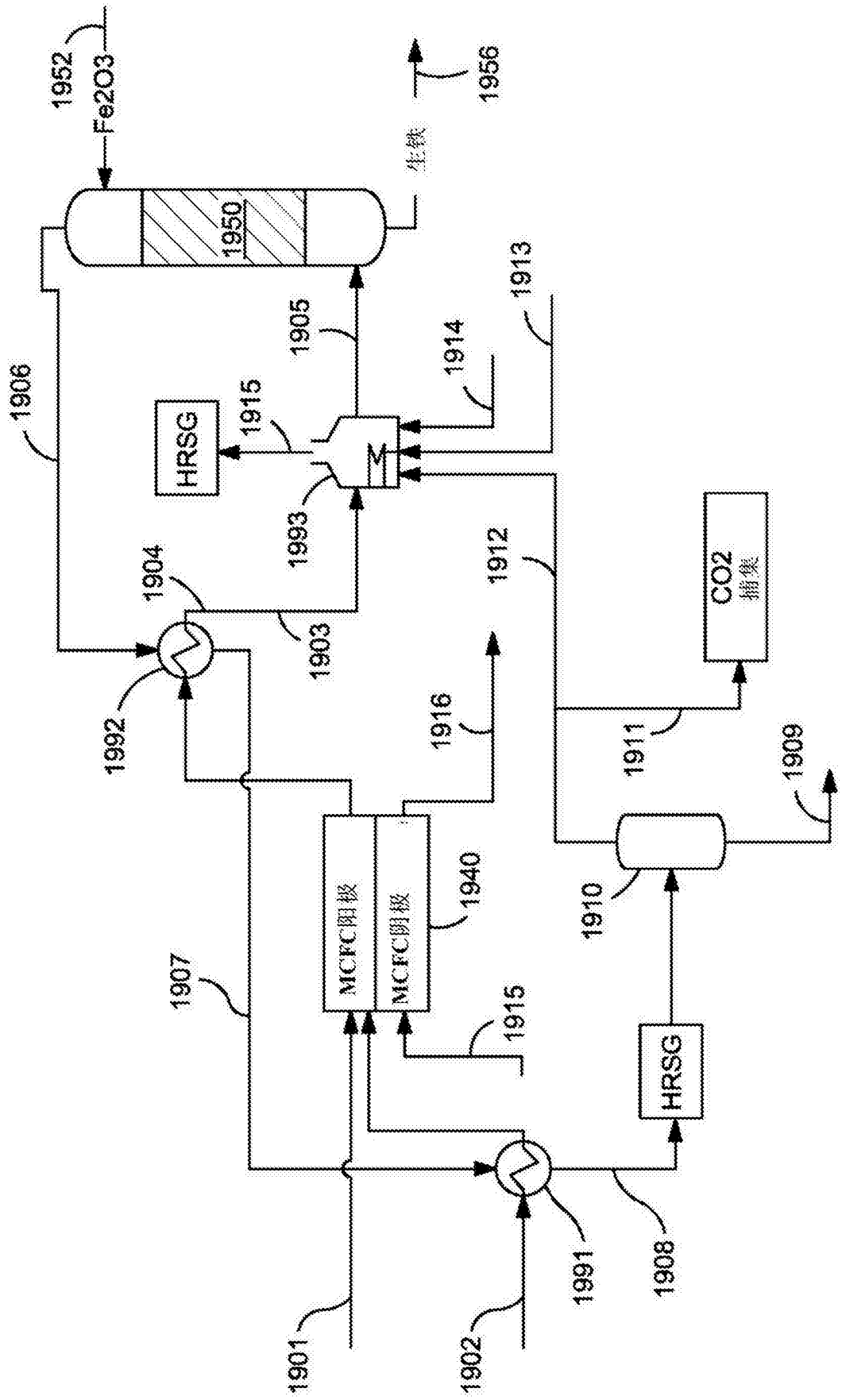

1952
Fe2O3
1956
生铁
1950
1905
1913
1914
1906
1915
HRSG
1993
1904
1912
CO2
捕集
1903
1992
1916
1911
1909
MCFC阴极
MCFC阴极
1940
1910
1907
1915
HRSG
1901
1902
1991
1908

