



# (12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 106165173 A

(43)申请公布日 2016. 11. 23

(21)申请号 201580017532.9

罗伯特·坎宁安

(22)申请日 2015.04.09

(74)专利代理机构 北京安信方达知识产权代理有限公司 11262

(30)优先权数据

1406449.7 2014.04.10 GB

代理人 胡秋玲 郑霞

(85)PCT国际申请进入国家阶段日

2016.09.29

(51)Int. Cl.

H01M 8/04(2016.01)

H01M 8/06(2016.01)

(86)PCT国际申请的申请数据

PCT/GB2015/051088 2015.04.09

(87)PCT国际申请的公布数据

W02015/155540 EN 2015.10.15

(71)申请人 LG燃料电池系统公司

地址 美国俄亥俄州

(72)发明人 格拉尔德·D·阿格纽

米凯莱·博佐洛

加里·约翰·桑德斯

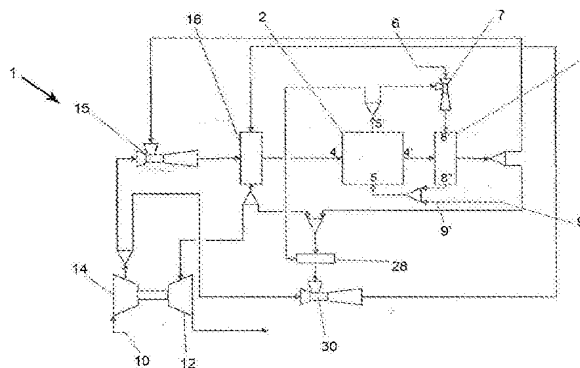
权利要求书1页 说明书5页 附图1页

## (54)发明名称

具有改进的热管理的燃料电池系统

## (57)摘要

本发明公开了并入尾气阳极回路再循环和重整的高温燃料电池系统。燃料电池系统包括燃料电池堆,该燃料电池堆具有用于燃料的阳极进口和用于尾气的阳极出口。再循环设备被配置为接收来自阳极出口的尾气的至少一部分,并且将该部分尾气与来自初级烃燃料流的烃燃料混合,以便形成可重整的混合物。重整器被配置为接收来自再循环设备的可重整的混合物,并且通过重整可重整的混合物来产生重整的燃料流。将次级烃燃料流提供至燃料电池系统,并且将重整的燃料流和次级烃燃料流供应到所述燃料电池堆的阳极进口。



1. 一种高温燃料电池系统,包括:  
燃料电池堆,其具有用于燃料的阳极进口和用于尾气的阳极出口;  
再循环设备,其被配置为接收来自所述阳极出口的所述尾气的至少一部分,并且将所述尾气的所述部分与来自初级烃燃料流的烃燃料混合,以便形成可重整的混合物;  
重整器,其被配置为接收来自所述再循环设备的所述可重整的混合物,并且通过重整所述可重整的混合物来产生重整的燃料流;和  
次级烃燃料流;  
其中将所述重整的燃料流和所述次级烃燃料流供应到所述燃料电池堆的所述阳极进口。
2. 如权利要求1所述的高温燃料电池系统,其中将所述重整的燃料流和所述次级烃燃料流间接地供应到所述阳极进口。
3. 如权利要求2所述的高温燃料电池系统,其中所述重整的燃料流和所述次级烃燃料流在所述重整器的下游经由混合装置来组合。
4. 如任一前述权利要求所述的高温燃料电池系统,其中所述次级烃燃料流与所述重整的燃料流的比率是从约1:5和约1:60。
5. 如任一前述权利要求所述的高温燃料电池系统,其中尾气的所述部分的流速与初级烃燃料流的流速成比例。
6. 如任一前述权利要求所述的高温燃料电池系统,其中尾气的所述部分的流速与初级烃燃料流的流速的比率在从约5:1至约6:1的范围内。
7. 如任一前述权利要求所述的高温燃料电池系统,其中在约3:1至约10:1之间的再循环比提供在约2:1至约3:1之间的蒸汽与初级烃燃料流的比率。
8. 如任一前述权利要求所述的高温燃料电池系统,其中所述重整器是催化重整器。
9. 如权利要求8所述的高温燃料电池系统,其中所述催化重整器的催化剂可以是蒸汽重整催化剂。
10. 如任一前述权利要求所述的高温燃料电池系统,其中所述燃料电池堆包括所述燃料电池堆的阴极出口,所述阴极出口被布置成将热空气从所述燃料电池堆供应到所述重整器。
11. 如权利要求1至10中任一项所述的高温燃料电池系统,其中所述高温燃料电池系统是固体氧化物燃料电池系统。
12. 一种用于操作高温燃料电池系统的方法,所述高温燃料电池系统包括燃料电池堆、再循环设备和重整器,所述燃料电池堆具有用于燃料的阳极进口和用于尾气的阳极出口,其中:  
将来自所述阳极出口的所述尾气的至少一部分供应到所述再循环设备,并且将所述尾气的所述部分与来自初级烃燃料流的烃燃料混合以便形成可重整的混合物;  
将来自所述再循环设备的所述可重整的混合物供应到所述重整器,所述可重整的混合物在所述重整器中被重整成重整的燃料;  
将所述重整的燃料与在所述重整器的下游的另外的烃燃料组合;以及将组合的重整的燃料和另外的烃燃料供应到所述燃料电池堆的所述阳极进口。