图 19

	1901	1902	1903	1904	1905	1906	1907	1908	1909
T (C)		30	532	616	1200	700	631	523	30
[kg/hr]									
CH4		80510	23487	23487	23487	23432	23432	23432	90
C2H6									
C3H8									
C4H10									
H20	181310		186188	195021	236509	275234	275234	275234	301233
CO2		0	363169	341590	240239	153914	152914	153914	8554
H2		0	13867	12879	8236				
CO		0	38178	51912	116418				
N2									
O2									
Ar									

	1910	1911	1912	1913	1914	1915	1916
T (C)	30	30	30	30	30	1210	536
[kg/hr]							
CH4	23507	8768	14739		1604		
C2H6							
C3H8							
C4H10							
H20	8591	3206	5389			123183	123183
CO2	414702	154684	260018			403899	403899
H2							
CO							
N2							
O2				740742		740742	740742
Ar				224919		15692	15692

图 20

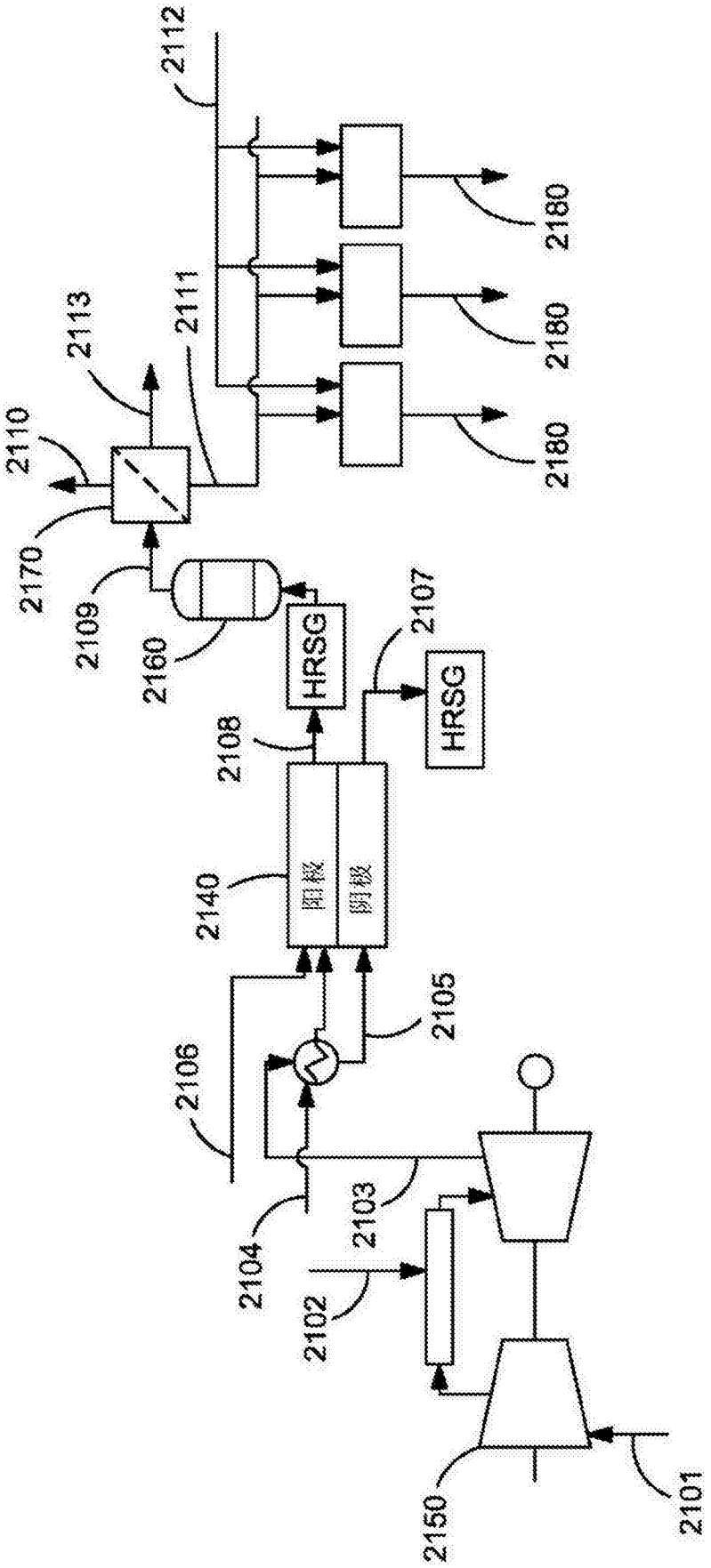

2112
2180
2180
2180
2111
2113
2110
2170
2109
2160
HRSG
2107
HRSG
2108
2140
阳极
阴极
2105
2106
2103
2104
2102
2150
2101

图 21

	2101	2102	2103	2104	2105	2106	2107	2108
T (C)	30	10	150				30	
[kg/hr]								
H2								30847
CH4	318461			126438				5268
CO2			530613		530613		112318	513066
CO								152041
H20			328946		328946	252996	329078	249101
N2		3843305	3843249		3843249		3843352	
O2		1178302	410140		410140		257896	
Ar		72396	72396		72396		72270	

	2109	2110	2111	2112	2113			
T (C)	652	652	592	592	145			
[kg/hr]								
H2	41707		41707					
CH4	5268							
CO2	751989	751989						
CO								
H20	162220				162220			
N2				1012126				
O2				310303				
Ar				19065				

图 22

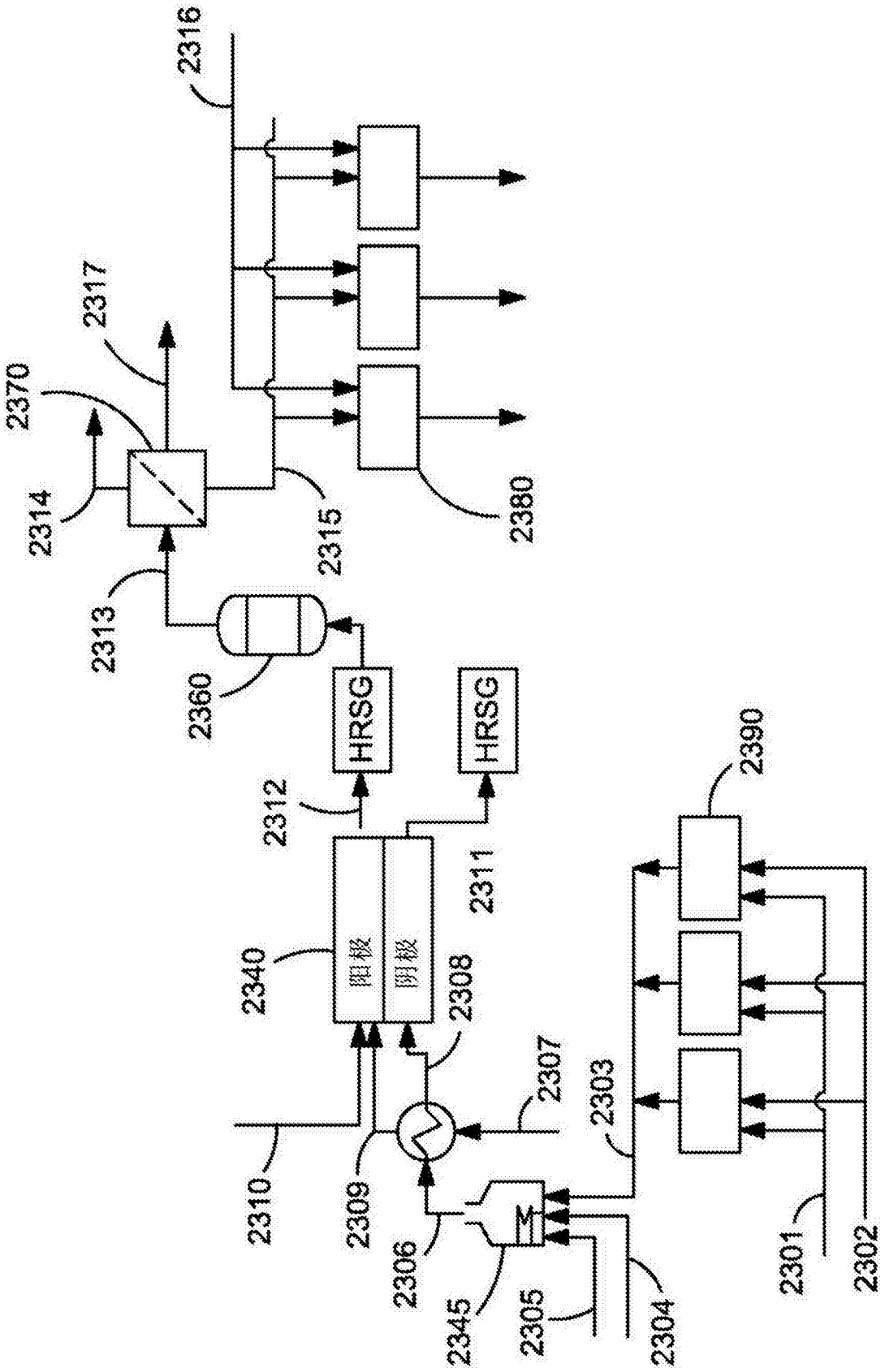

2316
2317
2370
2314
2315
2380
2313
2360
HRSG
HRSG
2312
2311
2340
阳极
阴极
2308
2307
2303
2390
2310
2309
2306
2345
2305
2304
2301
2302

图 23

	2301	2302	2303	2304	2305	2306	2307	2308
T (C)	30	10	150				30	
[kg/hr]								
H2								
CH4	63040						41299	0
CO2			173360			173360		173360
CO			0					
H20			126080			126080		126080
N2		442193	442193			442193		442193
O2		135570	9490			9490		9490
Ar		8330	8330			8330		8330

	2309	2310	2311	2312	2313	2314	2315	2317	2316
T (C)	592	592	592	592	145	30	30	30	10
[kg/hr]									
H2			0	10076	13623		13623		
CH4	41299		0	1721	1721				
CO2			36687	167585	245624	245624			
CO			0	49662					
H20		82637	107488	81365	109743			109743	
N2			1255367		0				330594
O2			84237		0				101355
Ar			23606						6227