## 具有改进的热管理的燃料电池系统

### 发明领域

[0001] 本发明涉及具有改进的热管理的燃料电池系统。具体地,本发明涉及并入尾气阳极回路再循环和重整的高温燃料电池系统。

[0002] 背景

[0003] 燃料电池是电化学转化设备,该设备直接从氧化燃料产生电。

[0004] 包括固体氧化物燃料电池(SOFC)和熔融碳酸盐燃料电池(MCFC)的高温燃料电池系统在非常高的温度下操作,并且可以直接在实际的烃上运行,而不需要复杂和昂贵的外部燃料重整器,所述外部燃料重整器在低温燃料电池中是必需的。某些高温燃料电池可以在使燃料可以在燃料电池内内部地重整的足够高的温度下操作。将参考固体氧化物燃料电池来描述本发明,但应理解的是,本发明可适用于依赖于内部重整的任何高温燃料电池技术。

[0005] SOFC具有阳极回路和阴极回路,阳极回路供应有燃料流(典型地甲烷),并且阴极回路供应有氧化剂流(典型地空气)。SOFC在相对高的温度、典型地约1000°C下操作以保持低的内部电阻。保持如此高的温度是一种挑战,并且降低跨越多个燃料电池例如燃料电池堆的温度梯度是另外的挑战。

[0006] 管理燃料电池堆的温度梯度的一种有用的方法是经由内部燃料重整。

[0007] 如果固体氧化物燃料电池系统通过富氢的常规燃料例如天然气、甲烷、甲醇、汽油、柴油或气化煤供以动力,则重整器通常被用于将烃转化成氢气和称为“重整油”的碳化合物的气体混合物。

[0008] 固体氧化物燃料电池在使燃料能够在燃料电池自身中重整的足够高的温度下操作。这种类型的重整被称为内部重整。使用内部重整的燃料电池仍然需要在未重整的燃料到达燃料电池之前从未重整的燃料中除去杂质的方法,否则碳沉积物可以出现在燃料电池内,引起燃料电池的退化。在固体氧化物燃料电池中的镍金属陶瓷阳极上的内部重整趋向于催化碳的形成。

[0009] 内部蒸汽重整简化了固体氧化物燃料电池堆的平衡,并且改进了操作效率。然而,在固体氧化物燃料电池堆内重整烃燃料具有迄今为止还没有克服的许多问题。在固体氧化物燃料电池堆中的烃燃料的完全内部重整被蒸汽重整反应的强烈的吸热性质和精密的燃料电池的随之发生的热冲击所阻止。

[0010] 燃料电池堆的热管理对于平衡燃料电池性能和燃料电池寿命是重要的。典型地,燃料电池堆在堆的接近氧化剂进口的前部处冷运行,并且在堆的接近氧化剂出口的后部处运行较热。温度梯度是由于由能量损失引起的燃料电池的低效率,能量损失作为欧姆热放出。因此,堆内的每个燃料电池条引起另外的温度上升。

[0011] 当燃料电池堆热运行时,燃料电池堆的性能是良好的,但燃料电池的寿命通过燃料电池的增强的退化而减少。当堆冷运行时,堆的性能是差的,但燃料电池的寿命增加。在燃料电池堆性能和燃料电池堆寿命之间存在平衡,并且因此存在最佳的温度范围,在该温度范围内,燃料电池堆将理想地被操作。