图 24

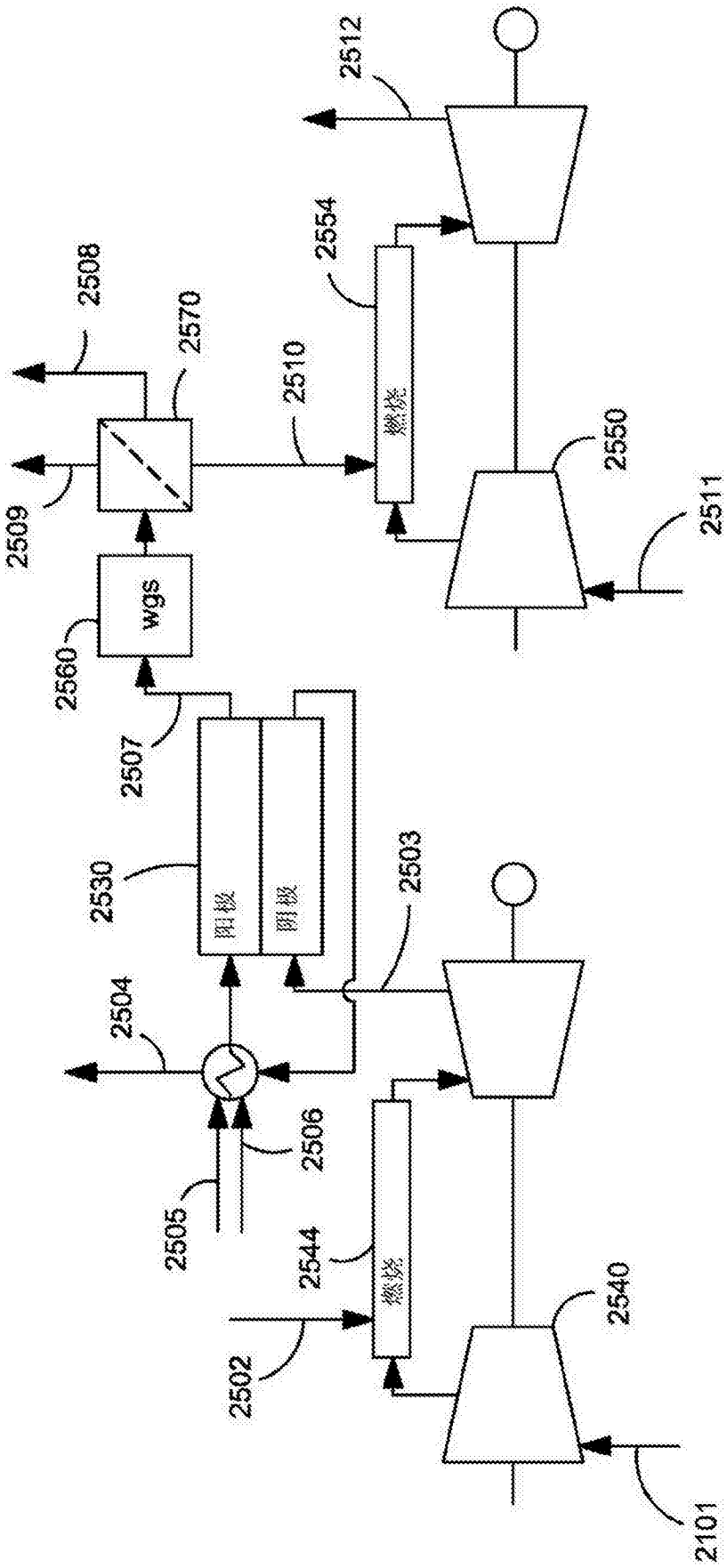

2512
2554
燃烧
2508
2570
2510
2550
2509
2511
wgs
2560
2507
2530
阳极
阴极
2503
2504
2506
2505
2544
燃烧
2540
2502
2101

图 25

事例	含H2轮机	再循环至第一轮机	含H2轮机	再循环至第一轮机	含H2轮机	再循环至第一轮机
燃料利用率（%）	75%	75%	50%	50%	30%	30%
汽碳比	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
排气再循环（%）	35%	35%	35%	35%	35%	35%
水煤气变换反应器	是	是	是	是	是	是
内部重整（%）	20%	20%	20%	20%	20%	20%
MCFC CO2阴极入口浓度 (%)	6.11%	5.72%	6.11%	5.12%	6.54%	4.53%
MCFC CO2阴极排气浓度 (%)	1.5%	1.5%	1.5%	1.5%	1.5%	1.5%
MCFC O2阴极排气浓度 (%)	5.9%	6.2%	5.9%	6.6%	4.7%	6.5%
MCFC电压 (V)	0.70	0.70	0.70	0.70	0.70	0.70
MCFC电流密度 (A/m2)	912	878	974	916	1197	1061
MCFC面积 (k-m2)	184	175	172	144	154	105
CO2捕集（%）	82.0%	80.7%	83.5%	80.0%	83.8%	79.7%
CO2捕集（兆吨/年）	1.76	1.62	1.96	1.55	2.56	1.56
面积/捕集吨数（k-m2*年/兆吨）	104.1	108.0	87.9	93.1	60.3	67.6
CO2排放（来自阴极排气，lbs CO2/MWhr）	153.2	147.8	144.0	160.2	113.3	185.3
阳极进料中的H2:可重整C（摩尔）的比率	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
阳极进料中的N2（%）	0%	0%	0%	0%	0%	0%
阳极蒸汽损耗（penalty）（%）	5.2	4.8	7.8	6.2	14.4	8.7
H2或CO形式的涡轮机燃料%（LHV基础）	0% / 100% *	6.6%	0% / 100% *	16.4%	0% / 95.4% *	34.5%
总净功率 (MW)	589	610	624	571	791	502
电效率 (%)	51.9%	57.7%	50.0%	55.4%	49.2%	48.7%

*格式化为主燃气轮机/H2燃气轮机

图 26