[0012] 本发明的实施方案旨在通过改进燃料电池堆的热管理来缓解上文的某些问题。

[0013] US2007/065687A1公开了包括催化部分氧化(CPO<sub>x</sub>)重整器的固体氧化物燃料电池堆,该催化部分氧化(CPO<sub>x</sub>)重整器布置成向燃料电池堆供应重整油。阳极尾气的一部分被直接再循环到燃料电池堆的阳极进口中,使得到达阳极的燃料是新鲜的重整油和再循环的阳极尾气的混合物,并且在使来自CPO<sub>x</sub>重整器的残余的烃的吸热重整在燃料电池堆内发生的充分高的温度下存在。阳极尾气是热的,在750-800℃的堆温度下,这允许阳极尾气与次级重整油燃料的混合物在干净的催化剂中被混合并且反应,以在没有另外的氧气的情况下重整次级重整油燃料中的高级烃,之后与重整油混合并且发送到燃料电池堆。

[0014] 由于重整反应是吸热的,所以重整热输入的小部分从燃料电池堆中减去,这帮助燃料电池堆的热管理。

[0015] 本公开内容的概述

[0016] 根据第一方面,提供了高温燃料电池系统,所述高温燃料电池系统包括:

[0017] 燃料电池堆,其具有用于燃料的阳极进口和用于尾气的阳极出口;

[0018] 再循环设备,其被配置为接收来自阳极出口的尾气的至少一部分,并且将该尾气的该部分与来自初级烃燃料流的烃燃料混合以形成可重整的混合物;

[0019] 重整器,其被配置为接收来自再循环设备的可重整的混合物,并且通过重整可重整的混合物来产生重整的燃料流;和

[0020] 次级烃燃料流;

[0021] 其中将重整的燃料流和次级烃燃料流供应到燃料电池堆的阳极进口。

[0022] 除了向阳极进口提供重整的燃料流之外,向阳极进口提供次级烃燃料流的益处是,更大比例的烃燃料将在燃料电池堆内重整,因为次级烃燃料在阳极进口处是未重整的。因此,次级烃燃料流在燃料电池堆内吸热地反应。吸热反应有助于冷却所述堆,并且改进穿过燃料电池堆的温度梯度的管理。

[0023] 燃料电池堆通常由串联和/或并联连接的多个较小的燃料电池子单元组成。在操作期间,所述堆常常呈现出跨越燃料电池堆的温度梯度。在燃料电池堆的前部处的燃料电池条在比理想温度更冷的温度下运行,并且在燃料电池堆的后部处的燃料电池条在比理想温度更热的温度下运行。这是由于燃料电池条内的低效率。由于燃料电池的内阻,所有的电化学反应都有点低效率,并且燃料电池中的损失作为热显示。尽管热被环绕燃料电池的空气流部分地吸收,但在燃料电池堆内仍然经历连续的燃料电池条之间的温度梯度。

[0024] 通过将重整的燃料和次级烃燃料流直接提供至燃料电池堆阳极进口,另外的燃料重整能够在燃料电池堆内发生。因此吸热重整反应在燃料电池堆内吸收较多的热,从而冷却燃料电池堆并且管理在整个燃料电池堆中的温度梯度。

[0025] 吸热重整反应的效果在燃料电池子单元内的第一燃料电池中较大。然而,传质在燃料电池堆材料内受限,并且反应产物的逆扩散能够导致吸热重整反应延伸穿过所述堆的大部分并且不是简单地局限于阳极进口。

[0026] 任选地,重整的燃料流与次级烃燃料流在重整器的下游组合,并且被供应到阳极进口。

[0027] 任选地,该部分尾气的再循环流速与初级烃燃料流的流速成比例。

[0028] 当再循环流速(即尾气流速)与初级烃燃料流的流速成比例时,较小比例的尾气流

被再循环到燃料电池堆的阳极进口,导致燃料电池堆内氢气和一氧化碳的较高的分压以及因此燃料电池堆内的改进的燃料可用性。

[0029] 再循环流速与初级烃燃料流的流速的比率对于将初级烃燃料流转化成合成气(即氢气和一氧化碳)是重要的。尾气包括一部分蒸汽以及其它的排出产物。如果再循环比(即尾气比初级烃燃料流)太低,则不利的反应例如碳的形成能够在燃料电池系统的部件例如催化剂反应器、蒸汽重整器、管道或燃料电池上发生。然而,如果再循环比太高,则太多的二氧化碳在系统中产生,这对燃料电池堆的性能是不利的。

[0030] 任选地,次级烃燃料流与重整的燃料流的比率的范围可以是从约1:5和约1:60。

[0031] 任选地,尾气与初级烃燃料流的最佳再循环比可以是在5:1和6:1之间。

[0032] 任选地,从约3:1至约10:1的再循环比可以提供在2:1至3:1之间的蒸汽与初级烃燃料流的比率。再循环比是该部分尾气的流速与初级烃燃料流的流速的比率。

[0033] 任选地,重整器可以是催化重整器。

[0034] 任选地,催化重整器的催化剂可以是蒸汽重整催化剂。

[0035] 任选地,燃料电池堆的阴极出口可以被布置成将热空气从燃料电池堆供应到重整器。

[0036] 次级烃燃料流与重整的烃燃料流的比率可以被选择以在燃料电池堆内实现期望的温度。

[0037] 根据第二方面,提供了用于操作高温燃料电池系统的方法,高温燃料电池系统包括燃料电池堆、再循环设备和重整器,燃料电池堆具有用于燃料的阳极进口和用于尾气的阳极出口,其中:

[0038] 将来自阳极出口的尾气的至少一部分供应到再循环设备,并且将该尾气的该部分与来自初级烃燃料流的烃燃料混合以便形成可重整的混合物;

[0039] 将来自再循环设备的可重整的混合物供应到重整器,可重整的混合物在重整器中被重整成重整的燃料;

[0040] 将重整的燃料与在重整器的下游的另外的烃燃料组合;以及

[0041] 将组合的重整的燃料和另外的烃燃料供应到燃料电池堆的阳极进口。

[0042] 附图简述

[0043] 参考附图,在下文中进一步描述本发明的实施方案,其中:

[0044] 图1示出高温燃料电池系统。

[0045] 详细描述

[0046] 图1示出高温燃料电池系统1的一个实施方案的实施例,高温燃料电池系统1包括燃料电池堆2、燃料再循环设备7、堆阳极进口5、堆阳极出口5'和重整器8。燃料电池堆2还具有阴极进口4和阴极出口4'。阳极出口5'被布置成将来自燃料电池堆2的尾气的第一部分供应到燃料再循环设备7。燃料再循环设备7将尾气的第一部分与初级烃燃料流6组合以形成可重整的混合物。燃料再循环设备7将可重整的混合物供应到重整器8的重整器进口8'。重整器8具有用于重整的燃料的重整器出口8'。

[0047] 另外的烃燃料流9,即次级烃燃料流和重整的燃料流被供应到燃料电池堆2的阳极进口5。

[0048] 在特定的实施方案中,次级烃燃料流9和重整的燃料流在重整器8的下游组合,并

且被供应到阳极进口5。布置在重整器出口8”和阳极进口5之间的第二端口9’提供另外的烃燃料流即次级烃燃料流。次级烃燃料流9与重整的燃料组合，并且组合的次级烃燃料流9和重整的燃料供应阳极进口5。

[0049] 在可选择的实施方案中，第二端口9’可以直接供应阳极进口5，使得次级燃料流和重整的燃料流在燃料电池堆2内混合。

[0050] 高温燃料电池系统1还可以包括燃气涡轮，燃气涡轮包括压缩机14和涡轮12。燃料电池堆2包括至少一个燃料电池，所述燃料电池具有电解质、阳极和阴极。压缩机14被布置成将氧化剂10的至少一部分供应到燃料电池堆2的在阴极进口4处的至少一个固体氧化物燃料电池的阴极，初级烃燃料流6被布置成将燃料供应到燃料电池堆2的至少一个固体氧化物燃料电池的阳极进口5。燃料电池堆2被布置成将来自燃料电池堆2的至少一个燃料电池的阴极出口4’的未使用的氧化剂的第一部分供应到重整器8，并且重整器8向喷射器30供应未使用的氧化剂的一部分。燃料电池堆2向燃料再循环设备7供应来自阳极出口5’的尾气（未使用的燃料）的第一部分。

[0051] 燃料再循环设备7将该部分尾气与初级烃燃料流6组合以形成可重整的混合物，并且燃料再循环设备7向重整器8供应可重整的混合物。重整器具有用于重整的燃料的重整器进口8’和重整器出口8”。

[0052] 尾气与初级烃燃料流的最佳再循环比是在5:1和6:1之间。

[0053] 在3:1至10:1之间的再循环比提供在2:1至3:1之间的蒸汽与初级烃燃料流的比率。再循环比是该部分尾气的流速与初级烃燃料流的流速的比率。

[0054] 提供燃烧室28以用来自重整器8的未使用的氧化剂燃烧尾气的的第一部分。喷射器30携带来自燃烧室28的燃烧产物，并且将燃烧产物供应到热交换器16。热交换器16加热氧化剂（即空气）的一部分，之后氧化剂的该部分进入燃料电池堆2。热交换器16防止有害的燃烧产物例如蒸汽进入燃料电池堆2。

[0055] 氧化剂10的一部分从压缩机14供应到喷射器15，并且来自燃料电池堆2的已经经过重整器8的未使用的氧化剂的第二部分被供应到喷射器15。喷射器15使由压缩机14供应的氧化剂和来自燃料电池堆2的已经经过重整器8的未使用的氧化剂混合，并且将氧化剂和未使用的氧化剂的混合物通过热交换器16供应到燃料电池堆2的阴极进口4。

[0056] 将氧化剂10的第二部分从压缩机14供应到喷射器30，以携带来自燃烧室28的燃烧产物。燃烧产物经由喷射器30再循环到热交换器16。在加热从喷射器15供应到燃料电池堆2的氧化剂进口4的氧化剂之后，将燃烧产物的第一部分从热交换器16供应到燃气涡轮的涡轮12，并且涡轮12被布置成经由轴13驱动压缩机14。发电机32也被涡轮12驱动。将燃烧产物的第二部分从热交换器16供应到燃烧室28。

[0057] 在某些实施方案中，可能的是，将所有的燃烧产物布置成从热交换器16供应到涡轮12。

[0058] 次级烃燃料流与重整的燃料流的比率被选择以提供在燃料电池堆内最佳的另外的重整。提供太高的次级烃燃料流与重整的燃料流的比率导致燃料效率的损失，因为燃料电池的温度将下降到低于理想的操作温度。提供太低的次级烃燃料流与重整的燃料流的比率降低燃料电池堆内的重整反应的效果，并且降低次级烃燃料流的效果。

[0059] 次级烃燃料流与重整的烃燃料流的比率被选择以实现燃料电池堆内期望的温度。

[0060] 在重整器8的下游提供次级烃燃料流9的第二端口9'的益处是,将相对于重整的燃料的较大比例的燃料在燃料电池堆2内进行重整,从而吸热地反应并且冷却燃料电池堆2,并且改进穿过燃料电池堆2的温度梯度的管理。

[0061] 本领域技术人员将清楚的是,关于上文描述的任何实施方案所描述的特征可以在不同的实施方案之间可交换地适用。上文描述的实施方案是用以例证本发明的各个特征的实施例。

[0062] 贯穿本说明书的描述和权利要求,词语“包括”和“包含”及它们的变型意指“包括但不限于”,并且它们不意图(并且不)排除其它部分、添加物、部件、整数或步骤。贯穿本说明书的描述和权利要求,单数涵盖复数,除非上下文另外要求。特别地,在使用不定冠词时,应理解本说明书预期多个以及单个,除非上下文另外要求。

[0063] 结合本发明的特定方面、实施方案或实施例所描述的特征、整数、特性、化合物、化学部分或基团应理解为可适用于本文所描述的任何其它方面、实施方案或实施例,除非与该方面、实施方案或实施例不相容。在本说明书(包括任何附随的权利要求、摘要和附图)中公开的所有特征和/或这样公开的任何方法或过程的所有步骤可以以任何组合来组合,除了其中此类特征和/或步骤中的至少某些相互排斥的组合。本发明不限于任何前述实施方案的细节。本发明扩展至在本说明书(包括任何附随的权利要求、摘要和附图)中公开的特征的任何新颖的特征或任何新颖的组合,或这样公开的任何方法或过程的步骤的任何新颖的步骤或任何新颖的组合。

[0064] 读者的注意被引导到与本说明书同时提交或在此之前提交的与本申请有关的、并且向公众开放以供查阅的所有论文和文献,并且所有此类论文和文献的内容通过引用并入本文。

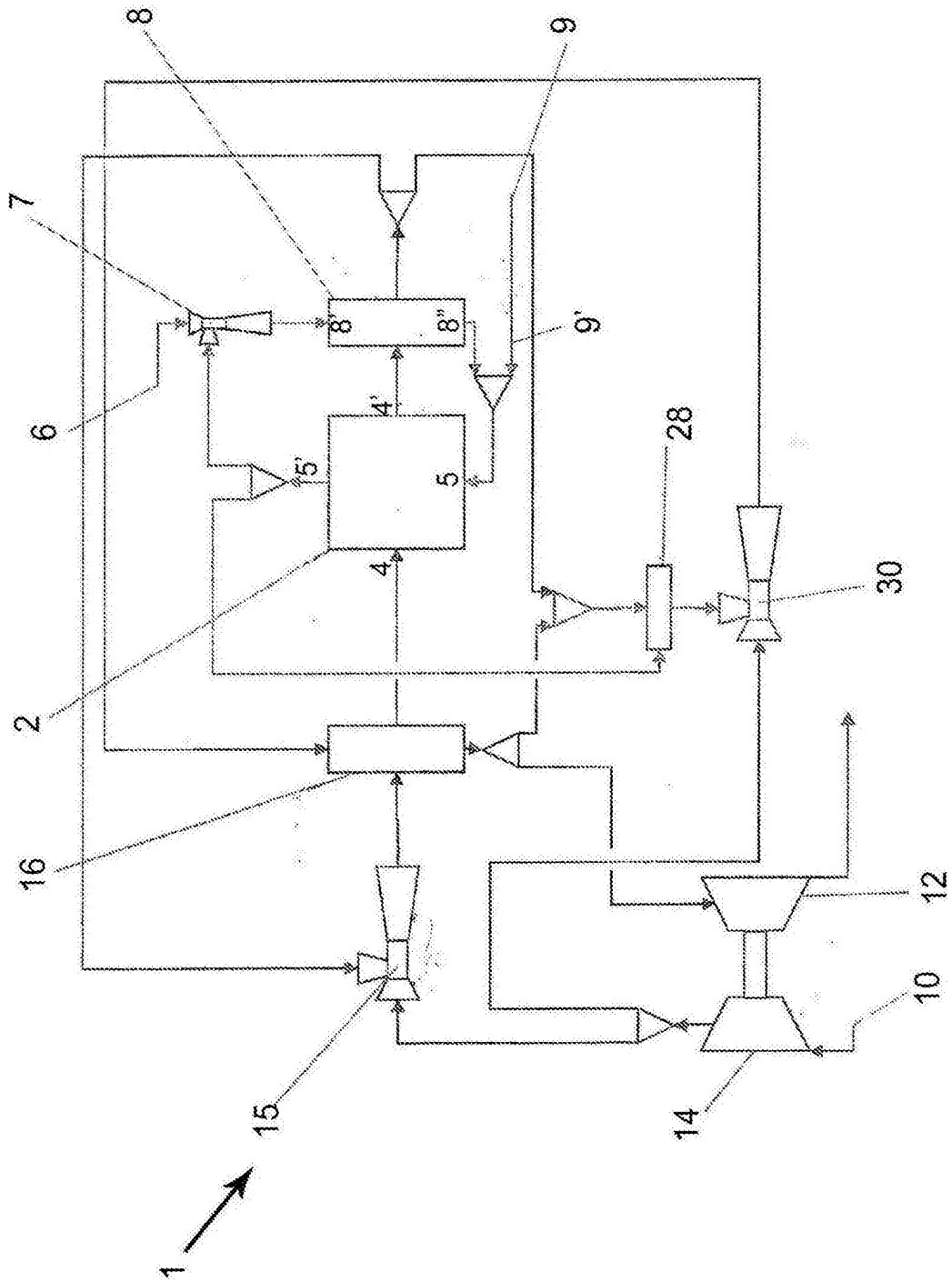


图1